



HAL
open science

Génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané dans des fibres microstructurées à coeur liquide

Margaux Barbier

► **To cite this version:**

Margaux Barbier. Génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané dans des fibres microstructurées à coeur liquide. Autre [cond-mat.other]. Institut d'Optique Graduate School, 2014. Français. NNT : 2014IOTA0011 . tel-01084201

HAL Id: tel-01084201

<https://pastel.hal.science/tel-01084201>

Submitted on 18 Nov 2014

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.

INSTITUT D'OPTIQUE GRADUATE SCHOOL
ÉCOLE DOCTORALE ONDES ET MATIÈRE

DISCIPLINE *Physique*

THÈSE

pour l'obtention du grade de
Docteur en sciences de l'Institut d'Optique Graduate School
préparée au Laboratoire Charles Fabry

soutenue le 13 novembre 2014

par

Margaux BARBIER

Génération de paires de photons corrélés
par mélange à quatre ondes spontané
dans des fibres microstructurées à cœur liquide

Composition du jury :

Directeur de thèse : Philippe DELAYE – Directeur de Recherche, LCF

Rapporteurs : Eleni DIAMANTI – Chargée de Recherche, LTCI
Sara DUCCI – Professeur, Université Paris-Diderot, LMPQ

Examineurs : Fetah BENABID – Directeur de Recherche, Institut Xlim
Gil FANJOUX – Professeur, Université de Franche-Comté, Femto-ST

Président du jury : Isabelle ZAQUINE – Professeur, Télécom ParisTech, LTCI

Membre invité :

Philippe ADAM – Direction Générale de l'Armement

Aux enseignants dont les lumières m'ont guidée jusqu'ici.

*À Gilles, Mireille, Nicolas, Philippe, Sylvie, Minh-Châu,
Liye, Charles, Jérémy et Samuel (dans l'ordre du couloir...).*

À mes parents, à mes grands-parents. Rakastan teitä.

Remerciements

Ce manuscrit me permet de laisser trace des travaux scientifiques auxquels je me suis consacrée durant les trois années écoulées. Quant à tout le reste, à l’aventure humaine en tant que telle, et à ce qui m’a conduite vers cette voie, il ne m’est permis de l’évoquer que dans ces quelques pages préliminaires.

Certains de ceux qui liront ces lignes savent qu’il est dangereux de me laisser carte blanche – expression libre, pourrait-on dire –, parce que j’ai tendance à m’étendre plus que de raison. Ici, je promets (d’essayer) de faire court.

Je me souviens très bien du jour où mon professeur de physique-chimie a écrit pour la première fois au tableau la loi des gaz parfaits : $pV = nRT$. Comme une formule magique qui règle l’équilibre de tout ce qui m’entoure. Moi qui, les années passant, ai toujours trouvé la thermodynamique obscure de ses formules aux paramètres interchangeableables, de ses mots barbares d’entropie, d’enthalpie, de travail qui s’embrouillaient dans ma tête, je suis pourtant persuadée que c’est de cette formule-là, $pV = nRT$, que tout est parti.

Comme un coup de foudre pour la physique.

Et puis il y a les rencontres, celles qui modèlent vos passions, qui font fléchir votre parcours, et vous entraînent là où vous vous trouvez aujourd’hui. Ce fut une poignée d’enseignants passionnés, à qui, pour la plupart, je n’ai pas su dire merci lorsque je le pouvais. Je ne voudrais pas perdre aujourd’hui l’occasion de leur témoigner toute ma gratitude. Car c’est en partie grâce à eux que j’ai aujourd’hui le sentiment d’avoir trouvé ma place, et le luxe d’exercer une activité qui m’enthousiasme.

Dans le même ordre d’idée, et puisque nous nous trouvons à l’Institut d’Optique, je tiens à souligner le rôle essentiel de l’Enseignement Expérimental que j’ai eu la chance de recevoir ici au cours de mes années de formation pré-thèse. Un peu comme un hors-d’oeuvre qui m’aurait ouvert l’appétit. Merci à tous ceux qui font vivre cet Enseignement Expérimental à l’Institut d’Optique, leur patience et leurs efforts sont inestimables. Merci à Alexandre Baron de m’avoir mis sous les yeux et dans les mains mon premier livre et ma première manip d’optique non linéaire. Et merci à Anne de m’avoir accompagnée dans ces salles (parfois obscures), et de partager aujourd’hui encore mes doutes et mes questionnements.

Ce fut un réel honneur pour moi de passer “de l’autre côté de la barrière”, d’être initiée au monde de l’Enseignement Supérieur, côté enseignant. Aussi, je voudrais remercier tous ceux qui m’ont prise sous leur aile. Être moniteur (ou “doctorant-enseignant”), c’est un peu être jeté dans le grand bain sans bouée. Mais grâce à la confiance et la bienveillance de ceux qui savent nager, on s’en sort, et on s’y plaît. On ne veut surtout plus en sortir.

Ces trois années de thèse furent pour moi un plaisir de chaque jour. Les difficultés et désillusions, tant expérimentales que théoriques, sont le lot de tout travail de recherche, et sans elles, le moment crucial de la “manip qui marche”, du déclic dans le cerveau où l’on se dit “Eurêka !” et qui nous fait nous relever en pleine nuit pour noter une idée, perdraient beaucoup de leur saveur. Difficultés ou désillusions que j’ai par ailleurs toujours eu la chance de pouvoir partager avec un directeur de thèse ultra-disponible et toujours ouvert à la discussion. Merci Philippe pour ta patience et tes conseils toujours avisés. Je tiens également à remercier Isabelle Zaquine pour sa gentillesse sans faille et son expertise qui nous a été plus que précieuse dès qu’il s’est agi de compter des photons un à un (quelle idée !). Les discussions que nous avons pu avoir sur l’accord de phase ou sur l’intrication m’ont beaucoup aidée à mieux saisir les enjeux physiques profonds de nos expériences. Je n’oublie pas, loin de là, les interventions amicales inestimables de Robert Frey, qui n’ont jamais manqué d’accroître drastiquement ma prise de recul sur la situation (tant d’un point de vue scientifique que personnel) et de raviver mon enthousiasme.

Au-delà de l’aspect purement scientifique des choses, les années qui viennent de s’écouler ont été l’occasion pour moi de découvrir réellement le monde de la Recherche académique. Je ne remercierai jamais assez les permanents du groupe MANOLIA pour leur disponibilité et leur patience face aux questions naïves dont j’ai pu les assaillir, et surtout pour avoir compris mon besoin d’être intégrée dans la vie du groupe, et plus généralement dans celle du laboratoire. Grâce à eux, je peux témoigner d’un véritable sentiment d’appartenance à cette communauté de chercheurs et d’enseignants-chercheurs qui, je l’espère, acceptera un jour de me faire une place un peu plus durable.

En attendant, je tiens bien entendu à remercier tous ceux qui ont porté intérêt et considération aux travaux qui ont été menés pendant cette thèse, et en particulier Eleni Diamanti et Sara Ducci, qui ont accepté de rapporter ces travaux, ainsi que Fetah Benabid, Gil Fanjoux et Isabelle Zaquine, qui ont répondu favorablement à nos sollicitations pour faire partie de mon jury de thèse. Je remercie également le CNRS et la DGA d’avoir soutenu ces travaux en finançant ma bourse de thèse, et bien évidemment Christian Chardonnet qui, en tant que Directeur du Laboratoire Charles Fabry, a défendu ma candidature pour l’obtention de cette bourse. Merci enfin à Pierre Chavel qui a par trois fois (que ce soit en tant que Conseiller aux Thèses de l’École Doctorale Ondes et Matière ou en tant que Directeur du Laboratoire Charles Fabry) appuyé d’un avis favorable ma demande de ré-inscription en doctorat.

Les gens qui m’ont côtoyée d’assez près doivent avoir une idée de la difficulté que j’ai à poser un point final à ces quelques lignes. Comme chacun sait, les “Remerciements” sont ce que nous écrivons en dernier, pour conclure cette expérience sur son côté “aventure humaine”. Ce point final sera donc aussi celui d’une histoire de rencontres, de rires, de confidences... de moments que j’essaierai de ne pas oublier. Mais quoi qu’il en soit, la confiance et le respect, qui se construisent au fil des jours, ne s’achèvent pas ainsi. Les amitiés perdureront. *Minun on nyt aika lähteä kohti uusia seikkailua. Kaipaam teitä, rakkaat ystäväit... mutta tulen takaisin !¹*

1. Je m’entraîne. ☺

Table des matières

Remerciements	i
Introduction	1
1 Bases de l'optique non linéaire dans les fibres optiques	9
1.1 Introduction à l'optique non linéaire dans les fibres	11
1.1.1 Polarisation linéaire et non linéaire	11
1.1.2 Équation de propagation non linéaire	12
1.1.3 Expression de la polarisation non linéaire d'ordre 3	14
1.1.4 Nonlinéarités dans les fibres optiques	15
1.2 Description classique des processus mis en jeu	17
1.2.1 Automodulation de phase	17
1.2.2 Mélange à quatre ondes	21
1.2.3 Diffusion Raman	31
Conclusion	43
2 Description quantique de la génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané en régime impulsif	45
2.1 Introduction	47
2.1.1 Contexte de l'étude	47
2.1.2 Principe du calcul	48
2.2 Description du milieu non linéaire et du champ de pompe	51
2.3 Dérivation de l'hamiltonien local d'interaction non linéaire	53
2.3.1 Énergie locale d'interaction non linéaire	53
2.3.2 Quantification des champs signal et idler	59
2.3.3 Hamiltonien local d'interaction non linéaire	60
2.4 Fonction d'onde de la paire de photons corrélés	62
2.5 Probabilité de génération d'une paire	66

2.5.1	Densité spectrale de probabilité bidimensionnelle	66
2.5.2	Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique	72
2.5.3	Probabilité de génération d'une paire de photons corrélés	74
Conclusion		77
 3 Génération de paires de photons corrélés dans une fibre à cœur liquide		 81
3.1	Introduction	83
3.2	Caractérisations linéaires et non linéaires préliminaires	87
3.2.1	Mesure de la courbe de dispersion de la fibre à cœur liquide	87
3.2.2	Mesure du coefficient non linéaire de la fibre à cœur liquide	95
3.2.3	Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique	98
3.2.4	Validation expérimentale en régime d'amplification	99
3.2.5	Conclusion	104
3.3	Montage expérimental de détection des paires de photons corrélés	105
3.3.1	Double spectromètre à deux réseaux	105
3.3.2	Système de comptage et de mesure des corrélations temporelles	113
3.3.3	Conclusion	124
3.4	Première démonstration expérimentale de génération de paires de photons corrélés dans une fibre à cœur liquide	125
3.4.1	Choix des longueurs d'onde de travail	125
3.4.2	Mise en évidence du processus de mélange à quatre ondes spontané par la mesure des taux de comptage	129
3.4.3	Mise en évidence de la génération de paires de photons par la mesure des corrélations temporelles	136
3.4.4	Conclusion	139
 Bilan & Perspectives		 141
Vers une source de paires de photons corrélés compacte et de très haute qualité quantique		143
Voies d'améliorations du dispositif & Études en cours		144
Vers l'intrication des paires		146
 Annexes		 149
A	Caractéristiques des trois fibres utilisées dans nos expériences	151
A.1	Fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV	153
A.2	Fibre microstructurée HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée	154
A.3	Fibre microstructurée à cœur creux HC-800-01	155
B	Annexes relatives au Chapitre 2	157
B.1	Représentations de Schrödinger, de Heisenberg et d'Interaction	159

B.2	Transformées de Fourier temporelle et spatiale	162
B.3	Densité volumique d'énergie d'interaction non linéaire	163
C	Annexes relatives au Chapitre 3	165
C.1	À propos de la fluorescence du Ti:Saphir	167
C.2	Dispositif de remplissage de la fibre à cœur liquide	168
C.3	Taux de comptage en régime continu et section efficace différentielle de diffusion Raman de l'acétone deutérée	169
D	Intrication quantique & Paires de photons intriqués	173
D.1	Formalisme mathématique	175
D.2	Un peu d'histoire...	176
E	Article : <i>Frequency-dissymmetric parametric sideband generation in a microstructured fiber</i>	179
F	Liste des communications relatives à ce travail de thèse	191

Bibliographie	195
----------------------	------------

Introduction

Optique non linéaire dans les fibres optiques

Les propriétés optiques des milieux matériels sont décrites par un jeu relativement restreint de paramètres qui, dans les conditions usuelles de la vie quotidienne, peuvent être considérés comme indépendants de l'intensité lumineuse avec laquelle le milieu est éclairé. Ces paramètres permettent alors de décrire un grand nombre de phénomènes familiers à nos sens, comme les arcs-en-ciel, le bleu du ciel, les corrections optiques apportées par les lunettes de vue, etc. Nous nous situons alors dans le cadre de l'optique dite *linéaire*.

En revanche, lorsque le champ électromagnétique appliqué à un milieu matériel devient très intense (par exemple lorsque le milieu est éclairé à l'aide d'une source laser), les paramètres optiques du milieu ne peuvent plus être considérés comme indépendants de l'intensité lumineuse. Nous nous situons alors dans le cadre de l'optique *non linéaire*, et de nouveaux effets optiques sont susceptibles d'être observés, selon la nature du milieu matériel et du champ électromagnétique par lequel il est éclairé.

L'effet non linéaire qui est au centre de ce travail de thèse est le mélange à quatre ondes. Comme nous le verrons au Chapitre 1, c'est un processus non linéaire d'ordre 3, au cours duquel les photons issus d'un faisceau laser intense (appelé faisceau pompe) sont annihilés par paires pour générer simultanément une paire de photons appelés *signal* et *complémentaire* (ou *idler*), d'énergies respectives $\hbar\omega_s$ et $\hbar\omega_i$ dont la somme est égale à la somme des énergies des deux photons de pompe (la condition de conservation de l'énergie étant ainsi respectée au cours du processus).

De manière générale, et en particulier dans le cas du mélange à quatre ondes, l'efficacité des processus non linéaires croît avec la longueur d'interaction et avec l'intensité lumineuse présente dans le milieu. Ainsi, malgré les faibles coefficients non linéaires que présentent généralement les matériaux qui les constituent, les fibres optiques sont des milieux très propices à l'observation d'effets non linéaires efficaces : du fait des faibles pertes de propagation, les longueurs d'interaction peuvent être très grandes (de quelques centimètres à plusieurs dizaines – voire centaines – de kilomètres), et le confinement de la lumière dans des cœurs de très petites dimensions permet d'atteindre des intensités lumineuses extrêmement élevées. C'est la raison pour laquelle l'optique non linéaire dans les fibres est un domaine de recherche très actif depuis plusieurs décennies déjà, comme en témoignent les nombreuses applications qui ont émergé de ce champ de recherche depuis le début des années 1990 : génération de *supercontinuum* [1,2], c'est-à-dire de faisceaux lasers très larges spectralement (pour la spectroscopie [3] ou le multiplexage en longueurs d'onde [4] par exemple), amplification ou conversion de longueurs d'onde et traitement ultra-rapide du signal (exploitant la nature quasi-instantanée du processus de mélange à quatre ondes) grâce aux amplificateurs paramétriques à fibre optique [5–7], etc.

Fibres optiques conventionnelles et microstructurées

Dans les fibres optiques en silice dites *conventionnelles*, le guidage de la lumière est assuré par réflexion totale interne, grâce à la différence d'indice de réfraction entre le cœur et la gaine. La gaine est en général constituée de silice pure, tandis que le cœur est dopé de sorte à accroître son indice de réfraction (on parle dans ce cas de fibre à *saut d'indice*).

Le début des années 2000 a vu l'apparition d'un nouveau type de fibres, regroupées sous le terme de *fibres microstructurées* [8]. Ces fibres ont en commun de présenter une structure transverse plus complexe que les fibres conventionnelles, avec un cœur, solide ou creux, entouré de trous d'air géométriquement espacés (voir figure (Intro.1)). Du fait de la présence des trous d'air, l'indice effectif de la gaine d'une fibre microstructurée à cœur solide est inférieur à l'indice de réfraction du cœur, et le mécanisme de réflexion totale interne modifiée permet d'assurer le guidage de la lumière dans le cœur (de manière analogue au mécanisme de guidage dans une fibre conventionnelle). Dans le cas des fibres microstructurées à cœur creux, en revanche, le guidage est assuré par la périodicité de la structure. La fibre se comporte comme un cristal photonique à deux dimensions (c'est la raison pour laquelle les fibres microstructurées à cœur creux sont aussi appelées *fibres à cristal photonique*) : la périodicité de la structure conduit à l'apparition de bandes de longueurs d'onde "interdites", c'est-à-dire pour lesquelles la propagation ne peut pas avoir lieu dans la structure (autrement dit, dans la gaine). Un champ électromagnétique dont la longueur d'onde appartient à une telle bande interdite restera donc confiné à l'intérieur du défaut de périodicité qu'est le cœur de la fibre [9].

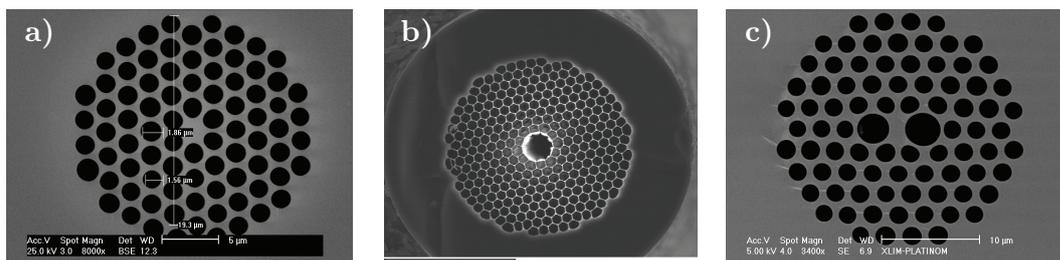


FIG. INTRO.1 – Exemples de structures transverses de fibres microstructurées (photographies par microscope électronique à balayage). (a) Fibre à cœur de silice entourée de trous d'air (photo : Xlim). (b) Fibre à cœur creux de chez NKT Photonics (photo : MANOLIA). (c) Fibre microstructurée biréfringente (photo : Xlim).

L'apparition de ces fibres microstructurées a révolutionné le domaine de l'optique non linéaire dans les fibres. Outre le fait que ces fibres possèdent un cœur (solide ou creux) en général bien plus petit que les fibres conventionnelles (ce qui permet d'accroître significativement les intensités lumineuses accessibles et donc l'efficacité des processus non linéaires), leur structure transverse particulière leur confère des propriétés de dispersion inédites et contrôlables, ouvrant ainsi la voie à l'étude de processus non linéaires variés et originaux.

En effet, comme nous le verrons plus en détails au Chapitre 1, un grand nombre de processus non linéaires nécessitent, pour être efficaces, de respecter la *condition d'accord de phase*, qui dépend essentiellement des propriétés de dispersion du milieu non linéaire. En particulier, il faut que les longueurs d'onde mises en jeu dans le processus soient proches de la longueur d'onde de dispersion nulle du milieu. Dans le cas d'une fibre optique conventionnelle, cette longueur d'onde est fixée à $1,3 \mu\text{m}$ [10]. Dans les fibres microstructurées, en revanche, il est possible d'ajuster la position de la longueur d'onde de dispersion nulle en jouant sur la géométrie de

la microstructuration (diamètre des trous d'air, et distance entre deux trous voisins), et donc d'accéder à des gammes spectrales variées.

Sources de paires de photons corrélés

Les processus non linéaires, et en particulier le mélange à quatre ondes dans les fibres optiques, peuvent être mis à profit pour des applications dans le domaine de l'optique quantique. Le lien entre l'optique non linéaire et l'optique quantique peut paraître contre-intuitif au premier abord, dans le sens où de fortes intensités lumineuses sont nécessaires pour observer des processus non linéaires efficaces tandis que les phénomènes quantiques sont étudiés au niveau du photon unique (ou, plus généralement, sur un très petit nombre de photons). Cependant, en régime de *très faible efficacité non linéaire*, le processus de mélange à quatre ondes est susceptible de conduire à la génération d'un très petit nombre de paires de photons signal et idler, qui vont pouvoir être exploitées d'un point de vue quantique. En effet, la *simultanéité de génération* des deux photons d'une même paire [11–13] confère à ces deux photons des propriétés de corrélations pouvant être mises à profit dans des dispositifs d'optique quantique, en particulier pour produire des états intriqués² [14].

Notons que, puisque seuls les deux photons d'une *même* paire sont corrélés entre eux, il est essentiel de générer les paires *une par une*, autrement dit que toutes les paires soient bien séparées temporellement les unes par rapport aux autres. Supposons par exemple que nous utilisons un faisceau pompe impulsional. L'intensité lumineuse (autrement dit, l'énergie par impulsion) devra être limitée, de sorte que l'efficacité du processus non linéaire soit assez faible, et que chaque impulsion de pompe conduise à la génération d'une seule paire au maximum au cours de sa propagation dans la fibre. Dans le cas où plusieurs paires seraient générées à partir de la même impulsion, le système de détection étant incapable de ré-associer chaque photon signal à *son* photon idler, l'exploitation des propriétés de corrélations des paires serait impossible.

Historiquement, les premières sources de paires de photons corrélés tiraient parti des transitions atomiques à deux photons entre des niveaux d'énergie virtuels ou de très faible temps de vie [15, 16]. Les atomes de calcium (Ca) et de mercure (Hg) furent particulièrement utilisés. Cependant, l'inconvénient majeur de ce type de source est que les deux photons d'une même paire sont émis dans des directions indépendantes, ce qui rend leur détection simultanée très délicate.

Depuis la fin des années 1980, les sources de paires de photons corrélés sont basées sur des processus d'optique non linéaire spontanés. Les travaux de Z. Y. Ou, C. K. Hong et L. Mandel [17, 18] ont ouvert la voie à un travail conséquent basé sur le processus de *fluorescence paramétrique* dans des matériaux non linéaires d'ordre 2. Dans ce type de processus, deux photons (d'énergies $\hbar\omega_s$ et $\hbar\omega_i$) sont émis simultanément, et *dans des directions contrôlées*, à partir de l'annihilation d'un photon de pompe d'énergie $\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i$. Ainsi, si les sources basées sur l'utilisation de cascades atomiques ont permis de réaliser les toutes premières (et célèbres) expériences de violations des inégalités de Bell [19], l'exploitation de la fluorescence paramétrique dans les matériaux non linéaires d'ordre 2 a propulsé l'optique quantique expérimentale dans une nouvelle ère [20]. Les domaines du traitement de l'information quantique [21]

2. La nature et la production de ces états intriqués sont abordées en fin de manuscrit (voir la partie “Bilan & Perspectives”) et l'Annexe D.

et des communications quantiques (cryptographie [22, 23], téléportation [24]...), en particulier, ont connu un essor conséquent. Des réseaux de télécommunications quantiques fibrés ont pu être développés, dans l’objectif de disposer de canaux de transmission de l’information hautement sécurisés [25–28].

Les matériaux non linéaires d’ordre 2 qui ont été mis à profit sont très divers, des cristaux massifs ou périodiquement inversés [29] aux guides semiconducteurs [30–32]. Toutefois, dans le cas précis des réseaux de télécommunications quantiques, la qualité des dispositifs bénéficie grandement de l’utilisation de sources de paires de photons *fibrées*. Ce type d’architecture permet en effet de minimiser les pertes de couplage lors de la connexion de la source aux autres composants (eux-mêmes fibrés) du réseau de télécommunications, puisque les paires de photons sont émises dans le mode transverse fondamental de la fibre. Des sources fibrées basées sur le processus de fluorescence paramétrique dans des fibres en silice périodiquement polarisée (*poled*) ont été proposées [33–35]. Bien que la silice, en tant que solide amorphe, présente une nonlinéarité d’ordre 2 nulle (nous aborderons cette question au Chapitre 1, sous-section 1.1.4), la polarisation (*poling*) confère au matériau une nonlinéarité d’ordre 2 *effective* non nulle, et son inversion périodique rend le processus de fluorescence paramétrique exploitable. Cependant, pour des raisons techniques de fabrication, ces fibres périodiquement inversées sont limitées à des longueurs de l’ordre de quelques centimètres seulement. Les fibres “classiques” (c’est-à-dire non périodiquement inversées, qu’elles soient conventionnelles ou microstructurées) ont l’avantage de pouvoir être exploitées sur des longueurs bien plus élevées. En revanche, il devient nécessaire de faire appel aux nonlinéarités d’ordre 3, et plus particulièrement au processus de mélange à quatre ondes spontané, pour générer les paires de photons corrélés.

PROBLÉMATIQUE : Diffusion Raman dans les sources fibrées en silice

Dès le début des années 2000, les premières études de génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané dans des fibres de silice conventionnelles ou microstructurées ont permis de mettre en évidence le fait que l’émission concomitante de photons par *diffusion Raman spontanée* induisait une dégradation considérable de la qualité quantique de la source [36]. Le gain Raman de la silice étant spectralement très large [10], quelles que soient les longueurs d’onde d’émission des photons signal et idler, des photons Raman (*non corrélés* !) étaient également générés à ces longueurs d’onde. Ces photons de bruit ne pouvaient donc pas être filtrés, et venaient dégrader les performances du dispositif en terme de corrélations quantiques. Ce problème est d’ailleurs commun à toutes les fibres (ainsi que tous les guides d’ondes) constituées de verres (chalcogénures, fluorés...), puisque ces matériaux amorphes ont en commun de présenter un spectre de gain Raman très large [37–39].

L’une des premières approches proposées pour résoudre ce problème fut de refroidir l’ensemble du dispositif à des températures bien plus basses que la température ambiante (77 K [40], voire même 4 K [41]), sachant que l’efficacité du processus de diffusion Raman spontanée décroît fortement quand la température diminue (ce point est traité plus en détails au Chapitre 1, sous-section 1.2.3). L’inconvénient principal de ce type de méthode réside dans la complexité du dispositif expérimental utilisé pour refroidir la source fibrée.

L’utilisation d’une fibre biréfringente peut permettre de réduire l’impact de la diffusion Raman tout en gardant un dispositif compact [36]. Dans ce type de fibres, il est possible d’obtenir des situations d’accord de phase pour lesquelles les photons signal et idler sont générés avec des états de polarisation orthogonaux à celui de la pompe. Les photons Raman étant quant à eux générés majoritairement dans le même état de polarisation que les photons de pompe,

il est possible de séparer les paires de photons corrélés de ces photons de bruit à l'aide d'un simple polariseur en sortie de la fibre. Évidemment, cette solution n'est pas parfaite, car elle ne permet pas d'éliminer tous les photons Raman : une partie (minoritaire mais non négligeable) d'entre eux sont émis avec un état de polarisation orthogonal à celui des photons de pompe, et ne peuvent donc pas être filtrés.

Une autre approche est envisageable dans les fibres microstructurées à cœur de silice : comme nous l'avons déjà dit, les propriétés de dispersion de ce type de fibres peuvent être ajustées en jouant sur la géométrie de la microstructuration. Ainsi, dans certaines de ces fibres, l'accord de phase pour le mélange à quatre ondes peut être réalisé en régime de dispersion normale³ [42–44], alors que ce n'est en général pas possible dans les fibres conventionnelles. La particularité de ce type d'accord de phase est qu'il conduit à des écarts spectraux entre le faisceau pompe et les photons signal et idler émis qui peuvent être très grands. Des écarts supérieurs à 40 THz peuvent ainsi être atteints, écarts pour lesquels le gain Raman de la silice devient négligeable. Cependant, comme les références [43] et [44] le mettent en évidence, la diffusion Raman spontanée multiphononique est encore gênante (dans les références [43] et [44], c'est la diffusion Raman spontanée à 5 phonons qui est mise en cause).

Il est également possible d'exploiter le processus de mélange à quatre ondes non plus dans des fibres optiques, mais dans des guides d'ondes cristallins (par exemple en silicium [45–49]), dans lesquels le spectre de gain Raman n'est pas large (contrairement à celui de la silice) : il se présente sous la forme de raies fines, qui peuvent (en supposant un choix judicieux de la configuration expérimentale, en particulier de la longueur d'onde du faisceau pompe) être mises à distance des longueurs d'onde d'émission des paires de photons corrélés. Cette approche donne des résultats probants en terme de qualité quantique de la source, mais perd l'avantage essentiel de la structure fibrée : les guides d'ondes nécessitent un dispositif de couplage complexe avec les autres composants (fibrés) du réseau de télécommunications quantiques. De plus, les pertes non linéaires induites par la génération de porteurs libres et l'absorption multiphotonique dans ce type de matériaux sont un inconvénient supplémentaire.

NOTRE APPROCHE : Les fibres microstructurées à cœur liquide

L'idée que nous proposons pour nous affranchir du problème de la diffusion Raman spontanée se rapproche, conceptuellement, de l'utilisation des guides d'ondes cristallins, puisqu'il s'agit de remplacer la silice par un matériau présentant des propriétés Raman très différentes (qui sont en revanche proches de celles du silicium). Le point crucial est que nous souhaitons conserver les avantages de la structure fibrée (grandes longueurs d'interaction, petites aires effectives, et minimisation des pertes de couplage lors de la connexion de la source aux autres composants du réseau) ainsi qu'un dispositif global compact et simple de mise en œuvre.

Nous proposons donc d'utiliser une fibre microstructurée à cœur creux remplie d'un liquide non linéaire. Ce type d'architecture fibrée hybride a déjà fait l'objet d'un certain nombre d'études. Les premières concernaient les caractéristiques linéaires de ces fibres, et ont permis de mettre en évidence le fait que la bande spectrale de transmission et la longueur d'onde de dispersion nulle dépendaient non seulement de la géométrie de la microstructuration, mais également de l'indice de réfraction linéaire du liquide utilisé pour remplir la fibre [50]. Il est donc possible de contrôler finement la position de la bande de transmission et du zéro de dispersion

3. Les notions de "régime de dispersion normale" et "régime de dispersion anormale" sont explicitées au Chapitre 1, sous-section 1.2.2.

en jouant sur la valeur de cet indice (par exemple en utilisant des mélanges de liquides).

D'un point de vue non linéaire, les fibres à cœur liquide ont majoritairement fait l'objet d'études concernant la diffusion Raman stimulée⁴ [55–58], et ont conduit à la réalisation de convertisseurs Raman efficaces, spatialement monomodes et spectralement flexibles. Ces convertisseurs mettent à profit d'une part les propriétés Raman particulières des liquides, et d'autre part la flexibilité de l'architecture hybride en terme de positionnement de la bande de transmission de la fibre. La grande majorité des liquides présentent un spectre de gain Raman constitué de raies très fines, et avec un décalage Raman en général relativement important. Il est donc possible d'ajuster la position spectrale de la bande de transmission de sorte à ce que la raie Stokes d'ordre 1 soit située à l'intérieur de la bande de transmission tandis que la raie Stokes d'ordre 2 (ainsi donc que tous les ordres supérieurs) est rejetée en dehors de cette bande (voir figure (Intro.2)). Dans cette configuration, le processus de diffusion Raman stimulée peut être obtenu de manière très efficace dans le premier ordre Stokes, car la cascade Raman vers les ordres supérieurs est bloquée [57].

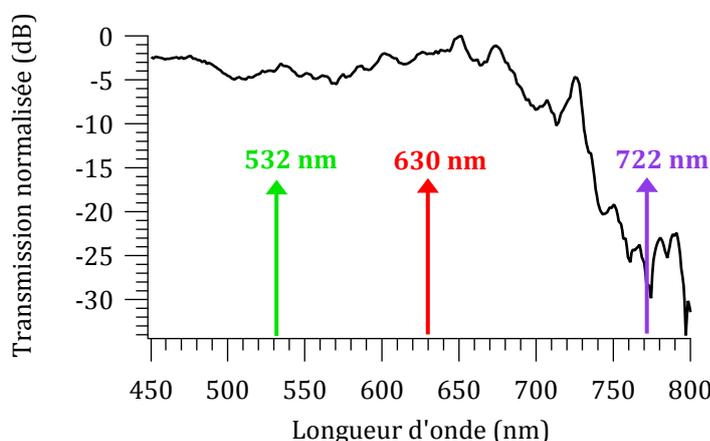


FIG. INTRO.2 – Interruption de la cascade Raman au premier ordre Stokes pour une fibre remplie d'éthanol dans laquelle est injecté un faisceau laser de pompe à 532 nm [57]. Le deuxième ordre Stokes (à 722 nm) est situé en dehors de la bande de transmission de la fibre.

Ce type de mécanisme doit également pouvoir être exploité dans l'objectif d'obtenir des sources de paires de photons corrélés de haute qualité quantique. L'idée très simple consiste à rejeter *tous* les ordres Stokes, *y compris le premier*, en dehors de la bande de transmission, pour empêcher tout processus de diffusion Raman (même spontanée) dans le cœur de la fibre.

L'objectif du travail de thèse présenté dans ce manuscrit est de faire la démonstration expérimentale des potentialités des fibres microstructurées à cœur liquide en tant que sources de paires de photons corrélés de haute qualité quantique. Ce travail, à première vue très expérimental, a également impliqué une étude théorique approfondie.

4. De nombreux effets non linéaires ont également été étudiés dans des fibres à cœur creux remplies de gaz, souvent à haute pression : diffusion Raman stimulée [51], bien sûr, mais également génération de troisième harmonique [52], transparence induite électromagnétiquement et effets de lumière lente [53], compression d'impulsions par effet solitonique [54]... La plupart des dispositifs associés sont relativement complexes à mettre en œuvre, en particulier lorsque les gaz sont maintenus à de fortes pressions (souvent plusieurs bars, voire plusieurs dizaines de bars) dans la fibre.

Organisation du manuscrit

Le Chapitre 1 est consacré à la présentation des concepts de base et des équations essentielles de l'optique non linéaire dans les fibres optiques, et plus particulièrement à la description classique des trois processus qui entrent en jeu dans notre étude : l'automodulation de phase, le mélange à quatre ondes et la diffusion Raman.

Le Chapitre 2 s'intéresse au modèle analytique que nous avons développé dans l'objectif de prédire les performances et les propriétés spectrales de notre source. Ce modèle s'appuie sur une description quantique du processus de mélange à quatre ondes spontané et est adapté au cas d'un faisceau pompe impulsif, étant ainsi en accord avec nos conditions expérimentales.

Le Chapitre 3, enfin, regroupe les résultats expérimentaux obtenus avec une fibre à cœur creux remplie d'acétone deutérée. Une première phase expérimentale a consisté à caractériser les propriétés linéaires et non linéaires de cette fibre. Nous présenterons les techniques et procédures utilisées pour mesurer la courbe de dispersion de la fibre et l'indice de réfraction non linéaire de l'acétone deutérée, et montrerons que les résultats de ces mesures nous permettent, à l'aide du modèle analytique présenté au Chapitre 2, de prévoir les propriétés spectrales d'émission des paires de photons corrélés ainsi que le taux de génération de ces paires. Dans un deuxième temps, nous présenterons le montage expérimental que nous avons réalisé pour la détection des paires de photons corrélés. Ce montage met en jeu un double spectromètre à réseaux (permettant de séparer spatialement les deux photons de chaque paire et de filtrer les – très nombreux – photons de pompe qui n'ont pas été convertis au cours de leur propagation dans la fibre), ainsi qu'un détecteur de photons uniques à chacune des deux extrémités de ce double spectromètre. Enfin, la dernière partie du chapitre est dédiée à la mise en évidence, grâce à ce montage de détection, de la génération de paires de photons corrélés dans la fibre remplie d'acétone deutérée. La possibilité de s'affranchir de la diffusion Raman dans le cœur de la fibre, qui fait tout l'intérêt de cette architecture fibrée à cœur liquide, est également démontrée expérimentalement.

À la fin de ce manuscrit, nous verrons que les résultats obtenus au cours de ce travail de thèse permettent de se projeter vers la réalisation de sources de paires de photons corrélés compactes et de très haute qualité quantique. Nous évoquerons également les divers axes de recherches ouverts par ce premier travail, qui concernent d'une part les voies d'améliorations possibles du dispositif, et d'autre part son exploitation pour la production de paires de photons *intriqués* de haute qualité quantique.

CHAPITRE 1

Bases de l'optique non linéaire dans les fibres optiques

Après avoir introduit brièvement les concepts clés de l'optique non linéaire et identifié les contours délimitant le cadre de l'optique non linéaire dans les fibres optiques, l'objectif de ce chapitre est de décrire les trois processus mis en jeu dans le cadre du travail présenté dans ce manuscrit : l'automodulation de phase, le mélange à quatre ondes et la diffusion Raman.

Sommaire

1.1	Introduction à l'optique non linéaire dans les fibres	11
1.1.1	Polarisations linéaire et non linéaire	11
1.1.2	Équation de propagation non linéaire	12
1.1.3	Expression de la polarisation non linéaire d'ordre 3	14
1.1.4	Nonlinéarités dans les fibres optiques	15
1.2	Description classique des processus mis en jeu	17
1.2.1	Automodulation de phase	17
1.2.1.1	Origine du processus d'automodulation de phase	17
1.2.1.2	Conséquence sur le profil spectral de l'impulsion	18
1.2.2	Mélange à quatre ondes	21
1.2.2.1	Solutions en régime d'amplification	24
1.2.2.2	Condition d'accord de phase	25
1.2.2.3	Gain d'amplification à l'accord de phase	27
1.2.2.4	Cas du régime spontané amplifié	28
1.2.3	Diffusion Raman	31
1.2.3.1	Diffusion Raman spontanée	32
1.2.3.2	Diffusion Raman stimulée (Amplification Raman)	37
1.2.3.3	Diffusion Raman spontanée amplifiée	41
	Conclusion	43

1.1 Introduction à l'optique non linéaire dans les fibres

1.1.1 Polarisation linéaire et non linéaire

Comme évoqué dans le chapitre d'Introduction de ce manuscrit, lorsqu'un milieu matériel est éclairé par un champ électromagnétique intense (par exemple par un faisceau laser), les propriétés optiques du milieu deviennent dépendantes du champ électromagnétique appliqué. Pour décrire plus précisément ce comportement, considérons un milieu diélectrique, constitué d'un ensemble de particules chargées positivement entourées d'un nuage d'électrons, chargé négativement (l'ensemble ayant une charge électrique neutre). Lorsqu'un champ électromagnétique vient éclairer le milieu, chaque particule voit son nuage électronique se déformer et le centre de masse électronique se déplacer sous l'effet de la force de Lorentz. Si le champ électromagnétique est oscillant, le mouvement du centre de masse électronique oscille également : le milieu se comporte ainsi comme un ensemble de dipôles oscillants.

Le nombre de dipôles induits par unité de volume, ou *polarisation* (notée $\vec{\mathcal{P}}(t)$), dépend du champ appliqué $\vec{\mathcal{E}}(t)$. Lorsque le champ appliqué est de faible intensité (c'est-à-dire dans le cadre de l'optique linéaire), la relation entre $\vec{\mathcal{P}}(t)$ et $\vec{\mathcal{E}}(t)$ est linéaire [59] :

$$\vec{\mathcal{P}}(t) = \epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(1)} \vec{\mathcal{E}}(t) \quad (1.1.1)$$

où ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide et $\underline{\underline{\chi}}^{(1)}$ est le tenseur susceptibilité linéaire (tenseur d'ordre 2) du milieu matériel. Cette équation permet de visualiser le fait que la dépendance temporelle de la polarisation du milieu est identique à celle du champ électrique appliqué : si ce champ oscille à la pulsation¹ ω , $\vec{\mathcal{P}}(t)$ oscillera également à la pulsation ω , autrement dit rayonnera un champ électrique qui oscillera lui-même à la pulsation ω . La pulsation du rayonnement émis est donc nécessairement égale à la pulsation de l'onde incidente.

Dans le cadre de l'optique non linéaire, c'est-à-dire lorsque l'intensité du champ appliqué est forte, l'équation (1.1.1) n'est plus valable : la description rigoureuse de la réponse optique du milieu passe par le développement de la polarisation $\vec{\mathcal{P}}(t)$ en série de puissances du champ [59] :

$$\begin{aligned} \vec{\mathcal{P}}(t) &= \epsilon_0 \left[\underline{\underline{\chi}}^{(1)} \vec{\mathcal{E}}(t) + \underline{\underline{\chi}}^{(2)} \vec{\mathcal{E}}^2(t) + \underline{\underline{\chi}}^{(3)} \vec{\mathcal{E}}^3(t) + \dots \right] \\ &= \vec{\mathcal{P}}^{(1)}(t) + \vec{\mathcal{P}}^{(2)}(t) + \vec{\mathcal{P}}^{(3)}(t) + \dots \\ &= \vec{\mathcal{P}}^{(1)}(t) + \vec{\mathcal{P}}_{\text{NL}}(t) \end{aligned} \quad (1.1.2)$$

où $\underline{\underline{\chi}}^{(2)}$, $\underline{\underline{\chi}}^{(3)}$, etc. sont les tenseurs susceptibilités non linéaires d'ordre 2, d'ordre 3, etc. (la susceptibilité non linéaire d'ordre n étant un tenseur de rang $n + 1$). $\vec{\mathcal{P}}^{(1)}(t)$ représente la polarisation linéaire (que l'on retrouve dans l'équation (1.1.1)), $\vec{\mathcal{P}}^{(2)}(t)$ et $\vec{\mathcal{P}}^{(3)}(t)$ les polarisations non linéaires d'ordre 2 et 3, etc.

Il est intéressant de noter, à partir de cette équation (1.1.2), que la dépendance temporelle de la polarisation du milieu matériel n'est plus simplement identique à celle du champ incident.

1. Rigoureusement, la *pulsation* (ou *fréquence angulaire*) ω est reliée à la *fréquence* ν selon $\omega = 2\pi\nu$. Dans la suite de ce manuscrit, il m'arrivera souvent de parler de la "fréquence" ω , abus de langage communément admis tant en électromagnétisme qu'en physique quantique. Gardons cependant en mémoire que les paramètres de la "famille" ω (notés ω , Ω , $\delta\omega$, $\Delta\omega$, $\Delta\Omega$, etc.) s'expriment en rad/s, et que les valeurs exprimées en Hz feront référence à des grandeurs de type $\omega/(2\pi)$, $\Omega/(2\pi)$, $\Delta\omega/(2\pi)$, etc.

Supposons que l'on éclaire le milieu par un champ monochromatique oscillant à la fréquence ω :

$$\vec{\mathcal{E}}(t) = [E(\omega)e^{-i\omega t} + \text{c.c.}] \vec{e} \quad (1.1.3)$$

où c.c. représente le complexe conjugué et \vec{e} l'état de polarisation du champ. Alors la polarisation non linéaire d'ordre 2 prend la forme suivante :

$$\vec{\mathcal{P}}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(2)} \vec{e} \vec{e} [2|E(\omega)|^2 + (E^2(\omega)e^{-2i\omega t} + \text{c.c.})] \quad (1.1.4)$$

La polarisation non linéaire d'ordre 2 est donc composée d'un terme statique, qui rayonnera un champ électrique statique (c'est ce qu'on appelle le processus de *rectification optique*), et d'un terme oscillant à la fréquence 2ω , qui rayonnera donc un champ électrique à la fréquence double de celle du champ incident (c'est le processus de *génération de seconde harmonique*).

De manière générale, nous voyons que la polarisation non linéaire peut être la source de nouvelles composantes fréquentielles du champ électromagnétique, et plus généralement de toute une zoologie de processus non linéaires, qui dépendent de l'ordre de la polarisation non linéaire considérée ainsi que des composantes fréquentielles du champ incident. Ce rôle essentiel de la polarisation non linéaire comme *terme source* est explicitement mis en évidence dans l'équation de propagation des ondes électromagnétiques en régime non linéaire, comme nous allons le voir dans la sous-section suivante 1.1.2.

1.1.2 Équation de propagation non linéaire

L'équation de propagation des ondes électromagnétiques en régime non linéaire permet de décrire la manière dont les différentes composantes du champ électromagnétique présent dans le milieu matériel interagissent, par l'intermédiaire de la polarisation non linéaire du milieu, pour donner naissance aux différents processus non linéaires que nous sommes susceptibles de rencontrer. La dérivation de cette équation de propagation à partir des équations de Maxwell est réalisée en détails dans de nombreux ouvrages de référence (voir par exemple [59]). Elle conduit de manière générale² à la forme temporelle suivante :

$$\Delta \vec{\mathcal{E}} - \frac{n_0^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{P}}_{\text{NL}}}{\partial t^2} \quad (1.1.5)$$

où n_0 est l'indice de réfraction linéaire du milieu.

Cette équation prend donc la forme d'une équation d'onde inhomogène, avec un second membre non nul qui agit comme un terme source. Les solutions de cette équation s'expriment comme la somme d'une onde libre, solution générale de l'équation d'onde homogène (sans second membre), et d'une onde forcée, solution particulière de l'équation inhomogène, induite par le terme source (la polarisation non linéaire).

Nous supposons dans la suite que le champ électrique et la polarisation non linéaire peuvent être représentés par la somme discrète de l'ensemble de leur composantes fréquentielles, selon :

$$\vec{\mathcal{E}}(t) = \sum_n \vec{E}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (1.1.6)$$

$$\vec{\mathcal{P}}_{\text{NL}}(t) = \sum_n \vec{P}_{\text{NL}}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (1.1.7)$$

2. Cette forme simple de l'équation de propagation non linéaire dans le domaine temporel est rigoureusement valable dans le cas d'un milieu isotrope et non dispersif.

où la somme est réalisée sur l'ensemble de fréquences ω_n positives et négatives³.

Dans le domaine fréquentiel, l'équation de propagation prend la forme suivante :

$$\Delta \vec{E}(\omega) + \frac{n_0^2(\omega)\omega^2}{c^2} \vec{E}(\omega) = -\mu_0 \omega^2 \vec{P}_{\text{NL}}(\omega) \quad (1.1.8)$$

Si l'on considère des ondes planes, et que l'on note z la direction de propagation (supposée commune à toutes les ondes), les amplitudes complexes $\vec{E}(\omega)$ et $\vec{P}_{\text{NL}}(\omega)$ peuvent être écrites sous la forme :

$$\vec{E}(z; \omega) = A(z; \omega) e^{ik(\omega)z} \vec{e} \quad (1.1.9)$$

$$\vec{P}_{\text{NL}}(z; \omega) = \vec{p}_{\text{NL}}(z; \omega) e^{ik_F(\omega)z} \quad (1.1.10)$$

où $k(\omega)$ et $k_F(\omega)$ sont respectivement les modules des vecteurs d'onde de l'onde libre et de l'onde forcée à la fréquence ω , et $A(\omega)$ et $\vec{p}_{\text{NL}}(\omega)$ sont les enveloppes du champ qui oscille à la fréquence ω et de la polarisation non linéaire qui rayonne à la fréquence ω .

Ainsi, en termes d'enveloppes, et dans le cadre de l'approximation des enveloppes lentement variables [59], l'équation de propagation non linéaire (1.1.8) s'écrit :

$$\frac{\partial A(z; \omega)}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n_0(\omega)\epsilon_0 c} [\vec{p}_{\text{NL}}(z; \omega) \cdot \vec{e}] e^{i\Delta k(\omega)z} \quad (1.1.11)$$

avec $\Delta k(\omega) = k_F(\omega) - k(\omega)$. Δk représente le *désaccord de phase* entre l'onde libre et l'onde forcée.

Dans le cas où $\vec{p}_{\text{NL}}(z; \omega)$ peut être considéré comme indépendant de z (approximation paramétrique), l'équation (1.1.11) ci-dessus est très simple à résoudre. En prenant comme condition initiale $A(z=0; \omega) = 0$, et en rappelant que l'intensité de l'onde à ω s'exprime comme :

$$I(z; \omega) = 2n_0(\omega)\epsilon_0 c |A(z; \omega)|^2 \quad (1.1.12)$$

on obtient :

$$I(z; \omega) = \frac{\omega^2}{2n_0(\omega)\epsilon_0 c} |\vec{p}_{\text{NL}}(\omega) \cdot \vec{e}|^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k(\omega)}{2} z\right) z^2 \quad (1.1.13)$$

avec $\text{sinc}(x) = \sin(x)/x$.

Lorsque que le désaccord de phase $\Delta k(\omega)$ entre l'onde libre et l'onde forcée est non nul, $I(z; \omega)$ suit une évolution sinusoïdale qui peut s'interpréter comme une succession d'états d'interférences alternativement constructives et destructives entre l'onde libre et l'onde forcée. En revanche, si l'onde libre et l'onde forcée sont en accord de phase ($\Delta k(\omega) = 0$), l'interférence est toujours constructive, et $I(z; \omega)$ croît quadratiquement avec z (tant que l'on reste dans le cadre de l'approximation paramétrique). L'onde à la fréquence ω ne peut donc être générée efficacement que si $\Delta k(\omega)$ est très faible (typiquement, si $\Delta k(\omega)z \ll 1$)⁴.

Pour résoudre complètement l'équation de propagation non linéaire, quelle que soit la nature du ou des champs incidents (et éventuellement en dehors de l'approximation paramétrique), il est nécessaire d'établir l'expression de la polarisation non linéaire qui intervient dans cette équation. Cette question est abordée dans la sous-section suivante (sous-section 1.1.3) pour le cas particulier de la polarisation non linéaire d'ordre 3.

3. Par convention, nous pourrions noter $\vec{E}^*(\omega_n) = \vec{E}(-\omega_n)$, où $*$ représente le complexe conjugué.

4. À noter également que cette génération efficace ne peut avoir lieu que si $\vec{p}_{\text{NL}}(z; \omega) \cdot \vec{e}$ est non nul, ce qui signifie que l'onde libre et l'onde forcée ne doivent pas avoir des états de polarisation orthogonaux.

1.1.3 Expression de la polarisation non linéaire d'ordre 3

Nous verrons dans la sous-section suivante (sous-section 1.1.4) que les processus non linéaires qui concernent le travail présenté dans ce manuscrit sont des processus d'ordre 3. Ces processus peuvent être décrits dans le domaine temporel à partir de la polarisation non linéaire d'ordre 3 telle qu'elle est présentée dans l'équation (1.1.2) *uniquement si le milieu matériel est non dispersif et sans pertes*, ce qui correspond au cas où les éléments du tenseur susceptibilité non linéaire d'ordre 3 sont réels et indépendants de la fréquence. Dans le cas le plus général, cependant, le tenseur susceptibilité non linéaire d'ordre 3 est une grandeur complexe qui dépend de la fréquence, et il est donc nécessaire de travailler dans le domaine fréquentiel, pour traiter chaque composante fréquentielle du champ et de la polarisation non linéaire séparément.

Les éléments du tenseur susceptibilité non linéaire d'ordre 3 (qui, rappelons-le, est un tenseur d'ordre 4) à la fréquence ω seront notés $\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega)$. Alors, l'amplitude complexe de la polarisation non linéaire d'ordre 3 à ω est liée aux composantes fréquentielles du champ selon [59] :

$$\vec{P}^{(3)}(z; \omega) = \epsilon_0 \sum_{\{mno\}} \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega; \omega_m, \omega_n, \omega_o) \vec{E}(z; \omega_m) \vec{E}(z; \omega_n) \vec{E}(z; \omega_o) \quad (1.1.14)$$

et sa composante spatiale i ($= X, Y$ ou Z), c'est-à-dire sa projection sur l'un des axes du repère cartésien (X, Y, Z) , est donnée par :

$$P_i^{(3)}(z; \omega) = \epsilon_0 \sum_{jkl} \sum_{\{mno\}} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega; \omega_m, \omega_n, \omega_o) E_j(z; \omega_m) E_k(z; \omega_n) E_l(z; \omega_o) \quad (1.1.15)$$

Les indices j, k et l peuvent être égaux à X, Y ou Z , et la mise entre crochets des indices m, n et o traduit le fait que la somme correspondante est réalisée sur l'ensemble des triplets de fréquences $\{\omega_m, \omega_n, \omega_o\}$ tels que $\omega_m + \omega_n + \omega_o = \omega$ (premier argument du tenseur $\chi_{\equiv}^{(3)}$, séparé des autres par un point-virgule par convention).

Notons que le tenseur susceptibilité non linéaire d'ordre 3 possède 81 composantes $\chi_{ijkl}^{(3)}$, mais que les propriétés de symétrie structurale du matériau (en particulier dans le cas des matériaux cristallins) réduisent en général fortement le nombre de composantes qui sont à la fois non nulles et indépendantes les unes des autres [60].

Enfin, lorsque la somme sur l'ensemble des triplets de fréquences possibles est réalisée, les propriétés de symétrie du tenseur susceptibilité non linéaire d'ordre 3 font apparaître un facteur de dégénérescence D dont la valeur dépend du nombre de champs discernables intervenant dans l'équation (1.1.14) [59, 60] :

- $D = 1$ si les trois champs sont indiscernables,
- $D = 3$ si deux des trois champs sont indiscernables,
- $D = 6$ si les trois champs sont discernables,

sachant que deux champs sont dits discernables s'ils ont des fréquences, des états de polarisation et/ou des directions de propagation différents.

Pour chaque processus non linéaire d'ordre 3 que nous souhaiterons étudier (voir sous-section suivante 1.1.4), nous partirons de la forme générale (1.1.14) de $\vec{P}^{(3)}(\omega)$ pour résoudre l'équation de propagation non linéaire (1.1.11) et expliciter ainsi la manière dont les différentes ondes électromagnétiques mises en jeu interagissent dans le milieu non linéaire.

1.1.4 Nonlinéarités dans les fibres optiques

Comme mentionné dans le chapitre d'Introduction de ce manuscrit, les fibres optiques sont des milieux très propices à l'observation d'effets non linéaires efficaces, car elles offrent de très grandes longueurs d'interaction et permettent de confiner la lumière sur de très petites aires effectives (ce qui conduit à de très fortes intensités lumineuses). Mais quels sont les processus non linéaires susceptibles d'être observés dans une fibre optique ?

De manière générale, les processus non linéaires peuvent être classés par *ordre de nonlinéarité* : les processus dits d'ordre n résultent de l'interaction entre $n + 1$ ondes électromagnétiques présentes dans le milieu (éventuellement non discernables) par l'intermédiaire de la polarisation non linéaire d'ordre n (autrement dit mettant en jeu la susceptibilité non linéaire d'ordre n du milieu). Les processus non linéaires d'ordres 2 et 3 sont très généralement prédominants.

Cependant, lorsque le milieu non linéaire considéré possède un centre d'inversion⁵, comme c'est le cas, en particulier, pour les solides amorphes (comme la silice) et les liquides, la susceptibilité non linéaire d'ordre 2 est nulle : aucun processus non linéaire d'ordre 2 ne peut avoir lieu [59]. C'est le cas en particulier dans les fibres optiques, qu'elles aient un cœur de silice ou un cœur liquide : ainsi, les seuls processus non linéaires mis en jeu dans le cadre du travail présenté dans ce manuscrit sont des processus d'ordre 3.

Les processus non linéaires d'ordre 3 qui sont susceptibles d'avoir lieu peuvent être regroupés en deux grandes catégories :

1. les processus dits *élastiques*⁶, pour lesquels aucun transfert d'énergie n'a lieu entre le milieu matériel et les ondes électromagnétiques qui s'y propagent. Ces processus ne font intervenir que la *partie réelle* de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3⁷ ;
2. les processus dits *inélastiques*, faisant intervenir un transfert d'énergie entre les ondes et le milieu par résonance à deux photons. Inversement, ces processus ne font intervenir que la *partie imaginaire* de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3.

La première catégorie peut elle-même être scindée en deux sous-catégories :

- les processus conduisant à l'apparition de nouvelles ondes dans le milieu, grâce à un transfert d'énergie de la part de la (ou des) onde(s) incidente(s). Puisqu'ils sont d'ordre 3, ces processus mettent nécessairement en jeu quatre ondes électromagnétiques (éventuellement dégénérées), comme le met en évidence l'équation (1.1.14) : les ondes à ω_m , ω_n , ω_o et $\omega = \omega_m + \omega_n + \omega_o$ ⁸. Pour cette raison, ils sont regroupés sous le terme générique de *processus de mélange à quatre ondes*.
- les processus qui induisent des modifications spectrales (typiquement un élargissement spectral) de la (ou des) onde(s) incidente(s) sans modification de son (leur) énergie (donc sans apparition de nouvelles ondes dans le milieu). Ces processus résultent de la dépendance de l'indice de réfraction du milieu matériel avec l'intensité lumineuse qu'il reçoit

5. De tels milieux sont dits *centro-symétriques*.

6. La terminologie "élastique" et "inélastique" est adoptée par G.P. Agrawal (voir la référence [10], p.15-16). R.W. Boyd parle quant à lui de processus "paramétriques" et "non paramétriques" (voir référence [59], p.13-14), en soulignant le fait que l'origine de cette terminologie est "obscur".

7. C'est d'ailleurs la raison pour laquelle on peut considérer que le milieu est sans pertes lorsque la susceptibilité non linéaire est purement réelle...

8. Rappelons que, par convention, ces fréquences peuvent être positives ou négatives.

(phénomène que l'on nomme *effet Kerr optique*⁹). L'une de leurs principales caractéristiques est que, contrairement aux processus de mélange à quatre ondes, ils satisfont automatiquement la condition d'accord de phase (cf. sous-section 1.1.2) et sont donc naturellement efficaces.

La seconde catégorie regroupe en particulier¹⁰ les processus de diffusion inélastique stimulés. Dans les fibres optiques, les deux processus à prendre en compte sont la *diffusion Raman stimulée* et la *diffusion Brillouin stimulée*, qui résultent de l'interaction, renforcée par l'intermédiaire de la polarisation non linéaire d'ordre 3, des ondes électromagnétiques avec les modes de vibration des molécules constituant le milieu traversé : les *phonons*.

- La diffusion Raman correspond au processus de diffusion de la lumière par les *phonons optiques*, c'est-à-dire par les modes de vibrations associés aux fluctuations de la polarisabilité des molécules constituant le milieu (cf. sous-section 1.2.3 ci-après).
- La diffusion Brillouin correspond au processus de diffusion de la lumière par les *phonons acoustiques*, c'est-à-dire par les modes de vibrations associés aux fluctuations de la densité du milieu.

De même que les processus liés à l'effet Kerr optique, et contrairement aux processus de mélange à quatre ondes, la diffusion Raman et la diffusion Brillouin stimulées ont la particularité de satisfaire automatiquement la condition d'accord de phase. Pour notre part, les situations expérimentales que nous rencontrerons mettront en jeu un champ électromagnétique incident impulsionnel, avec des durées d'impulsions de l'ordre de la picoseconde typiquement. La durée de vie des phonons acoustiques étant de l'ordre de la nanoseconde [60], donc très supérieure à ces durées d'impulsions, le processus de diffusion Brillouin sera complètement négligeable. La diffusion Raman, en revanche, devra être prise en compte, car la durée de vie des phonons optiques est beaucoup plus faible (de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes dans la silice, et de l'ordre de la picoseconde dans les liquides).

Dans la section suivante, nous abordons plus en détails les trois processus qui entrent en jeu dans notre étude :

- l'automodulation de phase, qui résulte de l'effet Kerr optique ;
- le mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence, avec un faisceau pompe unique à la fréquence ω_p et deux ondes nouvelles générées aux fréquences $\omega_s < \omega_p$ et $\omega_i > \omega_p$ en satisfaisant simultanément la condition de conservation de l'énergie ($2\omega_p = \omega_s + \omega_i$) et la condition d'accord de phase (voir sous-section 1.2.2) ;
- la diffusion Raman.

9. Cette dénomination fait référence à l'effet Kerr électro-optique, découvert en 1875 par John Kerr, et selon lequel l'indice de réfraction d'un milieu matériel subit une variation proportionnelle au carré de l'amplitude du champ électrique *statique* (ou quasi-statique) qu'on lui applique.

10. L'absorption à deux photons est également un processus non linéaire d'ordre 3 résonant à deux photons (comme son nom l'indique), mais est totalement négligeable dans le cadre de notre étude (les matériaux non linéaires considérés, que ce soit la silice ou les liquides, présentent des coefficients d'absorption à deux photons extrêmement faibles dans les gammes de longueurs d'onde que nous étudions).

1.2 Description classique des processus mis en jeu

1.2.1 Automodulation de phase

Le processus d'automodulation de phase résulte de la dépendance de l'indice de réfraction du milieu matériel avec l'intensité lumineuse qu'il reçoit, et se manifeste lorsque le milieu est éclairé par un champ électromagnétique *impulsionnel*. Il se traduit par une modification des propriétés spectrales des impulsions sans modification de leur profil temporel.

1.2.1.1 Origine du processus d'automodulation de phase

Supposons que l'on injecte dans une fibre optique un faisceau laser à la fréquence ω polarisé suivant \vec{e} . D'après l'équation (1.1.14), et sachant que les seules fréquences présentes dans le milieu (et qui peuvent donc intervenir dans la somme $\sum_{\{mno\}}$) sont ω et $-\omega$ (par l'intermédiaire du complexe conjugué de $\vec{E}(\omega)$), on a :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega) \cdot \vec{e} = 3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} |E(\omega)|^2 E(\omega) \quad (1.2.1)$$

avec :

$$\begin{aligned} \chi_{eff}^{(3)} &= \vec{e} \cdot \left(\underline{\underline{\chi}}^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \right) \\ &= \vec{e} \cdot \left(\underline{\underline{\chi}}^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \right) \\ &= \vec{e} \cdot \left(\underline{\underline{\chi}}^{(3)}(\omega; -\omega, \omega, \omega) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \right) \end{aligned} \quad (1.2.2)$$

En termes d'enveloppes (voir l'équation (1.1.10)), nous obtenons donc :

$$\left(\vec{p}^{(3)}(\omega) e^{ik_F z} \right) \cdot \vec{e} = 3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} |A(\omega)|^2 A(\omega) e^{ikz} \quad (1.2.3)$$

ce qui montre (par identification) que $k_F = k$, autrement dit que la condition d'accord de phase est automatiquement satisfaite, comme mentionné dans la section précédente.

Enfin, l'équation de propagation non linéaire s'écrit donc (à partir de l'équation (1.1.11)) :

$$\frac{\partial A(z; \omega)}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n_0(\omega)\epsilon_0 c} 3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} |A(z; \omega)|^2 A(z; \omega) \quad (1.2.4)$$

Si l'on suppose le milieu non dispersif et sans pertes, on peut ajouter que le profil temporel de l'impulsion qui se propage dans la fibre ne doit pas être modifié au cours de la propagation. Cela signifie en particulier que $|A(z; \omega)|^2$ est indépendant de z , et l'équation (1.2.4) ci-dessus devient extrêmement simple à résoudre. Nous obtenons :

$$A(z; \omega) = A(0; \omega) e^{i\Phi_{NL}(z)} \quad (1.2.5)$$

où $\Phi_{NL}(z)$ est le *déphasage non linéaire* accumulé au cours de la propagation sur une distance z , donné par :

$$\Phi_{NL}(z) = \frac{3\chi_{eff}^{(3)}}{4n_0^2(\omega)\epsilon_0 c} I \omega \frac{z}{c} \quad (1.2.6)$$

où I est l'intensité lumineuse, donnée par $I = 2n_0\epsilon_0c|A|^2$. Remarquons que l'hypothèse d'un milieu sans pertes implique que $\chi_{eff}^{(3)}$ est réel¹¹, et $\Phi_{NL}(z)$ est donc bien réel lui aussi.

Par analogie avec l'expression du déphasage linéaire $\Phi_L(z)$ accumulé par une onde à la fréquence ω se propageant sur une distance z dans un milieu d'indice de réfraction (linéaire) n_0 , qui est donné par $\Phi_L(z) = kz = n_0\omega z/c$, nous comprenons bien que l'introduction de ce déphasage non linéaire $\Phi_{NL}(z)$ peut être interprété comme la conséquence d'une dépendance de l'indice de réfraction du milieu avec l'intensité lumineuse : l'indice de réfraction est en fait de la forme :

$$n = n_0 + n_2I \quad (1.2.7)$$

où le paramètre n_2 , appelé *indice de réfraction non linéaire*, est donné par :

$$n_2 = \frac{3\chi_{eff}^{(3)}}{4n_0^2(\omega)\epsilon_0c} \quad (1.2.8)$$

1.2.1.2 Conséquence sur le profil spectral de l'impulsion

Pour comprendre les conséquences du processus d'automodulation de phase sur le profil spectral des impulsions injectées dans la fibre optique, il faut tout d'abord se rappeler que, puisque le faisceau laser que nous considérons est impulsif, l'intensité lumineuse *dépend du temps* : elle suit le profil temporel des impulsions. Le déphasage non linéaire accumulé au cours de la propagation d'une impulsion sur une distance z est donc, lui aussi, dépendant du temps, et suit lui aussi le profil temporel de l'impulsion.

Or, puisque le champ électrique peut être écrit sous la forme :

$$\vec{\mathcal{E}}(z;t) = \left(A(z=0;t) e^{i(kz-\omega t+\Phi_{NL}(z;t))} \right) \vec{e} \quad (1.2.9)$$

et que l'enveloppe A varie lentement devant la période d'oscillation du champ à l'intérieur de l'impulsion (nous considérons des impulsions picosecondes à des longueurs d'onde optiques), il est relativement intuitif de voir que la fréquence *instantanée* d'oscillation du champ au sein de

11.

$$\begin{aligned} \frac{\partial I(z;\omega)}{\partial z} = 0 &\Leftrightarrow \frac{\partial |A(z;\omega)|^2}{\partial z} = 0 \\ &\Leftrightarrow \frac{\partial A(z;\omega)}{\partial z} A^*(z;\omega) + c.c. = 0 \\ &\Leftrightarrow \frac{i\omega}{2n_0(\omega)\epsilon_0c} 3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} (|A(z;\omega)|^2)^2 + c.c. = 0 \\ &\Leftrightarrow \frac{i\omega}{2n_0(\omega)\epsilon_0c} 3\epsilon_0 (|A(z;\omega)|^2)^2 \left(\chi_{eff}^{(3)} - \chi_{eff}^{(3)*} \right) = 0 \\ &\Leftrightarrow \chi_{eff}^{(3)} = \chi_{eff}^{(3)*} \\ &\Leftrightarrow \chi_{eff}^{(3)} \in \mathbb{R} \end{aligned}$$

l'impulsion après propagation sur une distance z est donnée par :

$$\Omega(z; t) = \omega - \frac{\partial \Phi_{\text{NL}}(z; t)}{\partial t} \quad (1.2.10)$$

$$= \omega - \frac{n_2 \omega z}{c} \frac{dI(t)}{dt} \quad (1.2.11)$$

$$= \omega - \gamma \frac{dP(t)}{dt} z \quad (1.2.12)$$

où $P(t)$ est la puissance lumineuse instantanée et γ est le *coefficient non linéaire* de la fibre, donné par :

$$\gamma = \frac{n_2 \omega}{c A_{\text{eff}}} \quad (1.2.13)$$

avec A_{eff} l'aire effective d'interaction, qui est égale, dans le cas où le milieu non linéaire est une fibre monomode, à l'aire effective du mode fondamental de la fibre¹².

Les équations (1.2.10) à (1.2.12) montrent que, tout au long de la propagation, la fréquence instantanée restera inchangée au niveau du maximum de l'impulsion (où $dI(t)/dt = 0$) mais subira un décalage proportionnel à $-n_2 z$ (donc vers les basses fréquences, ou *red-shift*) sur le front avant de l'impulsion (où $dI(t)/dt > 0$) et un décalage proportionnel à $+n_2 z$ (donc vers les hautes fréquences, ou *blue-shift*) sur le front arrière ($dI(t)/dt < 0$). Autrement dit, le spectre est enrichi de nouvelles fréquences : il s'élargit progressivement au cours de la propagation dans le milieu non linéaire. Plus précisément, après propagation sur une distance z , cet élargissement est proportionnel au déphasage non linéaire maximal $\Phi_{\text{NL,max}}(z) = \gamma P_{\text{crête}} z$ accumulé au maximum de l'impulsion au cours de sa propagation sur cette distance z (voir figure (1.2.1)). Comme nous le verrons au Chapitre 3, la mesure de cet élargissement permet de déterminer le coefficient non linéaire γ , et donc la valeur de l'indice de réfraction non linéaire n_2 du matériau.

À titre d'exemple, les deux spectres donnés en figure (1.2.1) sont des résultats expérimentaux obtenus dans une fibre microstructurée à cœur de silice ($n_2 = 2,7 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$) d'aire effective $A_{\text{eff}} = 4 \mu\text{m}^2$, de longueur de l'ordre de 1 m (dont les principales caractéristiques sont présentées en Annexe A.1), en injectant des impulsions de profil temporel sécante hyperbolique à la longueur d'onde de 815 nm, avec une puissance crête de l'ordre de 350 W (fournies par un laser Ti:Saphir). Le coefficient non linéaire de la fibre vaut donc $\gamma = 0,05 \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$ et le déphasage non linéaire maximal accumulé sur toute la longueur de la fibre est de l'ordre de 5π . L'élargissement spectral par automodulation de phase est nettement visible entre le spectre mesuré en entrée et le spectre mesuré en sortie de la fibre. La photographie MEB¹³ de la coupe transverse de la fibre considérée est également donnée en figure (1.2.1).

12. De manière générale, l'aire effective d'interaction dans un guide d'ondes (en particulier dans une fibre optique) est définie selon (voir référence [10], équation (2.3.30)) :

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

où $F(x, y)$ représente la distribution modale transverse en amplitude.

Dans nos expériences, les ondes électromagnétiques se propagent dans le mode fondamental (gaussien) d'une fibre optique, et A_{eff} peut être simplifié en $A_{\text{eff}} \sim \pi w^2$, où w est la largeur à $1/e$ du profil de distribution modale transverse (gaussienne). Enfin, l'ensemble des longueurs d'onde mises en jeu dans nos expériences étant toujours relativement proches les unes des autres (incluses dans des plages spectrales de quelques dizaines de nanomètres de large seulement), nous pourrions considérer que l'aire effective d'interaction est la même pour toutes les ondes se propageant dans la fibre.

13. Microscope Électronique à Balayage

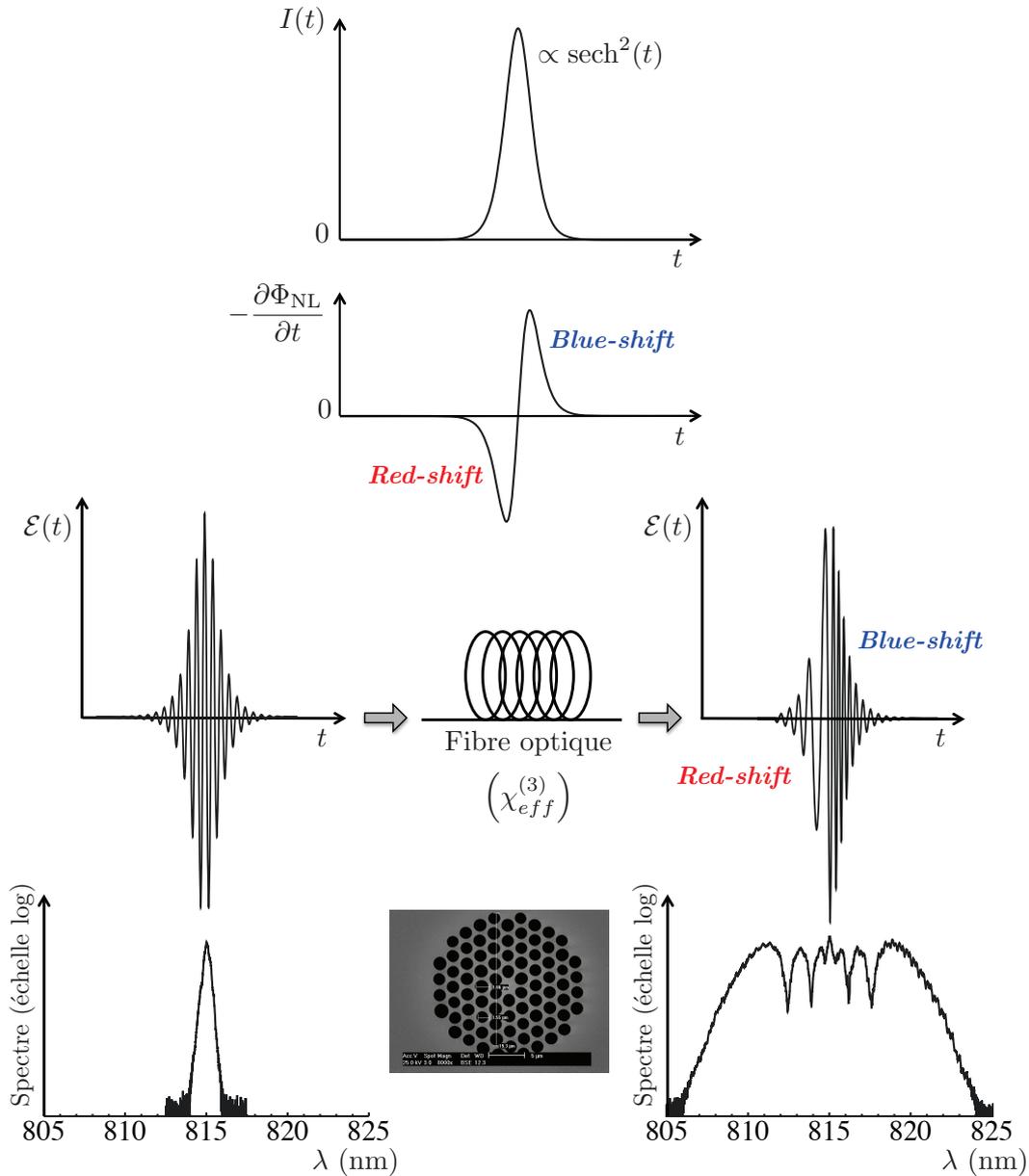


FIG. 1.2.1 – Les deux premières courbes représentent la dépendance temporelle de l'intensité lumineuse ($I(t)$) et du décalage fréquentiel ($-\partial\Phi_{NL}/\partial t$), dans le cas d'un profil temporel sécante hyperbolique. Les oscillations du champ ($\mathcal{E}(t)$) et le spectre des impulsions (en échelle logarithmique) sont représentés en entrée et en sortie d'un milieu non linéaire d'ordre 3 (les spectres sont des résultats expérimentaux, obtenus dans la fibre dont la coupe transverse est donnée ici en photographie MEB – voir Annexe A.1). Le processus d'automodulation de phase se traduit par une dérive de fréquence dans le domaine temporel (mais sans modification du profil temporel : l'enveloppe temporelle est inchangée), et par un élargissement dans le domaine spectral.

1.2.2 Mélange à quatre ondes

Comme mentionné dans la sous-section 1.1.4, le processus de mélange à quatre ondes met en jeu quatre ondes (comme son nom l'indique) qui échangent leur énergie par l'intermédiaire du milieu non linéaire d'ordre 3 qu'elles traversent (sans toutefois échanger d'énergie avec ce milieu). Schématiquement, les trois types de transfert d'énergie qui peuvent survenir sont représentés par les diagrammes d'énergie de la figure (1.2.2).

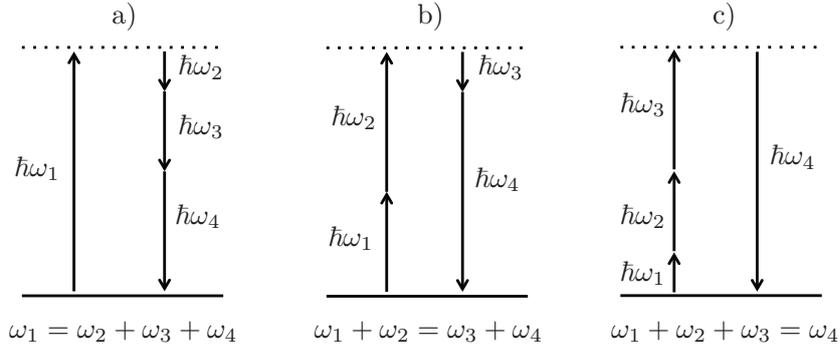


FIG. 1.2.2 – Diagrammes d'énergie représentant les trois types de mélange à quatre ondes.

Nous nous intéresserons pour notre part à un transfert d'énergie de type b), pour lequel deux ondes de forte intensité à ω_1 et ω_2 vont céder une partie de leur énergie aux ondes à ω_3 et ω_4 , dont l'intensité initiale est très faible, voire nulle. Plus précisément, la situation qui nous intéresse met en jeu une unique onde de forte intensité (dite *onde de pompe*) à la fréquence ω_p ($= \omega_1 = \omega_2$), et l'on parle dans ce cas de mélange à quatre ondes *dégénéré en fréquence*. Les deux ondes générées et/ou amplifiées sont appelées *onde signal* (à la fréquence $\omega_s < \omega_p$) et *onde complémentaire*, ou *idler* (à la fréquence $\omega_i > \omega_p$) (cf. figure (1.2.3)).

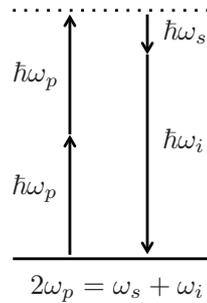


FIG. 1.2.3 – Diagramme d'énergie du mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence.

D'un point de vue corpusculaire, le processus consiste en l'annihilation d'une paire de photons de pompe à ω_p , accompagnée de la création simultanée d'une paire de photons signal et idler qui permettent de respecter la condition de conservation de l'énergie ($2\omega_p = \omega_s + \omega_i$). Bien entendu, pour une fréquence de pompe ω_p donnée, une infinité de couples de fréquences $(\omega_s; \omega_i)$ permettent de satisfaire cette condition. Mais, comme cela a déjà été évoqué plus haut (voir sous-sections 1.1.2 et 1.1.4), le processus n'est efficace que si la *condition d'accord de phase* est également respectée. Cette condition d'accord de phase n'est rien d'autre qu'une condition de conservation des vecteurs d'onde (du point de vue ondulatoire), ou de l'impulsion (du point de

vue corpusculaire), comme je vais le détailler ci-après. Au final, les couples d'ondes signal et idler qui pourront être générés efficacement correspondent à des plages spectrales relativement restreintes.

Pour décrire le processus de manière un peu plus quantitative, nous supposons dans la suite qu'un milieu non linéaire d'ordre 3 est traversé, dans la direction z , par trois ondes planes quasi-monochromatiques aux fréquences ω_p , ω_s et ω_i , avec une onde à ω_p beaucoup plus intense que les deux autres. Le champ total dans le milieu s'écrit :

$$\vec{\mathcal{E}}(z; t) = \vec{\mathcal{E}}_p(z; t) + \vec{\mathcal{E}}_s(z; t) + \vec{\mathcal{E}}_i(z; t) \quad (1.2.14)$$

Nous supposons que les trois ondes possèdent le même état de polarisation \vec{e} . Nous pouvons donc écrire :

$$\begin{aligned} \vec{\mathcal{E}}_j(z; t) &= (E(\omega_j; z) e^{-i\omega_j t} + \text{c.c.}) \vec{e} \\ &= \left(A(\omega_j; z) e^{i(k_j z - \omega_j t)} + \text{c.c.} \right) \vec{e} \end{aligned} \quad (1.2.15)$$

avec $j = p, s$ ou i .

À partir de l'équation (1.1.14), nous pouvons calculer l'expression de l'amplitude complexe de la polarisation non linéaire d'ordre 3 aux fréquences ω_p , ω_s et ω_i . Commençons par la composante à ω_p :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_p; z) = 3\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_p; \omega_p, \omega_p, -\omega_p) |E(\omega_p; z)|^2 E(\omega_p; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.16a)$$

$$+ 6\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_p; \omega_p, \omega_s, -\omega_s) |E(\omega_s; z)|^2 E(\omega_p; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.16b)$$

$$+ 6\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_p; \omega_p, \omega_i, -\omega_i) |E(\omega_i; z)|^2 E(\omega_p; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.16c)$$

$$+ 6\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_p; \omega_s, \omega_i, -\omega_p) E(\omega_s; z) E(\omega_i; z) E^*(\omega_p; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.16d)$$

Dans cette expression, le terme (1.2.16a) correspond au processus d'automodulation de phase de l'onde de pompe (voir équation (1.2.1)). Les termes (1.2.16b) et (1.2.16c) sont associés au processus de *modulation de phase croisée*¹⁴. Le terme (1.2.16d), quant à lui, représente le processus de mélange à quatre ondes [10].

Comme nous avons supposé que l'onde de pompe était d'intensité très forte devant celle des ondes signal et idler, l'influence des termes (1.2.16b), (1.2.16c) et (1.2.16d) (qui ne font intervenir qu'une seule fois l'amplitude de l'onde de pompe) est négligeable devant celle du terme d'automodulation de phase, et nous pouvons donc écrire :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_p; z) = 3\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_p; \omega_p, \omega_p, -\omega_p) |A(\omega_p; z)|^2 A(\omega_p; z) e^{ik_p z} \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.17)$$

14. La modulation de phase croisée résulte, comme l'automodulation de phase, de la dépendance de l'indice de réfraction du milieu avec l'intensité lumineuse. En présence d'une unique onde dans le milieu, c'est l'intensité de cette onde qui induit les variations de l'indice de réfraction, et l'on parle alors d'*automodulation de phase*. Lorsque plusieurs ondes sont présentes, en revanche, le profil spectral de chaque onde va être modifié sous l'effet de l'intensité propre de l'onde (automodulation de phase) *mais également* sous l'effet de l'intensité des autres ondes (modulation de phase croisée) [10].

En ce qui concerne la composante à ω_s , l'équation (1.1.14) conduit à :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_s; z) = 3\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_s; \omega_s, \omega_s, -\omega_s) |E(\omega_s; z)|^2 E(\omega_s; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.18a)$$

$$+ 6\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_s; \omega_s, \omega_i, -\omega_i) |E(\omega_i; z)|^2 E(\omega_s; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.18b)$$

$$+ 6\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_s; \omega_s, \omega_p, -\omega_p) |E(\omega_p; z)|^2 E(\omega_s; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.18c)$$

$$+ 3\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_s; \omega_p, \omega_p, -\omega_i) E^2(\omega_p; z) E^*(\omega_i; z) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.18d)$$

Ce sont alors les termes (1.2.18a) (automodulation de phase de l'onde signal) et (1.2.18b) (modulation de phase croisée de l'onde signal par l'onde idler) qui sont négligeables, et nous conservons le terme de modulation de phase croisée de l'onde signal par l'onde de pompe (terme (1.2.18c)) et le terme de mélange à quatre ondes (terme (1.2.18d)), qui font tous deux intervenir deux fois l'amplitude de l'onde de pompe :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_s; z) = 6\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_s; \omega_s, \omega_p, -\omega_p) |A(\omega_p; z)|^2 A(\omega_s; z) e^{ik_s z} \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.19a)$$

$$+ 3\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_s; \omega_p, \omega_p, -\omega_i) A^2(\omega_p; z) A^*(\omega_i; z) e^{i(2k_p - k_i)z} \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.19b)$$

De même, pour la composante à ω_i , nous obtenons :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_i; z) = 6\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_i; \omega_i, \omega_p, -\omega_p) |A(\omega_p; z)|^2 A(\omega_i; z) e^{ik_i z} \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.20a)$$

$$+ 3\epsilon_0 \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_i; \omega_p, \omega_p, -\omega_s) A^2(\omega_p; z) A^*(\omega_s; z) e^{i(2k_p - k_s)z} \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.20b)$$

Enfin, en supposant que toutes les fréquences mises en jeu sont éloignées de toute fréquence de résonance du milieu matériel, nous pouvons poser :

$$\begin{aligned} \chi_{eff}^{(3)} &= \vec{e} \cdot \left(\chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_p) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \right) \\ &= \vec{e} \cdot \left(\chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_s) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \right) \\ &= \vec{e} \cdot \left(\chi_{\equiv}^{(3)}(\omega_i) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \right) \end{aligned} \quad (1.2.21)$$

avec $\chi_{\equiv}^{(3)}(\omega) = \chi_{\equiv}^{(3)}(\omega; \omega_m, \omega_n, \omega_o)$ pour tous les triplets de fréquences $\{\omega_m; \omega_n; \omega_o\}$ tels que $\omega_m + \omega_n + \omega_o = \omega$.

Alors, l'équation de propagation non linéaire dont la forme générale est donnée en (1.1.11)

prend les formes suivantes, pour chacune des trois ondes considérées¹⁵ :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial A(\omega_p; z)}{\partial z} = \frac{i\omega_p}{2n_0(\omega_p)\epsilon_0 c} 3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} |A(\omega_p; z)|^2 A(\omega_p; z) \\ \frac{\partial A(\omega_s; z)}{\partial z} = \frac{i\omega_s}{2n_0(\omega_s)\epsilon_0 c} 3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \left[2|A(\omega_p; z)|^2 A(\omega_s; z) + A^2(\omega_p; z) A^*(\omega_i; z) e^{i\Delta k z} \right] \\ \frac{\partial A(\omega_i; z)}{\partial z} = \frac{i\omega_i}{2n_0(\omega_i)\epsilon_0 c} 3\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \left[2|A(\omega_p; z)|^2 A(\omega_i; z) + A^2(\omega_p; z) A^*(\omega_s; z) e^{i\Delta k z} \right] \end{array} \right. \quad (1.2.22)$$

avec :

$$\Delta k = 2k_p - k_s - k_i = \frac{2n_0(\omega_p)\omega_p - n_0(\omega_s)\omega_s - n_0(\omega_i)\omega_i}{c} \quad (1.2.23)$$

1.2.2.1 Solutions en régime d'amplification

Supposons que l'onde signal est initialement présente (bien que d'intensité beaucoup plus faible que l'onde de pompe) et que l'onde idler est initialement absente :

$$\begin{cases} A(\omega_i; z = 0) = 0 \\ A(\omega_s; z = 0) \neq 0 \end{cases}$$

Dans ce cas, et en supposant que l'intensité de l'onde de pompe reste inchangée au cours de l'interaction¹⁶, la résolution des équations couplées (1.2.22) conduit à [10, 61] :

$$\begin{cases} |A(\omega_s; z)|^2 = |A(\omega_s; z = 0)|^2 \left(1 + \frac{\xi^2}{g^2} \sinh^2(gz) \right) \\ |A(\omega_i; z)|^2 = \frac{n_0(\omega_s)\omega_i}{n_0(\omega_i)\omega_s} |A(\omega_s; z = 0)|^2 \frac{\xi^2}{g^2} \sinh^2(gz) \end{cases} \quad (1.2.24)$$

15. Ces équations peuvent être comparées à celles, plus générales, fournies dans la référence [10] (équations (10.2.1) à (10.2.4)). Mon système d'équations (1.2.22) correspond au cas particulier d'un processus de mélange à quatre ondes dégénère en fréquence, avec un faisceau pompe beaucoup plus intense que les faisceaux signal et idler, et avec des intégrales de recouvrement (voir équation (10.2.5) de la référence [10]) supposées toutes identiques et égales à l'inverse de l'aire effective d'interaction A_{eff} . Cette dernière hypothèse est particulièrement valable dans le cadre de nos expériences, pour lesquelles toutes les ondes mises en jeu ont des longueurs d'onde proches les unes des autres et se propagent dans le mode transverse fondamental d'une fibre optique (voir note de bas de page 12, p.19). À noter que les conventions de notation choisies par G.P. Agrawal sont légèrement différentes de celles qui sont adoptées dans ce manuscrit, de sorte que ses amplitudes et les miennes sont liées par :

$$A_{Agrawal} = \sqrt{2n_0\epsilon_0 c A_{eff}} A_{manuscrit}$$

16. L'efficacité du processus de mélange à quatre ondes est supposée assez faible pour que le nombre de photons de pompe consommés reste négligeable devant le nombre de photons de pompe initialement présents. Autrement dit, nous considérons que le champ de pompe n'est pas modifié par le processus de mélange à quatre ondes (c'est cette hypothèse qui nous permet d'écrire la polarisation non linéaire d'ordre 3 à la fréquence de pompe sous la forme (1.2.17)). De plus, comme nous l'avons vu dans la sous-section précédente (voir en particulier la note de bas de page 11, p.18), pour que l'auto-action de l'onde de pompe sur elle-même ne modifie pas son intensité, il faut que $\chi_{eff}^{(3)}$ soit purement réel.

avec :

$$\xi = \gamma P_p \frac{n_0(\omega_p)}{\omega_p} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{n_0(\omega_s) n_0(\omega_i)}} \quad (1.2.25)$$

et :

$$g^2 = \xi^2 - \frac{1}{4} \left[\Delta k + 2\gamma P_p \left(1 - \frac{n_0(\omega_p)}{\omega_p} \left(\frac{\omega_s}{n_0(\omega_s)} + \frac{\omega_i}{n_0(\omega_i)} \right) \right) \right]^2 \quad (1.2.26)$$

où nous rappelons que γ est le coefficient non linéaire (défini selon l'équation (1.2.13)), et P_p est la puissance de pompe, définie par :

$$P_p = I_p A_{eff} = 2n_0(\omega_p) \epsilon_0 c |A(\omega_p)|^2 A_{eff} \quad (1.2.27)$$

En réécrivant les équations (1.2.24) en termes d'intensités (cf. équation (1.1.12)), nous obtenons donc :

$$\begin{cases} I_s(z) = I_s(0) \left(1 + \frac{\xi^2}{g^2} \sinh^2(gz) \right) \\ I_i(z) = \frac{\omega_i}{\omega_s} I_s(0) \frac{\xi^2}{g^2} \sinh^2(gz) \end{cases} \quad (1.2.28)$$

La conclusion est donc la suivante : lorsqu'une onde de pompe (de forte intensité) et une onde signal (de faible intensité) sont injectées simultanément dans un milieu non linéaire d'ordre 3 (par exemple une fibre optique), l'onde signal est *amplifiée*, avec un gain d'amplification donné par :

$$G(z) = 1 + \frac{\xi^2}{g^2} \sinh^2(gz) \quad (1.2.29)$$

tandis qu'une onde idler est *créée* à la fréquence $\omega_i = 2\omega_p - \omega_s$ (le nombre de photons idler créés étant égal au nombre de photons signal ajoutés).

1.2.2.2 Condition d'accord de phase

Le gain d'amplification (pour une longueur d'interaction z donnée) est maximal lorsque le *gain paramétrique* g est maximal, soit d'après l'équation (1.2.26) lorsque :

$$g = g_{\max} = \xi \quad (1.2.30)$$

c'est-à-dire lorsque :

$$\Delta k + 2\gamma P_p \left(1 - \frac{n_0(\omega_p)}{\omega_p} \left(\frac{\omega_s}{n_0(\omega_s)} + \frac{\omega_i}{n_0(\omega_i)} \right) \right) = 0 \quad (1.2.31)$$

L'équation (1.2.31) ci-dessus pose la *condition d'accord de phase*. Si le milieu matériel est assez peu dispersif pour que l'on puisse écrire $n_0(\omega_p) \sim n_0(\omega_s) \sim n_0(\omega_i)$, le terme entre parenthèses vaut -1 , et cette condition d'accord de phase se simplifie en :

$$\Delta k - 2\gamma P_p = 0 \quad (1.2.32)$$

L'écart de cette condition à la condition d'accord de phase "usuelle" ($\Delta k = 0$) est dû à l'influence des processus d'automodulation de phase de la pompe et de modulation de phase croisée du signal et de l'idler par la pompe. Si ces processus n'avaient pas lieu (ou si nous avions

omis de les prendre en compte dans le calcul), nous aurions effectivement abouti à la condition $\Delta k = 0$.

Rappelons que le désaccord de phase *brut* Δk est donné par :

$$\begin{aligned}\Delta k &= 2k_p - k_s - k_i \\ &= 2\beta(\omega_p) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i)\end{aligned}\tag{1.2.33}$$

où $\beta(\omega)$ est la constante de propagation du milieu traversé à la fréquence ω . En développant $\beta(\omega)$ en série de Taylor autour de ω_p , on montre simplement que le désaccord de phase brut s'écrit :

$$\Delta k = -2 \sum_{m=1}^{+\infty} \frac{\Omega^{2m}}{(2m)!} \beta_{2m}(\omega_p)\tag{1.2.34}$$

avec :

$$\Omega = \omega_p - \omega_s = \omega_i - \omega_p > 0\tag{1.2.35}$$

et :

$$\beta_m(\omega_p) = \left. \frac{\partial^m \beta(\omega)}{\partial \omega^m} \right|_{\omega=\omega_p}\tag{1.2.36}$$

Les termes d'ordres supérieurs étant en général négligeables, les termes d'ordres 2 et 4 sont suffisants pour décrire la plupart des phénomènes observés (voir référence [10], p.376 et p.383) et le désaccord de phase brut peut être évalué selon :

$$\Delta k \sim -\Omega^2 \left(\beta_2(\omega_p) + \frac{\Omega^2}{12} \beta_4(\omega_p) \right)\tag{1.2.37}$$

β_2 est la *dispersion de vitesse de groupe*¹⁷ du milieu. La longueur d'onde λ_{ZDW} pour laquelle $\beta_2(\lambda_{ZDW}) = 0$ est appelée *longueur d'onde de dispersion nulle* (*Zero-Dispersion Wavelength*). Si la longueur d'onde du faisceau de pompe, notée λ_p , est telle que $\beta_2(\lambda_p) < 0$ (respectivement $\beta_2(\lambda_p) > 0$), on dit que l'on travaille en régime de *dispersion anormale* (respectivement *normale*).

Les équations (1.2.32) et (1.2.37) montrent que l'accord de phase ne peut être réalisé que si :

$$\beta_2(\omega_p) + \frac{\Omega^2}{12} \beta_4(\omega_p) < 0\tag{1.2.38}$$

Lorsque le terme d'ordre 4 est négligeable devant le terme d'ordre 2 (ce qui est le cas dans la plupart des fibres optiques conventionnelles, et également dans certaines fibres microstructurées), l'équation (1.2.38) montre qu'il est nécessaire de travailler en régime de dispersion anormale : si $\beta_2(\omega_p) > 0$, l'accord de phase ne peut pas être réalisé. En revanche, si le terme d'ordre 4 n'est pas complètement négligeable devant le terme d'ordre 2, l'accord de phase peut aussi être obtenu en régime de dispersion normale ($\beta_2(\omega_p) > 0$) à condition que $\beta_4(\omega_p)$ soit "assez" négatif :

$$\beta_4(\omega_p) < -\frac{12 \beta_2(\omega_p)}{\Omega^2}\tag{1.2.39}$$

ce qui conduit à des décalages fréquentiels nécessairement grands :

$$\Omega > \sqrt{-\frac{12 \beta_2(\omega_p)}{\beta_4(\omega_p)}}\tag{1.2.40}$$

17. GVD pour *Group-Velocity Dispersion*.

Notons que, quoi qu'il en soit, le respect de la condition d'accord de phase (1.2.32) nécessite de travailler avec des longueurs d'onde de pompe qui restent proches de la longueur d'onde de dispersion nulle, pour éviter que le désaccord de phase brut Δk devienne trop fort (ce qui impliquerait d'injecter des puissances de pompe très élevées pour satisfaire la condition d'accord de phase (1.2.32)).

À titre d'exemple, la figure (1.2.4) représente la courbe d'accord de phase de la fibre microstructurée à cœur de silice dont nous avons déjà parlé dans la sous-section précédente (sous-section 1.2.1). Son coefficient non linéaire est $\gamma = 0,05 \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$, et sa courbe de dispersion $\beta(\omega)$ et sa longueur d'onde de dispersion nulle ont été déterminées expérimentalement¹⁸ ($\lambda_{\text{ZDW}} \sim 834 \text{ nm}$) (voir Annexe A.1). La puissance de pompe (crête) a été prise égale à 1 W, 10 W et 100 W (ce qui correspond, pour des impulsions picosecondes avec un taux de répétition de 80 MHz, à une puissance moyenne de l'ordre de 0,1 mW, 1 mW et 10 mW typiquement). Il apparaît clairement sur ces graphes que l'accord de phase ne peut réellement être réalisé qu'en régime de dispersion anormale (c'est-à-dire, ici, pour $\lambda_p \gtrsim 834 \text{ nm}$). Cela vient du fait que, pour cette fibre, le terme d'ordre 4 dans l'expression (1.2.37) du désaccord de phase brut est négligeable devant le terme d'ordre 2.

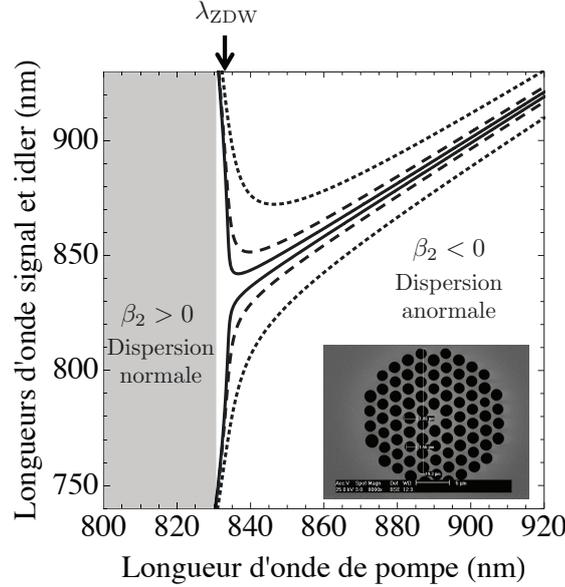


FIG. 1.2.4 – Courbes d'accord de phase de notre fibre microstructurée à cœur de silice, pour une puissance de pompe crête égale à 1 W (trait plein), 10 W (tirets) et 100 W (pointillés).

1.2.2.3 Gain d'amplification à l'accord de phase

À l'accord de phase, le gain d'amplification atteint donc sa valeur maximale :

$$G_{\text{max}}(z) = 1 + \sinh^2 \left(\frac{n_0(\omega_p)}{\omega_p} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{n_0(\omega_s) n_0(\omega_i)}} \gamma P_p z \right) \sim 1 + \sinh^2(\gamma P_p z) \quad (1.2.41)$$

Ainsi, il est intéressant de constater que les processus d'automodulation de phase (sous-section 1.2.1) et de mélange à quatre ondes sont conduits par le même paramètre γ (coefficient

18. Nous parlerons en détails de la technique utilisée pour cette mesure au Chapitre 3.

non linéaire). Nous pouvons en fait écrire :

$$G_{\max}(z) \sim 1 + \sinh^2(\Phi_{\text{NL,max}}(z)) \quad (1.2.42)$$

où, comme nous l'avons défini dans la sous-section 1.2.1, $\Phi_{\text{NL,max}}(z)$ est le déphasage non linéaire maximal accumulé au sommet de l'impulsion de pompe après une propagation sur une distance z dans le milieu non linéaire d'ordre 3.

Notons cependant que, si le milieu non linéaire d'ordre 3 considéré est une fibre optique de longueur L_{fibre} , la longueur effective d'interaction pour l'automodulation de phase L_{eff} peut être légèrement plus faible que L_{fibre} sous l'effet des pertes linéaires dans la fibre. Si l'on note α le coefficient de pertes linéaires (en m^{-1}), alors la longueur effective de la fibre s'écrit :

$$L_{\text{eff}} = \frac{1 - e^{-\alpha L_{\text{fibre}}}}{\alpha} \quad (1.2.43)$$

En ce qui concerne le processus d'amplification par mélange à quatre ondes, la longueur effective d'interaction (notée L_{FWM} , pour *Four-Wave Mixing*) peut être encore plus réduite, à cause du phénomène de *walk-off* temporel (le recouvrement temporel de l'impulsion de pompe avec l'impulsion signal amplifiée et l'impulsion idler créée diminue au cours de la propagation dans la fibre sous l'effet de la dispersion de la vitesse de groupe, et l'efficacité du processus d'amplification décroît).

Nous avons donc en général :

$$L_{\text{FWM}} \lesssim L_{\text{eff}} \lesssim L_{\text{fibre}} \quad (1.2.44)$$

et le gain d'amplification obtenu en sortie de fibre lorsque l'accord de phase est parfaitement réalisé s'écrit plutôt :

$$G_{\max}(L_{\text{fibre}}) = 1 + \sinh^2\left(\frac{L_{\text{FWM}}}{L_{\text{eff}}}\Phi_{\text{NL,max}}(L_{\text{eff}})\right) \quad (1.2.45)$$

1.2.2.4 Cas du régime spontané amplifié

Bien évidemment, les équations (1.2.28) ne sont valables que si l'une au moins des ondes signal et idler est initialement présente. En effet, dans le cas où les ondes signal et idler sont simultanément absentes en entrée du milieu non linéaire, les équations (1.2.28) prédisent simplement une absence totale d'évolution : $I_s(0) = 0$, donc l'amplitude des ondes signal et idler doit rester nulle. Or ce n'est pas ce qui est observé expérimentalement. Comme le mettent en évidence les spectres de la figure (1.2.5), lorsque nous injectons un faisceau pompe seul dans un milieu non linéaire d'ordre 3 (ici, il s'agit de la fibre microstructurée à cœur de silice déjà évoquée précédemment, et présentée en Annexe A.1), outre l'élargissement du spectre de pompe par automodulation de phase, nous observons l'apparition de deux bandes latérales de part et d'autre du spectre de pompe : une onde signal et son onde complémentaire ont été générées spontanément, puis amplifiées, au cours de la propagation de l'impulsion de pompe dans la fibre¹⁹.

19. À noter que la combinaison des deux processus non linéaires que sont l'automodulation de phase et le mélange à quatre ondes peut conduire, dans certaines conditions, à l'observation surprenante de l'apparition de deux bandes latérales *dissymétriques en fréquences* par rapport au spectre de pompe, comme nous l'avons montré dans l'article [62] reproduit en Annexe E de ce manuscrit.

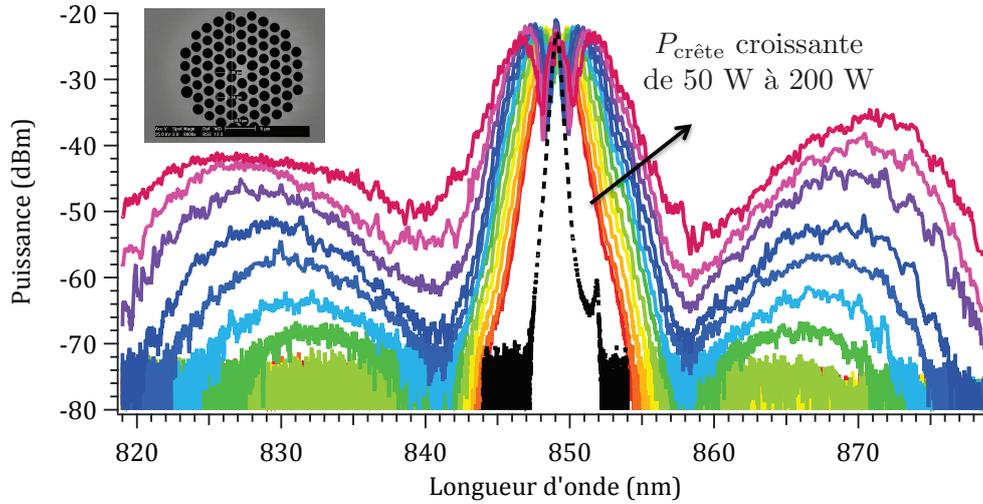


FIG. 1.2.5 – Spectres mesurés en entrée (spectre en pointillés) puis en sortie (spectres en trait plein) de notre fibre microstructurée à cœur de silice, lorsque nous injectons des impulsions de pompe (de profil temporel sécante hyperbolique) à 850 nm avec une puissance crête variant de 50 W à 200 W typiquement. Nous visualisons bien l’élargissement de plus en plus important du spectre de pompe par automodulation de phase, et l’apparition de deux bandes paramétriques spontanées amplifiées. Remarquons que le maximum de ces deux bandes s’écartent de la pompe à mesure que la puissance de pompe augmente, ce qui est cohérent avec le fait que la condition d’accord de phase dépend de la puissance de pompe selon l’équation (1.2.32) (voir aussi les trois courbes d’accord de phase présentées en figure (1.2.4)).

Nous observons ici le processus de mélange à quatre ondes *spontané amplifié*, qui ne peut pas être décrit par les équations obtenues en régime d’amplification (régime qui suppose la présence d’une onde de pompe *et* d’une onde signal en entrée). La modélisation rigoureuse du processus spontané nécessite d’utiliser une approche quantique (voir Chapitre 2). Cependant, en régime de fort gain, lorsque l’on passe du régime *purement* spontané au régime *spontané amplifié*, le processus peut être décrit classiquement (c’est-à-dire *non quantiquement*) comme résultant de l’amplification d’un photon *fictif* qui aurait été placé en entrée de la fibre. Nous verrons dans la partie 1.2.3.3 de ce manuscrit que ce type de description a été proposé par R.G. Smith [63] (puis repris entre autres par E. Desurvire *et al.* [64]) pour traiter le cas de la diffusion Raman spontanée amplifiée. J’adapte ici cette description au cas du mélange à quatre ondes *spontané amplifié* en considérant que l’onde à la fréquence ω ($\neq \omega_p$) récoltée en sortie de la fibre peut avoir deux origines distinctes :

1. l’amplification d’un photon de bruit présent en entrée de la fibre dans la plage de fréquences $[\omega; \omega + \delta\omega]$, conduisant en sortie de fibre à une intensité égale à :

$$I_{\text{FWM},1}(\omega) = G \frac{\hbar\omega}{A_{\text{eff}}} \frac{\delta\omega}{2\pi} \quad (1.2.46)$$

où G est une notation simplifiée pour désigner $G_{\{\omega_p; \omega\}}(L_{\text{fibre}})$, le gain d’amplification à la fréquence ω par mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence avec une fréquence de pompe égale à ω_p , après propagation sur toute la longueur de la fibre ;

2. l’amplification d’un photon de bruit présent en entrée de la fibre dans la plage de fréquences $[2\omega_p - \omega; 2\omega_p - \omega - \delta\omega]$: en effet, l’amplification d’un photon à la fréquence

$\omega' = 2\omega_p - \omega$ s'accompagne nécessairement de la *création* d'un photon à ω . Ce second processus conduit en sortie de fibre à une intensité égale à :

$$I_{\text{FWM},2}(\omega) = (G - 1) \frac{\hbar\omega}{A_{\text{eff}}} \frac{\delta\omega}{2\pi} \quad (1.2.47)$$

À noter que l'expression de $I_{\text{FWM},2}$ ne fait pas intervenir G (contrairement à l'expression de $I_{\text{FWM},1}$), mais $G - 1$. Ceci vient du fait que le second processus conduit à l'obtention finale de G photons à $\omega' = 2\omega_p - \omega$ à partir de 1 photon initial à ω' : il y a donc eu *création* de $G - 1$ photons à ω' , et donc simultanément de $G - 1$ photons à ω .

Cela revient à dire que l'onde à ω se construit de manière cohérente par suite d'une "cascade" de processus individuels d'amplification par mélange à quatre ondes, et que le photon *originel* qui donne naissance à cette cascade peut appartenir à la plage de fréquence $[\omega; \omega + \delta\omega]$ ou à la plage de fréquences $[2\omega_p - \omega; 2\omega_p - \omega - \delta\omega]$. Autrement dit, il y a deux sources de bruit distinctes qui peuvent conduire de manière *équiprobable* à la génération d'un photon dans la plage $[\omega; \omega + \delta\omega]$ par amplification par mélange à quatre ondes puis, en cascade, à la construction cohérente de l'onde à ω . L'intensité obtenue en sortie de fibre dans la plage de fréquences $[\omega; \omega + \delta\omega]$ est donc donnée par :

$$\begin{aligned} I_{\text{FWM}}(\omega) &= \frac{1}{2} I_{\text{FWM},1}(\omega) + \frac{1}{2} I_{\text{FWM},2}(\omega) \\ &= \left(G - \frac{1}{2}\right) \frac{\hbar\omega}{A_{\text{eff}}} \frac{\delta\omega}{2\pi} \end{aligned} \quad (1.2.48)$$

Cette expression est à mettre en relation avec les équations obtenues en régime d'amplification (équations (1.2.28)) :

$$\begin{cases} I_s(z) = I_s(0) (1 + G(z)) \\ I_i(z) = \frac{\omega_i}{\omega_s} I_s(0) G(z) \end{cases} \quad (1.2.49)$$

Les deux approches ne sont compatibles entre elles qu'en régime de fort gain (où nous avons $G \sim G + 1 \sim G - (1/2)$). Les résultats expérimentaux obtenus en régime spontané amplifié (par exemple ceux de la figure (1.2.5)) sont très bien décrits par le modèle simple ci-dessus. En revanche, lorsque nous travaillerons à des niveaux d'efficacité non linéaire faibles, c'est-à-dire en régime purement spontané et non pas spontané amplifié (ce qui sera le cas pour générer les paires de photons corrélés une par une et être donc en mesure d'exploiter leurs propriétés de corrélations), ce modèle ne sera plus adapté. Schématiquement, le modèle ci-dessus consiste à supposer l'existence préalable d'un premier photon signal et/ou idler et à décrire la façon dont il est amplifié pour conduire à l'apparition d'ondes signal et idler intenses²⁰. Or le processus qui nous intéresse pour notre part est justement celui qui conduit à la création de ce premier photon (ou plus exactement de la première paire de photons signal et idler) par mélange à quatre ondes spontané. La modélisation de ce processus spontané nécessite d'adopter une description quantique du système et des mécanismes mis en jeu. Ce sera l'objet du Chapitre 2.

20. (bien que restant beaucoup moins intenses que l'onde de pompe...)

1.2.3 Diffusion Raman

La diffusion Raman spontanée est un processus d'optique *linéaire*, c'est-à-dire qu'il survient dans des conditions pour lesquelles le champ électromagnétique incident *ne modifie pas* les propriétés optiques du milieu matériel. Il conduit, en présence d'une onde incidente à la fréquence ω_L , à la génération de deux ondes, appelées Stokes et anti-Stokes, à des fréquences ω_S et ω_{AS} symétriques de part et d'autre de ω_L (l'écart spectral étant dépendant de la constitution chimique du milieu). Ces deux ondes sont émises de manière incohérente, dans toutes les directions de l'espace, et l'efficacité du processus est très faible [59] (figure (1.2.6)-a).

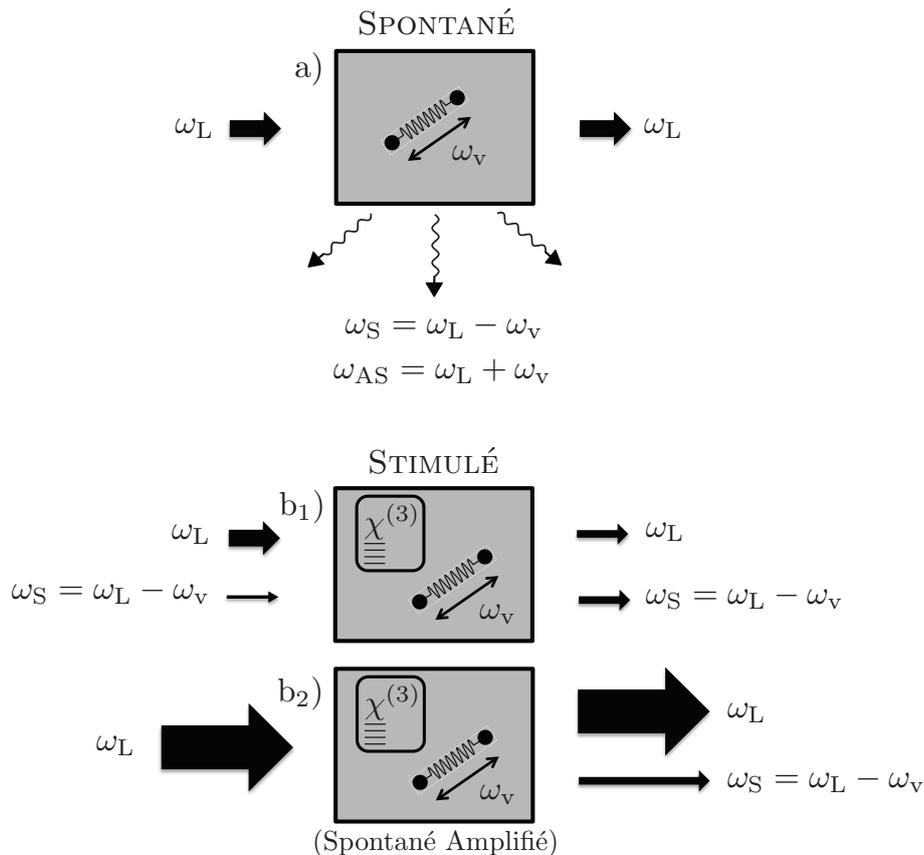


FIG. 1.2.6 – (a) Les fluctuations (à la fréquence ω_v) de polarisabilité des molécules constituant le milieu traversé sont responsables du processus (linéaire) de diffusion Raman spontanée : il y a apparition d'une onde à $\omega_S = \omega_L - \omega_v$, dite onde Stokes, et d'une onde à $\omega_{AS} = \omega_L + \omega_v$, dite onde anti-Stokes. L'onde Stokes générée est plus intense que l'onde anti-Stokes. Le processus est très peu efficace, et l'intensité de l'onde incidente (à ω_L) peut donc être considérée comme inchangée.

(b₁) Lorsqu'on injecte, en plus de l'onde de pompe à ω_L , une onde de faible intensité à $\omega_S = \omega_L - \omega_v$, l'interaction de ces deux ondes par l'intermédiaire de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 du milieu vient exciter de manière cohérente les vibrations des molécules à la fréquence ω_v et ainsi renforcer le processus de diffusion Raman. L'onde à ω_S est amplifiée, par transfert d'énergie de la part de l'onde (initialement plus intense) à ω_L .

(b₂) Si seule l'onde à ω_L est injectée, l'amplification Raman peut se produire, à partir d'un premier photon à ω_S généré spontanément par diffusion Raman. Il faut pour cela que l'intensité de l'onde incidente à ω_L dépasse une valeur seuil fixée par les propriétés du milieu.

L'émission des photons Stokes peut également être *stimulée* par la présence d'un premier photon à la fréquence ω_S (en plus des photons à ω_L). Les photons Stokes sont alors générés de manière cohérente (dans le même mode que le premier photon à ω_S). Ce processus de *diffusion Raman stimulée* (ou *amplification Raman Stokes*) est un processus *non linéaire*, qui survient par l'intermédiaire de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 du matériau [10, 59].

La diffusion Raman stimulée peut survenir si l'on injecte à la fois un faisceau à ω_L et un faisceau à ω_S dans le matériau (figure (1.2.6)-b₁). Dans ce cas, le faisceau à ω_S est amplifié, tandis que le faisceau à ω_L voit son intensité décroître. Ce qui est notable, cependant, c'est qu'une onde Stokes cohérente peut également être construite lorsque seul le faisceau à ω_L est injecté (à condition que son intensité soit "assez" élevée). Ce processus peut être désigné sous le terme de diffusion Raman *spontanée amplifiée* (figure (1.2.6)-b₂). Comme évoqué précédemment (dans la partie 1.2.2.4 concernant le traitement classique du mélange à quatre ondes spontanée amplifiée), le processus de diffusion Raman spontanée amplifiée peut être vu comme résultant de l'amplification Raman d'un premier photon qui aurait été émis au préalable par diffusion Raman spontanée. En d'autres termes, c'est ce premier photon, émis par diffusion Raman spontanée à la fréquence ω_S , qui vient stimuler l'émission des photons Stokes [63, 64].

Nous donnons ci-après les notions de bases permettant de comprendre l'origine physique et les caractéristiques spectrales de la diffusion Raman spontanée (figure (1.2.6)-a). Nous montrons ensuite comment la polarisation non linéaire d'ordre 3 du milieu peut conduire au processus d'amplification d'un faisceau de faible intensité par diffusion Raman stimulée (figure (1.2.6)-b₁). Enfin, nous nous intéresserons au cas de la diffusion Raman spontanée amplifiée (figure (1.2.6)-b₂), et verrons que le processus non linéaire d'amplification n'apparaît que si l'intensité du faisceau de pompe dépasse une valeur seuil, qui dépend des propriétés du milieu non linéaire traversé.

1.2.3.1 Diffusion Raman spontanée

Origine microscopique de la diffusion Raman spontanée

Les processus de diffusion spontanée de la lumière²¹ résultent des fluctuations des propriétés optiques du milieu matériel traversé. Dans le cas de la diffusion Raman, ce sont les fluctuations de la polarisabilité des molécules constituant le matériau qui sont mises en jeu. Schématiquement, considérons le cas simple d'un matériau constitué de molécules diatomiques. Chaque molécule peut être décrite comme un oscillateur harmonique dont la fréquence de résonance est notée ω_v : la distance $r(t)$ entre les deux atomes de la molécule oscille (sous l'effet de l'agitation thermique) autour de la position d'équilibre r_0 à la fréquence ω_v :

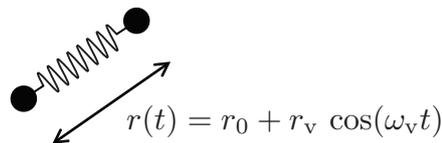


FIG. 1.2.7 – Description moléculaire de l'origine du processus de diffusion Raman.

21. Diffusions Raman, Brillouin, Rayleigh...

Or la polarisabilité α de la molécule est directement liée à la distance r entre les deux atomes de la molécule, et nous pouvons donc écrire son développement de Taylor à l'ordre 1 en $r = r_0$:

$$\alpha(t) = \alpha_0 + \left. \frac{\partial \alpha}{\partial r} \right|_{r=r_0} (r(t) - r_0) \quad (1.2.50)$$

où α_0 est la polarisabilité de la molécule au repos.

Ainsi, si l'on éclaire la molécule avec un champ incident oscillant $E(t) = E_0 \cos(\omega_L t)$, le dipôle induit s'écrira :

$$\begin{aligned} p(t) &= \alpha(t)E(t) \\ &= \alpha_0 E_0 \cos(\omega_L t) + \left. \frac{\partial \alpha}{\partial r} \right|_{r=r_0} \frac{r_v E_0}{2} [\cos((\omega_L - \omega_v)t) + \cos((\omega_L + \omega_v)t)] \end{aligned} \quad (1.2.51)$$

La molécule se comporte donc comme un dipôle oscillant aux trois fréquences ω_L , $\omega_L - \omega_v$ et $\omega_L + \omega_v$. Ce dipôle va donc rayonner un champ à ces trois fréquences. Le rayonnement à ω_L (fréquence du champ incident) correspond au processus de diffusion Rayleigh, dont l'efficacité est proportionnelle à la polarisabilité de la molécule au repos α_0 . Le rayonnement aux fréquences $\omega_L - \omega_v$ et $\omega_L + \omega_v$ correspond au processus de diffusion Raman, qui est dû aux fluctuations de la polarisabilité à la fréquence ω_v . L'onde à $\omega_S = \omega_L - \omega_v$ est appelée *onde Stokes*, et l'onde à $\omega_{AS} = \omega_L + \omega_v$ est appelée *onde anti-Stokes*.

Notons que les molécules diatomiques constituant le milieu matériel se comportent comme des oscillateurs harmoniques *amortis*. De ce fait, le spectre de diffusion Raman n'est pas simplement constitué d'une raie *infinitement* fine en ω_v , mais d'une raie (centrée en ω_v) de largeur d'autant plus grande que le coefficient d'amortissement Γ est fort. Plus précisément, on peut montrer que la raie présente un profil lorentzien (ou quasi-lorentzien) de largeur à mi-hauteur de l'ordre de 2Γ [59].

De plus, les équations classiques du rayonnement dipolaire montrent que l'intensité rayonnée à la fréquence ω est proportionnelle à ω^4 , du moins lorsque la fréquence ω_L du champ incident est éloignée de toute fréquence de résonance du milieu matériel [59] (ce qui sera effectivement le cas dans nos conditions expérimentales). Cela signifie en particulier que l'intensité diffusée dans l'onde anti-Stokes est censée être légèrement plus forte que l'intensité diffusée dans l'onde Stokes, d'un facteur égal à $(\omega_{AS}/\omega_S)^4$. Typiquement, pour un champ incident à la longueur d'onde de 850 nm et un décalage Raman de l'ordre de la dizaine de terahertz, $(\omega_{AS}/\omega_S)^4 \sim 1,04$.

Or, ce n'est pas ce qui est observé expérimentalement : en pratique, l'intensité de l'onde anti-Stokes est toujours inférieure à celle de l'onde Stokes. Le modèle ondulatoire classique très simple que nous venons de présenter permet de voir que deux ondes vont être générées à des fréquences décalées de ω_v de part et d'autre de la fréquence ω_L du champ incident, mais la compréhension de l'intensité relative de ces deux ondes nécessite une description corpusculaire du processus de diffusion Raman spontanée.

Diagrammes d'énergie et distribution de Boltzmann

D'un point de vue corpusculaire, le processus de diffusion Raman spontanée peut être vu comme l'interaction entre un photon à ω_L et un *phonon optique* (qui est un quantum d'énergie vibrationnelle) de fréquence ω_v (figure (1.2.8)) :

- la diffusion Raman Stokes correspond à la transition d'un niveau d'énergie E_a à un niveau d'énergie $E_b = E_a + \hbar\omega_v$ par absorption d'un photon à ω_L et émission d'un photon à

- $\omega_S = \omega_L - \omega_v$: la population de phonons est donc augmentée de 1 unité, par transfert d'énergie de l'onde incidente vers le milieu matériel ;
- la diffusion Raman anti-Stokes correspond à la transition d'un niveau d'énergie E_b à un niveau d'énergie $E_a = E_b - \hbar\omega_v$ par absorption d'un photon à ω_L et émission d'un photon à $\omega_{AS} = \omega_L + \omega_v$: la population de phonons est donc diminuée de 1 unité, par transfert d'énergie du milieu matériel vers l'onde Stokes.

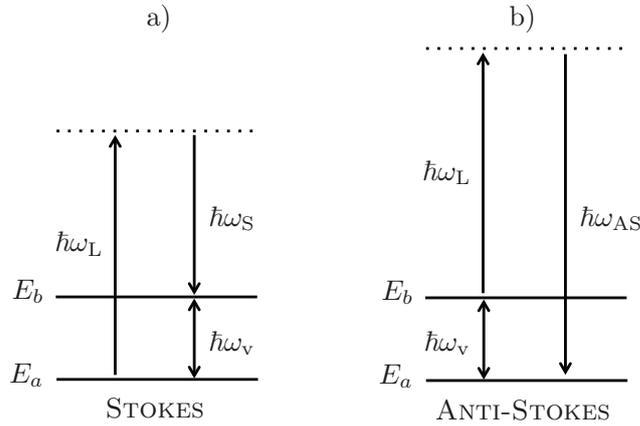


FIG. 1.2.8 – Diagrammes d'énergie décrivant les processus de diffusion Raman Stokes (a) et anti-Stokes (b).

Il est à noter que, puisque les phonons sont des bosons, la population de phonons à la température T (exprimée en K), notée $n_{\text{phonons}}(T)$, suit la statistique de Bose-Einstein :

$$n_{\text{phonons}}(T) = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_v}{k_B T}} - 1} \quad (1.2.52)$$

où k_B est la constante de Boltzmann (figure (1.2.9)). Ainsi, lorsque la température décroît, la population de phonons diminue, et la diffusion Raman spontanée devient de moins en moins efficace. Nous retrouvons ici le fait que l'agitation thermique est responsable des fluctuations de polarisabilité des molécules, et donc du processus de diffusion Raman spontanée, et qu'en refroidissant une source fibrée de paires de photons corrélés il est possible de minimiser la génération de photons Raman non corrélés (voir chapitre d'Introduction).

De plus, à l'équilibre thermodynamique, la population du niveau d'énergie E_b est plus faible que celle du niveau d'énergie E_a d'un facteur égal au facteur de Boltzmann $\exp(-\hbar\omega_v/k_B T)$ (cf. figure (1.2.10)). C'est la raison pour laquelle l'intensité de l'onde anti-Stokes sera plus faible que celle de l'onde Stokes (et le rapport de ces deux intensités sera d'autant plus inférieur à 1 que le décalage Raman ω_v du matériau sera important). Cependant, il est important de noter que la génération spontanée de photons anti-Stokes est loin d'être négligeable devant celle des photons Stokes lorsque les décalages Raman sont de l'ordre de quelques nanomètres seulement, voire quelques dizaines de nanomètres (ce qui correspondra à nos conditions expérimentales).

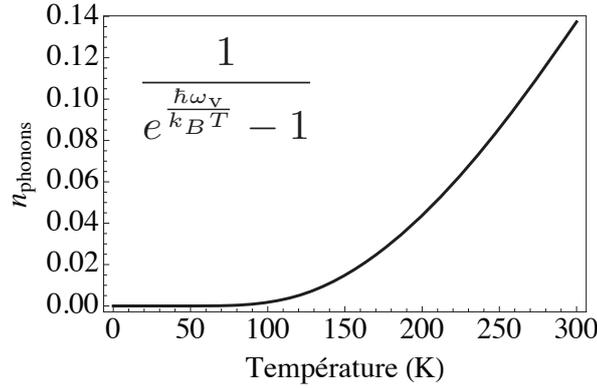


FIG. 1.2.9 – Population de phonons à ω_v en fonction de la température (statistique de Bose-Einstein). La courbe est tracée pour $\omega_v = 2\pi \times 13,2 \cdot 10^{12}$ rad/s (décalage spectral correspondant au maximum du gain Raman de la silice).

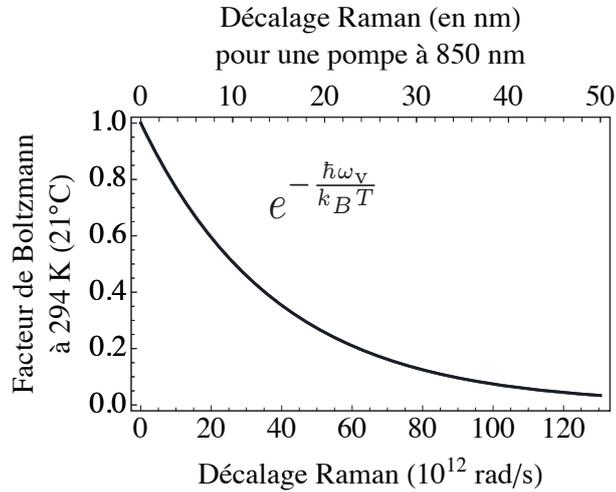


FIG. 1.2.10 – Facteur de Boltzmann en fonction du décalage Raman ω_v du matériau.

Section efficace spectrale différentielle

L'efficacité du processus de diffusion Raman spontanée peut être décrite à l'aide du paramètre S liant la puissance totale diffusée P_{TOT} à l'intensité du champ incident I_L :

$$P_{\text{TOT}} = S I_L N \quad (1.2.53)$$

où N est le nombre de dipôles dans le volume de diffusion. S est appelée *section efficace de diffusion Raman spontanée* (homogène à une surface).

D'un point de vue expérimental, il est souvent plus adapté de définir la section efficace spectrale différentielle de diffusion Raman spontanée, qui permet de décrire la puissance diffusée mesurée dans un angle solide $\Delta\Omega_{\text{solide}}$ et sur une plage spectrale $\delta\omega$ fixés par les caractéristiques (angle solide de collection et résolution spectrale) du spectromètre utilisé :

$$P(\omega; \delta\omega; \Delta\Omega) = \left(\frac{\partial^2 S}{\partial\omega \partial\Omega} \right) \delta\omega \Delta\Omega_{\text{solide}} I_L N \quad (1.2.54)$$

C'est ce paramètre de section efficace spectrale différentielle (qui par ailleurs est directement relié aux fluctuations de la polarisabilité des molécules, comme mis en évidence dans la référence [65], et donc au spectre de diffusion Raman spontanée) que nous utiliserons pour comparer les résultats expérimentaux de génération de photons Raman dans nos fibres microstructurées avec les données de la littérature, qui sont elles-mêmes préférentiellement exprimées en terme de section efficace²² (voir Annexe C.3).

Exemples de spectres de diffusion Raman

Le modèle classique qui vient d'être présenté, dans lequel le milieu est décrit comme un ensemble de molécules diatomiques se comportant comme des oscillateurs harmoniques, est relativement bien adapté au cas d'un milieu matériel liquide ou gazeux : bien que les molécules constituant le liquide ou le gaz soient en général polyatomiques, chaque type de liaison covalente²³ peut être décrite comme un oscillateur harmonique possédant effectivement une fréquence propre d'oscillation, et le spectre Raman est bien modélisé par la superposition de plusieurs raies de profil lorentzien à des fréquences de résonance différentes (dépendant de la constitution chimique du milieu : c'est d'ailleurs la raison pour laquelle la spectroscopie Raman est très utilisée pour identifier et caractériser les substances chimiques). Le spectre Raman de l'acétone, par exemple, a l'allure présentée sur la figure (1.2.11) ci-après.

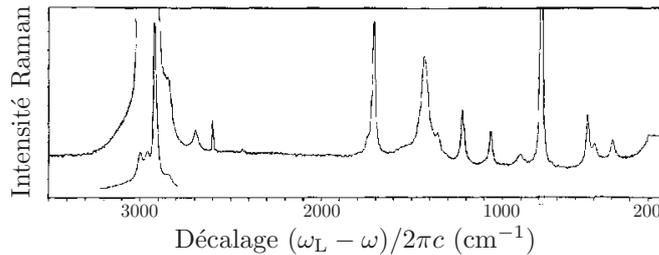


FIG. 1.2.11 – Spectre Raman de l'acétone (tiré de [66]).

En revanche, dans des solides amorphes comme la silice, le spectre Raman ne suit plus ce modèle simple : schématiquement, sous l'effet du désordre constitutif du solide amorphe, les fréquences propres des vibrations moléculaires sont très élargies, sous forme de bandes spectrales qui se recouvrent, créant ainsi un spectre de gain Raman continu très large. Dans la silice, par exemple, le spectre de gain Raman s'étend sur une plage spectrale de plusieurs dizaines de terahertz, avec un gain maximal pour un décalage spectral de l'ordre de 13 THz²⁴. (voir figure (1.2.12) ci-après).

22. La section efficace est un paramètre usuellement adopté pour décrire les phénomènes de diffusion de la lumière de manière générale.

23. Par exemple, la double liaison entre deux atomes de carbone, la liaison simple entre un carbone et un hydrogène, etc.

24. Pour comparer les échelles des spectres Raman, exprimées souvent en cm^{-1} et parfois en THz, notons que $1000 \text{ cm}^{-1} = 30 \text{ THz}$ et $13,2 \text{ THz} = 440 \text{ cm}^{-1}$.

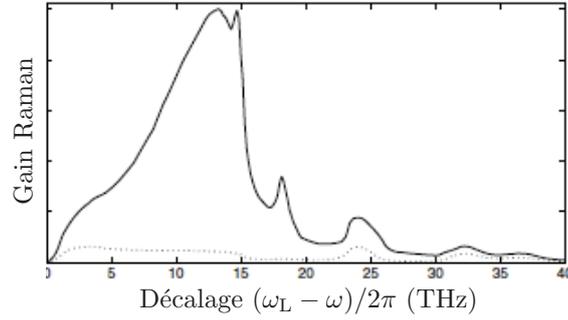


FIG. 1.2.12 – Spectre Raman de la silice (tiré de [10]).

1.2.3.2 Diffusion Raman stimulée (Amplification Raman)

Origine du processus non linéaire d'amplification Raman – Description moléculaire

Il est possible de décrire le processus de diffusion Raman stimulée en adoptant la même approche classique que pour la description de la diffusion Raman spontanée, c'est-à-dire en considérant que le milieu est constitué de molécules diatomiques modélisables par des oscillateurs harmoniques amortis de fréquence propre ω_v et de coefficient d'amortissement Γ . Supposons qu'un tel milieu est éclairé par une onde de forte intensité à la fréquence ω_L et une onde (de plus faible intensité) à la fréquence $\omega < \omega_L$. L'interférence de ces deux ondes va créer une modulation d'intensité lumineuse (un battement) à la fréquence $\Omega = \omega_L - \omega$. Si cette fréquence de battement est égale à la fréquence propre ω_v des vibrations des molécules (autrement dit si $\omega = \omega_S = \omega_L - \omega_v$), ces vibrations vont être excitées de manière cohérente, et le processus de diffusion Raman sera renforcé : l'onde à ω_S , initialement de faible intensité, va être amplifiée. On parle donc de processus d'*amplification Raman* à la fréquence Stokes.

La mise en équations de ce processus conduit à l'équation d'évolution suivante pour l'intensité de l'onde à ω [59] :

$$\frac{dI_\omega}{dz} = -\frac{3\omega \operatorname{Im}[\chi_R(\omega)]}{\epsilon_0 c^2 n_0(\omega) n_0(\omega_L)} I_L(z) I_\omega(z) \quad (1.2.55)$$

où le paramètre $\chi_R(\omega)$, appelé *susceptibilité Raman*, est défini par [59] :

$$\chi_R(\omega) = \frac{\chi_0}{\omega_v^2 - \Omega^2 + 2i\Gamma\Omega} \quad (1.2.56)$$

avec :

$$\chi_0 = \frac{N}{6\epsilon_0 m} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial r} \right)_{r=r_0}^2 \quad (1.2.57)$$

(N est la densité de molécules, et m la masse d'une molécule.)

Ce paramètre de susceptibilité Raman a été introduit par la communauté de l'optique non linéaire pour décrire le processus (non linéaire) d'amplification Raman. Il peut cependant être utilisé, au même titre que le paramètre de section efficace, pour décrire le processus de diffusion Raman spontanée (l'équation (1.2.57) met explicitement en évidence la dépendance de la susceptibilité Raman avec les fluctuations de la polarisabilité, quelle que soit l'origine de ces fluctuations – agitation thermique ou battement entre deux ondes électromagnétiques).

L'équation (1.2.56) peut être réécrite en faisant explicitement apparaître la partie réelle et la partie imaginaire de $\chi_R(\omega)$:

$$\chi_R(\omega) = \frac{\chi_0}{2\Gamma\Omega(1+\delta^2)}(\delta - i) \quad (1.2.58)$$

avec :

$$\delta = \frac{\omega_v^2 - \Omega^2}{2\Gamma\Omega} \quad (1.2.59)$$

La figure (1.2.13) donne un aperçu de l'allure des parties réelle et imaginaire de χ_R en fonction de la différence de fréquence Ω entre les deux ondes présentes dans le milieu. Nous voyons en particulier que la partie imaginaire présente une allure (quasi) lorentzienne, avec une résonance pour $\Omega = \pm \omega_v$ (c'est-à-dire lorsque la fréquence de battement est égale, en valeur absolue, à la fréquence propre de vibration des molécules)²⁵ et une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 2Γ .

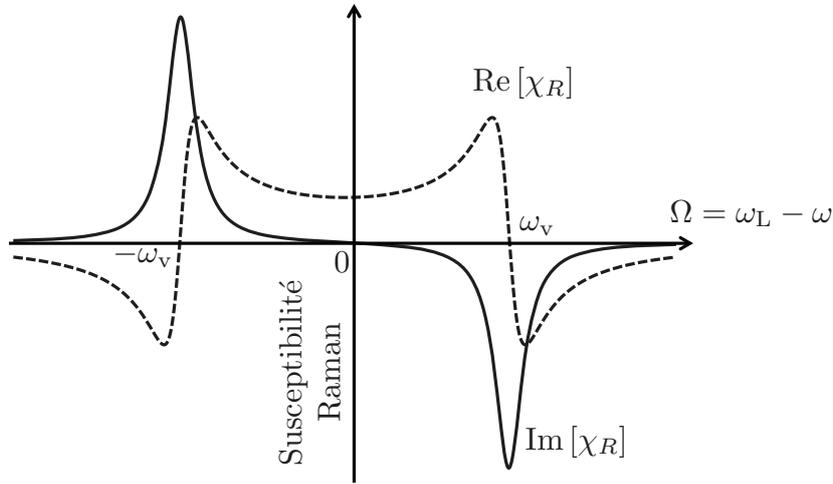


FIG. 1.2.13 – Allure des parties réelle (tirets) et imaginaire (trait plein) de la susceptibilité Raman en fonction de la fréquence de battement $\Omega = \omega_L - \omega$.

Les équations (1.2.58) et (1.2.59) et la figure (1.2.13) montrent que, pour $\Omega > 0$, la partie imaginaire de χ_R est toujours négative. L'équation (1.2.55) prend donc la forme :

$$\frac{dI_\omega}{dz} = \gamma_S(\omega)I_L(z)I_\omega(z) \quad (1.2.60)$$

avec $\gamma_S(\omega)$ réel positif, ce qui indique que l'onde Stokes subit effectivement une *amplification*. En revanche, pour $\Omega < 0$, la partie imaginaire est toujours positive ($\text{Im}[\chi_R(\Omega)]$ est une fonction impaire, voir figure (1.2.13)), ce qui signifie que l'onde anti-Stokes subit une *atténuation*.

L'approche classique que nous venons d'évoquer²⁶ permet de décrire simplement l'origine physique du processus d'amplification Raman. Cependant, comme les processus non linéaires

25. Remarquons qu'à la résonance la partie réelle est nulle, donc que χ_R est un imaginaire pur.

26. Le traitement complet peut être retrouvé par exemple dans la référence [59].

que nous avons déjà abordés dans cette section, l'amplification Raman peut également être interprétée comme l'interaction entre les ondes électromagnétiques et le milieu matériel par l'intermédiaire du tenseur susceptibilité non linéaire d'ordre 3 du milieu. C'est l'approche développée ci-après, et que j'appellerai par la suite "approche *formelle*".

Équations couplées du processus d'amplification Raman – Description formelle

Considérons un milieu traversé, dans la direction z , par deux ondes planes monochromatiques aux fréquences ω_L et ω_S , l'onde (de pompe) à ω_L étant supposée beaucoup plus intense que l'onde (Stokes) à ω_S . Les deux ondes sont supposées présenter le même état de polarisation \vec{e} . Le champ total dans le milieu s'écrit :

$$\vec{\mathcal{E}}(z; t) = \vec{\mathcal{E}}_L(z; t) + \vec{\mathcal{E}}_S(z; t) \quad (1.2.61)$$

avec :

$$\begin{aligned} \vec{\mathcal{E}}_J(z; t) &= (E(\omega_J; z) e^{-i\omega_J t} + \text{c.c.}) \vec{e} \\ &= \left(A(\omega_J; z) e^{i(k_J z - \omega_J t)} + \text{c.c.} \right) \vec{e} \end{aligned} \quad (1.2.62)$$

où $J = L$ ou S .

À partir de l'équation (1.1.14), nous pouvons calculer l'expression de l'amplitude complexe de la polarisation non linéaire d'ordre 3 à la fréquence Stokes :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega_S; z) = 6\epsilon_0 \underline{\underline{\chi}}^{(3)}(\omega_S; \omega_S, \omega_L, -\omega_L) |A(\omega_L; z)|^2 A(\omega_S; z) e^{ik_S z} \vec{e} \vec{e} \vec{e} \quad (1.2.63)$$

Puis, à partir de l'équation générale (1.1.11), nous obtenons l'équation de propagation non linéaire pour l'onde Stokes :

$$\frac{\partial A(\omega_S; z)}{\partial z} = \frac{i\omega_S}{2n_0(\omega_S)\epsilon_0 c} 6\epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} |A(\omega_L; z)|^2 A(\omega_S; z) \quad (1.2.64)$$

avec :

$$\chi_{eff}^{(3)} = \vec{e} \cdot \left(\underline{\underline{\chi}}^{(3)}(\omega_S; \omega_S, \omega_L, -\omega_L) \vec{e} \vec{e} \vec{e} \right) \quad (1.2.65)$$

Remarquons que l'absence de facteur $e^{i\Delta k}$ dans le membre de droite de l'équation de propagation (1.2.64) met en évidence le fait que l'accord de phase est automatiquement satisfait, comme je le mentionnais en sous-section 1.1.4.

Nous pouvons enfin en déduire l'équation d'évolution de l'intensité de l'onde Stokes (en rappelant que $I_J(z) = 2n_0(\omega_J)\epsilon_0 c |A(\omega_J; z)|^2$ pour $J = S$ ou L) :

$$\frac{dI_S}{dz} = g_R I_L(z) I_S(z) \quad (1.2.66)$$

avec :

$$g_R = -\frac{3\omega_S \text{Im} \left[\chi_{eff}^{(3)} \right]}{\epsilon_0 c^2 n_0(\omega_S) n_0(\omega_L)} \quad (1.2.67)$$

g_R est le *coefficient de gain Raman* pour l'onde Stokes²⁷, proportionnel à la partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire effective. Nous retrouvons le fait que l'amplification Raman est un processus *inélastique*, c'est-à-dire qu'il y a transfert d'énergie entre les ondes électromagnétiques et le milieu matériel (contrairement aux cas du processus d'automodulation de phase et du processus de mélange à quatre ondes, qui ne font intervenir que la partie réelle de $\chi_{eff}^{(3)}$).

En comparant les équations (1.2.66) et (1.2.67) ci-dessus avec l'équation (1.2.55), nous voyons que la *susceptibilité Raman* $\chi_R(\omega)$ définie dans l'approche classique peut être identifiée à la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 effective donnée par l'équation (1.2.65). Ainsi, nous pouvons dire que $\text{Im} \left[\chi_{eff}^{(3)} \right]$ est négatif, et donc que le coefficient de gain Raman pour l'onde Stokes est un réel positif : l'équation (1.2.66) indique donc que l'onde Stokes va être *amplifiée*.

L'équation d'évolution de l'intensité de l'onde de pompe se déduit directement de celle de l'onde Stokes en remarquant que l'accroissement du nombre de photons Stokes est simplement égal à la diminution du nombre de photons de pompe. Ceci est bien visualisable sur le diagramme d'énergie (a) de la figure (1.2.8) : lors du processus de diffusion Raman Stokes, il y a simultanément consommation d'un photon de pompe (à ω_L) et création d'un photon Stokes (à ω_S) (ainsi que d'un phonon optique). Ainsi, nous pouvons écrire :

$$\frac{d(I_L/(\hbar\omega_L))}{dz} = -\frac{d(I_S/(\hbar\omega_S))}{dz}$$

soit :

$$\frac{dI_L}{dz} = -\frac{\omega_L}{\omega_S} \frac{dI_S}{dz} \quad (1.2.68)$$

d'où :

$$\frac{dI_L}{dz} = -\frac{\omega_L}{\omega_S} g_R I_L(z) I_S(z) \quad (1.2.69)$$

Solution dans le cadre de l'approximation paramétrique

Les équations (1.2.66) et (1.2.69) constituent un système d'équations couplées, qui est très simple à résoudre dans le cadre de l'approximation paramétrique, c'est-à-dire en supposant que l'efficacité du processus est assez faible pour que l'intensité de la pompe puisse être considérée comme inchangée :

$$I_L(z) \sim \text{cst} = I_L(z=0) = I_L \quad (1.2.70)$$

Nous obtenons dans ce cas :

$$I_S(z) = I_S(z=0) e^{g_R I_L z} \quad (1.2.71)$$

L'intensité de l'onde Stokes croît donc exponentiellement avec l'intensité de l'onde de pompe injectée dans le milieu et avec la longueur d'interaction.

27. g_R peut être relié à la susceptibilité Raman et à la section efficace. Il s'agit là encore d'un paramètre permettant de décrire le processus de diffusion Raman. Les spectroscopistes préfèrent utiliser le paramètre de section efficace, les "non-linéaristes" la susceptibilité Raman ou le gain Raman...

1.2.3.3 Diffusion Raman spontanée amplifiée

De même que les équations (1.2.28) ne permettent pas de décrire le processus de mélange à quatre ondes spontané amplifié, l'équation (1.2.71) ne rend pas compte des observations expérimentales lorsque le faisceau de pompe (à ω_L) est injecté seul dans le milieu matériel (cas (c) de la figure (1.2.6)). En effet, si l'on suppose que $I_S(z = 0) = 0$ (c'est-à-dire que l'onde Stokes est initialement absente du milieu matériel), l'équation (1.2.71) prévoit une absence totale d'évolution du système : $I_S(z)$ doit rester nul quel que soit z . Or, expérimentalement, nous observons que si l'intensité de l'onde de pompe est "suffisamment" élevée, une onde Stokes peut être créée et exponentiellement amplifiée (voir figure (1.2.14)).

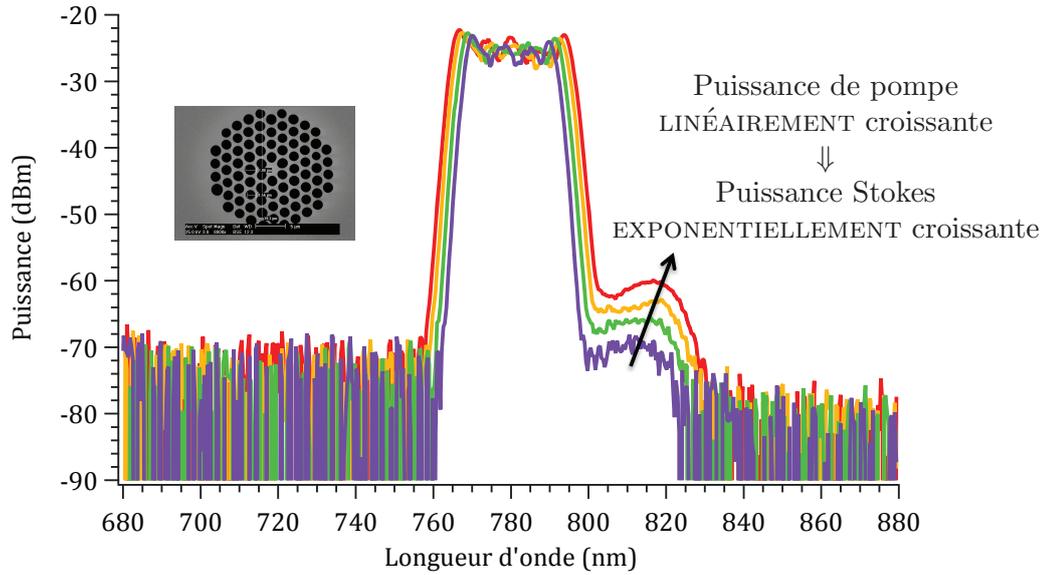


FIG. 1.2.14 – Spectres obtenus en sortie de notre fibre microstructurée à cœur de silice (voir Annexe A.1) en injectant (uniquement) un faisceau pompe à 780 nm. Comme le mettent en évidence les courbes d'accord de phase de la figure (1.2.4), le processus de mélange à quatre ondes ne peut pas avoir lieu avec une telle longueur d'onde de pompe. Nous observons en revanche l'apparition d'une onde Stokes par diffusion Raman spontanée amplifiée, dont l'intensité croît exponentiellement avec l'intensité de pompe injectée dans la fibre. Les spectres présentés ont été obtenus pour des intensités pompe augmentant linéairement de $1,8 \cdot 10^{14}$ à $2,7 \cdot 10^{14}$ $W \cdot m^{-2}$ (par pas de $0,3 \cdot 10^{14}$ $W \cdot m^{-2}$) typiquement.

Par analogie avec la description classique du processus de mélange à quatre ondes spontané amplifié, nous pouvons décrire ce processus de *diffusion Raman spontanée amplifiée* comme l'amplification d'un premier photon *fictif* qui aurait été placé en entrée du milieu matériel²⁸. Un tel photon peut en particulier avoir été généré spontanément par diffusion Raman. Bien que ce processus spontané soit très peu efficace [59], il peut être suffisant pour amorcer le processus non linéaire d'amplification Raman.

L'intensité totale générée par diffusion Raman spontanée amplifiée peut ainsi être calculée en considérant l'amplification d'un premier photon dans la plage de fréquences $[\omega; \omega + d\omega]$ puis

²⁸. Rappelons une nouvelle fois que l'analogie a plutôt été réalisée dans l'autre sens : ce type de description classique a été proposé par R.G. Smith (voir la référence [63]) pour traiter le cas de la diffusion Raman spontanée amplifiée, et le traitement du mélange à quatre ondes spontané amplifié proposé dans la partie 1.2.2.4 de ce manuscrit résulte d'une adaptation du modèle de R.G. Smith.

en intégrant le résultat sur l'ensemble du spectre de gain Raman du matériau. Typiquement, pour un spectre de gain Raman de largeur $\Delta\Omega$ (en rad/s), on montre²⁹ que l'intensité totale générée dans l'onde Stokes est donnée par :

$$I_S(z) \sim \frac{\hbar\omega_L}{A_{eff}} \frac{\Delta\Omega}{2\pi} e^{g_R I_L z} \quad (1.2.72)$$

où nous rappelons que A_{eff} représente l'aire effective d'interaction. Dans le cas où le milieu non linéaire est une fibre optique monomode, A_{eff} est simplement l'aire effective du mode fondamental de cette fibre.

L'équation (1.2.72) montre que l'intensité de l'onde Stokes doit croître exponentiellement avec l'intensité de l'onde incidente à ω_L et avec la longueur d'interaction. C'est effectivement la tendance que nous retrouvons sur nos résultats expérimentaux (voir figure (1.2.14)).

Seuil du processus d'amplification Raman

L'une des caractéristiques importantes du processus de diffusion Raman spontanée amplifiée est qu'il ne peut être efficace que si l'intensité de l'onde de pompe dépasse une valeur seuil, I_L^{seuil} , fixée par les propriétés optiques du milieu. Dans le cas où le milieu non linéaire est une fibre optique, cette valeur seuil est usuellement définie comme l'intensité de pompe nécessaire pour que l'intensité de l'onde Stokes en sortie de fibre ($I_S(L_{\text{fibre}})$) soit égale à un dixième de l'intensité de la pompe. Pour avoir une estimation de cette valeur seuil, nous pouvons supposer que l'intensité de l'onde incidente reste quant à elle inchangée au cours de l'interaction dans la fibre³⁰. Alors l'intensité de pompe seuil est simplement solution de l'équation implicite suivante (obtenue à partir de l'équation (1.2.72)) :

$$\frac{\hbar\omega_L}{A_{eff}} \frac{\Delta\Omega}{2\pi} e^{g_R I_L^{\text{seuil}} L_{\text{fibre}}} = \frac{I_L^{\text{seuil}}}{10} \quad (1.2.73)$$

Dans le cas d'une fibre à cœur de silice, g_R est de l'ordre de $2.10^{-13} \text{ m.W}^{-1}$ et $\Delta\Omega/(2\pi)$ de l'ordre de 10 THz. Supposons (pour être en accord avec les caractéristiques de la fibre utilisée pour obtenir les spectres de la figure (1.2.14)) que L_{fibre} est de l'ordre du mètre et A_{eff} de l'ordre de $4 \mu\text{m}^2$. Enfin (toujours conformément aux conditions expérimentales associées aux résultats de la figure (1.2.14)), supposons que la longueur d'onde du faisceau incident est égale à 780 nm. Dans ces conditions, nous obtenons $I_L^{\text{seuil}} \sim 8.10^{13} \text{ W.m}^{-2}$, c'est-à-dire une puissance crête de l'ordre de 300 W. Ce résultat est compatible, en ordre de grandeur, avec nos résultats expérimentaux.

Lors de nos expériences de génération de paires de photons corrélés (voir Chapitre 3), nous verrons que l'intensité du faisceau pompe utilisé restera toujours très inférieure (de plus d'un ordre de grandeur) à l'intensité seuil de l'amplification Raman. De manière générale, **c'est le processus linéaire de diffusion Raman spontanée qui limite les performances des sources de paires de photons corrélés fibrées à cœur de silice.**

29. Il est en général difficile d'avoir une expression analytique du spectre de gain Raman. Le calcul peut être mené en approxinant ce spectre par un rectangle de largeur $\Delta\Omega$ centré en $\Omega = \omega_\nu$ et de hauteur g_R (voir équation (1.2.67)), et en utilisant le fait que le décalage Raman ω_ν est en général petit devant ω_L . Le résultat obtenu, bien qu'approximatif, donne une bonne estimation de l'évolution de l'intensité de l'onde Stokes.

30. Cette approximation est relativement grossière, mais reste malgré tout acceptable dans la limite où l'intensité Stokes ne dépasse pas un dixième de l'intensité pompe en sortie de la fibre.

Conclusion

Parmi les trois processus que nous avons présentés dans ce chapitre, le processus de mélange à quatre ondes est au cœur de notre étude : c'est par ce mécanisme que vont être générées les paires de photons corrélés utiles aux télécommunications quantiques.

La diffusion Raman, d'autre part, constitue la problématique même de notre travail : en tant que limitation principale des performances quantiques des sources de paires de photons corrélés basées sur une architecture fibrée à cœur de silice, c'est le processus dont nous cherchons à nous affranchir en proposant une architecture fibrée à *cœur liquide*. Comme nous l'avons mentionné précédemment, le spectre Raman des liquides est en général très différent de celui de la silice (revoir par exemple les spectres Raman de l'acétone et de la silice donnés en figures (1.2.11) et (1.2.12)), étant constitué de raies (d'allure lorentzienne) très fines plutôt que d'un *continuum* très large, et avec un décalage Raman généralement important. Ces propriétés particulières vont permettre, en jouant sur la géométrie de microstructuration de la fibre et sur l'indice de réfraction linéaire du liquide, de rejeter les raies Raman principales du liquide en dehors de la bande de transmission de la fibre (s'affranchissant ainsi de la majeure partie des photons Raman, qui ne pourront simplement plus être transmis dans le cœur de la fibre), et de positionner les raies Raman de plus faible intensité dans des plages spectrales où le processus de mélange à quatre ondes ne peut pas avoir lieu (de sorte que les photons Raman seront générés à des longueurs d'onde différentes des photons signal et idler, et pourront donc être filtrés).

Le processus d'automodulation de phase de la pompe, quant à lui, pourra être négligé dans les conditions expérimentales associées à la production de paires de photons corrélés (régime de très faible efficacité non linéaire). En revanche, il sera très utile en régime de fort gain, lorsque l'élargissement spectral de la pompe sera nettement visible à l'aide d'un analyseur de spectre optique : en effet, comme nous le verrons au Chapitre 3, la mesure de l'élargissement spectral en fonction de la puissance du faisceau pompe injecté dans la fibre nous permettra de déterminer la valeur de l'indice de réfraction non linéaire n_2 du liquide utilisé pour remplir la fibre. La connaissance de cette valeur est essentielle pour pouvoir prédire les performances du système (en particulier en terme d'efficacité de génération des paires de photons corrélés), et contrairement au cas de la silice³¹, l'indice de réfraction non linéaire de la majorité des liquides n'est pas disponible dans la littérature.

Ce Chapitre 1 m'a permis de présenter les concepts essentiels à la compréhension des phénomènes mis en jeu dans mon travail de thèse. La suite de ce manuscrit concerne ce travail de thèse en tant que tel, dans son approche théorique (Chapitre 2) et dans son approche expérimentale (Chapitre 3). Bien que séparés en deux chapitres distincts, ces aspects théorique et expérimental sont étroitement imbriqués, puisque :

- d'une part, les simulations obtenues à partir du modèle analytique développé (que je présente au Chapitre 2) ont influencé notre conception du montage de détection des paires de photons corrélés (présenté au Chapitre 3) et notre choix des conditions expérimentales de travail ;
- d'autre part, la mise en œuvre de ces simulations nécessite une connaissance préalable de certaines propriétés de la fibre génératrice des paires de photons, à savoir sa courbe de dispersion et son coefficient non linéaire. Une phase expérimentale préliminaire de caractérisation de la fibre est donc nécessaire avant de pouvoir réaliser les simulations.

31. L'indice de réfraction non linéaire de la silice est de l'ordre de $2,7 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ [10].

CHAPITRE 2

Description quantique de la génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané en régime impulsif

Pour pouvoir prédire les performances d'une source de paires de photons corrélés fibrée en régime impulsif, que ce soit en terme de *brillance* (c'est-à-dire de taux de génération des paires) ou de propriétés spectrales des paires émises, nous avons développé un modèle analytique basé sur la description quantique du processus de mélange à quatre ondes spontané. L'objet de ce chapitre est de montrer comment, à partir de l'expression de l'énergie locale d'interaction non linéaire et de la quantification des champs signal et idler, il est possible de dériver une expression analytique de la densité spectrale de probabilité de génération des photons corrélés. Ce modèle nous permettra de choisir la configuration expérimentale la mieux adaptée à l'observation de la génération de paires de photons corrélés dans une fibre dont le coefficient non linéaire et la courbe de dispersion sont connus.

Sommaire

2.1	Introduction	47
2.1.1	Contexte de l'étude	47
2.1.2	Principe du calcul	48
2.2	Description du milieu non linéaire et du champ de pompe	51
2.3	Dérivation de l'hamiltonien local d'interaction non linéaire	53
2.3.1	Énergie locale d'interaction non linéaire	53
2.3.2	Quantification des champs signal et idler	59
2.3.3	Hamiltonien local d'interaction non linéaire	60
2.4	Fonction d'onde de la paire de photons corrélés	62
2.5	Probabilité de génération d'une paire	66
2.5.1	Densité spectrale de probabilité bidimensionnelle	66
2.5.2	Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique	72
2.5.3	Probabilité de génération d'une paire de photons corrélés	74
	Conclusion	77

2.1 Introduction

2.1.1 Contexte de l'étude

L'objectif du travail de thèse présenté dans ce manuscrit est de mettre à profit le processus non linéaire de mélange à quatre ondes dans une fibre optique microstructurée à cœur liquide pour générer des paires de photons corrélés exploitables dans des applications d'optique quantique (en particulier dans le domaine des télécommunications quantiques). Dans cette optique, un critère important doit être respecté : chaque impulsion de pompe se propageant dans la fibre ne doit être susceptible de donner naissance qu'à *une seule* paire de photons corrélés au maximum. Ce critère simple provient des contraintes expérimentales de détection, qui sont telles que plusieurs paires émises à partir de la même impulsion de pompe ne peuvent pas être détectées séparément : la résolution des détecteurs n'est pas assez fine pour identifier deux (ou plus) photons signal (ou idler) issus de la même impulsion de pompe. Autrement dit, si plusieurs paires sont générées à partir de la même impulsion de pompe, l'expérimentateur est dans l'incapacité d'associer chaque photon signal à son *propre* photon idler (c'est-à-dire celui qui a été émis simultanément), et donc d'exploiter les propriétés de corrélation qui lient ces deux photons.

Pour satisfaire ce critère d'"émission individuelle des paires" (c'est-à-dire éviter l'émission de paires multiples), il suffit d'adapter les conditions expérimentales de sorte à ce que l'efficacité non linéaire soit "assez faible" (en jouant en particulier sur la puissance de pompe injectée dans la fibre, ou éventuellement sur la longueur de la fibre). Par ailleurs, une évidence qui découle de ce critère est qu'il faut travailler en régime spontané. Si l'on injectait dans la fibre un faisceau pompe intense *accompagné d'un faisceau signal* (de faible intensité), même si une seule paire de photons corrélés était effectivement émise au cours de la propagation dans la fibre, il serait impossible d'identifier le photon signal ainsi créé parmi tous les photons signal injectés dans la fibre!

La situation est donc la suivante : pour pouvoir prédire les performances de notre source fibrée (tant en termes de taux de génération des paires que de propriétés spectrales des paires émises), nous souhaitons disposer d'un modèle analytique permettant de décrire *de manière quantitative* le processus de mélange à quatre ondes spontané en régime impulsif et de *très faible efficacité non linéaire*. Dans ce cadre, les équations présentées au Chapitre 1 (sous-section 1.2.2), qui ont été dérivées en régime d'amplification (ou en régime spontané amplifié) et en considérant des ondes planes quasi-monochromatiques, ne sont pas adaptées. La description du mécanisme de génération de la toute première paire de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané (c'est-à-dire lorsque le champ électromagnétique aux fréquences signal et idler est initialement *vide de tout photon*) nécessite d'adopter une *approche quantique*, dans laquelle les champs signal et idler seront quantifiés (le champ de pompe, quant à lui, puisqu'il est très intense, pourra être considéré comme classique).

Le modèle développé dans ce chapitre est inspiré de celui proposé par Smirri *et al.* dans la référence [67] (voir aussi le manuscrit de thèse [68]) pour la description quantique du processus de fluorescence paramétrique dans des cristaux non linéaires d'ordre 2 en régime impulsif. Nous avons adapté ce modèle à l'ordre 3, c'est-à-dire pour le processus de mélange à quatre ondes spontané, et au cas d'une propagation guidée dans le milieu non linéaire, en conservant une démarche de calcul similaire. En particulier, nous avons choisi d'adopter une approche basée sur la représentation d'Interaction¹ pour établir l'expression de la probabilité p_1 de générer *une*

1. On trouvera en Annexe B.1 une présentation rapide des trois représentations utilisées en Mécanique

paire de photons corrélés lors de la propagation d’une impulsion de pompe dans la fibre². Comme expliqué dans l’Annexe B.1, ce choix de représentation semble le mieux adapté à notre étude, car l’évolution du nombre de paires signal/idler est exclusivement due aux interactions du système étudié (qui est la réunion des champs signal et idler, initialement vides de tout photon) avec son environnement (par l’intermédiaire de la polarisation non linéaire d’ordre 3 du milieu).

2.1.2 Principe du calcul

Nous souhaitons calculer la densité spectrale de probabilité de génération d’une paire de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané lors de la propagation d’une impulsion de pompe dans une fibre optique, autrement dit la probabilité d’avoir généré, au cours de cette propagation, un photon signal dans une plage spectrale $[\omega; \omega + d\omega]$ donnée, accompagné d’un photon idler dans une plage spectrale $[\omega'; \omega' + d\omega']$ donnée.

Comme expliqué dans l’Annexe B.1, le système constitué de la réunion des champs signal et idler (initialement vides de tout photon) est décrit par une fonction d’onde $|\psi_{\text{paire}}\rangle$, et l’opération mathématique correspondant au fait de mesurer le nombre de photons signal (respectivement idler) dont il est constitué revient à faire agir l’opérateur hermitique (ou *observable*) “nombre de photons signal” (respectivement idler) sur cette fonction d’onde. Les seules valeurs possibles pour le résultat de mesure sont les valeurs propres de l’opérateur “nombre de photons”, c’est-à-dire les entiers $n \geq 0$, et la probabilité de trouver (c’est-à-dire d’obtenir comme résultat de mesure) que le système est constitué d’une paire de photons corrélés dont un photon est contenu dans la plage spectrale $[\omega; \omega + d\omega]$ et l’autre dans la plage spectrale $[\omega'; \omega' + d\omega']$ est donnée par :

$$\text{Proba}(\omega, \omega') = |\langle 1_\omega, 1_{\omega'} | \psi_{\text{paire}} \rangle|^2 d\omega d\omega' \quad (2.1.1)$$

où $|1_\omega, 1_{\omega'}\rangle$ est l’état de Fock³ à 1 photon à la fréquence ω et 1 photon à la fréquence ω' .

Il s’agit donc d’étudier l’évolution de $\text{Proba}(\omega, \omega')$ entre un instant initial précédant l’entrée de l’impulsion de pompe dans la fibre ($t \leq 0$), pour lequel nous savons que les champs signal et idler sont vides de tout photon, et un instant final postérieur au passage de l’impulsion dans la fibre ($t \geq T_{\text{prop}}$, où T_{prop} désigne le temps de propagation de l’impulsion dans la fibre).

Or, comme expliqué dans l’Annexe B.1, l’évolution temporelle du résultat d’une mesure qui serait effectuée sur le système (dans notre cas, le nombre de photons signal et idler) résulte de l’évolution temporelle de la fonction d’onde du système et/ou des observables (les opérateurs nombres de photons signal et idler), suivant la représentation que l’on choisit d’utiliser. En représentation d’Interaction, qui est la représentation que nous avons adoptée, les opérateurs nombres de photons signal et idler portent la dépendance temporelle due à l’hamiltonien du système fermé (\hat{H}_0), ce qui représente simplement la *propagation* des photons signal et idler éventuellement créés ; la fonction d’onde de la paire, quant à elle, porte la dépendance temporelle

Quantique : les représentations de Heisenberg, de Schrödinger et d’Interaction.

2. Plus précisément, nous verrons dans ce chapitre que le modèle conduit à l’expression analytique de la *densité spectrale de probabilité* de génération d’une paire de photons corrélés lors de la propagation d’une impulsion de pompe dans la fibre, qui permet de prévoir les propriétés spectrales des paires générées. En intégrant ensuite sur l’ensemble du spectre d’émission, on obtient l’expression de la probabilité p_1 , qui conduit au taux global de génération des paires.

3. L’état de Fock à n photons est le vecteur propre de l’opérateur nombre de photons associé à la valeur propre n .

due à l'hamiltonien d'interaction (\hat{H}_{int}), c'est-à-dire due aux interactions avec le milieu, ce qui représente le processus de création (ou d'annihilation) des paires en tant que tel. La fonction d'onde de la paire à l'instant t , qui est notée $|\psi_{\text{paire},I}(t)\rangle$ (l'indice I rappelle que nous travaillons en représentation d'Interaction), vérifie :

$$|\psi_{\text{paire},I}(t + dt)\rangle = e^{-\frac{i}{\hbar} dt \hat{H}_{\text{int}}(t)} |\psi_{\text{paire},I}(t)\rangle \quad (2.1.2)$$

où $\hat{H}_{\text{int}}(t)$ est l'hamiltonien d'interaction qui fait évoluer la fonction d'onde de la paire entre les instants t et $t + dt$. Cet hamiltonien résulte de la somme de tous les hamiltoniens d'interaction locaux $\hat{H}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t)$, qui décrivent l'interaction entre chaque point \vec{r}_0 du milieu non linéaire et le champ électromagnétique en ce point \vec{r}_0 à l'instant t :

$$\hat{H}_{\text{int}}(t) = \int_{V_{\text{fibre}}} \hat{H}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t) = \int_{V_{\text{fibre}}} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t) d^3\vec{r}_0 \quad (2.1.3)$$

où V_{fibre} est le volume de la fibre (autrement dit, le volume du milieu non linéaire), et $\hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t)$ est l'opérateur *densité volumique d'énergie d'interaction* local en \vec{r}_0 et à l'instant t . Notons que la dépendance temporelle de l'hamiltonien local en \vec{r}_0 (et donc celle de $\hat{H}_{\text{int}}(t)$) vient du fait que l'intensité du champ de pompe en \vec{r}_0 évolue au cours du temps (puisque le champ de pompe est constitué d'une impulsion qui *se propage* dans la fibre).

Puisque nous savons que $|\psi_{\text{paire},I}(t \leq 0)\rangle = |0, 0\rangle$ (les champs signal et idler sont initialement vides de tout photon), les équations (2.1.2) et (2.1.3) conduisent à :

$$|\psi_{\text{paire},I}(t)\rangle = e^{-\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \hat{H}_{\text{int}}(t') dt'} |0, 0\rangle = e^{-\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \int_{V_{\text{fibre}}} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t') d^3\vec{r}_0 dt'} |0, 0\rangle \quad (2.1.4)$$

Dans la limite où nous nous restreignons à des efficacités non linéaires extrêmement faibles, l'équation ci-dessus peut être écrite sous la forme développée à l'ordre 1 :

$$\begin{aligned} |\psi_{\text{paire},I}(t)\rangle &= \left(\mathbb{1} - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \int_{V_{\text{fibre}}} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t') d^3\vec{r}_0 dt' \right) |0, 0\rangle \\ &= |0, 0\rangle - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \int_{V_{\text{fibre}}} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t') d^3\vec{r}_0 dt' |0, 0\rangle \end{aligned} \quad (2.1.5)$$

Cette expression traduit clairement le fait que, lorsqu'on se limite à un développement à l'ordre 1 de la fonction d'onde de la paire, celle-ci s'écrit comme une superposition de deux états :

- Premier état : aucune paire n'a été créée dans la fibre avant l'instant t ;
- Deuxième état : une paire a été créée dans la fibre à l'un des instants t' précédant t .

Dans le cas particulier où $t \geq T_{\text{prop}}$, c'est-à-dire à l'état final, nous avons :

$$|\psi_{\text{paire},\text{final},I}\rangle = |0, 0\rangle - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{V_{\text{fibre}}} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t') d^3\vec{r}_0 dt' |0, 0\rangle \quad (2.1.6)$$

La première étape du calcul consistera donc à dériver l'expression de $\hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0, t)$: il s'agira d'exprimer, puis de quantifier, la densité volumique d'énergie d'interaction non linéaire d'ordre 3 entre le milieu et le champ électromagnétique au point \vec{r}_0 et à l'instant t (notée $U_{\text{int}}(\vec{r}_0, t)$).

Ensuite, la fonction d'onde de la paire à l'état final pourra être calculée (à partir de l'équation (2.1.6)), et nous en déduirons l'expression analytique de la densité spectrale de probabilité de génération d'un photon au sein d'une paire de photons corrélés (voir équation (2.1.1)), ce qui nous renseignera sur les propriétés spectrales des paires générées et sur le taux de génération des paires.

Au préalable, je donne dans la section suivante une rapide description du milieu non linéaire et du champ de pompe correspondant à nos conditions expérimentales.

2.2 Description du milieu non linéaire et du champ de pompe

Le milieu non linéaire considéré est une fibre optique de longueur L_{fibre} dans laquelle on injecte, sur le mode transverse fondamental d'aire effective A_{eff} , et avec un taux de répétition Γ , des impulsions de pompe de profil temporel en amplitude normalisé⁴, de forme sécante hyperbolique^{5, 6} :

$$G_{T_0}(t) = \frac{1}{\sqrt{2T_0}} \operatorname{sech}\left(\frac{t}{T_0}\right) \quad (2.2.1)$$

et de profil spatial transverse en amplitude normalisé, de forme gaussienne :

$$G_{\perp}(\vec{r}_{\perp}) = \left(\frac{2}{\pi w_{eff}^2}\right)^{\frac{1}{4}} e^{-\frac{|\vec{r}_{\perp}|^2}{w_{eff}^2}} \quad (2.2.2)$$

w_{eff} est le rayon effectif du mode fondamental ($A_{eff} = \pi w_{eff}^2$) [10].

Le spectre de pompe, normalisé en amplitude également, est donné par :

$$\tilde{G}_{T_0}(\omega) = \int G_{T_0}(t) e^{i\omega t} dt = \pi \sqrt{\frac{T_0}{2}} \operatorname{sech}\left(\frac{\pi T_0}{2} \omega\right) \quad (2.2.3)$$

Le champ de pompe réel s'exprime selon :

$$\vec{\mathcal{E}}_p(\vec{r}, t) = \mathcal{E}_p(\vec{r}, t) \vec{e}_x = (E_p(\vec{r}_{\perp}, z, t) + E_p^*(\vec{r}_{\perp}, z, t)) \vec{e}_x \quad (2.2.4)$$

où le champ complexe s'écrit :

$$\begin{aligned} E_p(\vec{r}_{\perp}, z, t) &= |E_p(\vec{r}_{\perp}, z, t)| e^{i(\vec{k}_{p0} \cdot \vec{r} - \omega_{p0} t)} \\ &= \sqrt{\frac{\mathcal{E}_{\text{imp}}}{2\epsilon_0 n_p^2 v_{gp}}} G_{\perp}(\vec{r}_{\perp}) G_{T_0}\left(t - \frac{z}{v_{gp}}\right) e^{i(\vec{k}_{p0} \cdot \vec{r} - \omega_{p0} t)} \end{aligned} \quad (2.2.5)$$

Précisons les paramètres intervenant dans cette expression :

- À l'intérieur de l'enveloppe temporelle, le champ de pompe oscille à la fréquence ω_{p0} (nous considérons des **impulsions sans dérive de fréquence**).
- La propagation se fait dans la direction z , avec un vecteur d'onde noté $\vec{k}_{p0} = \beta(\omega_{p0}) \vec{e}_z$. $\beta(\omega)$ est la constante de propagation à la fréquence ω .
- v_{gp} est la vitesse de groupe à ω_{p0} . **La largeur spectrale de la pompe est supposée assez faible pour que l'on puisse négliger la dispersion de la vitesse de groupe au sein du spectre de pompe.**
- n_p est l'indice de réfraction linéaire du milieu traversé, à la fréquence ω_{p0} .

4. Voir l'Annexe B.2 pour les conventions de normalisation.

5. Pour une impulsion sécante hyperbolique d'amplitude proportionnelle à $\operatorname{sech}(t/T_0)$, la largeur à mi-hauteur en intensité est donnée par $T_{\text{FWHM}} = 2 \ln(1 + \sqrt{2}) T_0 \sim 1,763 T_0$, et la largeur à mi-hauteur du signal d'auto-corrélation est donnée par $\tau_{\text{AC}} = 1,543 T_{\text{FWHM}}$.

6. L'ensemble du calcul sera mené sans développer explicitement l'expression de $G_{T_0}(t)$ (ou du spectre associé $\tilde{G}_{T_0}(\omega)$ défini juste après), et les expressions analytiques obtenues au final sont valables pour tout profil temporel d'impulsions de pompe (pourvu que celui-ci soit normalisé). Cependant, nous étudierons spécifiquement le cas d'une impulsion sécante hyperbolique, car c'est le profil temporel des impulsions délivrées par le laser Ti:Saphir que nous utilisons pour nos expériences.

- Enfin, \mathcal{E}_{imp} est l'énergie d'une impulsion de pompe et vaut donc $N_{\text{imp}} \hbar \omega_{p_0}$, avec N_{imp} le nombre de photons de pompe par impulsion. Dans la suite, pour alléger les notations, nous pourrions utiliser :

$$A = \sqrt{\frac{\mathcal{E}_{\text{imp}}}{2\epsilon_0 n_p^2 v_{gp}}} \quad (2.2.6)$$

Rigoureusement, le champ de pompe impulsif (donc, par définition, non monochromatique) peut être décrit comme un continuum de modes, c'est-à-dire que le champ complexe est de la forme :

$$\begin{aligned} E_p(\vec{r}, t) &= \int E_p(\vec{r}, \omega, t) \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \int E_p(\vec{r}, \omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \int A G_{\perp}(\vec{r}_{\perp}) \tilde{G}_{T_0}(\omega - \omega_{p_0}) e^{i[\beta(\omega)z - \omega t]} \frac{d\omega}{2\pi} \end{aligned} \quad (2.2.7)$$

Dans l'équation (2.2.7) ci-dessus, $E_p(\vec{r}, \omega) = A G_{\perp}(\vec{r}_{\perp}) \tilde{G}_{T_0}(\omega - \omega_{p_0}) e^{i\beta(\omega)z}$ est défini comme la transformée de Fourier⁷ du champ complexe $E_p(\vec{r}, t)$. Cette définition est cohérente avec l'expression (2.2.5) du champ complexe dans la limite où la constante de propagation $\beta(\omega)$ est remplacée par son développement de Taylor à l'ordre 1 autour de ω_{p_0} . En effet, le calcul de la transformée de Fourier temporelle du champ complexe tel que défini par l'équation (2.2.5) donne :

$$E_p(\vec{r}, \omega) = A G_{\perp}(\vec{r}_{\perp}) \tilde{G}_{T_0}(\omega - \omega_{p_0}) e^{i\left(\beta(\omega_{p_0}) + \frac{\omega - \omega_{p_0}}{v_{gp}}\right)z} \quad (2.2.8)$$

où $\beta(\omega_{p_0}) + \frac{\omega - \omega_{p_0}}{v_{gp}}$ est justement le développement de Taylor de $\beta(\omega)$ autour de ω_{p_0} limité à l'ordre 1. Remarquons que faire l'approximation selon laquelle $\beta(\omega)$ peut être remplacé par son développement de Taylor limité à l'ordre 1 autour de ω_{p_0} (pour tout ω au sein du spectre de pompe) revient à dire que l'on suppose que la dispersion de la vitesse de groupe peut être négligée au sein du spectre de pompe, ce qui est justement une approximation que nous avons faite pour écrire le champ de pompe complexe sous la forme (2.2.5).

Dans le cadre de cette étude, nous négligeons les pertes linéaires dans la fibre (la longueur effective pourra donc être assimilée à la longueur physique L_{fibre}). De plus, nous nous limitons à des efficacités non linéaires très faibles, de sorte qu'une seule paire de photons corrélés au maximum pourra être générée par impulsion de pompe. Ainsi, nous pourrions considérer que les profils temporel et spectral de la pompe sont inchangés au cours de la propagation dans la fibre (pas de pertes linéaires, pas de déplétion due aux processus non linéaires, et un élargissement spectral par automodulation de phase complètement négligeable). Seule la position de l'impulsion dans la fibre dépend du temps.

Une autre conséquence de ce régime de très faible efficacité est que le walk-off temporel, qui peut conduire à une réduction de la longueur d'interaction non linéaire par rapport à la longueur de la fibre en régime d'amplification, n'aura aucune influence, car les photons signal et idler sont synchrones avec la pompe au moment de leur création.

7. Voir l'Annexe B.2 pour les conventions choisies pour les transformées de Fourier temporelle et spatiale.

2.3 Dérivation de l'hamiltonien local d'interaction non linéaire

2.3.1 Énergie locale d'interaction non linéaire

Nous cherchons dans un premier temps à décrire l'interaction *locale* du champ électromagnétique avec un élément de volume $d^3\vec{r}_0$ (situé autour du point \vec{r}_0) du milieu traversé par l'impulsion de pompe. De manière générale, l'énergie locale d'interaction non linéaire d'un mode l (de fréquence ω_l – positive – et de vecteur d'onde $\vec{k}_{\omega_l} = \beta(\omega_l) \vec{u}$) avec un élément de volume $d^3\vec{r}_0$ du milieu autour du point \vec{r}_0 s'exprime selon ⁸ [59] :

$$U_{\text{int},l}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 = \sum_{n \geq 2} \frac{1}{n+1} \left[\vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_l) \cdot \vec{P}^{(n)}(\vec{r}_0, \omega_l) + \text{c.c.} \right] d^3\vec{r}_0 \quad (2.3.1)$$

où n est l'ordre de la non-linéarité, et $\vec{P}^{(n)}(\vec{r}_0, \omega_l)$ l'amplitude complexe de la composante de la polarisation non linéaire d'ordre n à la fréquence ω_l . Rappelons que $\vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_l)$ ($= \vec{E}(\vec{r}_0, -\omega_l)$) est le complexe conjugué (c.c.) de l'amplitude complexe du champ à la fréquence ω_l .

Dans le cas que nous étudions, seule la non-linéarité d'ordre 3 a une influence significative, et l'expression de l'énergie locale d'interaction non linéaire d'ordre 3 avec un élément de volume $d^3\vec{r}_0$ du milieu autour du point \vec{r}_0 est donnée par :

$$\begin{aligned} U_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 &= \sum_l U_{\text{int},l}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 \\ &= \frac{1}{4} \sum_l \left[\vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_l) \cdot \vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_l) + \text{c.c.} \right] d^3\vec{r}_0 \end{aligned} \quad (2.3.2)$$

Nous réalisons ici la somme sur tous les modes du champ électromagnétique présents dans le milieu non linéaire. Ce champ électromagnétique peut être écrit comme la somme de trois champs spectralement disjoints⁹ ($p = \text{pompe}$, $s = \text{signal}$, $i = \text{idler}$) :

$$\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) = \vec{\mathcal{E}}_p(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{E}}_s(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{E}}_i(\vec{r}, t) \quad (2.3.3)$$

8. Voir l'Annexe B.3 pour quelques détails sur l'origine de cette formule.

9. En pratique, les photons signal et idler émis par mélange à quatre ondes à l'intérieur du spectre de pompe (ce qui correspond en fait au phénomène d'automodulation de phase) résultent d'un processus d'amplification paramétrique et non pas d'une génération spontanée : ils ne seront donc pas exploitables en tant que paires de photons corrélés. En pratique, donc, nous ne nous intéressons qu'aux paires générées dans des modes "éloignés" (de part et d'autre) du spectre de pompe. C'est pourquoi nous pouvons considérer dans ce calcul des ensembles de modes (pompe, signal et idler) *disjoints*.

De plus, la distinction nette entre les modes de pompe et les modes signal ou idler s'impose également du fait que les premiers, avec leur population forte et (quasi) invariante au cours de la propagation dans la fibre, peuvent être considérés sous la forme d'un champ de pompe classique (avec un profil temporel et spatial donné), tandis que les seconds ont une population initiale nulle (les paires doivent être générées de manière spontanée) et une population finale quasi-nulle (un photon au maximum dans l'un des modes signal et un photon au maximum dans l'un des modes idler), et doivent donc subir une quantification pour être correctement décrits.

Enfin, remarquons que nous pourrions ajouter un quatrième champ disjoint des trois premiers, qui résulterait de la génération de troisième harmonique à partir des photons de pompe. Cependant, dans les conditions de notre étude, l'influence de ce champ sur l'évolution du système sera complètement négligeable car :

1. la fréquence $3\omega_{p_0}$ est très éloignée des fréquences signal et idler ;
2. l'efficacité du processus de génération de troisième harmonique est extrêmement faible (car la condition d'accord de phase associée n'est *a priori* pas vérifiée) et ce processus n'induit donc aucune modification (spectrale, temporelle, ou d'intensité) sur le champ de pompe, et n'a donc aucune influence sur le processus de mélange à quatre ondes spontané.

que, dans un souci de simplification, nous écrirons dans un premier temps comme la superposition d'un grand nombre de modes discrets (le passage à la limite du continuum de modes se fera naturellement par la suite) :

$$\begin{aligned}
 \vec{\mathcal{E}}_j(\vec{r}, t) &= \left(\vec{E}_j(\vec{r}, t) + \text{c.c.} \right) \\
 &= \sum_{l_j} \vec{E}(\vec{r}, \omega_{l_j}) e^{-i\omega_{l_j} t} + \text{c.c.} \\
 &= \sum_{l_j} \vec{E}(\vec{r}, \omega_{l_j}, t) + \text{c.c.}
 \end{aligned} \tag{2.3.4}$$

($j = p, s$ ou i)

Nous devons donc faire la somme sur trois ensembles de modes disjoints :

- l'ensemble des modes de pompe l_p , de fréquence ω_{l_p} (proche de ω_{p_0} , fréquence centrale du spectre de pompe) ;
- l'ensemble des modes signal l_s qui peuvent être générés par mélange à quatre ondes à partir des modes de pompe, et qui ont par convention une fréquence ω_{l_s} inférieure à ω_{p_0} ;
- l'ensemble des modes idler l_i qui peuvent être générés par mélange à quatre ondes à partir des modes de pompe, et qui ont par convention une fréquence ω_{l_i} supérieure à ω_{p_0} .

Ainsi, nous avons :

$$\begin{aligned}
 \sum_l \left[\vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_l) \cdot \vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_l) \right] &= \sum_{l_p} \left[\vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \cdot \vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \right] \\
 &\quad + \sum_{l_s} \left[\vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \cdot \vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \right] \\
 &\quad + \sum_{l_i} \left[\vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \cdot \vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \right]
 \end{aligned} \tag{2.3.5}$$

et nous pouvons exprimer chacun des trois termes du membre de droite de cette expression en remplaçant chaque vecteur $\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_l)$ par son expression en fonction du champ électrique et de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3.

Expression des $\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_l)$

Nous donnons ci-après (équation (2.3.6)) l'expression de $\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_p})$ pour un mode de pompe donné. Cette expression est composée de six termes pouvant être classés en trois groupes distincts :

- le premier terme, (2.3.6a), décrit l'interaction non linéaire d'ordre 3 faisant intervenir deux modes de pompe, un mode signal et un mode idler : c'est le processus de mélange à quatre ondes ;
- les termes (2.3.6b) à (2.3.6e) décrivent l'interaction non linéaire d'ordre 3 faisant intervenir deux modes de pompe et deux modes signal – (2.3.6b) et (2.3.6d) –, ou deux modes de pompe et deux modes idler – (2.3.6c) et (2.3.6e) ; les termes (2.3.6b) et (2.3.6c) correspondent au processus de modulation de phase croisée entre la pompe et le signal et entre la pompe et l'idler, respectivement ; les termes (2.3.6d) et (2.3.6e) correspondent

- au processus de *Bragg scattering*, au cours duquel il y a transfert d'énergie entre deux modes de pompe d'une part, et deux modes signal (respectivement idler) d'autre part – la conservation de l'énergie imposant que l'écart spectral entre les deux modes de pompe soit égal à l'écart spectral entre les deux modes signal (respectivement idler) mis en jeu ;
- le terme (2.3.6f) décrit l'interaction non linéaire d'ordre 3 ne faisant intervenir que des modes de pompe : il s'agit du processus d'automodulation de phase.

$$\frac{\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_p})}{\epsilon_0} = 6 \sum_{\substack{\{l'_p, l_s, l_i\} \\ \equiv}} \chi^{(3)}(\omega_{l_p}; -\omega_{l'_p}, \omega_{l_s}, \omega_{l_i}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \quad (2.3.6a)$$

$$+ 6 \sum_{l_s} \chi^{(3)}(\omega_{l_p}; \omega_{l_p}, \omega_{l_s}, -\omega_{l_s}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \quad (2.3.6b)$$

$$+ 6 \sum_{l_i} \chi^{(3)}(\omega_{l_p}; \omega_{l_p}, \omega_{l_i}, -\omega_{l_i}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \quad (2.3.6c)$$

$$+ 6 \sum_{\substack{\{l'_p, l_s, l'_s\} \\ \equiv \\ \omega_{l_s} \neq \omega_{l'_s}}} \chi^{(3)}(\omega_{l_p}; \omega_{l'_p}, -\omega_{l_s}, \omega_{l'_s}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_s}) \quad (2.3.6d)$$

$$+ 6 \sum_{\substack{\{l'_p, l_i, l'_i\} \\ \equiv \\ \omega_{l_i} \neq \omega_{l'_i}}} \chi^{(3)}(\omega_{l_p}; \omega_{l'_p}, -\omega_{l_i}, \omega_{l'_i}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_i}) \quad (2.3.6e)$$

$$+ 3 \sum_{\substack{\{l'_p, l''_p, l'''_p\} \\ \equiv}} \chi^{(3)}(\omega_{l_p}; -\omega_{l'_p}, \omega_{l''_p}, \omega_{l'''_p}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l''_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'''_p}) \quad (2.3.6f)$$

À noter que nous ne prenons en compte, dans les six sommes de l'expression (2.3.6), que les termes pour lesquels la conservation de l'énergie est assurée (la somme des trois derniers arguments du tenseur susceptibilité non linéaire d'ordre 3 mis en jeu est égal au premier argument de ce même tenseur). C'est ce que traduit la mise entre crochets des indices de sommation (dans les sommes (2.3.6b) et (2.3.6c), la conservation de l'énergie est automatiquement assurée, d'où l'absence de crochets). Rappelons que, par convention, toutes les fréquences ω_l sont prises positives, comme défini au tout début de la section 2.3.

De la même façon, l'expression du vecteur polarisation non linéaire d'ordre 3 pour les modes signal (respectivement idler) est composée de termes décrivant :

- le mélange à quatre ondes (termes (2.3.7a) et (2.3.8a)) ;
- la modulation de phase croisée entre la pompe et le signal (respectivement l'idler) (termes (2.3.7b) et (2.3.8b)) ;
- le processus de *Bragg scattering* mettant en jeu deux modes de pompe et deux modes signal (respectivement idler) (termes (2.3.7c) et (2.3.8c)) ;
- ainsi qu'un ensemble de processus ne mettant en jeu que des modes signal et/ou idler : automodulation de phase du signal (respectivement de l'idler), modulation de phase croisée entre le signal et l'idler, processus de *Bragg scattering* mettant en jeu deux modes signal et deux modes idler. Ces processus ont une efficacité extrêmement faible dans le cadre de notre étude, car l'état initial du système correspond à des modes signal et idler totalement vides de tout photon. Ils pourront donc être négligés devant les termes décri-

vant des processus mettant en jeu au moins deux modes de pompe, et nous les omettons donc dans l'écriture de $\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_s})$ (équation (2.3.7)) et $\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_i})$ (équation (2.3.8)).

$$\frac{\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_s})}{\epsilon_0} = 3 \sum_{\{l_p, l'_p, l_i\} \equiv} \chi^{(3)}(\omega_{l_s}; \omega_{l_p}, \omega_{l'_p}, -\omega_{l_i}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \quad (2.3.7a)$$

$$+ 6 \sum_{l_p \equiv} \chi^{(3)}(\omega_{l_s}; \omega_{l_p}, -\omega_{l_p}, \omega_{l_s}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \quad (2.3.7b)$$

$$+ 6 \sum_{\substack{\{l_p, l'_p, l'_s\} \equiv \\ \omega_{l'_s} \neq \omega_{l_s}}} \chi^{(3)}(\omega_{l_s}; -\omega_{l_p}, \omega_{l'_p}, \omega_{l'_s}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_s}) \quad (2.3.7c)$$

$$\frac{\vec{P}^{(3)}(\vec{r}_0, \omega_{l_i})}{\epsilon_0} = 3 \sum_{\{l_p, l'_p, l_s\} \equiv} \chi^{(3)}(\omega_{l_i}; \omega_{l_p}, \omega_{l'_p}, -\omega_{l_s}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) \quad (2.3.8a)$$

$$+ 6 \sum_{l_p \equiv} \chi^{(3)}(\omega_{l_i}; \omega_{l_p}, -\omega_{l_p}, \omega_{l_i}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) \quad (2.3.8b)$$

$$+ 6 \sum_{\substack{\{l_p, l'_p, l'_i\} \equiv \\ \omega_{l'_i} \neq \omega_{l_i}}} \chi^{(3)}(\omega_{l_i}; -\omega_{l_p}, \omega_{l'_p}, \omega_{l'_i}) \vec{E}^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) \vec{E}(\vec{r}_0, \omega_{l'_i}) \quad (2.3.8c)$$

Dans la suite, nous supposons que toutes les fréquences mises en jeu sont éloignées de toute fréquence de résonance du milieu, de sorte que la dépendance en fréquence du tenseur de susceptibilité non linéaire peut être négligée. De plus, nous nous restreignons à une étude scalaire en imposant à toutes les ondes d'avoir le même état de polarisation rectiligne (selon \vec{e}_x). Nous pouvons alors poser :

$$\chi_{eff}^{(3)} = \vec{e}_x \cdot \chi^{(3)} \vec{e}_x \vec{e}_x \vec{e}_x \quad (2.3.9)$$

Retour à l'énergie locale d'interaction non linéaire d'ordre 3

L'énergie locale d'interaction non linéaire d'ordre 3 peut alors être exprimée en combinant les équations (2.3.2) et (2.3.5) à (2.3.9) :

$$U_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3 \vec{r}_0 = \frac{d^3 \vec{r}_0}{4} \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \times \left[12 \sum_{\{l_p, l'_p, l_s, l_i\}} E^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E^*(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) E(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) E(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) + \text{c.c.} \right] \quad (2.3.10a)$$

$$+ 6 \sum_{l_p, l_s} E^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) E^*(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) + \text{c.c.} \quad (2.3.10b)$$

$$+ 6 \sum_{l_p, l_i} E^* (\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l_i}) E^* (\vec{r}_0, \omega_{l_i}) + \text{c.c.} \quad (2.3.10c)$$

$$+ 6 \sum_{\substack{\{l_p, l'_p, l_s, l'_s\} \\ \omega_{l_s} \neq \omega_{l'_s}}} E^* (\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l_s}) E^* (\vec{r}_0, \omega_{l'_s}) + \text{c.c.} \quad (2.3.10d)$$

$$+ 6 \sum_{\substack{\{l_p, l'_p, l_i, l'_i\} \\ \omega_{l_i} \neq \omega_{l'_i}}} E^* (\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l'_i}) E^* (\vec{r}_0, \omega_{l_i}) + \text{c.c.} \quad (2.3.10e)$$

$$+ 3 \sum_{\{l_p, l'_p, l''_p, l'''_p\}} E^* (\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E^* (\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l''_p}) E (\vec{r}_0, \omega_{l'''_p}) + \text{c.c.} \quad (2.3.10f)$$

où je rappelle que le terme (2.3.10a) correspond au mélange à quatre ondes, les termes (2.3.10b) et (2.3.10c) à la modulation de phase croisée (pompe-signal et pompe-idler respectivement), les termes (2.3.10d) et (2.3.10e) au processus de *Bragg scattering* mettant en jeu deux modes de pompe et deux modes signal (respectivement idler), et enfin le terme (2.3.10f) à l'automodulation de phase de la pompe.

À cette étape du calcul, nous pouvons nous intéresser à l'influence de chacun de ces termes sur l'état du système.

Rappelons tout d'abord qu'à l'état initial, les modes signal et idler sont vides de tout photon. Les seuls processus non linéaires d'ordre 3 qui peuvent alors faire évoluer l'état du système sont l'automodulation de phase de la pompe et le mélange à quatre ondes *direct*, c'est-à-dire celui qui se traduit par l'annihilation spontanée de deux photons de pompe accompagnée de la création simultanée d'un photon signal et d'un photon idler (vérifiant la condition de conservation de l'énergie). Ce n'est que lorsqu'une première paire de photons corrélés a été créée que les processus de modulation de phase croisée, de *Bragg scattering* et de mélange à quatre ondes *inverse* (impliquant la création de deux photons de pompe à partir de l'annihilation d'un photon signal et d'un photon idler – terme complexe conjugué dans (2.3.10a)) peuvent intervenir. Ainsi, puisque nous limitons notre étude au cas où l'efficacité non linéaire est très faible, ces derniers processus auront peu d'influence et pourront donc être négligés .

Par ailleurs, nous savons (voir Chapitre 1, sous-sections 1.2.1 et 1.2.2) que la prise en compte des processus d'automodulation de phase et de modulation de phase croisée se traduit simplement par l'introduction, dans l'expression du champ de pompe, d'un déphasage non linéaire qui a pour conséquences :

- d'élargir le spectre de pompe (voir Chapitre 1, partie 1.2.1.2) ;
- de modifier l'expression de la condition d'accord de phase (voir l'équation (1.2.32) et discussion associée).

Or, puisque nous travaillons à des niveaux d'efficacité non linéaire extrêmement faibles, nous pourrions admettre que le déphasage non linéaire accumulé tout au long de la propagation de l'impulsion de pompe dans la fibre est quasiment nul, autrement dit que l'influence des processus d'automodulation de phase et de modulation de phase croisée est négligeable. En conséquence, nous pourrions considérer que le spectre de pompe n'est pas élargi, et nous verrons que la condition d'accord de phase sera indépendante de la puissance de pompe injectée dans la fibre.

En conclusion, nous pouvons raisonnablement simplifier l'expression de l'énergie locale d'in-

teraction non linéaire d'ordre 3 (équation (2.3.10)) en ne conservant que le terme (2.3.10a) décrivant le processus de mélange à quatre ondes :

$$U_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 = 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \left[\sum_{\{l_p, l'_p, l_s, l_i\}} E^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}) E^*(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}) E(\vec{r}_0, \omega_{l_s}) E(\vec{r}_0, \omega_{l_i}) + \text{c.c.} \right] d^3\vec{r}_0 \quad (2.3.11)$$

Rappelons que $\sum_{\{l_p, l'_p, l_s, l_i\}}$ désigne la somme sur tous les quadruplets de modes (l_p, l'_p, l_s, l_i) tels que $\omega_{l_p} + \omega_{l'_p} = \omega_{l_s} + \omega_{l_i}$. Ainsi, nous pouvons aussi écrire :

$$U_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 = 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \left[\sum_{\{l_p, l'_p, l_s, l_i\}} E^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}, t) E^*(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}, t) E(\vec{r}_0, \omega_{l_s}, t) E(\vec{r}_0, \omega_{l_i}, t) + \text{c.c.} \right] d^3\vec{r}_0 \quad (2.3.12)$$

(où, conformément à l'équation (2.3.4), $E(\vec{r}_0, \omega_{l_j}, t) = E(\vec{r}_0, \omega_{l_j}) e^{-i\omega_{l_j} t}$, avec $j = p, s$ ou i) ou même encore :

$$U_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 = 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \times \left\langle \sum_{l_p} [E^*(\vec{r}_0, \omega_{l_p}, t) + \text{c.c.}] \sum_{l'_p} [E^*(\vec{r}_0, \omega_{l'_p}, t) + \text{c.c.}] \times \sum_{l_s} [E(\vec{r}_0, \omega_{l_s}, t) + \text{c.c.}] \sum_{l_i} [E(\vec{r}_0, \omega_{l_i}, t) + \text{c.c.}] \right\rangle_T d^3\vec{r}_0 \quad (2.3.13)$$

où $\langle \dots \rangle_T$ désigne la moyenne temporelle “aux temps courts”, c'est-à-dire sur une durée grande devant la période des oscillations des champs, mais petite devant la durée des impulsions de pompe. Ce moyennage temporel aux temps courts permet de ne conserver que les termes satisfaisant une condition de conservation de l'énergie¹⁰.

Ainsi nous avons (cf. équation (2.3.4)) :

$$U_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 = 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} d^3\vec{r}_0 \times \left\langle [E_p(\vec{r}_0, t) + E_p^*(\vec{r}_0, t)]^2 [E_s(\vec{r}_0, t) + E_s^*(\vec{r}_0, t)] [E_i(\vec{r}_0, t) + E_i^*(\vec{r}_0, t)] \right\rangle_T \quad (2.3.14)$$

soit (d'après l'expression du champ de pompe complexe donné en (2.2.5)) :

$$\boxed{U_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 = 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} d^3\vec{r}_0 \times |E_p(\vec{r}_0, t)|^2 \times \left\langle \left[e^{2i\beta(\omega_{p0})z_0} e^{-2i\omega_{p0}t} + e^{-2i\beta(\omega_{p0})z_0} e^{2i\omega_{p0}t} + 2 \right] [E_s(\vec{r}_0, t) + E_s^*(\vec{r}_0, t)] [E_i(\vec{r}_0, t) + E_i^*(\vec{r}_0, t)] \right\rangle_T} \quad (2.3.15)$$

10. Ainsi, ce moyennage aux temps courts joue le même rôle que la mise entre crochets des indices de sommation dans l'équation (2.3.11).

2.3.2 Quantification des champs signal et idler

L'étape de calcul suivante consiste à dériver l'hamiltonien local d'interaction non linéaire d'ordre 3 en remplaçant, dans l'expression (2.3.15) ci-dessus, l'amplitude complexe des champs signal et idler par l'opérateur associé [69]. Le champ de pompe pourra être considéré comme classique, car il est intense et non déplété par les processus non linéaires mis en jeu.

$$\begin{aligned}
 E_j(\vec{r}_0, t) &\rightsquigarrow \hat{E}_j(\vec{r}_0, t) = \sum_{l_j} \hat{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_j}, t) \\
 &= \sum_{l_j} \hat{E}(\vec{r}_0, \omega_{l_j}) e^{-i\omega_{l_j} t} \\
 &= \sum_{l_j} i \sqrt{\frac{\hbar \omega_{l_j}}{2\epsilon_0 n^2(\omega_{l_j}) V_Q}} e^{i\vec{k}_{l_j} \cdot \vec{r}_0} e^{-i\omega_{l_j} t} \hat{a}_{l_j}
 \end{aligned} \tag{2.3.16}$$

$$E_j^*(\vec{r}_0, t) \rightsquigarrow \hat{E}_j^*(\vec{r}_0, t) = \sum_{l_j} -i \sqrt{\frac{\hbar \omega_{l_j}}{2\epsilon_0 n^2(\omega_{l_j}) V_Q}} e^{-i\vec{k}_{l_j} \cdot \vec{r}_0} e^{i\omega_{l_j} t} \hat{a}_{l_j}^\dagger \tag{2.3.17}$$

($j = s$ ou i)

\hat{a}_{l_j} et $\hat{a}_{l_j}^\dagger$ sont respectivement les opérateurs *annihilation* et *création d'un photon dans la mode l_j* , V_Q est le volume de quantification et $n(\omega_{l_j})$ est l'indice de réfraction linéaire du milieu traversé à la fréquence ω_{l_j} . Les variations de $n(\omega_{l_s})$ et de $n(\omega_{l_i})$ sur l'ensemble des modes signal

et idler respectivement ont une influence négligeable sur la valeur de $\sqrt{\frac{\hbar \omega_{l_j}}{2\epsilon_0 n^2(\omega_{l_j}) V_Q}}$ associée, et nous pouvons donc remplacer $n(\omega_{l_s})$ par $n(\omega_{l_{s_0}}) = n_s$ et $n(\omega_{l_i})$ par $n(\omega_{l_{i_0}}) = n_i$, valeurs prises aux fréquences $\omega_{l_{s_0}}$ et $\omega_{l_{i_0}}$ satisfaisant la condition de conservation de l'énergie et la condition d'accord de phase avec le mode de pompe de fréquence ω_{p_0} (fréquence centrale du spectre de pompe).

Volume de quantification & Passage à la limite continue

Nous considérons ici des champs électromagnétiques se propageant dans la direction z , dans le mode transverse fondamental (d'aire effective A_{eff}) d'une fibre optique. Nous pouvons donc raisonnablement restreindre l'étude aux modes signal et idler de vecteurs d'onde \vec{k}_{l_s} et \vec{k}_{l_i} parallèles à \vec{e}_z . Cela revient à dire que l'extension transverse du volume de quantification est assez faible pour n'autoriser qu'une seule valeur de k_x ($k_x = 0$) et une seule valeur de k_y ($k_y = 0$). Typiquement, cela signifie que l'extension transverse du volume de quantification est de l'ordre de l'extension transverse des champs électromagnétiques, c'est-à-dire A_{eff} [69].

En revanche, l'extension longitudinale L_Q du volume de quantification doit être prise la plus grande possible pour que les champs puissent être considérés comme des continus de modes. Rigoureusement, le passage à la limite des continus de modes peut être effectué lorsque L_Q tend vers $+\infty$, avec le changement de variable suivant ¹¹ [69] :

11. Nous faisons finalement une quantification unidimensionnelle, dans la direction z . La variable de quantification peut être le module du vecteur d'onde (k_s ou k_i) ou, de manière équivalente, la fréquence (ω_s ou

$$\left\{ \begin{array}{l} \sum_{l_j} \dots \rightsquigarrow L_Q \int \dots \frac{dk_j}{2\pi} \rightsquigarrow L_Q \int \dots \beta_1(\omega_j) \frac{d\omega_j}{2\pi} \\ \hat{a}_{l_j} \rightsquigarrow \frac{\hat{a}(k_j)}{\sqrt{L_Q}} \rightsquigarrow \frac{\hat{a}(\omega_j)}{\sqrt{\beta_1(\omega_j) L_Q}} \end{array} \right. \quad (2.3.18)$$

ce qui donne (toujours avec $j = s$ ou i) :

$$\hat{E}_j(\vec{r}_0, t) = \int i \sqrt{\frac{\hbar\omega_j \beta_1(\omega_j)}{2\epsilon_0 n_j^2 A_{eff}}} e^{i\beta(\omega_j)z_0} e^{-i\omega_j t} \hat{a}(\omega_j) \frac{d\omega_j}{2\pi} \quad (2.3.19)$$

$$\hat{E}_j^*(\vec{r}_0, t) = \int -i \sqrt{\frac{\hbar\omega_j \beta_1(\omega_j)}{2\epsilon_0 n_j^2 A_{eff}}} e^{-i\beta(\omega_j)z_0} e^{i\omega_j t} \hat{a}^\dagger(\omega_j) \frac{d\omega_j}{2\pi} \quad (2.3.20)$$

Les variations de $\beta_1(\omega_{l_s})$ et de $\beta_1(\omega_{l_i})$ sur l'ensemble des modes signal et idler respectivement ont une influence négligeable sur la valeur de $\sqrt{\frac{\hbar\omega_j \beta_1(\omega_j)}{2\epsilon_0 n_j^2 A_{eff}}}$ associée, et nous pouvons donc remplacer $\beta_1(\omega_{l_s})$ par $\beta_1(\omega_{l_{s_0}}) = 1/v_{gs}$ et $\beta_1(\omega_{l_i})$ par $\beta_1(\omega_{l_{i_0}}) = 1/v_{gi}$, valeurs prises aux fréquences $\omega_{l_{s_0}}$ et $\omega_{l_{i_0}}$ satisfaisant la condition de conservation de l'énergie et la condition d'accord de phase avec le mode de pompe de fréquence ω_{p_0} (fréquence centrale du spectre de pompe). D'où (avec $j = s$ ou i) :

$$\hat{E}_j(\vec{r}_0, t) = \int i \sqrt{\frac{\hbar\omega_j}{2\epsilon_0 n_j^2 v_{gj} A_{eff}}} e^{i\beta(\omega_j)z_0} e^{-i\omega_j t} \hat{a}(\omega_j) \frac{d\omega_j}{2\pi} \quad (2.3.21)$$

$$\hat{E}_j^*(\vec{r}_0, t) = \int -i \sqrt{\frac{\hbar\omega_j}{2\epsilon_0 n_j^2 v_{gj} A_{eff}}} e^{-i\beta(\omega_j)z_0} e^{i\omega_j t} \hat{a}^\dagger(\omega_j) \frac{d\omega_j}{2\pi} \quad (2.3.22)$$

2.3.3 Hamiltonien local d'interaction non linéaire

En injectant (2.3.21) et (2.3.22) dans l'équation (2.3.15), nous obtenons :

$$\begin{aligned} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 &= 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} d^3\vec{r}_0 |E_p(\vec{r}_0, t)|^2 \times \left\langle \left[e^{2i\beta(\omega_{p_0})z_0} e^{-2i\omega_{p_0}t} + e^{-2i\beta(\omega_{p_0})z_0} e^{2i\omega_{p_0}t} + 2 \right] \times \right. \\ & i \int \sqrt{\frac{\hbar\omega_s}{2\epsilon_0 n_s^2 v_{gs} A_{eff}}} \left(e^{i\beta(\omega_s)z_0} e^{-i\omega_s t} \hat{a}(\omega_s) - e^{-i\beta(\omega_s)z_0} e^{i\omega_s t} \hat{a}^\dagger(\omega_s) \right) \frac{d\omega_s}{2\pi} \times \\ & \left. i \int \sqrt{\frac{\hbar\omega_i}{2\epsilon_0 n_i^2 v_{gi} A_{eff}}} \left(e^{i\beta(\omega_i)z_0} e^{-i\omega_i t} \hat{a}(\omega_i) - e^{-i\beta(\omega_i)z_0} e^{i\omega_i t} \hat{a}^\dagger(\omega_i) \right) \frac{d\omega_i}{2\pi} \right\rangle_T \quad (2.3.23) \end{aligned}$$

ω_i), sachant que ces deux paramètres sont simplement liés par $k_j = n(\omega_j) \omega_j / c$, et donc $dk_j = \beta_1(\omega_j) d\omega_j$. Par ailleurs, il ne faut pas oublier de remplacer les opérateurs création et annihilation discrets ($\hat{a}_{l_j}^\dagger$ et \hat{a}_{l_j}) par leurs équivalents continus ($\hat{a}^\dagger(k_j)$ et $\hat{a}(k_j)$, ou $\hat{a}^\dagger(\omega_j)$ et $\hat{a}(\omega_j)$) en faisant le changement de variable approprié présenté dans le système d'équations (2.3.18).

En remarquant que le moyennage temporel aux temps courts $\langle \dots \rangle_T$ permet d'éliminer les termes qui oscillent à une fréquence "trop éloignée" de la fréquence nulle¹², l'équation (2.3.23) ci-dessus devient :

$$\begin{aligned} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 &= -3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} d^3\vec{r}_0 |E_p(\vec{r}_0, t)|^2 \iint \frac{\hbar}{2\epsilon_0 A_{eff} n_s n_i} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{v_{gs} v_{gi}}} \times \\ &\left(e^{2i\beta(\omega_{p_0})z_0} e^{-2i\omega_{p_0}t} \left[e^{-i\beta(\omega_s)z_0} e^{i\omega_s t} \hat{a}^\dagger(\omega_s) \times e^{-i\beta(\omega_i)z_0} e^{i\omega_i t} \hat{a}^\dagger(\omega_i) \right] \right. \\ &\left. + e^{-2i\beta(\omega_{p_0})z_0} e^{2i\omega_{p_0}t} \left[e^{i\beta(\omega_s)z_0} e^{-i\omega_s t} \hat{a}(\omega_s) \times e^{i\beta(\omega_i)z_0} e^{-i\omega_i t} \hat{a}(\omega_i) \right] \right) \frac{d\omega_s}{2\pi} \frac{d\omega_i}{2\pi} \end{aligned} \quad (2.3.24)$$

soit encore, en remarquant que $|E_p(\vec{r}_0, t)|^2 e^{2i\beta(\omega_{p_0})z_0} e^{-2i\omega_{p_0}t} = E_p^2(\vec{r}_0, t)$:

$$\boxed{\begin{aligned} \hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0) d^3\vec{r}_0 &= -3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} d^3\vec{r}_0 E_p^2(\vec{r}_0, t) \times \\ &\iint \frac{\hbar}{2\epsilon_0 A_{eff} n_s n_i} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{v_{gs} v_{gi}}} \left(e^{-i(\beta(\omega_s)+\beta(\omega_i))z_0} e^{i(\omega_s+\omega_i)t} \hat{a}^\dagger(\omega_s) \hat{a}^\dagger(\omega_i) \right) \frac{d\omega_s}{2\pi} \frac{d\omega_i}{2\pi} \\ &+ \text{H.c.} \end{aligned}} \quad (2.3.25)$$

(H.c. = hermitien conjugué)

12. Nous ne conservons que les termes dont l'exponentielle temporelle est de la forme $e^{-i(2\omega_{p_0}-\omega_s-\omega_i)t}$ ou $e^{+i(2\omega_{p_0}-\omega_s-\omega_i)t}$.

2.4 Fonction d'onde de la paire de photons corrélés

L'hamiltonien local d'interaction non linéaire nous permet d'exprimer la fonction d'onde de la paire à l'état final, selon l'équation (2.1.6). Nous avons¹³ :

$$\hat{U}_{\text{int}}(\vec{r}_0) |0, 0\rangle = -3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} E_p^2(\vec{r}_0, t) \times \iint \frac{\hbar}{2\epsilon_0 A_{eff} n_s n_i} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{v_{gs} v_{gi}}} \left(e^{-i(\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i))z_0} e^{i(\omega_s + \omega_i)t} |1_{\omega_s}, 1_{\omega_i}\rangle \right) \frac{d\omega_s}{2\pi} \frac{d\omega_i}{2\pi} \quad (2.4.1)$$

d'où :

$$|\psi_{\text{paire, final, I}}\rangle = |0, 0\rangle + \frac{i}{\hbar} 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \iint \frac{\hbar}{2\epsilon_0 A_{eff} n_s n_i} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{v_{gs} v_{gi}}} \times \left[\int_{V_{\text{fibre}}} e^{-i(\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i))z_0} \left(\int_{-\infty}^{+\infty} E_p^2(\vec{r}_0, t) e^{i(\omega_s + \omega_i)t} dt \right) d^3\vec{r}_0 \right] |1_{\omega_s}, 1_{\omega_i}\rangle \frac{d\omega_s}{2\pi} \frac{d\omega_i}{2\pi} \quad (2.4.2)$$

Or $\int_{-\infty}^{+\infty} E_p^2(\vec{r}_0, t) e^{i(\omega_s + \omega_i)t} dt$ est la transformée de Fourier temporelle au point $\omega = \omega_s + \omega_i$ du carré de la fonction $E_p(\vec{r}_0, t)$: il s'agit donc simplement de l'autoconvolution au point $\omega = \omega_s + \omega_i$ de la transformée de Fourier temporelle de cette fonction $E_p(\vec{r}_0, t)$:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} E_p^2(\vec{r}_0, t) e^{i(\omega_s + \omega_i)t} dt = \int E_p(\vec{r}_0, \omega) E_p(\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i - \omega) \frac{d\omega}{2\pi} = [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) \quad (2.4.3)$$

et par ailleurs nous pouvons écrire :

$$\int_{V_{\text{fibre}}} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) e^{-i(\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i))z_0} d^3\vec{r}_0 = \int_{-\infty}^{+\infty} R(z_0) \left(\iint_{A_{eff}} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2\vec{r}_{\perp 0} \right) e^{-i(\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i))z_0} dz_0 \quad (2.4.4)$$

où :

$$R(z_0) = \begin{cases} 1 & \text{si } z_0 \in [0; L_{\text{fibre}}] \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.4.5)$$

Nous remarquons alors que l'expression (2.4.4) n'est autre que la transformée de Fourier spatiale (unidimensionnelle) au point $k_z = \beta(\omega_s) + \beta(\omega_i)$ du produit des deux fonctions de z_0 suivantes :

$$- R(z_0) \\ - \iint_{A_{eff}} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2\vec{r}_{\perp 0}$$

13. Du fait que $\hat{a}(\omega_s)\hat{a}(\omega_i)|0, 0\rangle = 0$ et que $\hat{a}^\dagger(\omega_s)\hat{a}^\dagger(\omega_i)|0, 0\rangle = |1_{\omega_s}, 1_{\omega_i}\rangle$, le terme hermitien conjugué dans l'expression (2.3.25) de l'hamiltonien local d'interaction non linéaire n'aura pas d'influence.

autrement dit le produit de convolution au point $k_z = \beta(\omega_s) + \beta(\omega_i)$ des transformées de Fourier spatiales (unidimensionnelles) de ces deux fonctions de z_0 :

$$\begin{aligned} & \int_{-\infty}^{+\infty} R(z_0) \left(\iint_{A_{eff}} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2\vec{r}_{\perp 0} \right) e^{-i(\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i))z_0} dz_0 \\ &= \left[TF_z [R] * TF_z \left[\iint_{A_{eff}} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2\vec{r}_{\perp 0} \right] \right] \left(\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i) \right) \end{aligned} \quad (2.4.6)$$

avec :

$$TF_z [R](k_z) = L_{\text{fibre}} \operatorname{sinc} \left(k_z \frac{L_{\text{fibre}}}{2} \right) e^{-ik_z \frac{L_{\text{fibre}}}{2}} \quad (2.4.7)$$

Procédons maintenant par étapes. Nous souhaitons d'abord établir l'expression analytique de $[E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i)$. Pour cela, nous utilisons l'expression de $E_p(\vec{r}_0, \omega)$ établie en (2.2.8) :

$$\begin{aligned} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) &= \int E_p(\vec{r}_0, \omega) E_p(\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i - \omega) \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= A^2 G_{\perp}^2(\vec{r}_{\perp 0}) e^{2i\left(\beta(\omega_{p0}) - \frac{\omega_{p0}}{v_{gp}}\right)z_0} \times \int \tilde{G}_{T_0}(\omega - \omega_{p0}) \tilde{G}_{T_0}(\omega_s + \omega_i - \omega - \omega_{p0}) e^{i\frac{\omega_s + \omega_i}{v_{gp}}z_0} \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= A^2 G_{\perp}^2(\vec{r}_{\perp 0}) e^{i\left(2\beta(\omega_{p0}) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}}{v_{gp}}\right)z_0} \times \int \tilde{G}_{T_0}(\omega') \tilde{G}_{T_0}(\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0} - \omega') \frac{d\omega'}{2\pi} \\ &= A^2 G_{\perp}^2(\vec{r}_{\perp 0}) e^{i\left(2\beta(\omega_{p0}) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}}{v_{gp}}\right)z_0} \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right](\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}) \end{aligned} \quad (2.4.8)$$

Remarquons ici que pour les couples de fréquences signal/idler $(\omega_s; \omega_i)$ tels que $\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}$ est assez éloigné de 0, le terme $\left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right](\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0})$ (c'est-à-dire l'autoconvolution du spectre de pompe) prendra une valeur quasi-nulle. Nous retrouvons donc ici le fait que, pour que la génération paramétrique puisse avoir lieu aux fréquences ω_s et ω_i , il faut qu'il existe deux modes de pompe *assez peuplés* dont la somme des fréquences soit égale à $\omega_s + \omega_i$ (autrement dit, que $\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}$ soit assez proche de 0...).

Maintenant, nous calculons :

$$\begin{aligned} & \iint_{A_{eff}} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2\vec{r}_{\perp 0} \\ &= A^2 e^{i\left(2\beta(\omega_{p0}) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}}{v_{gp}}\right)z_0} \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right](\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}) \iint_{A_{eff}} G_{\perp}^2(\vec{r}_{\perp 0}) d^2\vec{r}_{\perp 0} \end{aligned} \quad (2.4.9)$$

avec $\iint_{A_{eff}} G_{\perp}^2(\vec{r}_{\perp 0}) d^2\vec{r}_{\perp 0} \sim 1$ si le champ de pompe est "assez" confiné dans la fibre.

Et donc :

$$\begin{aligned} & TF_z \left[\iint_{A_{eff}} [E_p * E_p](\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2\vec{r}_{\perp 0} \right] (k_z) \\ &= A^2 \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right](\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}) \int e^{i\left(2\beta(\omega_{p0}) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}}{v_{gp}}\right)z_0} e^{-ik_z z_0} dz_0 \\ &= A^2 \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right](\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}) 2\pi \delta \left(2\beta(\omega_{p0}) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p0}}{v_{gp}} - k_z \right) \end{aligned} \quad (2.4.10)$$

Ainsi nous avons :

$$\begin{aligned}
 & \left[TF_z [R] * TF_z \left[\iint_{A_{eff}} [E_p * E_p] (\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2 \vec{r}_{\perp 0} \right] \right] (k_z) \\
 &= A^2 \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right] (\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}) 2\pi L_{\text{fibre}} \\
 & \quad \times \text{sinc} \left[\left(2\beta(\omega_{p_0}) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} - k_z \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2} \right] \\
 & \quad \times e^{-i \left(2\beta(\omega_{p_0}) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} - k_z \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2}}
 \end{aligned} \tag{2.4.11}$$

et donc en particulier au point $k_z = \beta(\omega_s) + \beta(\omega_i)$:

$$\begin{aligned}
 & \left[TF_z [R] * TF_z \left[\iint_{A_{eff}} [E_p * E_p] (\vec{r}_0, \omega_s + \omega_i) d^2 \vec{r}_{\perp 0} \right] \right] \left(\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i) \right) \\
 &= A^2 \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right] (\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}) 2\pi L_{\text{fibre}} \\
 & \quad \times \text{sinc} \left[\left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2} \right] \\
 & \quad \times e^{-i \left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2}}
 \end{aligned} \tag{2.4.12}$$

À partir des équations (2.4.3) à (2.4.6) et (2.4.12), l'équation (2.4.2) devient :

$$\begin{aligned}
 |\psi_{\text{paire,final},I}\rangle &= |0, 0\rangle + \frac{i}{\hbar} 3 \epsilon_0 \chi_{eff}^{(3)} \iint \frac{\hbar}{2\epsilon_0 A_{eff} n_s n_i} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{v_{gs} v_{gi}}} 2\pi A^2 L_{\text{fibre}} \\
 & \quad \times \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right] (\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}) \\
 & \quad \times \text{sinc} \left[\left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2} \right] \\
 & \quad \times e^{-i \left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2}} |1_{\omega_s}, 1_{\omega_i}\rangle \frac{d\omega_s}{2\pi} \frac{d\omega_i}{2\pi}
 \end{aligned} \tag{2.4.13}$$

ce qui peut se mettre également sous la forme :

$$\boxed{
 \begin{aligned}
 |\psi_{\text{paire,final},I}\rangle &= |0, 0\rangle + i \iint 2\pi n_{gp} \sqrt{n_{gs} n_{gi}} \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{\omega_{p_0}^2}} \gamma L_{\text{fibre}} \mathcal{E}_{\text{imp}} \\
 & \quad \times \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right] (\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}) \\
 & \quad \times \text{sinc} \left[\left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2} \right] \\
 & \quad \times e^{-i \left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2}} |1_{\omega_s}, 1_{\omega_i}\rangle \frac{d\omega_s}{2\pi} \frac{d\omega_i}{2\pi}
 \end{aligned}
 } \tag{2.4.14}$$

où n_{gp} , n_{gs} et n_{gi} sont les indices de groupe pompe, signal et idler respectivement, définis par $n_{gj} = c/v_{gj}$ ($j = p, s$ ou i). Le coefficient non linéaire γ a été défini au Chapitre 1 (équation (1.2.13)) selon :

$$\gamma = \frac{n_2 \omega_{p_0}}{c A_{eff}} \tag{2.4.15}$$

où n_2 est l'indice de réfraction non linéaire, lié à la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 selon (voir équation (1.2.8)) :

$$n_2 = \frac{3\chi_{eff}^{(3)}}{4n_p^2\epsilon_0 c} \quad (2.4.16)$$

\mathcal{E}_{imp} , enfin, est l'énergie par impulsion de pompe (cf. équations (2.2.5) et (2.2.6)). Remarquons que \mathcal{E}_{imp} est liée à la puissance crête de pompe P_{p_0} selon :

$$\mathcal{E}_{imp} = \frac{P_{p_0}}{G_{T_0}^2(t=0)} \quad (2.4.17)$$

où nous rappelons que $G_{T_0}(t)$ est le profil temporel en amplitude des impulsions de pompe. Dans le cas d'un profil temporel sécante hyperbolique tel que défini en (2.2.1), nous avons $G_{T_0}^2(t=0) = 1/(2T_0)$ et donc :

$$\mathcal{E}_{imp} = P_{p_0} 2T_0 \quad (2.4.18)$$

Pour simplifier les écritures, nous noterons par la suite :

$$\begin{aligned} \zeta(\omega_s, \omega_i) &= i \frac{n_{gp}\sqrt{n_{gs}n_{gi}}}{2\pi} \sqrt{\frac{\omega_s\omega_i}{\omega_{p_0}^2}} \gamma L_{\text{fibre}} \mathcal{E}_{imp} \times \left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right](\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}) \\ &\times \text{sinc} \left[\left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2} \right] \\ &\times e^{-i \left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega_s) - \beta(\omega_i) + \frac{\omega_s + \omega_i - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2}} \end{aligned} \quad (2.4.19)$$

de sorte que :

$$|\psi_{\text{paire,final,I}}\rangle = |0, 0\rangle + \iint \zeta(\omega_s, \omega_i) |1_{\omega_s}, 1_{\omega_i}\rangle d\omega_s d\omega_i \quad (2.4.20)$$

L'expression analytique (2.4.14) de la fonction d'onde de la paire à l'état final (en représentation d'Interaction) va nous conduire à l'expression analytique de la densité spectrale de probabilité de génération d'une paire de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané au cours de la propagation de l'impulsion de pompe dans la fibre, qui nous indiquera quelles fréquences d'émission sont les plus probables, et quel taux de génération global nous pouvons attendre (en fonction des conditions expérimentales utilisées – en particulier, la longueur de la fibre, la puissance crête des impulsions de pompe et la largeur spectrale de la bande passante de détection).

2.5 Probabilité de génération d'une paire

2.5.1 Densité spectrale de probabilité bidimensionnelle

La probabilité d'avoir généré une paire de photons corrélés avec un photon sur la plage spectrale $[\omega; \omega + d\omega]$ et l'autre sur la plage spectrale $[\omega'; \omega' + d\omega']$ lors de la propagation de l'impulsion de pompe dans la fibre est donnée par :

$$\begin{aligned}
\text{Proba}(\omega, \omega') &= |\langle 1_\omega, 1_{\omega'} | \psi_{\text{paire, final}, I} \rangle|^2 d\omega d\omega' \\
&= \left| \iint \zeta(\omega_s, \omega_i) \langle 1_\omega, 1_{\omega'} | 1_{\omega_s}, 1_{\omega_i} \rangle d\omega_s d\omega_i \right|^2 d\omega d\omega' \\
&= \left| \iint \zeta(\omega_s, \omega_i) \delta(\omega_s - \omega) \delta(\omega_i - \omega') d\omega_s d\omega_i \right|^2 d\omega d\omega' \\
&= |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega d\omega' \tag{2.5.1}
\end{aligned}$$

où $\delta(\omega)$ est la fonction de Dirac.

$|\zeta(\omega, \omega')|^2$ est la densité spectrale de probabilité *bidimensionnelle* de génération d'une paire de photons corrélés¹⁴. Elle peut être mise sous la forme suivante :

$$|\zeta(\omega, \omega')|^2 = \mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}(\omega, \omega') \mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega') \mathcal{F}_{\omega_{p_0}}(\omega, \omega') \tag{2.5.2}$$

avec¹⁵ :

$$\mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}(\omega, \omega') = \left(\frac{n_{gp} \sqrt{n_{gs} n_{gi}}}{2\pi} \sqrt{\frac{\omega \omega'}{\omega_{p_0}^2}} \gamma L_{\text{fibre}} \mathcal{E}_{\text{imp}} \right)^2 \tag{2.5.3a}$$

$$\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega') = [\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0}]^2(\omega + \omega' - 2\omega_{p_0}) \tag{2.5.3b}$$

$$\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}(\omega, \omega') = \text{sinc}^2 \left[\left(2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega) - \beta(\omega') + \frac{\omega + \omega' - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \right) \frac{L_{\text{fibre}}}{2} \right] \tag{2.5.3c}$$

La notation adoptée, qui peut paraître lourde au premier abord, permet de bien visualiser le rôle des différents paramètres. ω_{p_0} (fréquence centrale du spectre de pompe), T_0 (durée des impulsions de pompe) et P_{p_0} (puissance crête des impulsions de pompe), placés en indices, sont les paramètres que nous pouvons faire varier expérimentalement, tandis que ω et ω' sont les deux variables de notre densité spectrale de probabilité bidimensionnelle : elles représentent les fréquences d'émission éventuelle des photons corrélés (sachant que, par convention, le photon basse fréquence est le photon signal, et le photon haute fréquence le photon idler : $\omega_s < \omega_{p_0} < \omega_i$).

14. La littérature fait souvent référence à cette densité spectrale de probabilité bidimensionnelle sous le terme de *Joint Spectral Density* [31, 70].

15. Rappelons que \mathcal{E}_{imp} dépend de la puissance crête de pompe et de la durée des impulsions, et que dans le cas particulier d'impulsions sécantes hyperboliques nous avons $\mathcal{E}_{\text{imp}} = P_{p_0} 2T_0$.

Analyse physique des différents termes

1. $\mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}(\omega, \omega')$:

Ce premier terme met en évidence la dépendance quadratique en P_{p_0} et en L_{fibre} (c'est-à-dire en $\Phi_{\text{NL}, \text{max}}(L_{\text{fibre}}) = \gamma L_{\text{fibre}} P_{p_0}$) de la probabilité de générer une paire de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané (voir Chapitre 1).

Remarquons qu'il n'est pas possible d'élucider de manière directe la dépendance en T_0 , qui est aussi portée par le terme $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega')$ ¹⁶.

2. $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega')$:

L'expression analytique de ce deuxième terme est simple à établir dans le cas d'une impulsion de pompe de profil temporel sécante hyperbolique tel que défini par l'équation (2.2.1) (le spectre est donné par l'équation (2.2.3)) :

$$\left[\tilde{G}_{T_0} * \tilde{G}_{T_0} \right]^2(x) = \left(\frac{\frac{\pi T_0}{2} x}{\sinh\left(\frac{\pi T_0}{2} x\right)} \right)^2 \quad (2.5.4)$$

Ce terme, correspondant à l'autoconvolution du spectre de pompe, provient du fait que la pompe est impulsionnelle, donc présente une largeur spectrale non nulle. Ainsi, la somme des fréquences des deux photons de la paire générée n'est pas *strictement* contrainte à la valeur $2\omega_{p_0}$ ¹⁷.

Cependant, comme le montre son expression analytique (2.5.4), ce terme est malgré tout maximal (et unitaire) lorsque $\omega + \omega' - 2\omega_{p_0} = 0$, ce qui met en évidence le fait que les couples de fréquences $(\omega; \omega')$ qui ont le plus de chances d'être générés sont ceux qui vérifient la condition de conservation de l'énergie avec le mode de pompe central (dégénéré), à ω_{p_0} . Ce résultat est relativement intuitif, puisqu'il s'agit du mode de pompe le plus peuplé. Plus généralement, nous retrouvons le fait que, pour que la génération paramétrique puisse avoir lieu aux fréquences ω et ω' , il faut qu'il existe deux modes de pompe "assez peuplés" dont la somme des fréquences est égale à $\omega + \omega'$, autrement dit que $\omega + \omega' - 2\omega_{p_0}$ soit proche de 0.

À noter que :

$$\int \mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega') d\omega' = \frac{2\pi}{3T_0} \quad (2.5.5)$$

Ainsi, la largeur à mi-hauteur de la fonction $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}$ est inversement proportionnelle à T_0 .

Les figures (2.5.1) et (2.5.2) permettent de visualiser l'allure de cette fonction bidimensionnelle de ω et de ω' . Remarquons que sur les cartes de la figure (2.5.1) nous avons choisi une fenêtre de tracé centrée en ω_{p_0} (ici, $2,266.10^{15}$ rad/s) et de même largeur en abscisses et en ordonnées. C'est pour cela que la courbe obtenue est parfaitement alignée avec la diagonale descendante de la carte.

16. Notons cependant qu'en pratique, avec le laser Ti:Saphir que nous utilisons dans nos expériences, nous pouvons faire varier la durée des impulsions tout en maintenant l'énergie par impulsion \mathcal{E}_{imp} constante : alors, le paramètre $\mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}(\omega, \omega')$ restera inchangé, et seul le paramètre $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega')$ sera modifié.

17. Dans le cas d'une pompe monochromatique, ou quasi-monochromatique – c'est-à-dire ne contenant qu'un seul mode – le spectre de pompe se ramène à un Dirac en ω_{p_0} , et le terme $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega')$ impose dans ce cas la condition de conservation de l'énergie "habituelle" $\omega + \omega' - 2\omega_{p_0} = 0$.

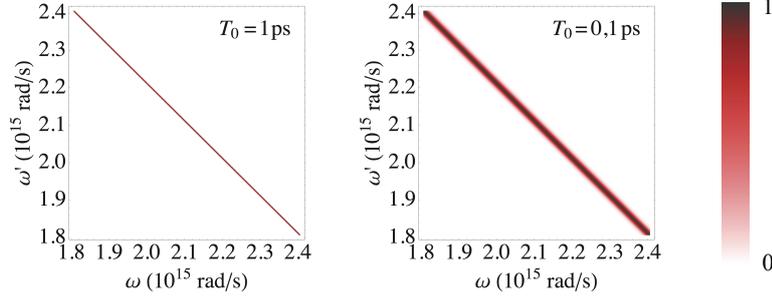


FIG. 2.5.1 – Cartes représentant l'évolution de $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega')$ en fonction de ω et de ω' , pour une fréquence centrale de pompe $\omega_{p_0} = 2,266 \cdot 10^{15}$ rad/s (soit $\lambda_{p_0} = 832$ nm) et deux valeurs de T_0 différentes.

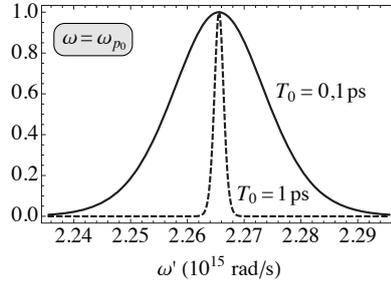


FIG. 2.5.2 – Coupes (zoomées sur la plage $[2,236; 2,296] \cdot 10^{15}$ rad/s) des deux cartes précédentes en $\omega = \omega_{p_0}$. Le maximum est effectivement situé en $\omega' = 2\omega_{p_0} - \omega (= \omega_{p_0})$. La largeur à mi-hauteur est de $2 \cdot 10^{12}$ rad/s pour $T_0 = 1$ ps et $20 \cdot 10^{12}$ rad/s pour $T_0 = 0,1$ ps.

3. $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}(\omega, \omega')$:

Ce dernier terme, indépendant de T_0 (contrairement aux deux premiers), traduit la condition d'accord de phase. Il trouve son origine dans l'intégration spatiale (sur l'ensemble du volume du milieu non linéaire) de l'hamiltonien local d'interaction, intégration qui permet de prendre en compte, à chaque instant t , la contribution de l'ensemble du milieu non linéaire sur l'évolution du système¹⁸.

Ce terme est maximal (unitaire) lorsque l'argument du sinus cardinal est nul, c'est-à-dire lorsque :

$$2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega) - \beta(\omega') + \frac{\omega + \omega' - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} = 0 \quad (2.5.6)$$

Cette expression traduit la condition d'accord de phase, et met en évidence le fait que cette condition dépend fortement des propriétés de dispersion de la fibre traversée. Notons que la réalisation de cette condition peut toujours être obtenue, sous réserve d'avoir ω et ω' suffisamment proches de ω_{p_0} pour que la dispersion de vitesse de groupe soit négligeable entre

18. Il est intéressant de remarquer que la condition d'accord de phase (portée par le terme $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}(\omega, \omega')$) découle de l'intégration spatiale sur le volume total d'interaction entre le milieu et le champ (c'est-à-dire le volume de la fibre) tandis que la condition de conservation de l'énergie (portée par le terme $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}(\omega, \omega')$) découle de l'intégration temporelle sur la durée totale d'interaction entre le milieu et le champ (mathématiquement, de $-\infty$ à $+\infty$, puisque l'extension temporelle de l'impulsion de pompe est, mathématiquement, infinie – notons que l'ensemble du traitement mathématique suppose l'existence d'une seule et unique impulsion de pompe...).

ces trois fréquences. En effet, dans ce cas, on a simultanément $2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega) - \beta(\omega') \sim 0$ et $\omega + \omega' - 2\omega_{p_0} \sim 0$, et la condition (2.5.6) est donc vérifiée (au moins en première approximation). De manière plus générale, il faut que les termes $2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega) - \beta(\omega')$ et $(\omega + \omega' - 2\omega_{p_0})/v_{gp}$ se compensent. Une telle situation peut se produire même si les fréquences ω et ω' sont éloignées de ω_{p_0} . Les couples $(\omega; \omega')$ qui conviennent dépendent fortement des propriétés de dispersion de la fibre, ainsi que de la valeur de ω_{p_0} choisie.

Pour illustration, nous donnons en figures (2.5.3) et (2.5.4) un ensemble de cartes permettant de visualiser l'évolution de $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ avec ω et ω' et avec la longueur d'onde centrale du spectre de pompe, pour deux fibres dont nous connaissons la courbe de dispersion :

- la fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV mise à notre disposition par l'institut *Xlim*, dont la longueur d'onde de dispersion nulle (λ_{ZDW}) est égale à 834 nm (c'est-à-dire $2,260 \cdot 10^{15}$ rad/s), et dont j'ai déjà parlé au Chapitre 1 (voir Annexe A.1) ;
- une fibre microstructurée à cœur liquide (HC-1550-PM-01 de chez *NKT Photonics* remplie d'acétone deutérée), dont la longueur d'onde de dispersion nulle est de l'ordre de 896 nm ($2,106 \cdot 10^{15}$ rad/s) (voir Annexe A.2).

Toutes les cartes sont centrées en $\omega = \omega' = \omega_{p_0}$ (attention : ω_{p_0} change d'une carte à l'autre) et avec une même largeur (en abscisse comme en ordonnées) de $0,6 \cdot 10^{15}$ rad/s.

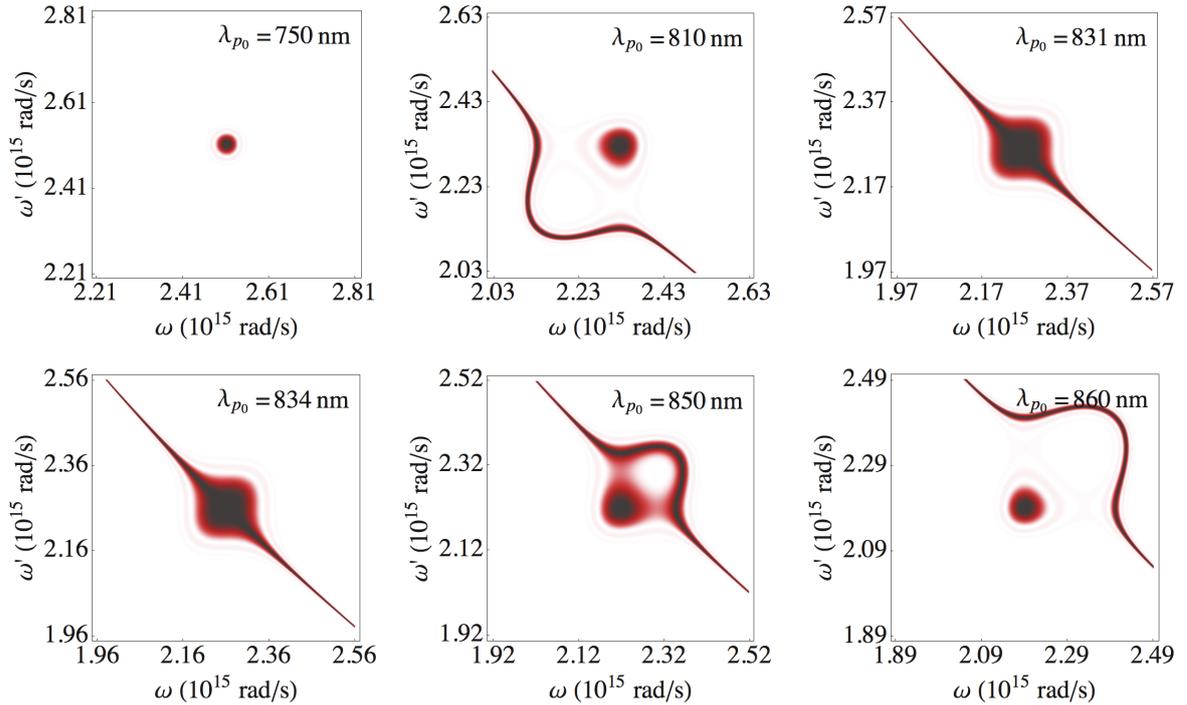


FIG. 2.5.3 – Cartes représentant l'évolution de $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}(\omega, \omega')$ pour différentes valeurs de ω_{p_0} ($= 2\pi c/\lambda_{p_0}$) – Fibre à cœur de silice.

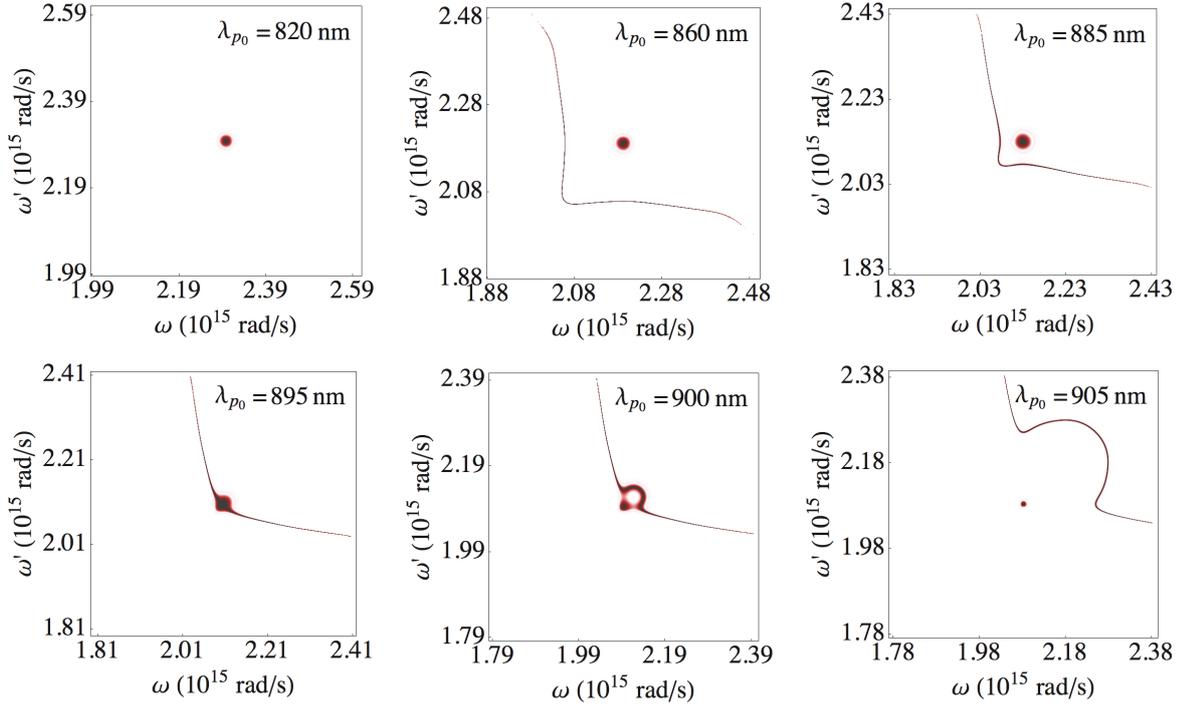


FIG. 2.5.4 – Cartes représentant l'évolution de $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}(\omega, \omega')$ pour différentes valeurs de ω_{p_0} ($= 2\pi c/\lambda_{p_0}$) – Fibre à cœur liquide.

La fibre à cœur liquide est beaucoup plus dispersive que la fibre à cœur de silice (on a $\beta_3^{\text{liquide}}(896 \text{ nm}) \sim 40 \times \beta_3^{\text{silice}}(834 \text{ nm})$)¹⁹, ce qui se visualise aisément sur les deux séries de cartes proposées : les zones où la fonction $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ est non nulle sont sensiblement plus fines dans le cas de la fibre liquide que dans celui de la fibre en silice.

Comme attendu, nous constatons par ailleurs que, quelles que soient la fibre et la valeur de ω_{p_0} choisies, $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ est proche de 1 au centre de la carte, c'est-à-dire lorsque ω et ω' suffisamment proches de ω_{p_0} pour que la dispersion de vitesse de groupe soit négligeable entre ces trois fréquences. Les autres zones de la carte pour lesquelles $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ est proche de 1 ont une allure qui dépend des propriétés de dispersion de la fibre. Il s'agit non seulement de leur *finesse*, que j'ai déjà mentionnée, mais également de leur aspect plus ou moins *incurvé* sur la carte. Cette *courbure* est directement liée à la valeur du rapport β_4/β_2 en régime de dispersion normale (c'est-à-dire quand $\beta_2(\omega_{p_0}) > 0$, soit quand λ_{p_0} est inférieure à la longueur d'onde de dispersion nulle²⁰) : en particulier, elle sera d'autant plus prononcée que β_4/β_2 sera négatif. De fait, le rapport β_4/β_2 en régime de dispersion normale est négatif dans le cas des deux fibres étudiées, mais plus élevé en valeur absolue dans le cas de la fibre liquide que dans celui de la fibre à cœur de silice, ce qui se traduit effectivement par une courbure plus forte pour la fibre liquide (voir par exemple les cartes à $\lambda_{p_0} = 834 \text{ nm}$ pour la fibre à cœur de silice et à $\lambda_{p_0} = 895 \text{ nm}$ pour la fibre à cœur liquide).

19. Rappelons que $\beta_m(\omega_0)$ est la valeur en ω_0 de la dérivée $m^{\text{ème}}$ de la constante de propagation β par rapport à ω (cf. Chapitre 1, équation (1.2.36)). En particulier, $\beta_3(\lambda_{\text{ZDW}})$ représente donc la pente de la courbe de dispersion autour du point où $\beta_2 = 0$.

20. Rappelons que la longueur d'onde de dispersion nulle vaut 834 nm pour la fibre à cœur de silice, et environ 896 nm pour la fibre à cœur liquide.

D'un point de vue physique, nous avons vu au Chapitre 1 (voir équations (1.2.37) à (1.2.40)) que, dans le cas où $\beta_2(\omega_{p_0})$ est positif, l'accord de phase peut avoir lieu à condition que $\beta_A(\omega_{p_0})$ soit assez négatif. Cela se traduit sur les cartes de $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ par une courbure telle que la zone où $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ est proche de 1 intercepte la diagonale descendante de la carte (voir les flèches sur la figure (2.5.6) ci-après). En effet, rappelons-nous que la densité spectrale de probabilité bidimensionnelle $|\zeta(\omega, \omega')|^2$ est simplement proportionnelle au produit des deux fonctions $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}$ et $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ ²¹. La fonction $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}$ n'étant non nulle que dans la diagonale descendante de la carte (figure (2.5.1)), la densité spectrale de probabilité bidimensionnelle ne pourra prendre des valeurs non nulles que si la fonction $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ intercepte elle aussi cette diagonale.

Les figures (2.5.5) et (2.5.6) donnent quelques cartes permettant de visualiser l'évolution de ce produit de fonctions $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0} \times \mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ avec ω et ω' pour quelques valeurs de la longueur d'onde centrale du spectre de pompe (autour de la longueur d'onde de dispersion nulle), dans le cas des deux fibres étudiées. Pour ces tracés, nous avons choisi de prendre $T_0 = 0,1$ ps, ce qui offre un meilleur confort de visualisation que dans le cas où T_0 vaut 1 ps (puisque la largeur de la fonction $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}$ est inversement proportionnelle à T_0).

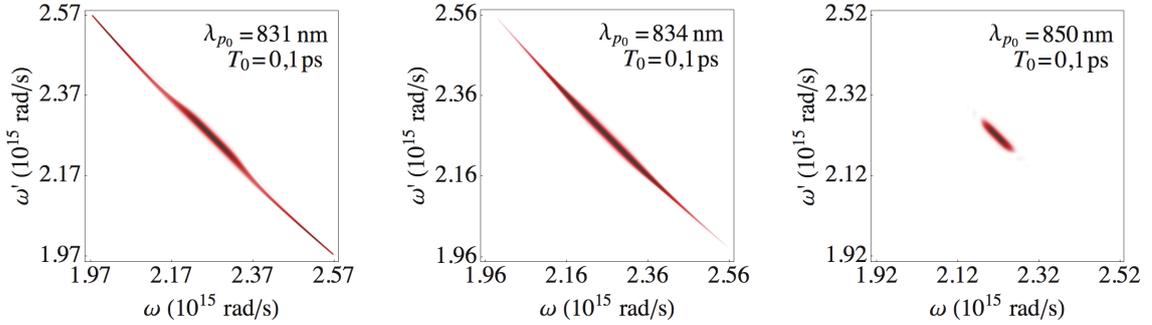


FIG. 2.5.5 – Cartes représentant l'évolution de $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0} \times \mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ en fonction de ω et de ω' , pour différentes valeurs de ω_{p_0} ($= 2\pi c/\lambda_{p_0}$), et $T_0 = 0,1$ ps – Fibre à cœur de silice.

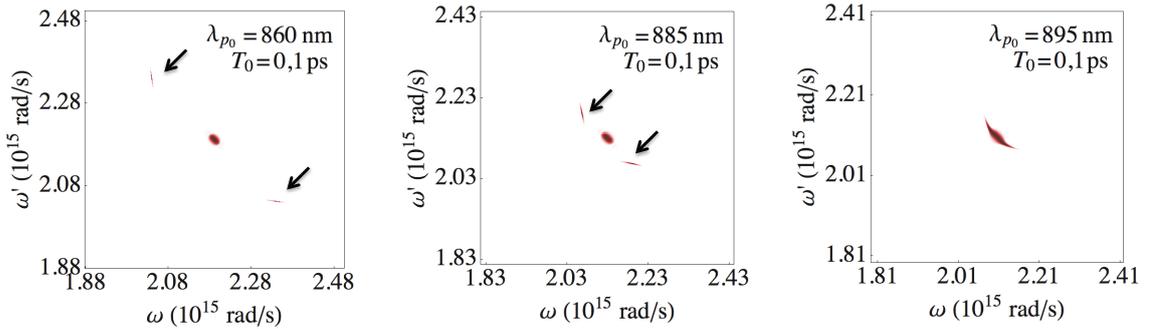


FIG. 2.5.6 – Cartes représentant l'évolution de $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0} \times \mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ en fonction de ω et de ω' , pour différentes valeurs de ω_{p_0} ($= 2\pi c/\lambda_{p_0}$), et $T_0 = 0,1$ ps – Fibre à cœur liquide.

21. Le coefficient de proportionnalité est $\mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}(\omega, \omega')$, donc dépend *a priori* du point $(\omega; \omega')$ considéré. Cependant, puisque le terme $\sqrt{\frac{\omega \omega'}{\omega_{p_0}^2}}$ varie très peu sur notre plage spectrale d'étude, nous pourrions considérer que $\mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}$ est indépendant de ω et ω' (sa valeur est fixée par les caractéristiques du spectre de pompe – ω_{p_0} , T_0 et P_{p_0} – et la longueur de la fibre).

2.5.2 Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique

La probabilité d'avoir généré un photon signal sur la plage spectrale $[\omega_s; \omega_s + d\omega_s]$ (quelle que soit la fréquence du photon idler généré simultanément) est obtenue en intégrant $|\zeta(\omega_s, \omega_i)|^2 d\omega_s$ par rapport à ω_i :

$$\text{Proba}(\omega_s) = \left[\int_{\omega_i} |\zeta(\omega_s, \omega_i)|^2 d\omega_i \right] d\omega_s \quad (2.5.7)$$

$\int_{\omega_i} |\zeta(\omega_s, \omega_i)|^2 d\omega_i$ est la densité spectrale de probabilité de génération d'un photon signal. Elle sera notée par la suite $DSP_{\text{signal}}(\omega)$. Remarquons que, puisque les fréquences signal (respectivement idler) ont été prises, par convention, inférieures (respectivement supérieures) à la fréquence centrale de la pompe (ω_{p_0}), nous pouvons poser :

$$DSP_{\text{signal}}(\omega) = \begin{cases} \int_{\omega_{p_0}}^{+\infty} |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega' & \text{si } \omega \in [0; \omega_{p_0}] \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.5.8a)$$

$$(2.5.8b)$$

De même, la densité spectrale de probabilité de génération d'un photon idler est définie par :

$$DSP_{\text{idler}}(\omega) = \begin{cases} \int_0^{\omega_{p_0}} |\zeta(\omega', \omega)|^2 d\omega' & \text{si } \omega \in [\omega_{p_0}; +\infty[\\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.5.9a)$$

$$(2.5.9b)$$

Ainsi, la **densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique** est définie par :

$$DSP_{\text{photon}}(\omega) = DSP_{\text{signal}}(\omega) + DSP_{\text{idler}}(\omega) \quad (2.5.10)$$

et puisque $\zeta(\omega, \omega') = \zeta(\omega', \omega)$ pour tout couple de fréquences $(\omega; \omega')$, nous obtenons :

$$DSP_{\text{photon}}(\omega) = \int_0^{+\infty} |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega' \quad (2.5.11)$$

La densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique à la fréquence ω est donc proportionnelle²² à l'aire sous la courbe obtenue en *couplant* la carte $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0} \times \mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ (voir figures (2.5.5) et (2.5.6)) à l'abscisse ω .

Les figures (2.5.7) et (2.5.8) donnent un aperçu de l'allure typique de la densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique, pour chacune des deux fibres étudiées (nous supposons pour ces tracés que la puissance crête des impulsions de pompe vaut 0,3 W et que les fibres ont une longueur de l'ordre du mètre : l'efficacité non linéaire est alors assez faible pour que la génération de paires multiples par une même impulsion de pompe soit négligeable). Là encore, les courbes ont toutes été tracées sur une plage spectrale de même largeur (égale à $0,6 \cdot 10^{15}$ rad/s), centrée en ω_{p_0} (valeur qui varie d'une courbe à l'autre). Les courbes correspondant à $T_0 = 0,1$ ps sont à mettre en relation avec les cartes des figures (2.5.5) et (2.5.6).

22. Le facteur de proportionnalité est $\mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}$ et, comme nous l'avons déjà mentionné, peut être considéré comme indépendant de ω et ω' sur notre plage spectrale d'étude.

Les courbes correspondant à $T_0 = 1$ ps présentent un profil plus fin : cela est simplement dû au fait, rappelons-le, que la largeur de la fonction $\mathcal{G}_{\omega_{p_0}, T_0}$ est inversement proportionnelle à T_0 (équation (2.5.5)). Quoi qu'il en soit, nous pouvons globalement décrire l'allure de ces courbes de la manière suivante :

- En régime de dispersion anormale ($\lambda_{p_0} > \lambda_{ZDW}$), $DSP_{\text{photon}}(\omega)$ n'est non nulle que pour ω relativement proche de ω_{p_0} , avec malgré tout une largeur de l'ordre de 10^{15} rad/s typiquement, soit 10 à 100 fois plus que la largeur du spectre de pompe²³ ;
- En régime de dispersion normale ($\lambda_{p_0} < \lambda_{ZDW}$), $DSP_{\text{photon}}(\omega)$ présente aussi un pic central (bien plus large que le spectre de pompe), mais ce pic central est accompagné de deux pics latéraux plus fins, dont les maxima sont situés aux fréquences que nous noterons ω_a et ω_b (avec $\omega_a < \omega_b$). Ce couple de fréquences vérifie $\omega_a + \omega_b = 2\omega_{p_0}$. Par ailleurs, plus λ_{p_0} se rapproche de la longueur d'onde de dispersion nulle, plus les deux pics latéraux se rapprochent du pic central, jusqu'à fusionner : lorsque $\lambda_{p_0} = \lambda_{ZDW}$, la courbe $DSP_{\text{photon}}(\omega)$ se présente sous la forme d'un plateau de largeur maximale.

Sur les courbes de la figure (2.5.8), il est notable que le pic latéral à ω_a est plus haut et plus fin que le pic latéral à ω_b . On peut visualiser facilement sur les cartes de la figure (2.5.6) que cette dissymétrie est liée à la courbure de la fonction bidimensionnelle $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ dans l'espace $(\omega; \omega')$, autrement dit à la valeur du rapport β_4/β_2 en régime de dispersion normale. De même, cette dissymétrie existe bel et bien mais est quasiment imperceptible dans le cas de la fibre à cœur de silice, pour laquelle la courbure de la fonction $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ est très faible. Quoi qu'il en soit, l'aire sous le pic latéral à ω_a et l'aire sous le pic latéral à ω_b sont égales : en effet, ces deux aires représentent respectivement la probabilité de générer un photon signal et la probabilité de générer un photon idler dans les plages spectrales associées à ces deux pics, qui sont nécessairement égales.

Enfin, ces séries de courbes permettent à nouveau de visualiser très nettement le fait que la fibre à cœur liquide est plus dispersive que la fibre à cœur de silice, puisque pour une même valeur de T_0 les courbes de la figure (2.5.8) ont un profil bien plus fin que celles de la figure (2.5.7).

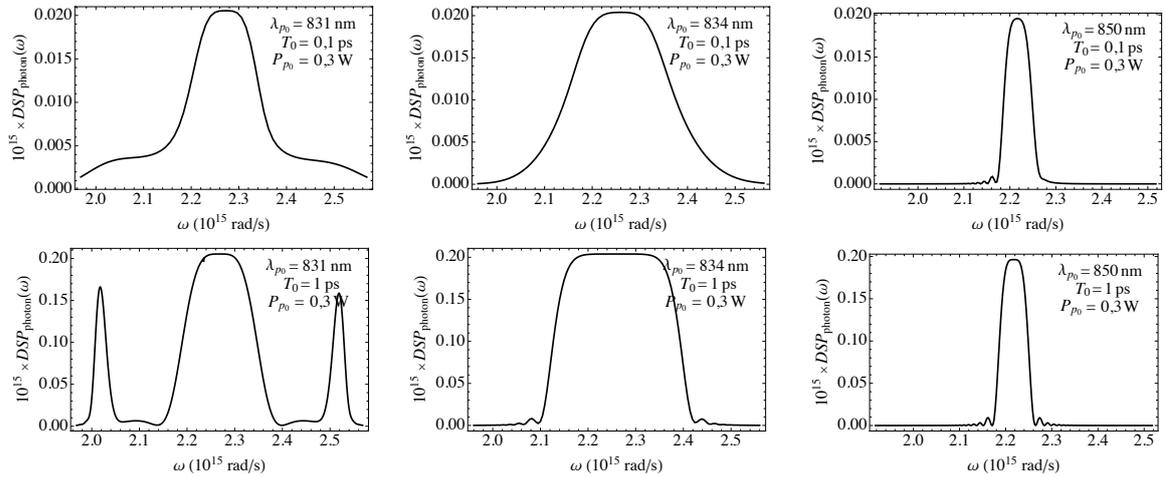


FIG. 2.5.7 – Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique dans la fibre à cœur de silice. Rappelons que pour cette fibre, $\lambda_{ZDW} = 834$ nm. Les courbes de la colonne de gauche correspondent donc au régime de dispersion normale, celles de la colonne de droite au régime de dispersion anormale, et celles de la colonne centrale au cas $\lambda_{p_0} = \lambda_{ZDW}$.

23. Cette remarque n'est pas anodine, puisqu'elle permet de valider l'hypothèse que nous avons faite selon laquelle les photons paramétriques sont émis dans des modes *spectralement éloignés* des modes de pompe.

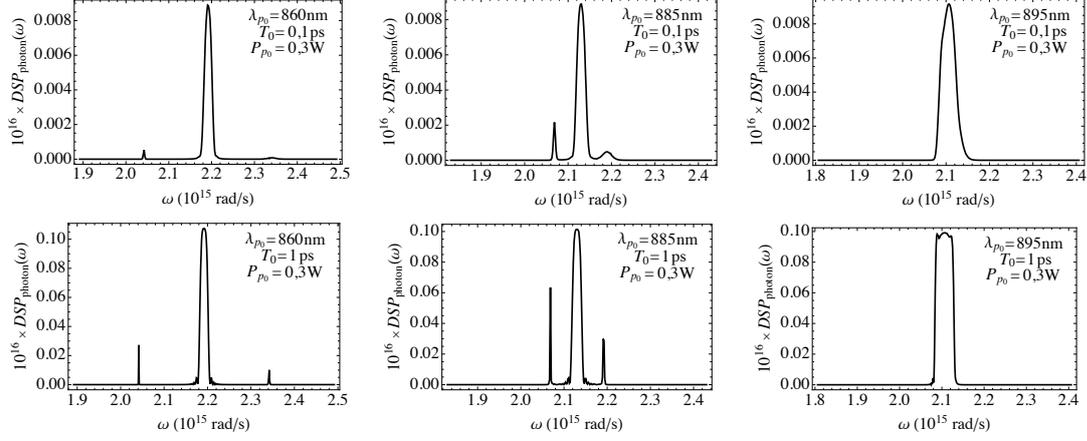


FIG. 2.5.8 – Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique dans la fibre à cœur liquide. Pour cette fibre, nous avons $\lambda_{ZDW} \sim 896$ nm. Les courbes des deux premières colonnes correspondent donc au régime de dispersion normale, et l'on voit que les deux pics latéraux sont effectivement d'autant plus proches du pic central que λ_{p_0} est proche de λ_{ZDW} . Remarquons que DSP_{photon} est environ 16 fois plus faible pour cette fibre à cœur liquide que pour la fibre à cœur de silice : cela vient du fait que le coefficient non linéaire γ de la fibre liquide est environ 4 fois plus faible que celui de la fibre en silice (voir Annexes A.1 et A.2) (rappelons que $\mathcal{A}_{\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0}}$ est proportionnel à γ^2).

2.5.3 Probabilité de génération d'une paire de photons corrélés

Enfin, la probabilité d'avoir généré une paire de photons corrélés (quelles que soient les fréquences signal et idler émises) est obtenue en intégrant $|\zeta(\omega_s, \omega_i)|^2$ par rapport à ω_s et ω_i :

$$p_1 = \int_{\omega_s} \int_{\omega_i} |\zeta(\omega_s, \omega_i)|^2 d\omega_s d\omega_i \quad (2.5.12)$$

Nous pouvons donc écrire (en utilisant les équations (2.5.8) et (2.5.9)) :

$$\begin{aligned} p_1 &= \int_0^{\omega_{p_0}} \left[\int_{\omega_{p_0}}^{+\infty} |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega' \right] d\omega \\ &= \int_0^{\omega_{p_0}} DSP_{\text{signal}}(\omega) d\omega \quad \left(= \int_0^{+\infty} DSP_{\text{signal}}(\omega) d\omega \right) \\ &= p_{\text{signal}} \end{aligned} \quad (2.5.13)$$

et :

$$\begin{aligned} p_1 &= \int_{\omega_{p_0}}^{+\infty} \left[\int_0^{\omega_{p_0}} |\zeta(\omega', \omega)|^2 d\omega' \right] d\omega \\ &= \int_{\omega_{p_0}}^{+\infty} DSP_{\text{idler}}(\omega) d\omega \quad \left(= \int_0^{+\infty} DSP_{\text{idler}}(\omega) d\omega \right) \\ &= p_{\text{idler}} \end{aligned} \quad (2.5.14)$$

d'où :

$$\begin{aligned}
 p_1 &= \frac{p_{\text{signal}} + p_{\text{idler}}}{2} \quad (= p_{\text{signal}} = p_{\text{idler}}) \\
 &= \frac{1}{2} \int_0^{+\infty} DSP_{\text{signal}}(\omega) + DSP_{\text{idler}}(\omega) d\omega \\
 &= \frac{1}{2} \int_0^{+\infty} DSP_{\text{photon}}(\omega) d\omega \\
 &= \frac{1}{2} \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega d\omega' \tag{2.5.15}
 \end{aligned}$$

où p_{signal} et p_{idler} sont les probabilités de génération d'un photon signal (quelle que soit sa fréquence) et d'un photon idler (quelle que soit sa fréquence) respectivement, qui sont évidemment égales l'une à l'autre, et égales à p_1 (probabilité de génération d'une paire).

Du modèle à l'expérience...

En pratique, pour mettre en évidence la génération de paires de photons corrélés et les propriétés de corrélations des deux photons d'une même paire, il est nécessaire de détecter séparément ces deux photons (à l'aide de deux détecteurs de photons uniques distincts). Il faut donc séparer spatialement les photons signal et idler en sortie de la source, c'est-à-dire les envoyer dans deux voies de détection distinctes. Pour cela, on utilise un montage constitué (entre autres) d'éléments dispersifs (ce qui permet, par la même occasion, de filtrer les photons de pompe qui émergent eux aussi, et en très grand nombre, de la fibre dans laquelle sont générées les paires). Les bandes passantes de détection signal et idler (de fréquences centrales ω_{s_0} et ω_{i_0} et de largeurs spectrales $\Delta\omega_s$ et $\Delta\omega_i$ respectivement) sont fixées par les caractéristiques du montage.

La probabilité de générer un photon signal (respectivement idler) dans la bande passante de détection signal (respectivement idler) est donnée par :

$$p_{\text{signal}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s)} = \int_{\omega_{s_0} - \frac{\Delta\omega_s}{2}}^{\omega_{s_0} + \frac{\Delta\omega_s}{2}} DSP_{\text{photon}}(\omega) d\omega = \int_{\omega_{s_0} - \frac{\Delta\omega_s}{2}}^{\omega_{s_0} + \frac{\Delta\omega_s}{2}} \int_0^{+\infty} |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega d\omega' \tag{2.5.16}$$

$$p_{\text{idler}}^{(\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)} = \int_{\omega_{i_0} - \frac{\Delta\omega_i}{2}}^{\omega_{i_0} + \frac{\Delta\omega_i}{2}} DSP_{\text{photon}}(\omega) d\omega = \int_0^{+\infty} \int_{\omega_{i_0} - \frac{\Delta\omega_i}{2}}^{\omega_{i_0} + \frac{\Delta\omega_i}{2}} |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega d\omega' \tag{2.5.17}$$

Le taux de détection que nous obtiendrons sur le détecteur de photons uniques de la voie signal (respectivement idler) sera proportionnel à $p_{\text{signal}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s)}$ (respectivement $p_{\text{idler}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_i)}$), avec un facteur d'atténuation correspondant aux pertes globales sur la voie de détection signal (respectivement idler). Remarquons que les probabilités $p_{\text{signal}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s)}$ et $p_{\text{idler}}^{(\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)}$ ne sont en général pas égales²⁴.

24. Il peut y avoir égalité par exemple si les bandes passantes sont centrées sur les deux pics latéraux de la courbe de $DSP_{\text{photon}}(\omega)$ (c'est-à-dire $\omega_{s_0} = \omega_a$ et $\omega_{i_0} = \omega_b$) et qu'elles sont assez larges pour englober entièrement chacun des deux pics.

La probabilité de générer une paire de photons corrélés avec le photon signal dans la bande passante de détection signal *et* le photon idler dans la bande passante de détection idler est donnée par :

$$p_{\text{paire}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s), (\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)} = \int_{\omega_{s_0} - \frac{\Delta\omega_s}{2}}^{\omega_{s_0} + \frac{\Delta\omega_s}{2}} \int_{\omega_{i_0} - \frac{\Delta\omega_i}{2}}^{\omega_{i_0} + \frac{\Delta\omega_i}{2}} |\zeta(\omega, \omega')|^2 d\omega d\omega' \quad (2.5.18)$$

La probabilité de détecter *simultanément*²⁵ un photon signal et un photon idler sur les deux détecteurs de photons uniques est proportionnel à $p_{\text{paire}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s), (\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)}$. Évidemment, si la somme $\omega_{s_0} + \omega_{i_0}$ est trop éloignée de $2\omega_{p_0}$ (c'est-à-dire si les deux voies de détection ne sont pas réglées de sorte à respecter la conservation de l'énergie), $p_{\text{paire}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s), (\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)}$ sera quasi-nulle.

25. On suppose que les deux voies de détection sont équilibrées, c'est-à-dire que le temps de trajet du photon signal entre la sortie de la fibre et le détecteur de photons uniques dans la voie signal est égal au temps de trajet du photon idler dans la voie idler. Ainsi, les deux photons d'une même paire doivent être détectés simultanément par les deux détecteurs.

Conclusion

Le modèle analytique que nous venons d'établir donne une description quantitative du processus de génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané dans une fibre optique, dans le cas d'une pompe impulsienne. Rappelons que ce modèle repose sur deux hypothèses importantes, qui fixent son domaine de validité :

1. Le spectre de pompe est supposé être assez étroit pour que l'effet de la dispersion puisse être négligé au sein de ce spectre de pompe. Cela signifie que la longueur caractéristique de dispersion L_D , définie par $L_D = T_0^2/|\beta_2(\omega)|$, doit être supérieure à la longueur de la fibre pour toutes les fréquences ω comprises dans le spectre de pompe.
2. L'efficacité non linéaire est supposée assez faible pour que la génération de paires multiples par une même impulsion de pompe puisse être négligée. En pratique, cela signifie que la probabilité de génération d'une paire par une impulsion de pompe doit elle-même être extrêmement faible ($p_1 \ll 1$), et le nombre moyen de paires générées par impulsion de pompe (N_{moy}) peut alors être considéré comme égal à p_1 (et on a donc également $N_{\text{moy}} \ll 1$). Pour satisfaire cette hypothèse en pratique, il est nécessaire de travailler avec des puissances de pompe très faibles. Remarquons que l'expression analytique (2.5.15), associée aux équations (2.5.2) à (2.5.3), permet toujours, *mathématiquement*, d'obtenir une valeur de p_1 pour un jeu de paramètres expérimentaux $(\omega_{p_0}, T_0, P_{p_0})$ donné : bien entendu, si l'on choisit P_{p_0} assez élevée, on peut obtenir une probabilité p_1 supérieure à 1, ce qui n'a pas de sens. Il est essentiel de garder à l'esprit que l'expression (2.5.15) de la probabilité de génération d'une paire n'est *physiquement* valable que si elle conduit à une valeur de p_1 *très petite devant 1*.

Une troisième hypothèse ajoute que les modes signal et idler sont spectralement disjoints des modes de pompe. Cette hypothèse permet simplement de distinguer deux processus non linéaires qui ont en réalité la même origine physique : le mélange à quatre ondes spontané, et l'automodulation de phase. L'automodulation de phase n'est en fait rien d'autre qu'un processus de mélange à quatre ondes *stimulé*, au cours duquel les modes de pompe les plus peuplés (les plus proches de la fréquence centrale ω_{p_0}) transfèrent une partie de leur énergie aux modes de pompe les moins peuplés (plus éloignés de ω_{p_0}), conduisant ainsi à un élargissement du spectre de pompe. Cependant, seuls les photons générés par mélange à quatre ondes *spontané* (c'est-à-dire dans des modes initialement vides de tout photon) peuvent être exploités en tant que paires de photons corrélés, et les photons générés par automodulation de phase ne nous intéressent donc pas.

Le point de départ de notre modèle est l'expression de l'énergie locale d'interaction non linéaire (2.3.1) donnée par R.W. Boyd [59], associée à la quantification des champs signal et idler. La dérivation de l'expression analytique de la fonction d'onde de la paire de photons corrélés met en évidence l'apparition d'une condition d'accord de phase (terme en sinus cardinal) résultant de l'intégration spatiale sur l'ensemble du milieu non linéaire, et l'apparition d'une condition de conservation de l'énergie (sous la forme d'une autoconvolution du spectre de pompe) résultant de l'intégration temporelle sur la durée totale d'interaction. Par ailleurs, nous montrons également que la probabilité de génération d'une paire est proportionnelle à $(\gamma \mathcal{E}_{\text{imp}} L_{\text{fibre}})^2 / T_0$. Rappelons que le coefficient non linéaire γ est proportionnel à l'indice de réfraction non linéaire et à l'inverse de l'aire effective du mode fondamental de la fibre.

Il est intéressant de constater que notre modèle est en accord avec celui présenté par Alibart *et al.* dans la référence [71]. Les auteurs considèrent une impulsion de pompe de profil temporel gaussien en propagation guidée dans une fibre optique, et décrivent cette impulsion de manière très générale comme un continuum de modes possédant chacun sa propre fréquence et sa propre constante de propagation. Leur première étape consiste à calculer l'influence de deux modes de pompe quelconques sur l'évolution du système (suivant une approche quantique en représentation de Heisenberg²⁶) avant d'intégrer le résultat sur l'ensemble des couples de modes de pompe possibles. Le calcul est rendu possible par l'approximation essentielle selon laquelle l'efficacité non linéaire est extrêmement faible, de sorte qu'une seule paire *au maximum* peut être générée lors de la propagation de l'impulsion de pompe dans la fibre. Une expression analytique du nombre moyen de paires générées est alors dérivée en faisant l'approximation selon laquelle la dispersion de la vitesse de groupe peut être négligée au sein du spectre de pompe ainsi que dans toute la bande passante signal d'une part et toute la bande passante idler d'autre part.

Ainsi, même si la démarche de calcul diffère (en particulier par le choix de la représentation utilisée et la description du spectre de pompe), les approximations effectuées sont identiques aux nôtres, et l'expression analytique du nombre moyen de paires générées est de forme similaire à notre expression analytique de la probabilité p_1 de génération d'une paire.

Rappelons que l'intérêt du modèle que nous avons développé est de nous permettre de prédire les performances de notre source en termes de taux de génération des paires de photons corrélés et de propriétés spectrales des paires émises. D'un point de vue pratique, il nous offre en particulier la possibilité de choisir, pour une fibre donnée, la meilleure configuration expérimentale pour l'observation de la génération des paires de photons corrélés. Plus précisément, comme nous l'avons déjà mentionné plus haut, il est nécessaire de séparer, en sortie de la fibre génératrice, les photons signal des photons idler, ainsi que des *très nombreux* photons de pompe qui n'ont pas été convertis lors de leur propagation dans la fibre²⁷. Pour cela, comme nous le verrons dans le Chapitre 3, nous avons construit en sortie de la fibre un spectromètre à deux bras : un bras signal, de bande passante de détection centrée en ω_{s_0} et de largeur $\Delta\omega_s$, et un bras idler, de bande passante de détection centrée en ω_{i_0} et de largeur $\Delta\omega_i$ (les photons de pompe seront envoyés dans une troisième direction et éliminés dans un piège à lumière). Notre modèle va nous permettre de choisir le jeu de paramètres expérimentaux ($\omega_{p_0}; \omega_{s_0}; \omega_{i_0}$) (c'est-à-dire la manière dont nous devons régler le laser Ti:Saphir et les deux bras du spectromètre) conduisant à la fois :

- au respect des conditions de conservation de l'énergie et d'accord de phase ;
- et à un écart spectral entre les photons de pompe et les photons signal et idler assez élevé pour que l'efficacité de filtrage des photons de pompe soit supérieure à 100 dB.

Il est intéressant de remarquer que dans le cas où la fibre est relativement peu dispersive, comme c'est le cas de la fibre à cœur de silice qui nous a servi d'exemple pour les simulations de la section 2.5 du présent chapitre, il est possible d'obtenir un plateau de probabilité de génération maximale relativement large (voir figure (2.5.7), colonne centrale). Ainsi, un fort écart spectral entre les photons de pompe et les photons signal et idler peut être obtenu au sein de ce plateau, et seul le respect de la condition de conservation de l'énergie est requis entre ω_{p_0} ,

26. Voir Annexe B.1.

27. Plus quantitativement, si une impulsion de pompe contenant 10 millions de photons de pompe (ordre de grandeur typique) conduit à la génération d'une paire de photons corrélés, les photons de pompe devront être filtrés avec une efficacité d'au moins 90 à 100 dB pour que les photons corrélés puissent être détectés proprement.

ω_{s_0} et ω_{i_0} : pour une valeur donnée de ω_{p_0} , tous les couples $(\omega_{s_0}; \omega_{i_0})$ satisfaisant la conservation de l'énergie *et inclus dans le plateau*²⁸ conduiront aux mêmes valeurs de $p_{\text{signal}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s)}$, $p_{\text{idler}}^{(\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)}$ et $p_{\text{paire}}^{(\omega_{s_0}; \Delta\omega_s), (\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)}$, et donc aux mêmes taux de détections individuelles (signal et idler) et simultanées.

En revanche, dans le cas d'une fibre fortement dispersive, comme la fibre à cœur liquide qui nous a servi de second exemple, le plateau de probabilité de génération maximale est toujours relativement étroit (même si la longueur d'onde de pompe est prise égale à la longueur d'onde de dispersion nulle), et l'obtention d'un fort écart spectral entre les photons de pompe et les photons signal et idler nécessite de travailler sur les pics latéraux : il faut régler les deux bras du spectromètre de sorte que $\omega_{s_0} = \omega_a$ (maximum du pic latéral basses fréquences) et $\omega_{i_0} = \omega_b$ (maximum du pic latéral hautes fréquences). Ce réglage est beaucoup plus contraignant que dans le cas précédent, car ω_a et ω_b sont fixés à la fois par la condition de conservation de l'énergie *et* par la condition d'accord de phase.

Comme mentionné plus haut, l'exploitation de ce modèle analytique (en particulier pour tracer la courbe de densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique) nécessite une certaine connaissance préalable des propriétés de la fibre génératrice :

- sa longueur (L_{fibre}) ;
- son coefficient non linéaire (γ), autrement dit son indice de réfraction non linéaire (n_2) et l'aire effective du mode fondamental (A_{eff}) ;
- sa courbe de dispersion.

C'est la raison pour laquelle une phase expérimentale préliminaire de caractérisation de la fibre génératrice est nécessaire. Nous présentons au début du Chapitre 3 les techniques mises en œuvre pour la détermination expérimentale du coefficient non linéaire et de la courbe de dispersion d'une fibre optique, ainsi que les résultats obtenus dans une fibre à cœur liquide particulière²⁹, avant d'aborder l'expérience de génération et détection des paires de photons corrélés dans cette fibre à cœur liquide.

28. N'oublions pas qu'il faut malgré tout maintenir un écart spectral assez élevé avec la pompe pour que celle-ci puisse être filtrée efficacement.

29. Il s'agit de la fibre microstructurée à cœur creux HC-1550-PM-01 de chez *NKT Photonics* remplie d'acétone deutérée qui nous a servi d'exemple illustratif dans ce chapitre, et qui est présentée en Annexe A.2.

CHAPITRE 3

Génération de paires de photons corrélés dans une fibre à cœur liquide

Ce chapitre regroupe les principaux résultats expérimentaux obtenus avec une fibre microstructurée à cœur creux remplie d'acétone deutérée. Les étapes de caractérisations linéaire et non linéaire, indispensables pour choisir une configuration expérimentale favorable à l'observation des paires de photons corrélés, sont d'abord présentées en détails. La section suivante donne une description du montage de détection des paires de photons corrélés que nous avons mis en place, et discute des contraintes expérimentales inhérentes à la détection de ces paires. L'observation des photons corrélés en tant que telle et la mise en évidence de la réduction du niveau de photons Raman font l'objet de la dernière section de ce chapitre.

Sommaire

3.1	Introduction	83
3.2	Caractérisations linéaires et non linéaires préliminaires	87
3.2.1	Mesure de la courbe de dispersion de la fibre à cœur liquide	87
3.2.1.1	Principe de la mesure	87
3.2.1.2	De la mesure de la dispersion à la condition d'accord de phase	89
3.2.1.3	Discussions sur le montage mis en place	89
3.2.1.4	Résultats	91
3.2.2	Mesure du coefficient non linéaire de la fibre à cœur liquide	95
3.2.2.1	Principe	96
3.2.2.2	Résultats	97
3.2.3	Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique	98
3.2.4	Validation expérimentale en régime d'amplification	99
3.2.4.1	Montage d'étude du régime d'amplification	100
3.2.4.2	Résultats – Validation des simulations	102
3.2.5	Conclusion	104
3.3	Montage expérimental de détection des paires de photons corrélés	105
3.3.1	Double spectromètre à deux réseaux	105
3.3.1.1	Description du double spectromètre	106
3.3.1.2	Caractérisation des performances du double spectromètre	108
3.3.2	Système de comptage et de mesure des corrélations temporelles	113
3.3.2.1	Détecteurs de photons uniques	113

3.3.2.2	Comptage des photons	114
3.3.2.3	Mesure des corrélations temporelles	116
3.3.3	Conclusion	124
3.4	Première démonstration expérimentale de génération de paires de photons corrélés dans une fibre à cœur liquide	125
3.4.1	Choix des longueurs d’onde de travail	125
3.4.1.1	Rappel des contraintes expérimentales	125
3.4.1.2	Présentation de la procédure de réglage et d’optimisation	126
3.4.1.3	Mise en œuvre de la procédure – Choix des longueurs d’onde de travail	128
3.4.2	Mise en évidence du processus de mélange à quatre ondes spontané par la mesure des taux de comptage	129
3.4.2.1	Évolutions du taux de comptage avec la puissance de pompe en régime impulsionnel et en régime continu	129
3.4.2.2	Comparaison avec la fibre à cœur de silice – Réduction du niveau de photons Raman	132
3.4.2.3	Comparaison avec le modèle analytique	134
3.4.2.4	Cas de la voie signal – Mise en évidence de la sensibilité du système à la température	136
3.4.3	Mise en évidence de la génération de paires de photons par la mesure des corrélations temporelles	136
3.4.4	Conclusion	139

3.1 Introduction

Les résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre ont été obtenus à partir d'un laser de pompe Ti:Saphir (*Tsunami* de chez *Spectra-Physics*) accordable entre 700 nm et 1000 nm (avec une plage de fonctionnement optimal entre 800 nm et 900 nm typiquement). Ce laser délivre des impulsions picosecondes linéairement polarisées, de profil temporel sécante hyperbolique, avec un taux de répétition $\Gamma = 80$ MHz et une puissance moyenne pouvant atteindre 3 W. Après un étage de mise en forme spatiale du faisceau et de filtrage du fond de fluorescence émis par le laser¹ (figure (3.1.1)), ces impulsions sont injectées sur le mode fondamental (gaussien) de la fibre à cœur liquide.

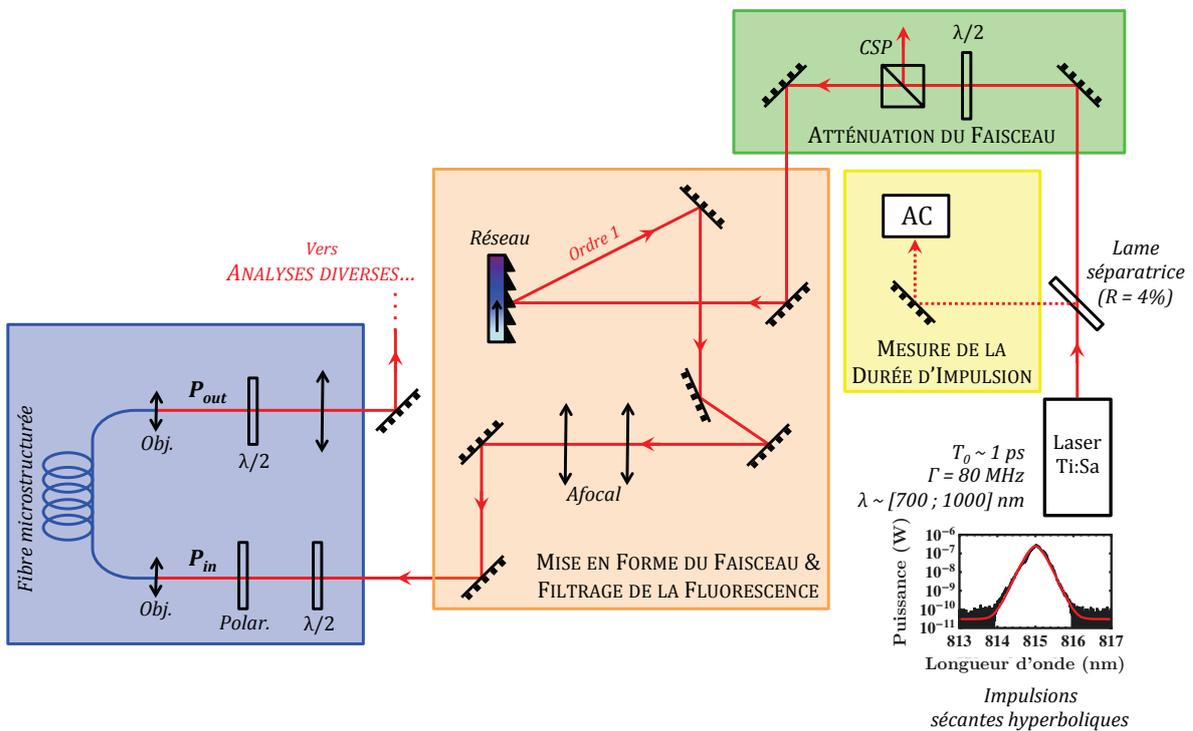


FIG. 3.1.1 – En sortie du laser Ti:Saphir, une partie ($\sim 4\%$ en intensité) du faisceau est envoyée vers un autocorrélateur (AC) pour mesurer la durée des impulsions. L'autre partie (majoritaire) passe tout d'abord par un étage d'ajustement (atténuation) de l'intensité (lame demi-onde suivie d'un cube séparateur de polarisation – CSP) puis est envoyée dans l'étage de mise en forme et filtrage : le fond de fluorescence émis par le laser est filtré à l'aide d'un réseau de diffraction (300 traits/mm, blazé dans l'ordre 1 pour une longueur d'onde de 1000 nm) tandis qu'un système afocal permet d'adapter le diamètre du faisceau en vue d'optimiser l'injection dans la fibre microstructurée. L'association {lame demi-onde + polariseur rectiligne} placée juste en entrée de la fibre microstructurée permet d'ajuster finement la puissance du faisceau injecté dans la fibre (P_{in}). L'injection se fait par l'intermédiaire d'un objectif de microscope (Obj.). Remarquons que la "complexité" apparente (nombre et agencement des miroirs) de l'étage de mise en forme et filtrage permet d'adapter très simplement ce montage à celui de l'étude du processus d'amplification paramétrique par mélange à quatre ondes, que je présenterai plus loin (sous-section 3.2.4).

1. Voir l'Annexe C.1 pour plus de détails sur la fluorescence du Ti:Saphir.

Nous avons utilisé une fibre microstructurée à cœur creux achetée chez *NKT Photonics* (HC-1550-PM-01). Comme sa référence l'indique, cette fibre a été initialement conçue pour fournir une bande de transmission autour de 1550 nm et être à maintien de polarisation. Cette propriété est obtenue en introduisant quatre plots de silice (voir figure (3.1.2)-b) qui brisent la symétrie par rotation d'ordre 6 de la gaine et induisent une biréfringence Δn forte entre les deux axes de symétrie (dits *axes neutres*) ainsi créés. La documentation fournie par *NKT Photonics* indique $\Delta n > 2.10^{-4}$.

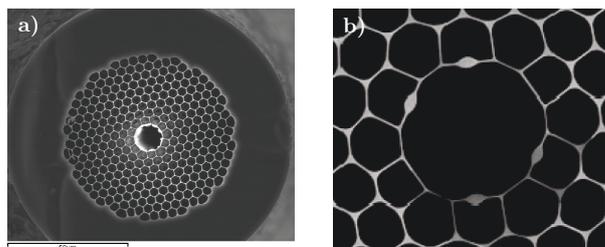


FIG. 3.1.2 – (a) Photographie par microscope électronique à balayage de la coupe transverse de la fibre HC-1550-02 de chez *NKT Photonics*. La fibre HC-1550-PM-01 que nous utilisons a une structure identique, avec un diamètre de cœur de l'ordre de $12 \mu\text{m}$ et un pas de structure de $4 \mu\text{m}$, à ceci près que quatre “points” de silice ont été ajoutés au niveau de la première couronne (voir photo b) pour introduire une forte biréfringence et assurer ainsi la propriété de maintien de polarisation.

Nous avons choisi de remplir cette fibre² d'acétone deutérée (figure (3.1.3)), dont l'indice de réfraction linéaire est $n_{\text{Ad6}} = 1,355$.

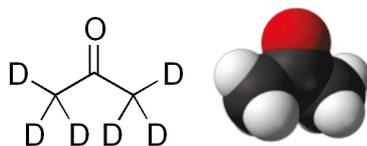


FIG. 3.1.3 – Structure moléculaire de l'acétone deutérée. Cette structure est identique à celle de l'acétone, à ceci près que chaque atome d'hydrogène est remplacé par un deutérium, ce qui permet de s'affranchir des raies d'absorption dues aux liaisons C-H.

Le contraste d'indice entre le cœur de la fibre et la structure en silice est donc réduit par rapport au cas de la fibre remplie d'air, ce qui a pour première conséquence de décaler la bande de transmission vers les basses longueurs d'onde, selon la relation [50] :

$$\lambda_{\text{remplie}} = \lambda_{\text{vide}} \sqrt{\frac{n_{\text{silice}}^2 - n_{\text{liquide}}^2}{n_{\text{silice}}^2 - n_{\text{air}}^2}} \quad (3.1.1)$$

où λ_{vide} et λ_{remplie} donnent la localisation approximative du centre de la bande de transmission de la fibre vide ou remplie de liquide respectivement. Dans notre cas, la bande de transmission est décalée vers 900 nm (figure (3.1.4)), ce qui est parfaitement adapté à la plage spectrale d'émission de notre laser de pompe Ti:Saphir.

De plus, la largeur de la bande de transmission est telle que la raie Raman principale de l'acétone deutérée (qui correspond à un écart spectral de l'ordre de 2100 cm^{-1} , c'est-à-dire un écart d'environ 170 nm pour une pompe vers 900 nm – voir figure (3.1.5)) est largement rejetée

2. Le dispositif et la procédure de remplissage sont présentés en Annexe C.2.

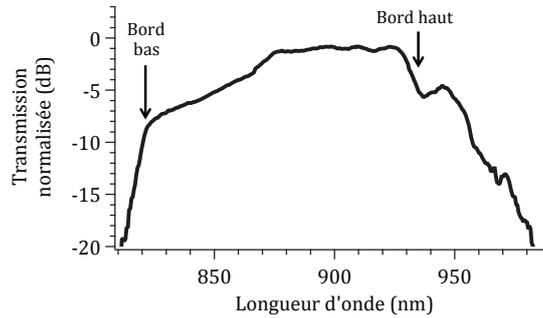


FIG. 3.1.4 – Bande de transmission de la fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée (mesure réalisée à partir d'une source supercontinuum). La bande s'étend typiquement de 820 nm à 925 nm.

en dehors de cette bande de transmission. Quelques raies Raman secondaires, de très faible intensité, sont encore contenues dans la bande de transmission (pour des écarts spectraux de 331 cm^{-1} , 410 cm^{-1} et 478 cm^{-1} [72]). Il s'agira donc de choisir la longueur d'onde du faisceau laser de pompe de sorte à ce que les photons signal et idler soient générés en dehors de ces raies Raman (les photons Raman pourront ainsi être éliminés par un simple filtrage en sortie de la fibre microstructurée).

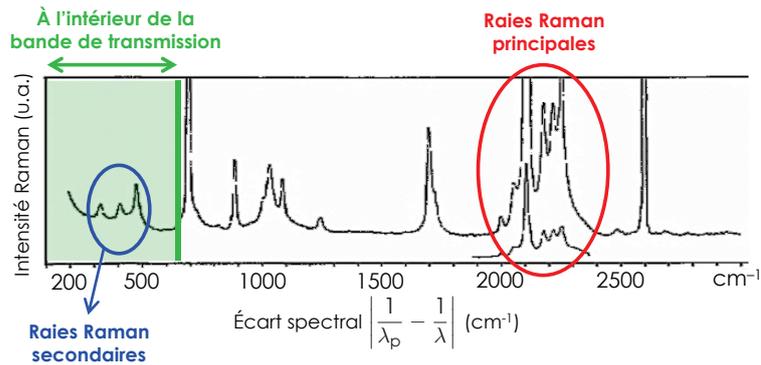


FIG. 3.1.5 – Spectre Raman de l'acétone deutérée [72].

Une autre conséquence du remplissage de la fibre est de réduire fortement sa biréfringence. Après remplissage, en effet, nous avons cherché à identifier les deux axes neutres de la fibre, en faisant tourner l'état de polarisation (rectiligne) du faisceau injecté et en analysant l'état de polarisation obtenu en sortie de fibre. Dans le cas d'une fibre fortement biréfringente, lorsque la direction de polarisation du faisceau injecté coïncide avec l'un des deux axes neutres, l'état de polarisation est maintenu lors de la propagation dans la fibre, et le faisceau émergent est donc lui aussi linéairement polarisé. En revanche, dans le cas d'une fibre *faiblement* biréfringente, l'influence des fluctuations de la géométrie transverse de la fibre sur toute sa longueur (fluctuations inhérentes aux techniques d'étirage des fibres) n'est plus négligeable : l'orientation des axes neutres fluctue autour d'une position moyenne sur toute la longueur de la fibre. En conséquence, un faisceau injecté avec un état de polarisation rectiligne sortira de la fibre avec un état de polarisation très généralement elliptique. Il existe cependant une situation "privilegiée" pour laquelle l'ellipticité sera minimale : il s'agit du cas où la direction de polarisation du faisceau injecté coïncide avec la direction moyenne de l'un des deux axes neutres (direction que

nous appellerons “axe neutre moyen”). Au contraire, si la direction de polarisation du faisceau injecté est à 45° des deux axes neutres moyens, l’ellipticité sera maximale.

Or nous avons effectivement constaté que l’état de polarisation du faisceau de sortie était elliptique, quelle que soit la direction de polarisation du faisceau injecté, avec cependant deux directions “privilegiées” pour lesquelles l’ellipticité obtenue était minimale. La fibre, initialement fortement biréfringente, est donc devenue faiblement biréfringente après remplissage. Les résultats présentés sur la figure (3.1.6) ont été obtenus en injectant un faisceau à 833 nm, et conduisent à une ellipticité minimale de l’ordre de 5° typiquement, c’est-à-dire un taux d’extinction³ d’un peu plus de 10 dB. Bien que la biréfringence puisse dépendre de la longueur d’onde, les mêmes valeurs ont été retrouvées lorsque le faisceau injecté était réglé à 885 nm (mais d’autres longueurs d’onde de pompe sont susceptibles de conduire à des biréfringences plus fortes, ou bien plus faibles encore). Remarquons par ailleurs que la direction des deux axes neutres moyens dépend de la géométrie d’enroulement de la fibre : cela signifie que la biréfringence induite par les contraintes mécaniques subies par la fibre n’est pas négligeable, et qu’il est donc préférable de ne pas modifier cet enroulement lors des expériences. En pratique, nous avons en général travaillé en configuration dite *enroulée*, pour laquelle l’extinction obtenue sur l’un des deux axes neutres moyens peut atteindre 15 dB environ (voir figure (3.1.6)).

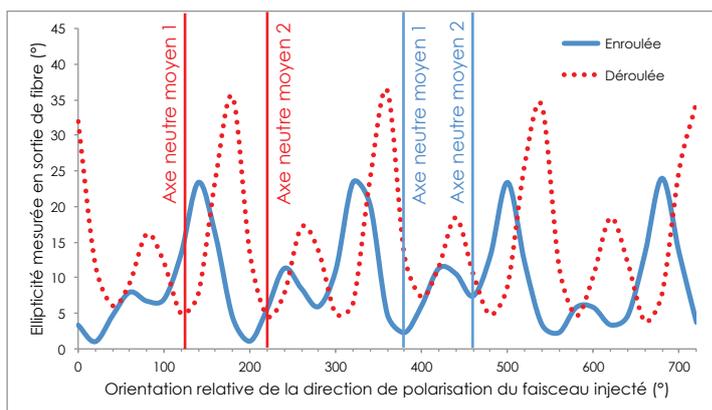


FIG. 3.1.6 – Évolution de l’ellipticité de l’état de polarisation du faisceau émergent en fonction de l’orientation (par rapport à une direction arbitraire) de la direction de polarisation du faisceau injecté. Trait plein bleu : résultat obtenu lorsque la fibre était enroulée sur elle-même (deux boucles); Pointillés rouges : résultat obtenu lorsque la fibre était dépliée.

3. L’ellipticité ϵ et le taux d’extinction de polarisation TEP sont définis selon :

$$\epsilon = \text{Arctan} \left(\frac{P_{\min}}{P_{\max}} \right)$$

$$TEP = 10 \log_{10} \left(\frac{P_{\min}}{P_{\max}} \right)$$

3.2 Caractérisations linéaires et non linéaires préliminaires

Le modèle développé au Chapitre 2 doit nous permettre de prévoir, pour une longueur d'onde de pompe donnée, les longueurs d'onde signal et idler auxquelles vont être générées les paires de photons corrélés avec la plus forte probabilité, et d'optimiser en conséquence le réglage de notre montage de détection (présenté plus loin, en section 3.3). Cependant, la réalisation de simulations à partir de ce modèle nécessite de connaître la courbe de dispersion et le coefficient non linéaire de la fibre (en plus de sa longueur, qui est simple à mesurer).

3.2.1 Mesure de la courbe de dispersion de la fibre à cœur liquide

3.2.1.1 Principe de la mesure

Pour mesurer la dispersion de notre fibre, nous avons choisi une technique de mesure interférométrique de temps de vol⁴, dont le principe est illustré sur la figure (3.2.1).

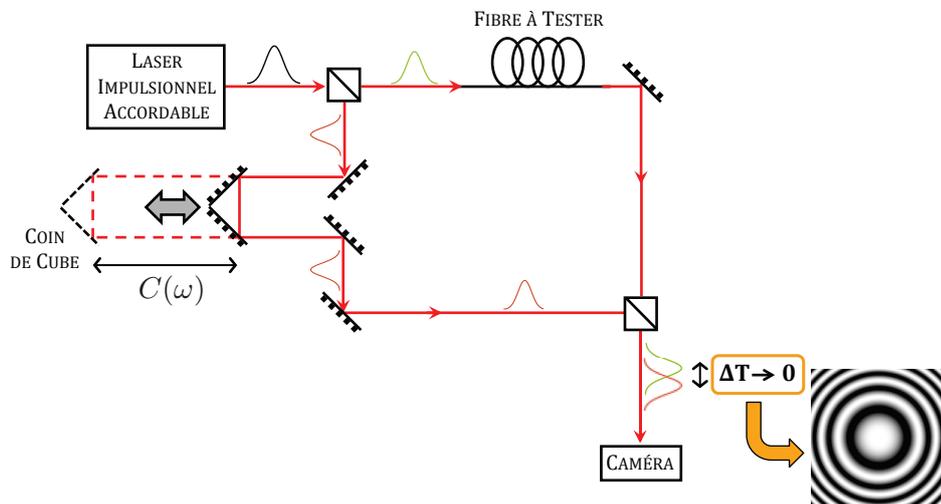


FIG. 3.2.1 – Principe de la mesure interférométrique de temps de vol, permettant de remonter à la fonction $\beta_2(\omega)$ de la fibre testée.

Une impulsion de pompe, dont nous connaissons la fréquence centrale ω , est séparée en deux impulsions sœurs envoyées dans deux voies distinctes : une voie de référence, de longueur ajustable grâce à une ligne à retard, et où la propagation se fait exclusivement dans l'air ; et une voie test contenant la fibre à cœur liquide à tester. En sortie du dispositif, les deux impulsions sœurs sont recombinées et envoyées sur une caméra. Si le recouvrement temporel entre les deux impulsions est parfait, c'est-à-dire si leur temps de propagation sur chacune des deux voies est identique, on obtient sur la caméra des franges d'interférence de contraste maximal.

Lorsqu'on fait varier la fréquence centrale ω des impulsions, le temps de propagation dans la voie test varie à cause de la dispersion de vitesse de groupe de la fibre, et on doit réajuster la longueur de la ligne à retard sur la voie référence pour retrouver un contraste de frange maximal.

4. Parmi les diverses techniques possibles (interférométrie en lumière blanche, modulation de phase ou d'amplitude de la porteuse, etc.), celle que je décris ici était la plus simple à mettre en œuvre à partir du matériel à notre disposition, et la mieux adaptable à notre montage expérimental.

La mesure de la position du coin de cube (notée C) en fonction de ω est donc simplement proportionnelle à l'indice de groupe dans la fibre, $n_g(\omega)$, autrement dit à $\beta_1(\omega)$, mais à *une constante près* :

$$\beta_1(\omega) = \frac{1}{v_g(\omega)} = \frac{n_g(\omega)}{c} = cst_1 + \frac{2}{cL_{\text{fibre}}} C(\omega) \quad (3.2.1)$$

où $v_g(\omega)$ est la vitesse de groupe à la fréquence ω . La constante cst_1 dépend des conditions expérimentales (entre autres, les longueurs des deux voies).

Cette mesure donne donc entièrement accès à la courbe $\beta_2(\omega)$, c'est-à-dire à la dispersion de vitesse de groupe (ou *Group-Velocity Dispersion*, GVD) de la fibre testée :

$$\beta_2(\omega) = \frac{2}{cL_{\text{fibre}}} \frac{dC(\omega)}{d\omega} \quad (3.2.2)$$

tandis que la fonction $\beta(\omega)$ est obtenue par intégration de (3.2.1) par rapport à ω :

$$\beta(\omega) = cst_2 + cst_1 \omega + D(\omega) \quad (3.2.3)$$

avec :

$$D(\omega) = \frac{2}{cL_{\text{fibre}}} \int C(\omega) d\omega \quad (3.2.4)$$

En pratique, nous disposons d'une série de m points expérimentaux de mesure de C en fonction de ω : $\{(\omega_1; C_1), (\omega_2; C_2), \dots, (\omega_m; C_m)\}$, et nous ajustons sur cette série de points une fonction polynomiale d'ordre N ($\leq m$). Les dérivations successives de ce polynôme en fonction de ω donnent accès à $\beta_2(\omega)$ (qui sera donc représenté par une fonction polynomiale d'ordre $N - 1$), $\beta_3(\omega)$ (polynôme d'ordre $N - 2$), $\beta_4(\omega)$ (polynôme d'ordre $N - 3$), etc. Or, comme je l'ai déjà évoqué au Chapitre 1 (partie 1.2.2.2), il se trouve que, très généralement, les termes d'ordre supérieur à 4 du développement de Taylor de la fonction $\beta(\omega)$ ont une influence négligeable. Ainsi, seule la connaissance des fonctions $\beta_2(\omega)$, $\beta_3(\omega)$ et $\beta_4(\omega)$ nous intéresse réellement. Nous choisirons donc en pratique d'ajuster sur nos points expérimentaux $(\omega_k; C_k)$ une fonction polynomiale d'ordre $N \geq 4$.

La fonction $D(\omega)$ est alors parfaitement connue, sous la forme d'un polynôme d'ordre $N + 1$ en ω .

Notons que cette technique de mesure interférométrique de temps de vol nécessite d'utiliser des impulsions courtes (de faible longueur de cohérence) pour obtenir une bonne précision sur la valeur de $C(\omega)$, tout en conservant un spectre "suffisamment étroit" pour que l'incertitude sur la valeur de ω ne soit pas trop forte. Il s'agit donc de faire un compromis entre la durée des impulsions et la largeur du spectre associé, de sorte à obtenir la mesure de dispersion la plus précise, tant en abscisses qu'en ordonnées. Comme nous allons le voir, notre laser Ti:Saphir en régime picoseconde, délivrant des impulsions d'extension spatiale de l'ordre de 0,5 mm avec un spectre de largeur de l'ordre de 0,5 nm, permet d'atteindre un compromis raisonnable.

Remarquons enfin que cette technique permet également de vérifier que la dispersion *interne au spectre de pompe* est négligeable (ce qui est l'une des hypothèses que nous avons faites dans le modèle analytique présenté au Chapitre 2) : il suffit pour cela de vérifier que les impulsions n'ont pas subi d'élargissement temporel au cours de leur propagation dans la fibre à cœur liquide. Notons d'ailleurs que si un tel élargissement avait lieu, il serait lui-même dépendant de

la valeur de la longueur d'onde centrale des impulsions (λ_{p_0}) : ainsi, il suffit de vérifier que la durée des impulsions de sortie est indépendante de λ_{p_0} . En pratique, comme je le présenterai en partie 3.2.1.4 ci-après, nous avons mesuré l'écart entre les deux positions du coin de cube pour lesquelles le contraste des franges est égal à la moitié de sa valeur maximale (positions qui sont notées $C_{1/2}^{(+)}$ et $C_{1/2}^{(-)}$), qui est proportionnel à la durée des impulsions en sortie de la fibre à cœur liquide.

3.2.1.2 De la mesure de la dispersion à la condition d'accord de phase

L'équation (3.2.3) met bien en évidence le fait que la mesure réalisée ne donne pas rigoureusement accès à l'évolution de la constante de propagation β en fonction de ω (les constantes cst_1 et cst_2 étant *a priori* indéterminées). Cependant, la constante de propagation $\beta(\omega)$ n'intervient que dans l'expression de $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}(\omega, \omega')$ (équation (2.5.3)), c'est-à-dire sous la forme :

$$2\beta(\omega_{p_0}) - \beta(\omega) - \beta(\omega') + \frac{\omega + \omega' - 2\omega_{p_0}}{v_{gp}} \quad (3.2.5)$$

À partir de l'équation (3.2.3) nous montrons que l'expression ci-dessus est égale à :

$$(cst_1 - \beta_1(\omega_{p_0}))(2\omega_{p_0} - \omega - \omega') + 2D(\omega_{p_0}) - D(\omega) - D(\omega') \quad (3.2.6)$$

et grâce à l'équation (3.2.1) nous savons que :

$$cst_1 - \beta_1(\omega_{p_0}) = -\frac{2}{cL_{\text{fibre}}}C(\omega_{p_0}) \quad (3.2.7)$$

Ainsi, puisque notre mesure permet de connaître les fonctions $C(\omega)$ et $D(\omega)$, elle donne parfaitement accès aux valeurs de la fonction $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$.

3.2.1.3 Discussions sur le montage mis en place

Superposition spatiale et temporelle des faisceaux test et de référence

Le montage expérimental de mesure de la dispersion est présenté en figures (3.2.2) et (3.2.3).

Dans un premier temps, deux caméras sont utilisées pour visualiser transversalement les deux faisceaux mis en jeu (faisceau test et faisceau de référence) après leur recombinaison, à courte distance (CAM1) et à longue distance (CAM2). En superposant spatialement les deux faisceaux simultanément sur les deux caméras, nous nous assurons de leur superposition spatiale sur l'ensemble du trajet commun.

Le coin de cube est initialement positionné "grossièrement" à une distance du prisme telle que les chemins optiques des deux impulsions sœurs soient à peu près égaux⁵. L'optimisation de la superposition temporelle des deux impulsions sœurs lors de leur recombinaison nécessite un ajustement de la longueur de la ligne à retard avec une précision meilleure que le millimètre (pour des impulsions picosecondes). C'est la raison pour laquelle nous avons placé le coin de

5. Le calcul approximatif du chemin optique dans la voie test est rendu possible par la connaissance de la longueur de la fibre, de l'indice de réfraction linéaire du liquide ($n_{\text{Ad6}} = 1,355$), qui donne une bonne estimation de l'indice effectif du mode, et par l'évaluation de la distance de propagation dans l'air sur cette voie test.

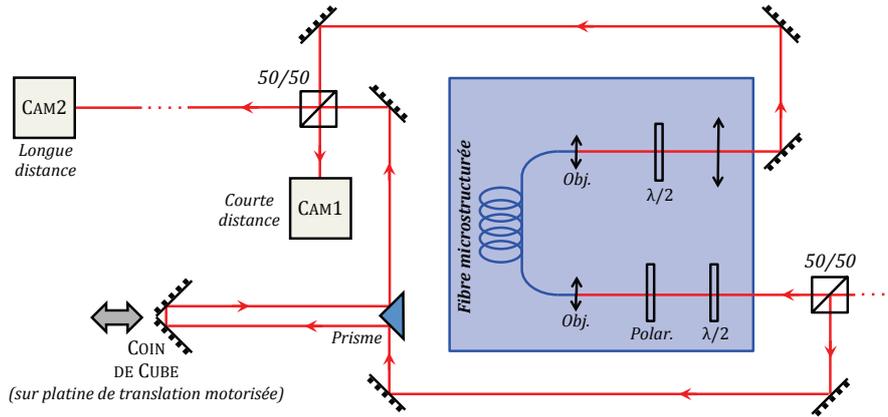


FIG. 3.2.2 – Montage expérimental de mesure de la dispersion – Phase de superposition spatiale et temporelle des faisceaux test et de référence : utilisation de deux caméras, l'une à courte distance, l'autre à longue distance après recombinaison des deux faisceaux sur le cube 50/50.

cube sur une platine de translation motorisée, qui offre une plage de translation de 50 mm avec une précision de l'ordre de $5 \mu\text{m}$.

En ajustant la superposition spatiale des faisceaux à courte et longue distance, nous obtenons rapidement la teinte plate (c'est-à-dire que nous n'avons plus des franges d'interférence rectilignes mais des anneaux d'interférence), et nous pouvons ajuster la longueur de la ligne à retard de sorte à maximiser le contraste des anneaux d'interférence à l'œil (sur l'une ou l'autre des deux caméras). Il s'agit d'une première optimisation grossière de la superposition temporelle des deux impulsions.

Notons que l'optimisation du contraste nécessite également que les deux faisceaux aient le même état de polarisation et des intensités du même ordre de grandeur. Ces paramètres sont contrôlés grâce aux associations de polariseurs rectilignes et lames demi-ondes présentées sur le schéma de la figure (3.2.2).

Visualisation du contraste des interférences à l'oscilloscope

Pour optimiser de manière plus précise la superposition temporelle des deux impulsions, nous remplaçons la caméra CAM2 par une photodiode (dont le temps de réponse est assez lent pour que les impulsions ne soient pas résolues) reliée à un oscilloscope (voir figure (3.2.3)).

Pour que nous puissions visualiser le contraste des interférences, il faut qu'il y ait un défilement des anneaux au niveau du capteur. Les variations de phase dues aux instabilités du montage sont trop faibles (inférieures à π) pour permettre de mesurer à la fois le maximum et le minimum d'intensité. Nous avons donc choisi de monter l'un des miroirs de la voie test sur une cale piézo-électrique, dont les déplacements (amplitude et fréquence) sont contrôlés par un générateur basses fréquences (GBF) (voir figure (3.2.3)). Le signal obtenu à l'oscilloscope est périodique, d'amplitude maximale lorsque le contraste d'interférence est maximal. L'observation de ce signal en temps réel nous permet donc d'ajuster précisément, grâce à la platine de translation motorisée, la position optimale du coin de cube. Cette mesure est réalisée pour différentes valeurs de la longueur d'onde des impulsions, et pour chaque longueur d'onde nous notons la position relative du coin de cube par rapport à une position de référence arbitraire.

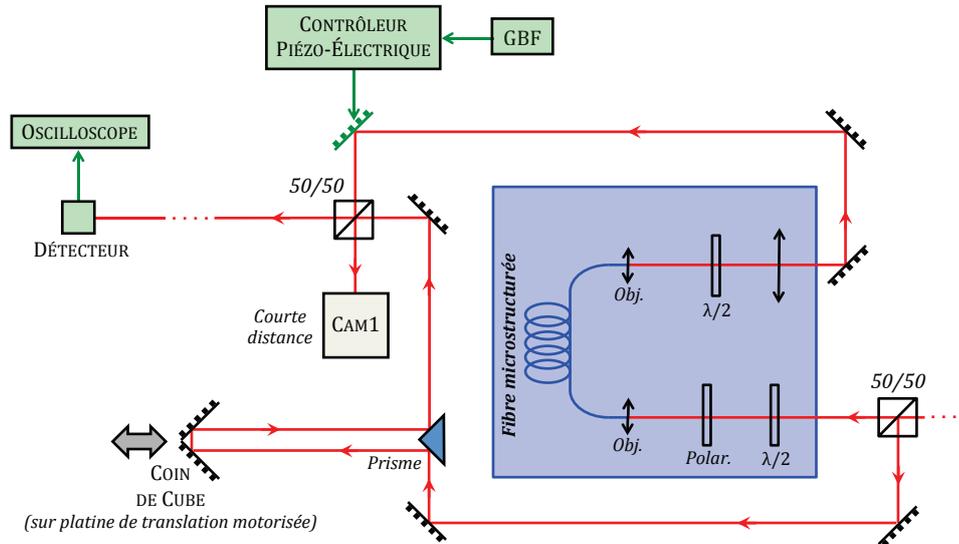


FIG. 3.2.3 – Montage expérimental de mesure de la dispersion – Phase d’optimisation du contraste d’interférences : la caméra longue distance a été remplacée par une photodiode reliée à un oscilloscope, et l’un des miroirs a été monté sur une cale piézo-électrique pour obtenir un défilement périodique des anneaux sur le détecteur.

3.2.1.4 Résultats

Je présente ci-après les mesures réalisées sur la fibre à cœur liquide (HC-1550-PM-01 remplie d’acétone deutérée). La dispersion de la fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV, que j’ai déjà évoquée au Chapitre 2 et qui a fait l’objet des expériences présentées dans l’article reproduit en Annexe E, a également été mesurée. Le résultat est présenté en Annexe A.1.

La mesure a été réalisée, sur chacun des deux axes neutres moyens de la fibre à cœur liquide, pour une longueur d’onde de pompe variant de 790 nm à 910 nm par pas de 3 à 5 nm. Nous obtenons 31 points de mesure de la forme $\{\lambda_p; C(\lambda_p)\}$, avec λ_p en nm et $C(\lambda_p)$ en mm (représentant la position relative du coin de cube par rapport à une position de référence C_0 , c’est-à-dire le déplacement que nous avons dû lui appliquer pour retrouver le contraste d’interférence maximal). L’incertitude sur λ_p est très faible (quelques dixièmes de nanomètres seulement) : le laser Ti:Saphir fournit des impulsions avec un spectre de largeur à mi-hauteur de l’ordre de 0,5 nm, dont nous sommes en mesure de régler la longueur d’onde centrale avec une précision de 0,05 nm typiquement. L’incertitude en ordonnée est évaluée par répétabilité, et en utilisant les fonctions de moyennage de l’oscilloscope. Elle est de l’ordre de quelques dizaines de μm typiquement, sauf pour la mesure réalisée à 910 nm⁶. Notons que les points expérimentaux présentés sur la figure (3.2.4) correspondent aux mesures réalisées sur l’un des deux axes neutres moyens : les résultats obtenus sur l’autre axe neutre moyen sont identiques, dans le sens où l’écart entre les points expérimentaux d’un axe neutre moyen à l’autre est inférieur aux incertitudes de mesure. Ce résultat confirme le fait que notre fibre, une fois remplie d’acétone deutérée, est très peu biréfringente.

6. L’incertitude sur la mesure à 910 nm est plus forte car les conditions de mesure sont moins favorables : nous sommes en effet près du bord de la bande de transmission de la fibre à cœur liquide, et la transmission commence donc à être dégradée. Le signal obtenu sur l’oscilloscope est donc plus faible, et l’optimisation de son amplitude est plus délicate.

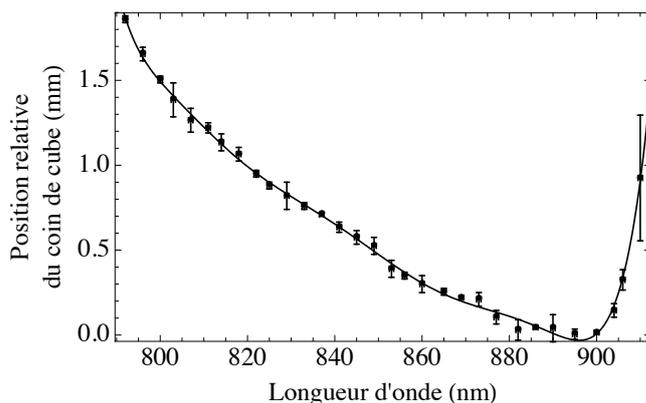


FIG. 3.2.4 – Résultats bruts de la mesure de dispersion : position relative du coin de cube en fonction de la longueur d'onde des impulsions.

Je donne également en figure (3.2.5) l'évolution de l'écart $C_{1/2}^{(+)} - C_{1/2}^{(-)}$ en fonction de la longueur d'onde de pompe. Comme expliqué plus haut, le fait que cet écart soit indépendant (aux incertitudes de mesure près) de la longueur d'onde permet de vérifier que la dispersion de vitesse de groupe dans cette fibre microstructurée est négligeable au sein du spectre de pompe (comme nous l'avons supposé dans le modèle présenté au Chapitre 2).

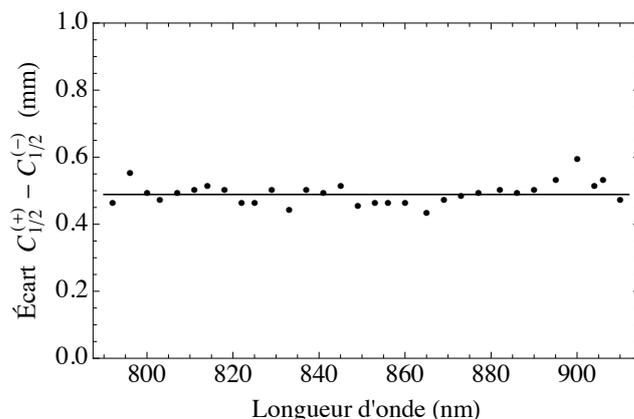


FIG. 3.2.5 – Écart $C_{1/2}^{(+)} - C_{1/2}^{(-)}$ en fonction de la longueur d'onde de pompe. $C_{1/2}^{(+)}$ et $C_{1/2}^{(-)}$ sont les deux positions du coin de cube pour lesquelles le contraste est égal à la moitié de sa valeur maximale (pour une longueur d'onde donnée). Cet écart est donc simplement proportionnel à l'extension spatiale des impulsions en sortie de la fibre microstructurée. L'absence globale de variation avec la longueur d'onde montre que la dispersion de vitesse de groupe peut être négligée au sein du spectre de pompe.

Les mesures brutes $\{\lambda_p; C(\lambda_p)\}$ ont alors été converties sous la forme $\{\omega_p; C(\omega_p)\}$, avec $\omega_p = 2\pi c/\lambda_p$ en rad/s et $C(\omega_p)$ en m, et nous avons ajusté sur ces points expérimentaux une fonction polynomiale d'ordre N en ω_p , avec N variant de 4 à 13. Nous avons ainsi pu constater que, pour que la fonction d'ajustement intercepte les barres d'erreur de chacun des 31 points de mesure, il fallait choisir $N \geq 9$. La fonction polynomiale d'ajustement d'ordre 9 est tracée en trait plein en superposition des points expérimentaux sur la figure (3.2.4). Son expression

est de la forme :

$$\text{Poly9}(\omega) = \sum_{m=0}^N x_m \omega^m \quad (3.2.8)$$

avec $N = 9$, ω en rad/s et x_m en m.(rad/s) $^{-m}$. Les valeurs des x_m sont données ci-après (tableau 3.1)⁷.

La dispersion de vitesse de groupe (GVD) de la fibre est obtenue en dérivant une fois la fonction Poly9 par rapport à ω (voir équation (3.2.2)) :

$$\beta_2(\omega) = \sum_{m=0}^{N-1} K_m \omega^m \quad (3.2.9)$$

avec (voir tableau 3.1) :

$$K_m = \frac{2}{cL_{\text{fibre}}} (m+1) x_{m+1} \quad (3.2.10)$$

Son allure est présentée sur la figure (3.2.6) (sur la plage spectrale sur laquelle la mesure a effectivement été réalisée, c'est-à-dire [790 ; 910] nm). La longueur d'onde de dispersion nulle λ_{ZDW} vaut donc 896 nm. Cette valeur varie très peu (quelques dixièmes de nanomètres seulement) si l'on change l'ordre N (≥ 9) du polynôme d'ajustement. En revanche, si l'ajustement est réalisé sur les 30 premiers points expérimentaux seulement (c'est-à-dire en omettant le point de mesure à 910 nm, qui présente une très grande barre d'erreur), nous obtenons une longueur d'onde de dispersion nulle de 895 nm. L'incertitude sur la valeur de λ_{ZDW} est donc de l'ordre du nanomètre.

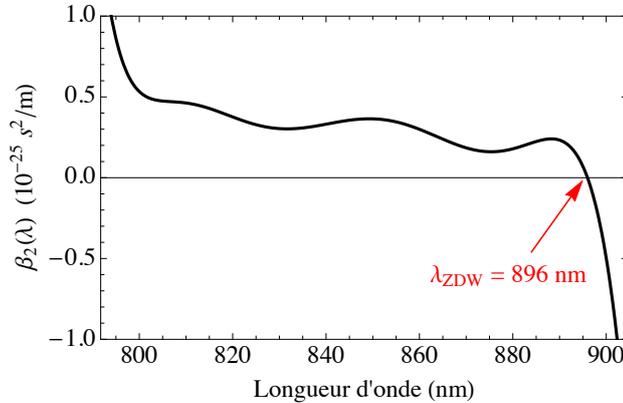


FIG. 3.2.6 – Dispersion de vitesse de groupe de la fibre à cœur liquide, calculée à partir de la fonction polynomiale d'ajustement d'ordre 9. La longueur d'onde de dispersion nulle λ_{ZDW} est ainsi estimée à 896 nm.

7. À noter que le nombre de chiffres significatifs utilisés n'est pas arbitraire : nous avons constaté qu'il était primordial de prendre en compte au moins 14 chiffres significatifs pour chaque coefficient x_m fourni par l'ajustement polynomial pour que le résultat soit cohérent avec les points expérimentaux.

TABLE 3.1 – Tableau récapitulatif.

Longueur de la fibre (*)	$L_{\text{fibre}} = 1,28 \text{ m}$
Indice de réfraction linéaire de l'acétone deutérée	$n_{\text{Ad6}} = 1,355$
Ajustement sur les points expérimentaux $\{\omega; C(\omega)\}$ (avec ω en rad/s et $C(\omega)$ en m)	$\text{Poly9}(\omega) = \sum_{m=0}^9 x_m \omega^m$ $x_0 = 4,1112983040823 \cdot 10^6 \text{ m}$ $x_1 = -1,2900254764061 \cdot 10^{-8} \text{ m. (rad/s)}^{-1}$ $x_2 = 1,6538649308776 \cdot 10^{-23} \text{ m. (rad/s)}^{-2}$ $x_3 = -1,0427406023693 \cdot 10^{-38} \text{ m. (rad/s)}^{-3}$ $x_4 = 2,4110905616644 \cdot 10^{-54} \text{ m. (rad/s)}^{-4}$ $x_5 = 9,707227222152 \cdot 10^{-70} \text{ m. (rad/s)}^{-5}$ $x_6 = -8,995139576193 \cdot 10^{-85} \text{ m. (rad/s)}^{-6}$ $x_7 = 2,8908865553834 \cdot 10^{-100} \text{ m. (rad/s)}^{-7}$ $x_8 = -4,5328373685968 \cdot 10^{-116} \text{ m. (rad/s)}^{-8}$ $x_9 = 2,8962797119609 \cdot 10^{-132} \text{ m. (rad/s)}^{-9}$
Dispersion de la vitesse de groupe	$\beta_2(\omega) = \sum_{m=0}^8 K_m \omega^m$ $K_0 = -6,7188826896154 \cdot 10^{-17} \text{ s}^2 \cdot \text{m}^{-1}$ $K_1 = 1,7227759696642 \cdot 10^{-31} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-1}$ $K_2 = -1,6292821912020 \cdot 10^{-46} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-2}$ $K_3 = 5,0231053368008 \cdot 10^{-62} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-3}$ $K_4 = 2,5279237557688 \cdot 10^{-77} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-4}$ $K_5 = -2,8109811175602 \cdot 10^{-92} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-5}$ $K_6 = 1,0539690566502 \cdot 10^{-107} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-6}$ $K_7 = -1,8886822369153 \cdot 10^{-123} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-7}$ $K_8 = 1,3576311149817 \cdot 10^{-139} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot \text{(rad/s)}^{-8}$
Longueur d'onde de dispersion nulle	$\lambda_{\text{ZDW}} = (896 \pm 1) \text{ nm}$

(*) Attention : Lors de la phase de caractérisations préliminaires (mesure de la dispersion et du coefficient non linéaire), nous avons utilisé une fibre de longueur égale à 1,28 m. C'est cette valeur qu'il faut utiliser pour passer des coefficients x_m aux coefficients K_m . La fibre dans laquelle ont été réalisées les mesures de génération de paires de photons corrélés (voir section 3.4 de ce chapitre) est identique à celle-ci, mais avec une longueur de 1,05 m seulement.

La fonction $D(\omega)$, quant à elle, est obtenue en intégrant une fois la fonction Poly9 par rapport à ω (voir équation (3.2.4)) :

$$D(\omega) = \frac{2}{cL_{\text{fibre}}} \sum_{m=0}^N \frac{x_m}{m+1} \omega^{m+1} \quad (3.2.11)$$

La fonction $\mathcal{F}_{\omega_{p_0}}$ intervenant dans le modèle analytique présenté au Chapitre 2 est donc maintenant connue sur la plage spectrale [790 ; 910] nm (c'est-à-dire, en terme de fréquences, sur la plage [2,07 ; 2,39].10¹⁵ rad/s). Pour être en mesure d'exploiter le modèle, il reste à déterminer le coefficient non linéaire γ de la fibre.

3.2.2 Mesure du coefficient non linéaire de la fibre à cœur liquide

La technique que je vais décrire dans cette sous-section pour la détermination du coefficient non linéaire γ de notre fibre à cœur liquide consiste à mettre à profit le fait que ce coefficient non linéaire ne gouverne pas seulement le processus de mélange à quatre ondes, mais également le processus d'automodulation de phase⁸. Comme nous l'avons vu au Chapitre 1 (sous-section 1.2.1), lorsqu'un faisceau impulsionnel est injecté dans une fibre optique, le processus d'automodulation de phase induit un élargissement du spectre au cours de la propagation (sans modification du profil temporel des impulsions). En sortie de la fibre, l'élargissement est proportionnel à $\gamma P_{\text{crête}} L_{\text{eff}}$, où $P_{\text{crête}}$ est la puissance crête des impulsions injectées (qui peut être mesurée à l'aide d'un puissance-mètre⁹), et L_{eff} est la longueur effective d'interaction¹⁰.

Plus précisément, dans le cas particulier d'impulsions de profil temporel sécante hyperbolique (c'est le cas des impulsions délivrées par notre laser Ti:Saphir), nous disposons d'un modèle analytique [73] permettant de calculer, à partir du spectre initial injecté en entrée de la fibre, la forme du spectre obtenu en sortie, pour une fibre de coefficient non linéaire γ donné. Nous avons mis à profit ce modèle analytique pour, à partir d'une série de spectres mesurés en sortie de fibre, remonter à la valeur du coefficient non linéaire γ .

Rappelons au passage l'expression du coefficient non linéaire de la fibre :

$$\gamma = \frac{2\pi n_2}{\lambda_{p_0} A_{\text{eff}}} \quad (3.2.13)$$

où λ_{p_0} est la longueur d'onde centrale des impulsions de pompe, A_{eff} est l'aire effective du mode fondamental de la fibre, et n_2 l'indice de réfraction non linéaire du liquide¹¹. Cette expression

8. Rappelons que, fondamentalement, ces deux processus ont la même origine physique : comme nous l'avons déjà remarqué au Chapitre 2, l'automodulation de phase n'est autre qu'un processus de mélange à quatre ondes stimulé *interne au spectre de pompe* (voir la Conclusion du Chapitre 2, p.77).

9. Le puissance-mètre mesure en fait la puissance moyenne, et connaissant la durée des impulsions et le taux de répétition du laser, nous pouvons remonter à la puissance crête.

10. L_{eff} peut être légèrement inférieure à la longueur physique de la fibre (L_{fibre}) sous l'effet des pertes linéaires. Rappelons que si l'on note α le coefficient de pertes linéaires (en m⁻¹), la longueur effective est donnée par (voir équation (1.2.43)) :

$$L_{\text{eff}} = \frac{1 - e^{-\alpha L_{\text{fibre}}}}{\alpha} \quad (3.2.12)$$

Dans le cas où les pertes linéaires sont négligeables, on a $L_{\text{eff}} \sim L_{\text{fibre}}$.

11. Le mode fondamental est suffisamment confiné dans le cœur (liquide) pour que la contribution non linéaire de la silice de la structure soit négligeable.

met en évidence le fait que la mesure du coefficient non linéaire γ , combinée à celle de l'aire effective A_{eff} (qui peut être réalisée en imageant le mode transverse de propagation sur une caméra CCD), donne accès à la valeur de l'indice de réfraction non linéaire n_2 du liquide (qui, pour la plupart des liquides, est indisponible dans la littérature). Il est ainsi montré dans l'article donné en référence [73]¹² que le n_2 de l'acétone deutérée est égal à $(5,2 \pm 0,8) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$.

Remarquons que nous aurions finalement pu (puisque le n_2 de l'acétone deutérée est, contrairement à la plupart des liquides, présent dans la littérature) nous contenter de mesurer l'aire effective de notre fibre pour remonter au coefficient non linéaire γ . Cependant, comme cela est mis en évidence dans l'article [73], c'est la mesure de l'aire effective qui est limitante en terme d'incertitude. Il est donc plus judicieux de mesurer directement γ . Une première estimation peut cependant être réalisée, sachant que l'aire effective de notre fibre est de l'ordre de $30 \mu\text{m}^2$: pour $\lambda_{p0} = 882 \text{ nm}$, nous obtenons $\gamma \sim 0,01 \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$.

3.2.2.1 Principe

Nous considérons une fibre de longueur L_{fibre} et de coefficient de pertes linéaires α , dans laquelle on injecte, sur le mode transverse fondamental d'aire effective A_{eff} , des impulsions de profil temporel en amplitude de la forme suivante :

$$U(t, z = 0) = \sqrt{P_{crête}} \operatorname{sech} \left(\frac{t}{T_0} \right) \quad (3.2.14)$$

Le spectre en amplitude est donné par :

$$\tilde{U}(\omega, z = 0) = \int U(t, z = 0) e^{i\omega t} dt = \sqrt{P_{crête}} \pi T_0 \operatorname{sech} \left(\frac{\pi T_0 \omega}{2} \right) \quad (3.2.15)$$

Il est montré dans la référence [73] qu'après propagation dans une fibre de longueur L_{fibre} et de coefficient de pertes linéaires α le spectre en amplitude a évolué selon :

$$\tilde{U}(\omega, z = L_{fibre}) = \tilde{U}(\omega, z = 0) e^{-\frac{\alpha L_{fibre}}{2}} \times {}_2F_2 \left(\left\{ \frac{1}{2} + i \frac{T_0 \omega}{2}, \frac{1}{2} - i \frac{T_0 \omega}{2} \right\}, \left\{ \frac{1}{2}, 1 \right\}, i\gamma L_{eff} P_{crête} \right) \quad (3.2.16)$$

où l'on utilise la fonction hypergéométrique généralisée ${}_2F_2(\{a_1, a_2\}, \{b_1, b_2\}, z)$.

Le spectre en intensité est simplement donné par le carré du module du spectre en amplitude :

$$I(\omega, z = L_{fibre}) = \left| \tilde{U}(\omega, z = L_{fibre}) \right|^2 \quad (3.2.17)$$

Expérimentalement, nous pouvons mesurer le spectre obtenu en sortie de fibre à l'aide d'un analyseur de spectre optique. En ajustant alors sur ce spectre expérimental la fonction $I(\omega, z = L_{fibre})$, nous sommes capables de remonter à la valeur du coefficient non linéaire γ . Cela suppose, bien entendu, d'avoir connaissance de la valeur des autres paramètres mis en jeu dans la fonction d'ajustement $I(\omega, z = L_{fibre})$, c'est-à-dire :

- le coefficient de pertes linéaires α
- la puissance crête des impulsions injectées $P_{crête}$
- la "durée" des impulsions T_0
- la longueur de la fibre L_{fibre}

12. Voir l'erratum associé [74].

La longueur de la fibre a été mesurée au préalable (1,28 m). T_0 est mesuré à l'aide d'un autocorrélateur¹³. Enfin, nous avons $\alpha L_{\text{fibre}} \ll 1$, et l'effet des pertes linéaires peut donc être négligé : nous pourrions donc simplifier l'équation (3.2.16) en prenant $e^{-\frac{\alpha L_{\text{fibre}}}{2}} \sim 1$ et $L_{\text{eff}} \sim L_{\text{fibre}}$. Cela a également pour conséquence de nous donner accès à $P_{\text{crête}}$ par une simple mesure de puissance moyenne en sortie de fibre. En effet, puisque les pertes linéaires sont négligeables, la puissance moyenne mesurée en sortie de fibre correspond à la puissance moyenne P_{moy} effectivement injectée dans la fibre, qui est reliée à $P_{\text{crête}}$ selon :

$$P_{\text{moy}} = 2 T_0 \Gamma P_{\text{crête}} \quad (3.2.18)$$

où Γ est le taux de répétition du laser Ti:Saphir (égal à 80 MHz).

3.2.2.2 Résultats

Je présente en figure (3.2.7) deux spectres mesurés à l'analyseur de spectre optique en sortie de la fibre à cœur liquide, dans les conditions expérimentales suivantes :

- $\lambda_{p_0} = (882,00 \pm 0,05)$ nm
- $\tau_{\text{AC}} = (2,0 \pm 0,3)$ ps, c'est-à-dire $T_0 = (0,7 \pm 0,1)$ ps
- $P_{\text{moy}} = (0,34 \pm 0,02)$ mW et $P_{\text{moy}} = (25,0 \pm 0,5)$ mW
- $\Rightarrow P_{\text{crête}} = (2,9 \pm 0,4)$ W et $P_{\text{crête}} = (210 \pm 30)$ W

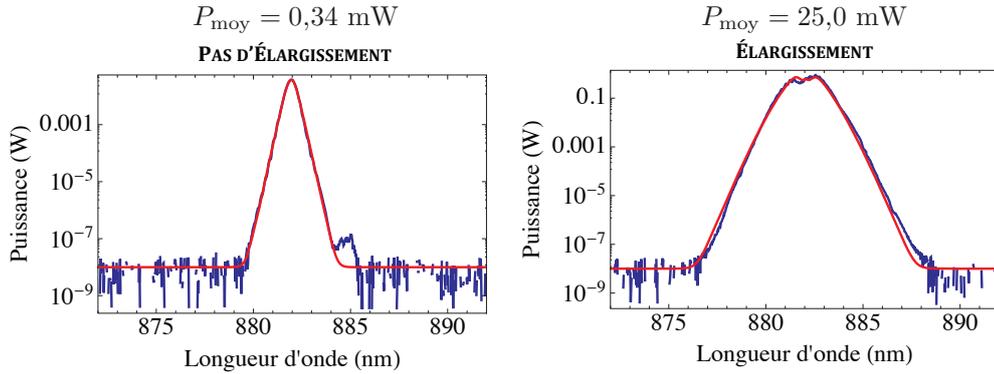


FIG. 3.2.7 – Spectres expérimentaux mesurés en sortie de fibre (en bleu) à basse puissance (à gauche) et à haute puissance (à droite). En rouge, j'ai superposé le résultat fourni par le modèle en absence d'automodulation de phase (à gauche) et en présence d'automodulation de phase avec un coefficient non linéaire γ ajustable (à droite). L'ajustement conduit à $\gamma = 0,012 \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$.

Le spectre de gauche correspond à une puissance crête très faible, pour laquelle l'élargissement spectral par automodulation de phase est négligeable. On peut donc considérer que le spectre mesuré est identique au spectre incident. C'est la raison pour laquelle la fonction $I(\omega, z = 0) = P_{\text{crête}} \pi^2 T_0^2 \text{sech}^2(\pi T_0 \omega / 2)$, superposée en trait plein rouge (recentrée en $\omega = \omega_{p_0}$), coïncide bien avec le spectre expérimental (en prenant pour les paramètres $P_{\text{crête}}$, T_0 et ω_{p_0} les valeurs mesurées expérimentalement).

13. Rappelons que pour une impulsion sécante hyperbolique d'amplitude proportionnelle à $\text{sech}(t/T_0)$, la largeur à mi-hauteur *en intensité* est donnée par $T_{\text{FWHM}} = 2 \ln(1 + \sqrt{2}) T_0 \sim 1,763 T_0$, et la largeur à mi-hauteur du signal d'autocorrélation est donnée par $\tau_{\text{AC}} = 1,543 T_{\text{FWHM}}$. Nous avons donc $T_0 = \tau_{\text{AC}} / (1,543 \times 1,763)$.

En revanche, sur le spectre de droite, obtenu avec une puissance crête bien plus élevée, l'élargissement par automodulation de phase est nettement visible. En ajustant sur ce spectre la fonction $I(\omega, z = L_{\text{fibre}})$ avec le coefficient non linéaire γ comme seul paramètre d'ajustement, nous obtenons :

$$\boxed{\gamma = (0,012 \pm 0,002) \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}} \quad (3.2.19)$$

Notons que cette valeur est cohérente avec l'estimation que nous avons faite en début de cette sous-section ($\gamma \sim 0,01 \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$).

3.2.3 Densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique

Ayant déterminé expérimentalement la courbe de dispersion et le coefficient non linéaire de notre fibre à cœur liquide, nous sommes désormais en mesure de tracer, pour une longueur d'onde de pompe donnée, la courbe de densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique par mélange à quatre ondes spontané dans cette fibre, en utilisant le modèle analytique développé au Chapitre 2. Nous prendrons pour ce tracé une puissance de pompe très faible (typiquement $P_{\text{crête}} = 0,3 \text{ W}$) et une durée d'impulsion T_0 de l'ordre de 1 ps (compatible avec nos conditions expérimentales).

La figure (3.2.8) donne le résultat de la simulation dans le cas où la longueur d'onde de pompe est égale à 885 nm¹⁴. D'après cette simulation, les photons paramétriques doivent être générés vers 860 nm et 912 nm si la longueur d'onde de pompe est égale à 885 nm.

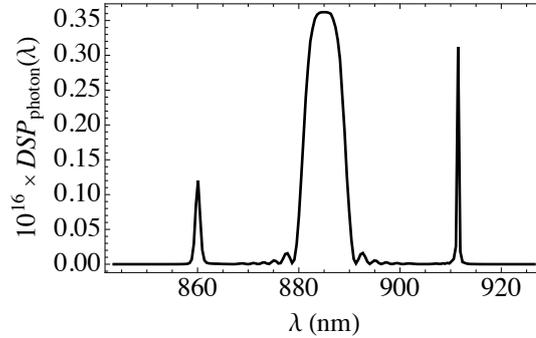


FIG. 3.2.8 – Courbe de densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique dans la fibre à cœur liquide, tracée pour $\lambda_{p_0} = (2\pi c/\omega_{p_0}) = 885 \text{ nm}$, $P_{\text{crête}} = 0,3 \text{ W}$ et $T_0 = 1 \text{ ps}$.

Plus généralement, nous pouvons tracer la *carte* de densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique (figure (3.2.9)), qui permet de visualiser qualitativement l'évolution de la courbe de densité spectrale de probabilité *en fonction de la longueur d'onde de pompe*. Autrement dit, la courbe de la figure (3.2.8) correspond à la coupe de la carte de la figure (3.2.9) en $\lambda_{p_0} = 885 \text{ nm}$. Remarquons que, pour un meilleur confort de visualisation (en particulier, pour être en mesure de bien visualiser les rebonds dus à l'évolution en sinc^2 de la

14. Remarquons que cette figure correspond au graphe de la colonne centrale, ligne du bas, de la figure (2.5.8) du Chapitre 2. La fibre à cœur liquide qui nous a servi d'exemple dans le Chapitre 2 est la fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée que nous étudions dans le chapitre présent.

densité spectrale de probabilité), nous avons choisi de tracer la carte en échelle logarithmique¹⁵.

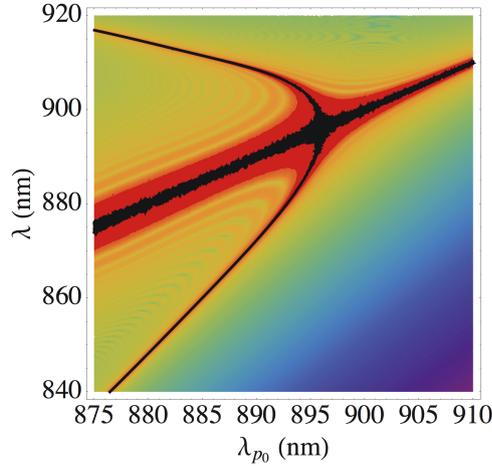


FIG. 3.2.9 – Carte de densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique. Abscisse : longueur d'onde de pompe. Ordonnées : longueurs d'onde signal et idler générées. En trait plein noir, nous avons superposé la courbe d'accord de phase calculée à partir du modèle classique d'amplification paramétrique par mélange à quatre ondes en régime quasi-monochromatique (pour une puissance de pompe de 0,3 W).

Superposée à cette carte, nous avons tracé (en trait plein noir) la courbe d'accord de phase donnée par le modèle classique (amplification paramétrique par mélange à quatre ondes en régime quasi-monochromatique – voir Chapitre 1, sous-section 1.2.2, et en particulier les équations (1.2.32) et (1.2.33) donnant la condition d'accord de phase et l'expression du désaccord de phase brut), pour une puissance de pompe de 0,3 W. Cette superposition nous permet de vérifier que les deux modèles sont bien cohérents entre eux. Certes, leurs domaines de validité diffèrent : le modèle classique décrit le phénomène d'*amplification paramétrique* par mélange à quatre ondes, et est dans l'incapacité de décrire le processus spontané ; le modèle quantique du Chapitre 2, en revanche, décrit le processus spontané et n'est valable que pour des efficacités non linéaires très faibles (donc ne permet en aucun cas de décrire le mécanisme d'amplification paramétrique). Cependant, les longueurs d'onde de génération spontanée *les plus probables* et les longueurs d'onde où le gain d'amplification est maximal sont, en première approximation, identiques.

3.2.4 Validation expérimentale en régime d'amplification

Avant d'aller plus loin, il convient de rappeler que nos résultats de simulation sont basés sur deux mesures expérimentales préliminaires (la mesure de la dispersion et la mesure du coefficient non linéaire), qui sont intrinsèquement entachées d'incertitudes. Ainsi, la carte de densité spectrale de probabilité, ainsi que la courbe d'accord de phase calculée à partir du modèle classique, présentent elles-mêmes une certaine incertitude. Sur la courbe de la figure (3.2.8) par exemple, la position des maxima des deux pics latéraux n'est sans doute juste qu'à quelques nanomètres près. Nous savons que, si nous utilisons des impulsions de pompe à 885 nm, les photons signal et

15. Les variations de couleur suivent une échelle logarithmique, de sorte que la coupe verticale de la carte en $\lambda_{p0} = 885$ nm ne donnera pas la figure (3.2.8) mais son équivalent en échelle logarithmique.

idler seront générés préférentiellement *autour de* 912 nm et 860 nm respectivement (à quelques nanomètres près).

Cette première estimation nous sera d'une grande utilité pour le réglage du montage de détection des paires de photons corrélés (présenté dans la section 3.3 suivante). Mais comme nous n'avons pas connaissance *a priori* de l'ampleur de l'incertitude sur la courbe d'accord de phase, nous avons choisi de réaliser une première vérification expérimentale de la validité de cette courbe, en régime d'amplification. Je présente dans cette sous-section le montage expérimental d'étude du processus d'amplification paramétrique par mélange à quatre ondes, et les résultats que nous avons obtenus dans la fibre à cœur liquide.

3.2.4.1 Montage d'étude du régime d'amplification

Pour observer le phénomène d'amplification paramétrique par mélange à quatre ondes dans la fibre à cœur liquide, nous avons adapté notre montage expérimental comme indiqué sur la figure (3.2.10). Nous avons ajouté un étage permettant, en extrayant (à l'aide d'une lame séparatrice) une partie du faisceau impulsif délivré par le laser Ti:Saphir, de produire un faisceau de faible puissance et très large spectralement, qui nous servira de signal à amplifier. Le même étage permet également de recombinaison spatialement et temporellement le faisceau pompe et le faisceau signal ainsi produit avant de les injecter dans la fibre à cœur liquide.

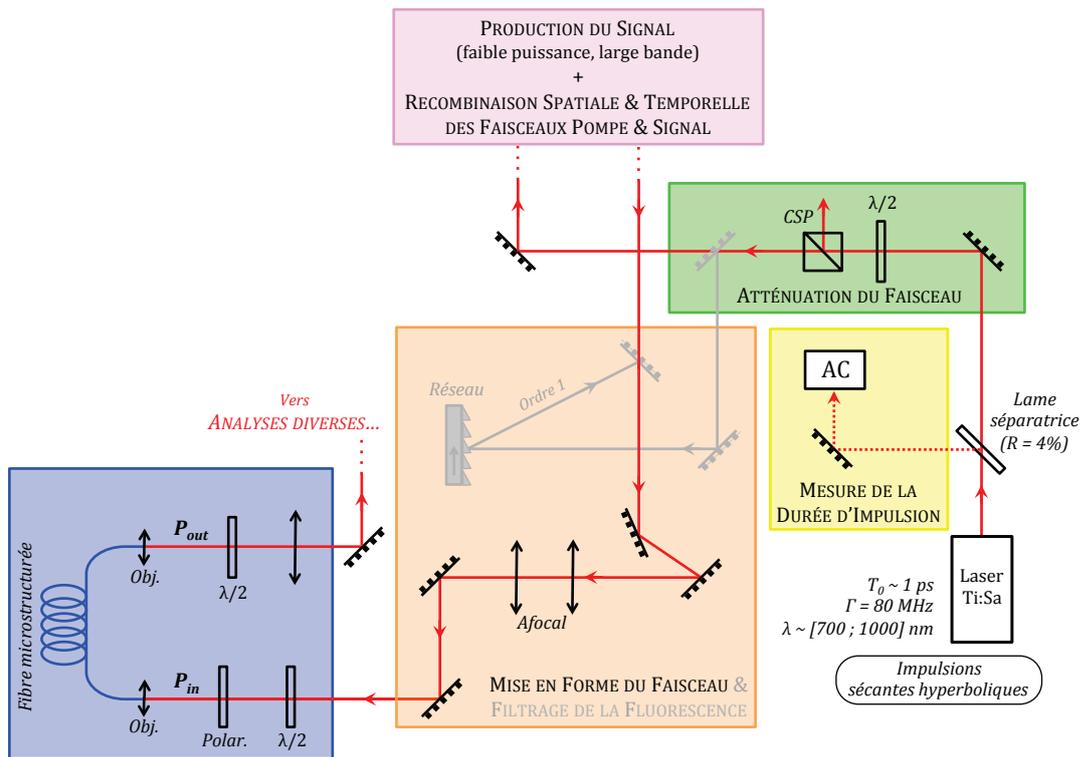


FIG. 3.2.10 – Montage expérimental d'étude du processus d'amplification paramétrique par mélange à quatre ondes dans la fibre à cœur liquide. Par rapport au montage d'étude de la génération des paires par mélange à quatre ondes spontané (voir figure (3.1.1)), nous avons ajouté un étage de production du faisceau signal et de recombinaison spatiale et temporelle des faisceaux pompe et signal, et supprimé l'étape de filtrage.

Évidemment, après recombinaison des deux faisceaux, il ne faut pas passer par l'étape de filtrage (représenté en grisé sur la figure (3.2.10)), qui aurait pour conséquence de supprimer le faisceau signal. Le passage d'une configuration de montage à l'autre¹⁶ est en pratique très facile grâce à l'utilisation de miroirs amovibles.

Le schéma de principe de l'étape de production du faisceau signal et de recombinaison des faisceaux pompe et signal est présenté sur la figure (3.2.11).

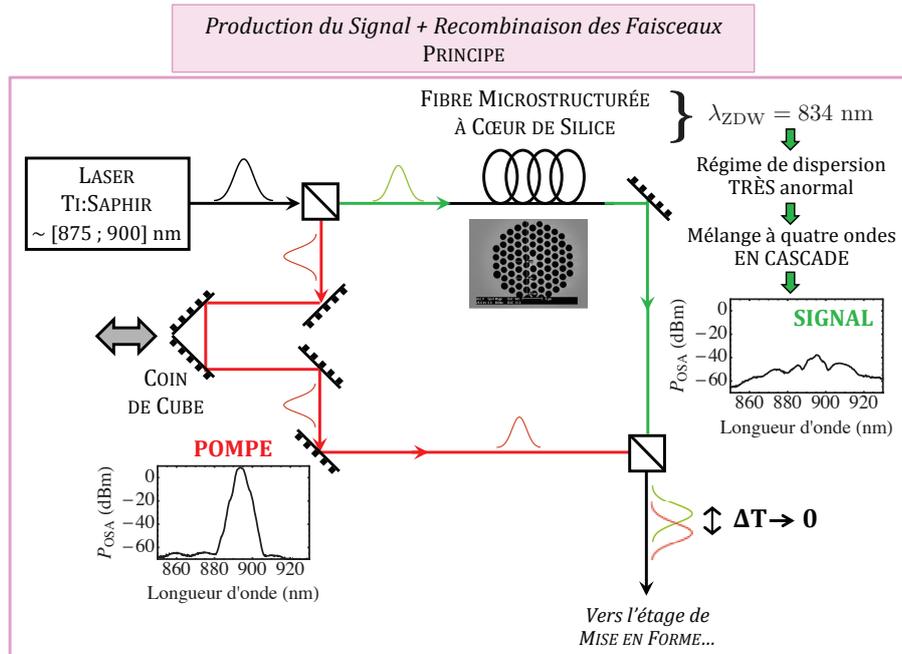


FIG. 3.2.11 – Schéma de principe de la production du faisceau signal à partir des impulsions délivrées par le laser Ti:Saphir et d'une fibre microstructurée à cœur de silice.

Nous utilisons une fibre microstructurée à cœur de silice dont la longueur d'onde de dispersion nulle est égale à 834 nm¹⁷. Nous voulons étudier l'amplification paramétrique dans la fibre à cœur liquide pour des longueurs d'onde de pompe comprises entre 875 nm et 900 nm typiquement. Pour la fibre à cœur de silice, nous nous trouvons donc en régime de dispersion (très) anormale, c'est-à-dire à des longueurs d'onde (très) supérieures à la longueur d'onde de dispersion nulle. Dans un tel régime, la combinaison complexe des effets non linéaires et dispersifs peut conduire (à condition que l'efficacité non linéaire soit assez élevée) à un fort élargissement spectral¹⁸ [75]. Nous pouvons ainsi obtenir en sortie de la fibre à cœur de silice un spectre de plusieurs dizaines de nanomètres de large (un exemple typique est donné sur la figure (3.2.11)).

16. Configuration 1 : pompe seule + passage par l'étape de filtrage (étude du mélange à quatre ondes spontané).

Configuration 2 : pompe + signal, sans passage dans l'étape de filtrage (étude du processus d'amplification paramétrique).

17. Il s'agit de la fibre RTI-UV-1605 de chez *Xlim* qui a servi d'exemple pour les simulations réalisées à la fin du Chapitre 2.

18. Puisque nous utilisons des impulsions picosecondes, l'élargissement est essentiellement gouverné par le processus de mélange à quatre ondes (en régime de dispersion anormale, on désigne souvent ce processus sous le terme d'*instabilité de modulation*), qui conduit *en cascade* à l'apparition de bandes latérales de plus en plus éloignées du spectre de pompe [75].

L’optimisation du recouvrement temporel des impulsions pompe et signal lors de la recombinaison des deux faisceaux est réalisée à l’aide d’une ligne à retard (voir figure (3.2.11)). Cependant, il est important de noter que plus les effets non linéaires subis dans la fibre à cœur de silice sont forts, c’est-à-dire plus l’élargissement spectral est important, plus le profil temporel des impulsions risque lui aussi d’être modifié : les impulsions, initialement sécantes hyperboliques, se scindent sous la forme de trains d’impulsions aléatoirement réparties [75]. Pour assurer un bon recouvrement temporel des impulsions signal avec les impulsions de pompe (ce qui est nécessaire pour pouvoir observer un processus d’amplification paramétrique efficace dans la fibre à cœur liquide), il est important de maintenir un profil temporel assez “propre” (c’est-à-dire proche d’un profil sécante hyperbolique) pour les impulsions signal. Il faut donc faire un compromis entre l’élargissement spectral et la qualité temporelle des impulsions, en ajustant la puissance crête injectée dans la fibre à cœur de silice.

Les impulsions signal et de pompe recombinaison sont finalement injectées sur le mode fondamental de la fibre à cœur liquide. Sous l’effet du processus d’amplification paramétrique, nous nous attendons à obtenir en sortie de cette fibre un spectre correspondant à la superposition du spectre de pompe et du spectre signal *avec amplification aux deux longueurs d’onde prévues par la courbe d’accord de phase*¹⁹.

3.2.4.2 Résultats – Validation des simulations

Sur la figure (3.2.12) je présente un résultat caractéristique obtenu avec une longueur d’onde de pompe de 880 nm. Le graphe de gauche présente le spectre de pompe (en noir) et le spectre signal (mesurés indépendamment l’un de l’autre avant leur recombinaison) en échelle logarithmique. Le graphe de droite présente, en échelle linéaire, le spectre obtenu en sortie de la fibre à cœur liquide (restreint à la plage de longueurs d’onde [905 ; 915] nm) dans trois cas différents :

- en noir, lorsque seul le faisceau de pompe est injecté dans la fibre à cœur liquide : aucun signal n’est détecté sur l’analyseur de spectre optique, car le spectre de pompe est situé en dehors de la fenêtre de mesure ;
- en bleu, lorsque seul le faisceau signal est injecté : un faible signal est détecté à l’analyseur de spectre optique, correspondant à la portion du spectre signal (non modifié lors de la propagation dans la fibre à cœur liquide) contenue dans la fenêtre de mesure ;
- en rouge, lorsque les deux faisceaux sont injectés simultanément : nous retrouvons alors un spectre qui se superpose au spectre signal (à quelques fluctuations près) avec, en plus, une amplification d’un facteur de l’ordre de 5 sur une bande spectrale d’environ 1 nm de large centrée vers 909 nm.

Nous avons répété l’expérience en faisant varier la longueur d’onde de pompe λ_{p0} entre 875 nm et 900 nm typiquement. La position des bandes spectrales amplifiées a été reportée sur la figure (3.2.13). L’incertitude sur la position de ces bandes amplifiées est assez forte (plusieurs nanomètres), en particulier à cause de l’instabilité du spectre signal²⁰. Cependant,

19. Remarquons que notre spectre signal s’étend à la fois au-delà et en-deçà du spectre de pompe : les conditions initiales ne sont donc pas celles qui ont été utilisées au Chapitre 1 pour dériver l’expression analytique du gain d’amplification (équation (1.2.41)). Cependant, cette étude ne s’intéresse pas particulièrement à la valeur du gain d’amplification, mais à la position des longueurs d’onde amplifiées en fonction de la longueur d’onde de pompe, qui sont fixées par la condition d’accord de phase (elle-même indépendante des conditions initiales).

20. La méthode de génération du faisceau signal que nous avons choisie ne permet sans doute pas d’obtenir les mesures d’amplification les plus “propres” possibles. Outre le risque de déformation temporelle des impulsions dont j’ai déjà parlé plus haut (qui réduit le recouvrement temporel avec les impulsions de pompe), le spectre élargi obtenu est assez instable, ce qui rend difficile l’observation des bandes amplifiées. Une part de cette

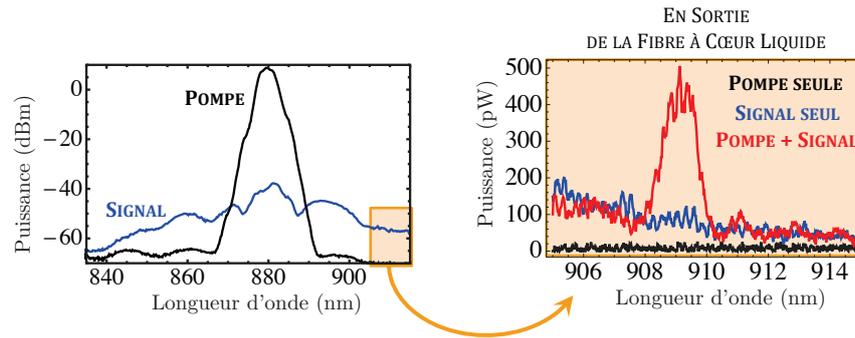


FIG. 3.2.12 – Résultat expérimental caractéristique d’amplification paramétrique par mélange à quatre ondes dans la fibre à cœur liquide. Comme le montre le spectre noir de la figure de gauche, la longueur d’onde centrale du spectre de pompe est égale à 880 nm. Le faisceau signal est très large (plusieurs dizaines de nanomètres) et de faible puissance (spectre bleu). Lorsque les deux faisceaux sont recombines et injectés simultanément dans la fibre à cœur liquide, on observe une amplification d’un facteur de l’ordre de 5 à 909 nm (spectre rouge de la figure de droite).

les bandes amplifiées sont globalement observées aux longueurs d’onde attendues. Ces résultats nous permettent de valider les résultats des simulations, tout en suggérant qu’une incertitude de plusieurs nanomètres peut être à envisager sur la courbe d’accord de phase (autrement dit, sur les longueurs d’onde signal et idler qui ont les probabilités de génération les plus fortes en régime spontané).

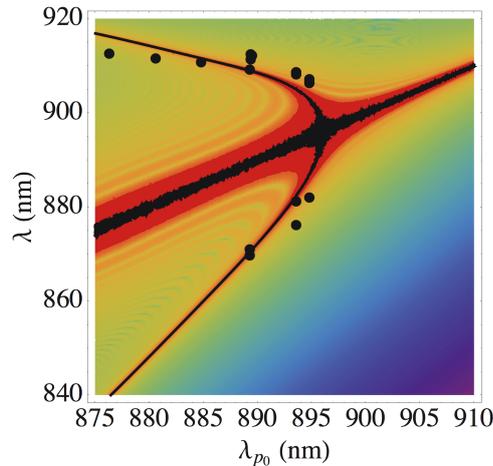


FIG. 3.2.13 – Positions des bandes spectrales amplifiées (ronds noirs) reportées sur la courbe d’accord de phase calculée à partir du modèle classique (trait plein noir). Comme sur la figure (3.2.9), la carte en couleur représente la densité spectrale de probabilité de génération d’un photon paramétrique en régime de mélange à quatre ondes spontanée (les longueurs d’onde d’émission spontanée les plus probables coïncident avec la courbe d’accord de phase calculée classiquement, comme nous le remarquons déjà dans la sous-section 3.2.3). Les ronds noirs, quant à eux, sont en bon accord avec la courbe d’accord de phase, étant données les incertitudes expérimentales assez fortes sur les mesures d’amplification paramétrique.

instabilité est intrinsèque au processus d’élargissement spectral par mélange à quatre ondes en cascade [75]. Elle peut aussi provenir de fluctuations dans la qualité d’injection dans la fibre microstructurée à cœur de silice (une très faible diminution du couplage du faisceau dans cette fibre peut induire une forte diminution des effets non linéaires, donc de l’élargissement du spectre obtenu en sortie). Nous avons cependant choisi cette méthode car elle s’adaptait parfaitement au matériel que nous avons à disposition, et permettait malgré tout d’avoir une validation quantitative (bien qu’entachée d’incertitudes relativement fortes) de nos résultats de simulation.

3.2.5 Conclusion

Les mesures préliminaires de la dispersion et du coefficient non linéaire de la fibre nous ont permis d'utiliser le modèle analytique présenté au Chapitre 2 pour tracer la carte de densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique. Nous pouvons donc prévoir les longueurs d'onde signal et idler qui vont être générées par mélange à quatre ondes spontané. L'étude menée en régime d'amplification montre par ailleurs que les longueurs d'onde prévues par les simulations peuvent être entachées d'une incertitude de plusieurs nanomètres. Comme nous allons le voir dans les sections suivantes, ces résultats ont orienté notre conception du montage de détection des paires de photons corrélés, et surtout la procédure que nous avons mise en place pour optimiser la détection de ces paires de photons.

Pour mémoire, les principales caractéristiques de notre fibre à cœur liquide sont regroupées en Annexe A.2.

3.3 Montage expérimental de détection des paires de photons corrélés

3.3.1 Double spectromètre à deux réseaux

Pour mettre en évidence la génération de paires de photons corrélés dans la fibre à cœur liquide, il est nécessaire de mettre en place un montage permettant de détecter séparément les photons signal et les photons idler sur deux détecteurs de photons uniques différents. Ce montage devra par ailleurs répondre à plusieurs contraintes :

- Problématique n°1 : Filtrer efficacement les photons de pompe ;
- Problématique n°2 : Minimiser les pertes pour les photons signal et idler ;
- Problématique n°3 : Minimiser la détection de photons issus de l'environnement ;
- Problématique n°4 : Assurer la plus grande symétrie possible entre les deux voies de détection (en termes de chemins optiques et de largeur des bandes passantes de détection).

Pour répondre à ces objectifs, et à l'aide de l'expertise d'Isabelle Zaquine du Laboratoire Traitement et Communication de l'Information, nous avons choisi de mettre en place un spectromètre à deux bras tel que représenté sur la figure (3.3.1). Après avoir donné une description détaillée de ce montage, je présenterai quelques résultats expérimentaux qui nous ont permis d'en caractériser les performances.

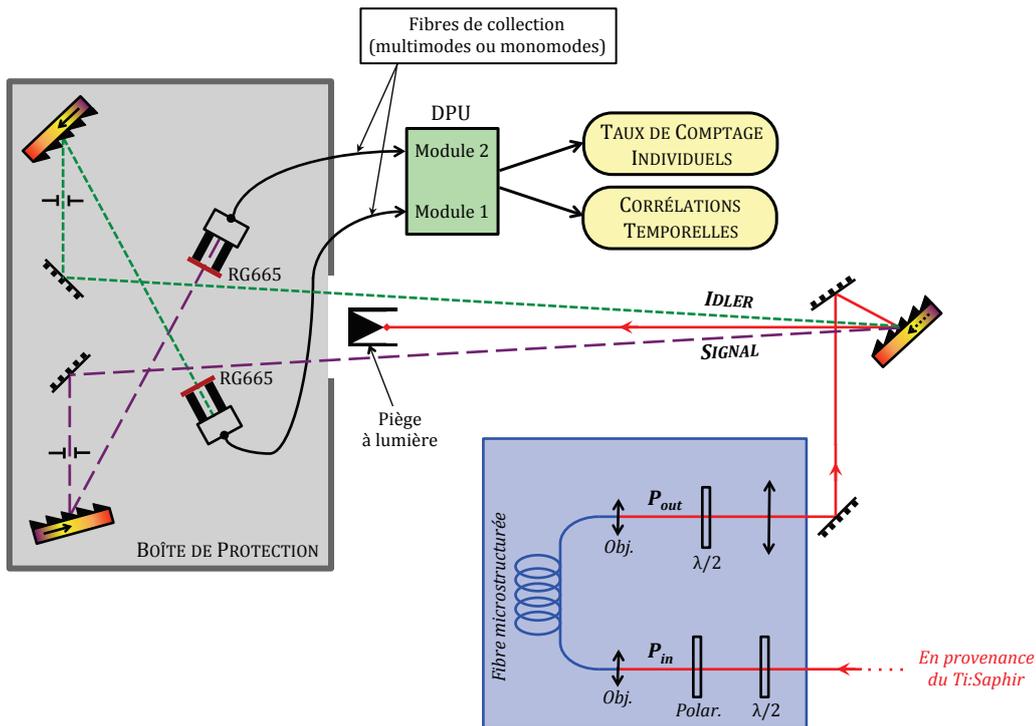


FIG. 3.3.1 – Montage de détection réalisé. Les photons signal et les photons idler sont envoyés vers deux détecteurs de photons uniques (DPU) différents. Les photons de pompe sont majoritairement éliminés dans un piège à lumière. L'ajout des deux réseaux de diffraction secondaires (accompagnés de diaphragmes à iris) permet de minimiser la détection des photons de pompe diffusés sur le premier réseau dans les deux directions d'analyse. Les mesures réalisées par les détecteurs de photons uniques (taux de comptage individuels et histogrammes de corrélations temporelles entre les deux voies) seront décrites en détails dans la sous-section 3.3.2 ci-après.

3.3.1.1 Description du double spectromètre

Problématique n°1 :

La séparation des photons signal et idler est réalisée à l'aide d'un système dispersif. Théoriquement, un réseau de diffraction doit permettre, à condition d'imposer une distance assez grande entre ce réseau et les détecteurs, de séparer efficacement les photons signal des photons idler et, surtout, des photons de pompe. Rappelons qu'une efficacité de filtrage d'au moins 90 dB est requise pour les photons de pompe pour que ceux-ci ne viennent pas polluer la détection des photons corrélés.

Cependant, en pratique, les réseaux de diffraction n'étant jamais de qualité parfaite, une part des photons de pompe est toujours diffusée dans les directions des deux voies de détection. Pour s'affranchir de ces photons de pompe diffusés, il est nécessaire d'ajouter un second réseau de diffraction sur chacune des deux voies, comme représenté sur la figure (3.3.1). C'est la raison pour laquelle nous dénommons notre montage de détection "double spectromètre à deux réseaux". Les réseaux secondaires ont pour rôle d'envoyer les photons de pompe diffusés qui auront suivi la même direction que les photons signal/idler que l'on cherche à détecter dans une direction différente de celle de ces photons signal/idler, de sorte à ce qu'ils n'arrivent pas sur les détecteurs de photons uniques. Juste en amont de chacun de ces réseaux secondaires, un diaphragme à iris, centré sur la voie d'analyse et de diamètre assez grand pour ne pas limiter l'ouverture numérique de détection, permet d'améliorer encore la qualité de suppression des photons de pompe diffusés.

Notons que les photons de pompe "directs", c'est-à-dire ceux qui ont été diffractés dans la direction prévue par la théorie des réseaux, sont éliminés dans un piège à lumière.

Problématique n°2 :

Dans le but de minimiser les pertes aux longueurs d'onde signal et idler, nous avons conçu le montage de sorte à minimiser le nombre de composants optiques mis en jeu. Par ailleurs, l'ensemble des miroirs utilisés sont dorés (de réflectivité supérieure à 90%) ou spécifiquement traités entre 750 nm et 1100 nm (réflectivité de l'ordre de 97% vers 900 nm).

Les trois réseaux de diffraction utilisés (*Thorlabs*, GR25-1208) ont un pas de 1200 traits/mm, et sont blazés dans l'ordre 1 pour une longueur d'onde de 750 nm en configuration Littrow. Leur réflectivité dépend de l'état de polarisation du faisceau incident, et peut atteindre près de 80% au maximum (pour un état de polarisation orthogonal aux traits). En pratique, nous travaillerons avec des longueurs d'onde légèrement supérieures à la longueur d'onde de blaze, et en configuration quasi-Littrow (de sorte que les photons diffractés ne soient pas renvoyés rigoureusement dans leur direction d'incidence, autrement dit vers la fibre à cœur liquide). C'est la raison pour laquelle la réflectivité maximale que nous pourrions obtenir est plutôt de l'ordre de 70% seulement.

Notons que pour maximiser la réflectivité du premier réseau, il est important d'obtenir en sortie de la fibre à cœur liquide un état de polarisation le plus rectiligne possible (ce qui suppose que la direction de polarisation du faisceau injecté soit confondue avec l'un des deux axes neutres moyens de la fibre – voir section 3.1 du présent chapitre), et d'orienter cet état de polarisation orthogonalement à la direction des traits du réseau. Ce réglage est réalisé à l'aide du polariseur rectiligne en entrée de la fibre et de la lame-demi onde (associée éventuellement à un second polariseur rectiligne) en sortie.

Problématique n°3 :

Pour satisfaire la problématique n°3, il n'est pas suffisant de travailler tous éclairages éteints. Comme nous allons le voir dans la section 3.3.2 suivante, les détecteurs de photons uniques que nous utilisons présentent un taux de coups d'obscurité (*dark counts*) de l'ordre de 60 s^{-1} seulement. Pour tirer profit de ce très faible taux de *dark counts*, il est important de réduire le niveau de bruit environnant en-dessous de cette valeur de 60 s^{-1} . Pour cela, il a été nécessaire de protéger le montage de détection à l'aide d'une boîte opaque (représentée par le rectangle grisé sur la figure (3.3.1)), dont la seule ouverture permet de laisser passer les photons diffractés sur le premier réseau.

Par cette ouverture cependant, quelques photons de bruit issus de l'environnement peuvent atteindre les détecteurs de photons uniques. Il s'agit en particulier des photons diffusés sur les composants optiques en amont de la fibre à cœur liquide, dans la portion du montage où le faisceau de pompe est assez puissant (plusieurs dizaines ou centaines de mW de puissance moyenne). Pour minimiser la détection de ces photons de bruit, nous avons d'une part placé la majeure partie du montage amont à l'intérieur d'une seconde boîte de protection, et d'autre part ajouté des tubes opaques au niveau de l'extrémité d'entrée de chacune des deux fibres de collection reliées aux détecteurs de photons uniques.

De plus, deux filtres RG665 permettent de supprimer les photons de longueur d'onde inférieure à 665 nm éventuellement présents dans la salle (en particulier à cause de l'écran du module de contrôle des détecteurs de photons uniques).

Enfin, les deux fibres reliées aux détecteurs de photons uniques, qui ne sont que *partiellement* à l'intérieur de la boîte de protection du montage de détection, sont protégées d'une gaine noire permettant de minimiser la collection de photons environnants *à travers la gaine*. Deux jeux de fibres ont été testés :

- un jeu de fibres multimodes, de diamètre de cœur égal à $50 \mu\text{m}$;
- un jeu de fibres monomodes, de diamètre de cœur égal à $9 \mu\text{m}$.

Les avantages et inconvénients de ces deux jeux de fibres sont différents : le jeu de fibres multimodes permet d'obtenir un fort taux de couplage (près de 90%) vers les détecteurs de photons uniques, tandis que le jeu de fibres monomodes doit permettre d'éliminer plus efficacement les photons de pompe diffusés résiduels (au prix d'une efficacité d'injection plus faible).

Problématique n°4 :

La symétrie du montage, tant du point de vue du chemin optique parcouru par les photons signal et par les photons idler que du point de vue de la largeur des deux bandes passantes de détection, n'est pas exigible en réalité. Il sera cependant plus simple d'analyser les résultats de mesure²¹ et de les comparer aux prévisions données par notre modèle analytique si les chemins optiques sont égaux et les bandes passantes de détection de même largeur.

La configuration de notre montage de détection (et en particulier l'orientation des réseaux secondaires) permet de satisfaire ces deux critères (au moins en première approximation).

21. (c'est-à-dire les taux de comptage individuels sur les deux voies, et le tracé des histogrammes de corrélation temporelle entre les deux voies)

3.3.1.2 Caractérisation des performances du double spectromètre

La plupart des caractérisations présentées ci-après ont été réalisées en remplaçant la fibre à cœur liquide par une fibre de référence (HC-800-01 de chez *NKT Photonics*) dans laquelle ni le mélange à quatre ondes ni la diffusion Raman ne sont censés survenir. Il s'agit d'une fibre microstructurée à cœur creux, dont la bande de transmission s'étend typiquement de 780 nm à 880 nm (les principales caractéristiques de cette fibre sont présentées en Annexe A.3). Seule l'évaluation de la largeur des bandes passantes de détection a été réalisée avec une autre fibre microstructurée : il s'agit de la fibre à cœur de silice RTI-1605-UV dont j'ai parlé à plusieurs reprises (voir Annexe A.1), et dont la bande de transmission coïncide approximativement avec celle de la fibre à cœur creux HC-800-01 (ce qui permet de travailler sur la même gamme de longueurs d'onde dans ces deux fibres).

Nous avons dans un premier temps utilisé le jeu de fibres multimodes pour injecter les photons signal et idler vers les détecteurs de photons uniques. Les changements apportés lorsqu'on remplace les fibres multimodes par les fibres monomodes sont évoqués à la fin de cette partie 3.3.1.2.

Sensibilité aux photons de l'environnement

Pour évaluer la sensibilité du montage aux photons de l'environnement (y compris les photons diffusés sur les composants optiques de la partie du montage non protégée par la boîte opaque en amont de la fibre microstructurée), nous coupons le faisceau de pompe délivré par le laser Ti:Saphir en plaçant un piège à lumière *juste en entrée de la fibre microstructurée*. Dans ces conditions, les deux détecteurs de photons uniques affichent un taux de comptage égal au taux de *dark counts* (environ 60 s^{-1}). **Le niveau de détection des photons de l'environnement est donc négligeable.** Ce résultat est indépendant de la valeur de la longueur d'onde du faisceau délivré par le laser Ti:Saphir.

Largeur des bandes passantes de détection

Le réglage des longueurs d'onde centrales des bandes passantes de détection (λ_{s_0} et λ_{i_0}) peut être réalisé grâce à l'accordabilité du laser Ti:Saphir. On règle la longueur d'onde du faisceau émis par le Ti:Saphir à la valeur λ_{s_0} (respectivement λ_{i_0}) souhaitée, et on l'injecte dans la fibre microstructurée. En sortie de la fibre, le faisceau doit suivre la voie d'analyse signal (respectivement idler). Son injection dans la fibre multimode à l'extrémité de la voie d'analyse est optimisée à l'analyseur de spectre optique.

Pour mesurer la largeur de la bande passante de détection signal (respectivement idler), la procédure utilisée est la suivante :

- Le faisceau délivré par le laser Ti:Saphir est toujours réglé à λ_{s_0} (respectivement λ_{i_0}), et avec une durée d'impulsion T_0 de l'ordre de la picoseconde, de sorte que nous avons un spectre *en entrée de la fibre microstructurée* de largeur à mi-hauteur de l'ordre de 0,5 nm. En réglant la puissance injectée dans la fibre à une valeur assez élevée, nous pouvons élargir le spectre sur une plage de plusieurs nanomètres grâce au processus d'automodulation de phase²². Ce spectre élargi obtenu en sortie de la fibre microstructurée est mesuré à l'aide d'un analyseur de spectre optique.

22. C'est la raison pour laquelle nous utilisons dans cette étape de caractérisation la fibre à cœur de silice, et non pas la fibre à cœur creux (dans laquelle le processus d'automodulation de phase n'aurait pas lieu).

- Le faisceau se propage ensuite dans la voie d’analyse, et l’on mesure le spectre obtenu en sortie de cette voie (c’est-à-dire en sortie de la fibre multimode) à l’analyseur de spectre optique.
- Le rapport de ces deux spectres nous donne une bonne estimation de la bande passante de détection. En ajustant sur les points expérimentaux correspondant à ce rapport une fonction gaussienne, nous pouvons vérifier la valeur de λ_{s_0} (respectivement λ_{i_0}) et évaluer la largeur $\Delta\lambda_s$ (respectivement $\Delta\lambda_i$) de la bande passante de détection.

Les résultats de la figure (3.3.2) ont été obtenus après avoir réglé les voies d’analyse à 804,6 nm (voie idler) et 865,7 nm (voie signal)²³. L’ajustement gaussien sur le rapport des spectres mesurés en sortie de la fibre microstructurée et en sortie de la fibre multimode conduit à une largeur de bande passante de détection $\Delta\lambda_i = 0,5$ nm sur la voie idler et $\Delta\lambda_s = 0,7$ nm sur la voie signal. Compte tenu des fluctuations du laser Ti:Saphir entre la mesure de chacun des deux spectres dont on fait le rapport, l’incertitude sur $\Delta\lambda_s$ et $\Delta\lambda_i$ est assez forte (de l’ordre de 0,2 nm). Cette mesure est cependant suffisante pour avoir une première estimation de la largeur des bandes passantes (et pour vérifier que $\Delta\lambda_s$ et $\Delta\lambda_i$ sont bien du même ordre de grandeur, comme nous le souhaitions).

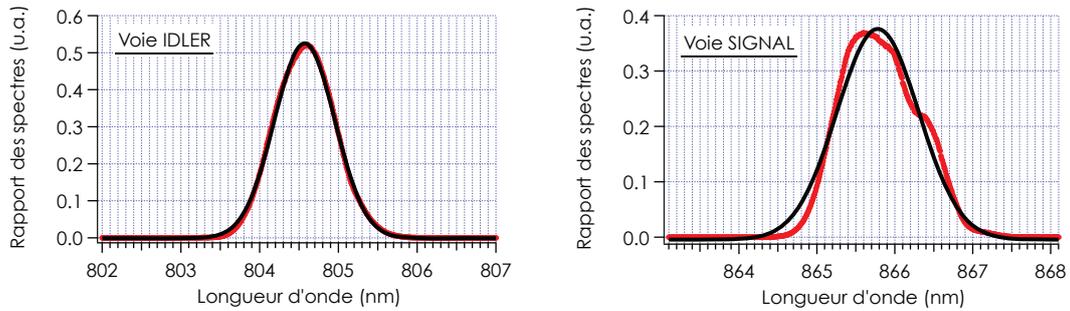


FIG. 3.3.2 – Rapport des spectres mesurés en sortie de la fibre microstructurée et en sortie de la fibre multimode sur chacune des deux voies (points rouges). En noir, nous avons tracé l’ajustement gaussien sur ces points expérimentaux. La largeur à $1/e$ de la fonction gaussienne est égale à 0,5 nm sur la voie idler et 0,7 nm sur la voie signal. Nous vérifions par ailleurs que le maximum de la gaussienne est situé à 804,6 nm sur la voie idler et à 865,7 nm sur la voie signal.

Filtrage des photons de pompe

Les deux voies d’analyse sont réglées à 804,6 nm et 865,7 nm. Pour de telles longueurs d’onde signal et idler, la longueur d’onde de pompe nécessaire pour respecter la condition de conservation de l’énergie dans un processus de mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence est égale à 834,0 nm. Nous réglons donc le laser Ti:Saphir à cette longueur d’onde. Les impulsions ont une durée T_0 de l’ordre de 1 ps, et le spectre de pompe a une largeur à mi-hauteur de l’ordre de 0,5 nm (voir figure (3.3.3)). Nous avons donc un écart spectral de l’ordre de 30 nm (soit environ 60 fois plus que la largeur du spectre de pompe) entre les photons de pompe et la longueur d’onde centrale des deux voies d’analyse (λ_{s_0} et λ_{i_0}). En terme de fréquences, cela correspond à un écart de $\pm 83.10^{12}$ rad/s.

Nous utilisons dans cette partie la fibre à cœur creux HC-800-01. Ainsi, même pour des puissances de pompe assez élevées (typiquement, $P_{\text{out}} \sim 2$ mW de puissance moyenne en sortie

23. Ce choix de longueurs d’onde est justifié plus loin (voir sous-section 3.4.2).

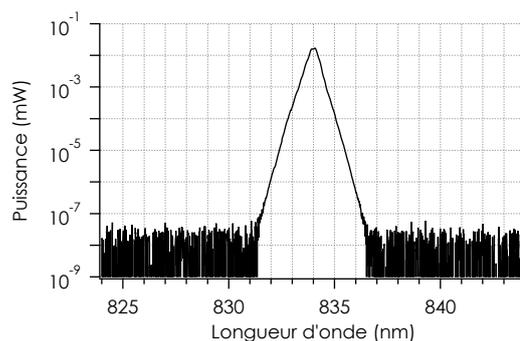


FIG. 3.3.3 – Allure typique du spectre de pompe, lorsque $T_0 \sim 1$ ps.

de la fibre microstructurée), le spectre de pompe n'est pas élargi : l'automodulation de phase est complètement négligeable dans le cœur creux, car l'indice de réfraction non linéaire de l'air est quasi-nul. Pour la même raison, le mélange à quatre ondes ne peut avoir lieu. La diffusion Raman dans l'air est elle aussi négligeable²⁴.

Une puissance moyenne en sortie de la fibre microstructurée $P_{\text{out}} = 2$ mW correspond, pour un taux de répétition $\Gamma = 80$ MHz, à un nombre de photons de pompe par impulsion donné par :

$$N_{\text{imp}} = \frac{P_{\text{out}}}{\frac{hc}{\lambda_{p0}} \Gamma} \sim 10^8 \text{ photons/imp.} \quad (3.3.1)$$

c'est-à-dire à un nombre de photons de pompe par seconde :

$$N = N_{\text{imp}} \Gamma \sim 8.10^{15} \text{ photons/s} \quad (3.3.2)$$

Étant donné le fort écart spectral entre les photons de pompe et les bandes passantes de détection des deux voies d'analyse (environ 30 nm dans la configuration choisie), la majeure partie de ces 8.10^{15} photons de pompe par seconde est éliminée dans le piège à lumière positionné entre les deux voies d'analyse (voir figure (3.3.1)). Il reste cependant les photons de pompe diffusés dans les deux directions d'analyse (à cause des imperfections du premier réseau de diffraction du montage). Le diaphragme à iris et le réseau secondaire de chaque voie doivent permettre de minimiser la détection de ces photons de pompe diffusés.

Les deux détecteurs de photons uniques affichent des taux de comptage $\mathcal{C}_1 = 18\,000 \text{ s}^{-1}$ (voie idler, basse longueur d'onde) et $\mathcal{C}_2 = 34\,000 \text{ s}^{-1}$ (voie signal, haute longueur d'onde) respectivement lorsque $P_{\text{out}} = 2$ mW (c'est-à-dire $N = 8.10^{15} \text{ s}^{-1}$). Ainsi, si tous les coups détectés sont dus à des photons de pompe diffusés, cela signifie que l'efficacité de filtrage est de l'ordre de 115 dB.

Cependant, d'autres sources de bruit peuvent aussi être responsables de ces taux de comptage de $18\,000 \text{ s}^{-1}$ et $34\,000 \text{ s}^{-1}$. En particulier, bien que le faisceau délivré par le Ti:Saphir passe, en amont de la fibre microstructurée, par un étage de filtrage ayant pour rôle de supprimer le fond de fluorescence (temporellement continu) émis par le laser²⁵, l'efficacité de ce

24. Notons cependant qu'il n'est pas complètement inenvisageable que quelques photons Raman soient produits dans la structure en silice qui entoure le cœur creux, si le mode fondamental transverse n'est pas extrêmement bien confiné dans le cœur...

25. Voir Annexe C.1 pour une description plus précise de la fluorescence du Ti:Saphir.

filtrage est limitée, là encore, par les imperfections du réseau de diffraction utilisé (réseau *Edmund Optics* doré, 300 traits/mm, blazé dans l'ordre 1 pour 1000 nm). Ainsi, même pour des écarts spectraux assez forts (de plusieurs dizaines de nanomètres) par rapport aux photons de pompe, la fluorescence ne peut être filtrée avec une efficacité supérieure à 50 dB typiquement.

Parmi les 18 000 et 34 000 photons par seconde détectés, nous souhaitons identifier les photons de pompe diffusés (à λ_{p_0}) et les photons de fluorescence résiduelle (à λ_{s_0} et λ_{i_0}). Les photons de fluorescence se propagent dans le mode transverse fondamental de la fibre microstructurée, et leur injection est donc optimisée dans les fibres multimodes. En revanche, la diffusion des photons de pompe sur les différents composants optiques du montage se fait de manière quasi-isotrope. Ainsi, si l'injection dans les fibres multimodes est dérégulée *verticalement*, le niveau de photons diffusés détectés ne doit pas changer tandis que le niveau de photons de fluorescence doit décroître (en suivant le profil gaussien du mode fondamental).

Cette mesure a été réalisée en jouant, pour chacune des deux voies, sur l'inclinaison verticale du réseau secondaire (voir figure (3.3.1)). Lorsque l'inclinaison est modifiée sur la voie idler, le taux de comptage de la voie signal (\mathcal{C}_2) doit rester inchangé tandis que celui de la voie idler (\mathcal{C}_1) doit suivre une évolution gaussienne (figure (3.3.4)-a), et vice versa (figure (3.3.4)-b). En pratique, nous constatons que ce comportement est globalement bien respecté, bien que quelques défauts (dus à l'instabilité du montage²⁶) apparaissent :

1. Tout d'abord, le niveau maximal atteint par \mathcal{C}_1 sur la figure (3.3.4)-a est plus faible que les $18\,000\text{ s}^{-1}$ attendus : sans doute que l'injection dans la fibre multimode en sortie de la voie idler n'était plus optimale lors de la mesure (voir note de bas de page 26) ;
2. Ensuite, un saut est observé dans la valeur de \mathcal{C}_1 lors du déréglage vertical de la voie signal (voir figure (3.3.4)-b), alors que \mathcal{C}_1 ne devrait pas être modifié lors de ce déréglage : là encore, l'instabilité du support de la fibre sur la voie idler est sans doute à mettre en cause (voir note de bas de page 26).

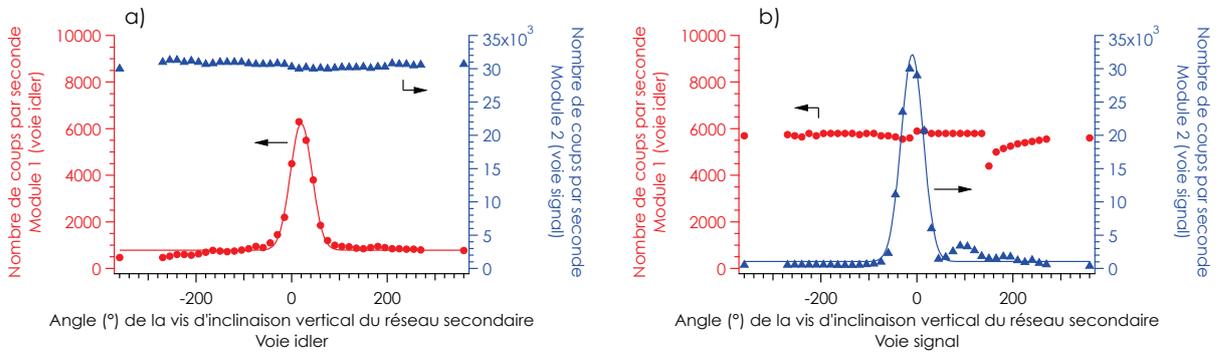


FIG. 3.3.4 – Évolution des taux de comptage \mathcal{C}_1 (voie idler) et \mathcal{C}_2 (voie signal) lorsqu'on dérégule verticalement l'injection dans la fibre multimode de la voie idler (a) ou de la voie signal (b). Globalement, le taux de comptage sur la voie dérégulée suit une évolution gaussienne reproduisant le profil du mode transverse fondamental dans lequel se propagent les photons de fluorescence résiduelle, tandis que le taux de comptage sur l'autre voie reste inchangé (aux défauts de stabilité près). Un ajustement gaussien permet d'évaluer le niveau de base, correspondant au niveau de photons diffusés (quasi-isotropes) collectés. Dans les deux cas, nous obtenons un niveau de base de l'ordre de 1000 s^{-1} .

26. Cette instabilité venait principalement des supports sur lesquels étaient fixées les fibres multimodes à l'époque de ces mesures. Depuis, ces instabilités ont été corrigées, et les taux de comptage fluctuent beaucoup moins : le réglage des deux voies d'analyse reste stable pendant plusieurs jours typiquement, si les variations de température de la salle ne sont pas trop importantes (supérieures à quelques °C).

Quoi qu'il en soit, l'ajustement gaussien indique que le niveau de base (correspondant au niveau de photons de pompe diffusés détectés) est de l'ordre de 1000 s^{-1} seulement. Rappelons que ces mesures ont été réalisées avec $P_{\text{out}} = 2 \text{ mW}$, c'est-à-dire $N \sim 8.10^{15}$ photons de pompe par seconde. **L'efficacité de filtrage des photons de pompe atteint donc près de 130 dB.**

Les photons de fluorescence résiduelle semblent plus limitants que les photons de pompe diffusés. Notons cependant que nous travaillerons à terme (pour la génération de paires de photons corrélés dans la fibre à cœur liquide) à des longueurs d'onde un peu plus élevées (vers 900 nm), pour lesquelles la fluorescence du Ti:Saphir est plus faible (d'un facteur 10 typiquement). Quoi qu'il en soit, s'il s'avère que les photons de fluorescence résiduelle sont gênants pour l'observation des paires, il pourra être envisagé d'améliorer les performances de l'étage de filtrage de la fluorescence en amont de la fibre microstructurée.

Remarquons que l'efficacité de filtrage des photons de pompe de 130 dB a été obtenue pour un écart spectral entre les photons de pompe et les longueurs d'onde d'analyse λ_{s_0} et λ_{i_0} de l'ordre de 30 nm. La même étude a été réalisée pour un écart spectral plus faible, de 7,5 nm seulement, conduisant à une efficacité de filtrage de l'ordre de 85 dB seulement. **Pour que la détection des paires signal/idler ne soit pas polluée par les photons de pompe, un écart spectral d'au moins 20 nm est souhaitable entre les photons de pompe et les photons corrélés générés.**

Estimation des pertes

L'efficacité de transmission des photons à λ_{s_0} et λ_{i_0} dans les deux voies d'analyse respectivement est de l'ordre de 30%. Cela prend en compte la transmission de la lentille d'imagerie qui permet de collimater le faisceau (voir figure (3.3.1)), la réflectivité des différents miroirs, la réflectivité des réseaux dans leur ordre de diffraction utile, la transmission des filtres RG665 aux longueurs d'onde λ_{s_0} et λ_{i_0} respectivement, et l'efficacité de couplage dans les fibres multimodes (de l'ordre de 80% à 90% typiquement). Il faut ajouter à cette efficacité de transmission l'efficacité des détecteurs de photons uniques (modules SPCM-AQRH-14 de chez *Excelitas Technologies*, avec photodiode à avalanche en silicium). La documentation indique une efficacité de détection globale (prenant en compte l'efficacité de la photodiode à avalanche et l'efficacité de l'adaptateur de couplage) de l'ordre de 30 à 40% vers 900 nm. Au final, **l'efficacité de détection de notre montage global est de l'ordre de 10%.**

Passage au jeu de fibres monomodes

En remplaçant le jeu de fibres multimodes (de diamètre de cœur égal à $50 \mu\text{m}$) par le jeu de fibres monomodes (de diamètre de cœur égal à $9 \mu\text{m}$), nous constatons que :

- L'efficacité de détection de notre montage global diminue, à cause de la diminution du taux de couplage dans les fibres monomodes (de l'ordre de 20% à 25% seulement) par rapport au cas des fibres multimodes : nous obtenons une efficacité de détection globale de 2% à 3% seulement. Pour la même raison, le niveau de photons de fluorescence résiduelle diminue d'un facteur de l'ordre de 4.
- L'avantage principal est que la collection des photons de pompe diffusés (quasi-isotrope) doit diminuer en proportion du rapport des aires de cœur des fibres multimodes et monomodes, c'est-à-dire d'un facteur de l'ordre de 25. Et en effet, nous constatons que le

niveau de photons de pompe diffusés est devenu inférieur au niveau de *dark counts* des détecteurs.

- Enfin, les bandes passantes de détection (et en particulier leur largeur) semblent légèrement réduites : nous obtenons $\Delta\lambda_s \sim \Delta\lambda_i \sim 0,3$ nm à 0,5 nm typiquement.

3.3.2 Système de comptage et de mesure des corrélations temporelles

Maintenant que les performances de notre montage de détection ont été caractérisées, intéressons-nous aux détecteurs de photons uniques et aux types de mesures qu'ils nous permettent de réaliser.

3.3.2.1 Détecteurs de photons uniques

Comme je l'ai évoqué plus haut, nous utilisons deux détecteurs de photons uniques identiques (modules SPCM-AQRH-14 de chez *Excelitas Technologies*, avec photodiode à avalanche en silicium), dont les caractéristiques principales (fournies par le constructeur) sont regroupées dans le tableau 3.1 ci-après.

TABLE 3.1 – Caractéristiques des détecteurs SPCM-AQRH-14.

Plage spectrale de détection	[400; 1060] nm
Efficacité de détection à 900 nm	~ 30 à 40%
Niveau de <i>dark counts</i>	< 100 s ⁻¹ (~ 60 à 70 s ⁻¹)
<i>Dead time</i>	~ 20 ns
Plage de réponse linéaire	$\sim [0; 10^6]$ s ⁻¹
Taux de comptage maximal mesurable	$\sim 40 \cdot 10^6$ s ⁻¹

Précisons que le *dead time* correspond à la durée “aveugle” qui suit toute détection²⁷ : tout photon arrivant moins de 20 ns après une détection préalable *ne sera pas détecté*. Cela signifie en particulier que deux paires de photons corrélés générées par deux impulsions de pompe successives (séparées de 12,5 ns²⁸) ne peuvent pas être détectées toutes les deux. Cependant, puisque nous travaillons à des niveaux d'efficacité non linéaire très faibles (pour éviter la génération de paires multiples par une même impulsion de pompe), la probabilité de génération de deux paires par deux impulsions successives est extrêmement faible, et le *dead time* des détecteurs ne devrait donc pas être limitant.

Notons que la réponse des détecteurs est linéaire tant que le taux de comptage reste inférieur à 10^6 coups par seconde typiquement²⁹.

Ces deux détecteurs sont incorporés dans un instrument commercialisé par *Aurea Technology* et associés à un dispositif électronique (*Time-to-Digital Converter* – TDC) permettant de mesurer les corrélations temporelles entre les deux détecteurs. Les résultats de mesure sont obtenus par l'intermédiaire d'un logiciel d'acquisition, et sont de deux sortes :

- **Mesure des taux de comptage individuels sur chacun des deux détecteurs** (voir partie 3.3.2.2) ;
- **Mesure des corrélations temporelles entre les deux détecteurs** (voir partie 3.3.2.3).

27. Remarquons que le terme de “détection” peut désigner la détection d'un photon (utile ou de bruit) ou un coup d'obscurité (*dark count*).

28. Rappelons que le taux de répétition du laser Ti:Saphir est de 80 MHz.

29. Pour les taux de comptage plus élevés, une courbe de correction est fournie par le constructeur.

Deux modes d’acquisition peuvent être utilisés, dénommés “Mode de détection continue” et “Mode de détection déclenchée”. En mode de détection continue, comme son nom l’indique, toutes les détections sont prises en compte (sauf celles qui se produisent dans les périodes de *dead time*). En mode de détection déclenchée en revanche, il est possible de choisir à quels instants les détections doivent être effectivement prises en compte : un signal d’horloge périodique est utilisé pour déclencher l’ouverture d’une *fenêtre de mesure* pendant laquelle les détecteurs sont actifs. La largeur de ces fenêtres est elle aussi ajustable. En réglant le signal d’horloge de sorte à ce qu’il soit synchronisé sur les impulsions de pompe émises par le laser Ti:Saphir, il est donc possible de s’affranchir des détections de bruit qui ne sont pas synchrones avec les impulsions de pompe (c’est le cas de la plupart des détections dues aux photons de l’environnement, aux photons de fluorescence résiduelle, et aux *dark counts* des détecteurs).

Le mode de détection continue est cependant plus simple de mise en œuvre, et nous avons dans un premier temps choisi de nous limiter à ce mode de détection. Nous verrons par ailleurs que la proportion de photons non synchrones avec les impulsions de pompe restera relativement faible au cours de nos mesures³⁰.

3.3.2.2 Comptage des photons

Dans le cadre de notre étude, les coups (ou clics) enregistrés par les détecteurs de photons uniques peuvent être classés en 6 catégories, se différenciant les unes des autres au moyen de 3 critères principaux :

- le **synchronisme** des clics avec les impulsions de pompe ;
→ Nous noterons $[S]$ les clics synchrones avec les impulsions de pompe, et $[\overline{S}]$ les clics non synchrones.
- lorsque les clics proviennent de photons collectés sur les détecteurs (ce qui est toujours le cas sauf pour les clics de *dark counts*), leur relative **isotropie** en entrée de la fibre de collection (multimode ou monomode) ;
→ Nous noterons $[M]$ les photons spatialement restreints au mode fondamental de la fibre microstructurée, et $[\overline{M}]$ les photons isotropes en entrée de la fibre de collection.
- la **dépendance** du nombre de clics avec la **puissance de pompe moyenne** injectée dans la fibre microstructurée (P_{out}).
→ Nous noterons $[\overline{P}]$ les clics dont le nombre est indépendant de P_{out} , $[P]$ ceux dont le nombre évolue linéairement avec P_{out} , et $[P^2]$ ceux dont l’évolution est quadratique avec P_{out} .

Ainsi, nous distinguons :

1. les *dark counts* : $[\overline{S}]$, $[\overline{M}]$ ³¹, $[\overline{P}]$

30. Notons également que la plupart des résultats de mesure (de taux de comptage et de corrélations temporelles) présentés dans ce chapitre ont été obtenus avec une version du logiciel qui présentait un certain nombre de défauts de fonctionnement, et que l’utilisation du mode de détection déclenchée n’était alors pas envisageable. Après de nombreuses interactions avec le personnel d’*Aurea Technology*, et plusieurs nouvelles versions du logiciel, la plupart des *bugs* techniques qui nous gênaient ont pu être résolus, et quelques fonctionnalités ont également été adaptées à nos conditions d’utilisation (nous utilisons en particulier des taux de comptage très faibles). Aujourd’hui, des acquisitions à long terme (plusieurs heures) peuvent être réalisées, des mesures de corrélations temporelles peuvent être effectuées même avec de très faibles taux de comptage, et l’utilisation du mode de détection déclenchée peut être envisagée.

31. Parler d’“isotropie” pour les *dark counts* n’a pas beaucoup de sens. Ce que nous prenons en compte ici est

2. les photons de l'environnement (écrans, voyants lumineux des appareils de mesure, photons de pompe diffusés sur les différents éléments optiques du montage en amont de la fibre microstructurée...) : $[\overline{S}]$, $[\overline{M}]$, $[\overline{P}]$
3. les photons de pompe diffusés sur le premier réseau du montage de détection dans les directions des voies d'analyse (et que les diaphragmes à iris et les seconds réseaux n'ont pas permis d'éliminer) : $[S]$, $[\overline{M}]$, $[P]$
4. les photons de fluorescence résiduelle : $[\overline{S}]$, $[M]$, $[P]$
5. les photons Raman : $[S]$, $[M]$, $[P]$
6. les photons paramétriques : $[S]$, $[M]$, $[P^2]$

Notons que les clics de bruit de type 2 ont été réduits à un niveau inférieur au niveau de *dark counts* grâce à l'ajout des boîtes de protection sur le montage.

De manière générale, le taux de comptage sur les voies signal et idler (en mode de détection continue) est donc de la forme :

$$\boxed{\begin{aligned} \mathcal{C}_1 &= a_1 + b_1 P_{\text{out}} + \Gamma \eta_1 \int_{\omega_{i_0} - \frac{\Delta\omega_i}{2}}^{\omega_{i_0} + \frac{\Delta\omega_i}{2}} DSP_{\text{photon}}(\omega) d\omega \quad \left(= a_1 + b_1 P_{\text{out}} + c_1 P_{\text{out}}^2 \right) \\ \mathcal{C}_2 &= a_2 + b_2 P_{\text{out}} + \Gamma \eta_2 \int_{\omega_{s_0} - \frac{\Delta\omega_s}{2}}^{\omega_{s_0} + \frac{\Delta\omega_s}{2}} DSP_{\text{photon}}(\omega) d\omega \quad \left(= a_2 + b_2 P_{\text{out}} + c_2 P_{\text{out}}^2 \right) \end{aligned}} \quad (3.3.3)$$

où Γ est le taux de répétition du laser Ti:Saphir, et η_m est l'efficacité de détection globale sur la voie m . $DSP_{\text{photon}}(\omega)$ étant proportionnel à P_{out}^2 , nous obtenons **un polynôme d'ordre 2 en P_{out} , dont le terme quadratique est exclusivement lié aux photons paramétriques générés par mélange à quatre ondes dans la fibre microstructurée.**

Ainsi, dans la fibre à cœur creux HC-800-01, puisque le processus de mélange à quatre ondes ne peut avoir lieu, nous nous attendons à obtenir des taux de comptage augmentant linéairement avec P_{out} , essentiellement sous l'effet des photons de fluorescence résiduelle³². C'est effectivement le comportement que nous observons expérimentalement, comme le met en évidence la figure (3.3.5).

Lorsque des photons paramétriques sont générés, en revanche, les taux de comptage doivent croître comme P_{out}^2 .

simplement le fait que leur nombre ne dépend pas du réglage d'injection dans les fibres de collection reliées aux modules de détection.

32. Remarquons une nouvelle fois que le processus de diffusion Raman spontanée peut éventuellement avoir lieu dans la structure en silice de la fibre, avec un taux de couplage non nul au mode transverse fondamental. Ces photons Raman peuvent contribuer (bien qu'en proportion sans doute très faible) à la croissance linéaire du taux de comptage avec P_{out} . Ils pourraient éventuellement être différenciés des photons de fluorescence résiduelle en mode de détection déclenchée grâce au fait que, contrairement à ces derniers, ils sont synchrones avec les impulsions de pompe.

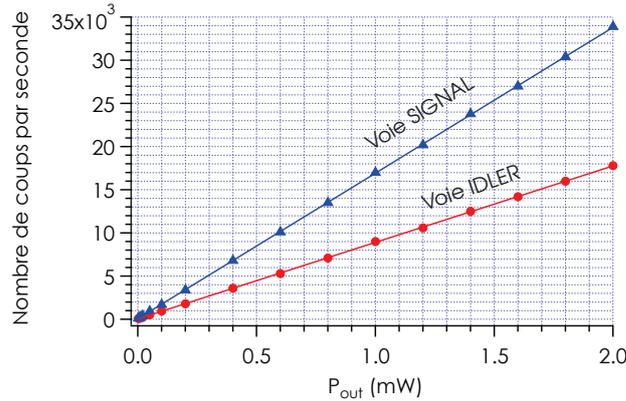


FIG. 3.3.5 – Évolution du taux de comptage sur chacun des deux détecteurs en fonction de la puissance de pompe P_{out} injectée sur le mode fondamental de la fibre à cœur creux HC-800-01. Ces résultats ont été obtenus avec des impulsions de pompe à 834,0 nm, de durée $T_0 = 0,8$ ps, les voies d'analyse réglées à 804,6 nm et 865,7 nm, et avec les fibres de collection multimodes. En ajustant sur les points expérimentaux une fonction polynomiale d'ordre 1 en P_{out} , nous obtenons une ordonnée à l'origine (a_1 et a_2 dans les équations (3.3.3)) de l'ordre de 50 s^{-1} sur les deux voies, ce qui correspond au niveau de dark counts, comme attendu. Le fait que la pente soit plus forte (d'un facteur de l'ordre de 2) sur la voie signal peut avoir des origines diverses : légère dissymétrie des voies en termes de largeur des bandes passantes de détection, de pertes, de niveau de fluorescence résiduelle, etc. Le niveau de photons Raman générés dans la structure en silice, s'il n'est pas négligeable, peut aussi expliquer cet écart : dans la configuration de longueurs d'onde (λ_{p0} ; λ_{s0} ; λ_{i0}) choisie, le taux de diffusion Raman spontanée doit être environ 5 fois plus fort sur la voie signal que sur la voie idler.

3.3.2.3 Mesure des corrélations temporelles

Principe d'une mesure de type TCSPC

Le dispositif électronique (*Time-to-Digital Converter* – TDC) placé en sortie des deux détecteurs de photons uniques permet de mesurer les corrélations temporelles de détection entre les deux voies, par une technique usuellement désignée sous le sigle TCSPC (pour *Time-Correlated Single-Photon Counting*). Cette technique consiste à enregistrer, sur un très grand nombre de coups, l'instant de détection d'un photon (ou d'un *dark count*) sur un détecteur donné, par rapport au front montant (ou éventuellement au front descendant) d'un signal d'excitation. Ce signal d'excitation peut être périodique ou non. Dans notre cas, il s'agira d'un signal d'horloge (donc périodique) interne au dispositif, de fréquence f_{CLK} . Usuellement dans ce genre de mesure, la durée mesurée entre le signal d'excitation et la détection est appelée *start-stop-time*.

Le temps de réponse du TDC, noté $\Delta T_{TDC,min}$ est égal à 6 ns : les détections arrivant moins de 6 ns après le front montant de notre signal d'horloge ne seront pas prises en compte (zones grisées sur la figure (3.3.6)). De plus, les limites de capacité du TDC sont telles que toute détection arrivant plus de 500 ns après le front montant d'horloge *le plus récent* seront elles aussi perdues. Cette limite haute est notée $\Delta T_{TDC,max}$. Remarquons cependant (cela se visualise aisément sur la figure (3.3.6)) que pour ne pas être limité par $\Delta T_{TDC,max}$ il suffit d'imposer une fréquence d'horloge f_{CLK} telle que $1/f_{CLK} < \Delta T_{TDC,max}$ (autrement dit, dans notre cas, $f_{CLK} > 2$ MHz). Les *start-stop-times* mesurés seront dans ce cas compris entre $\Delta T_{TDC,min}$ et $1/f_{CLK}$.

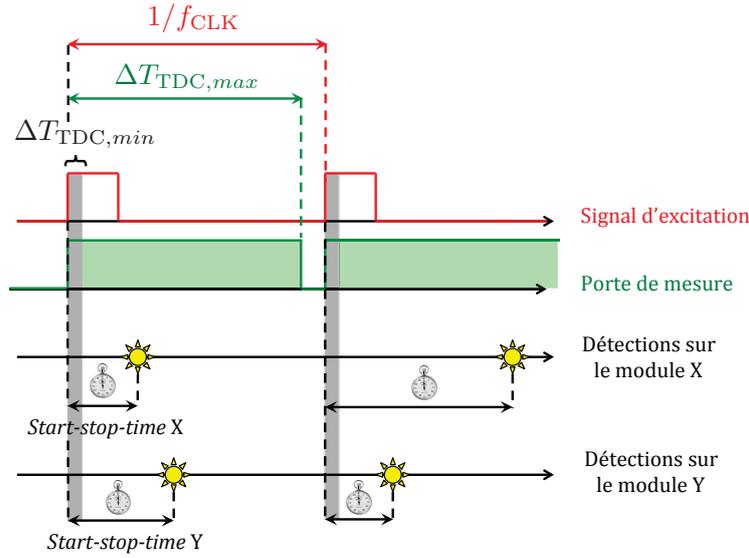


FIG. 3.3.6 – Principe d'une mesure de type TCSPC.

Construction de l'histogramme des corrélations temporelles entre les deux voies

Puisque nous cherchons à comparer les temps d'arrivée des photons sur les deux détecteurs, il faut mesurer l'écart temporel entre les *start-stop-times* enregistrés sur les deux voies. L'histogramme des corrélations temporelles permet de visualiser la statistique de ces écarts, et de mettre en évidence, le cas échéant, une probabilité plus forte de détections *en coïncidence* sur les deux détecteurs, signature de la présence de photons corrélés dans les deux voies d'analyse.

Pour qu'un point de mesure soit reporté dans l'histogramme, il faut :

1. qu'un *start-stop-time* soit enregistré par le TDC pour l'un des deux détecteurs (noté A). Cette valeur est notée t_A ;
2. puis qu'un *start-stop-time* soit enregistré par le TDC pour l'autre détecteur (noté B). Cette valeur est notée t_B ;
3. et enfin, que l'écart temporel t'_B entre la détection sur le détecteur B et le front montant d'horloge précédant la détection sur le détecteur A soit inférieur à $\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} = 500$ ns. Dans le cas contraire, les limites de capacité du TDC ne lui permettent pas d'enregistrer la valeur t'_B .

Alors, un point de mesure est reporté dans l'histogramme à l'abscisse $t'_B - t_A$.

Remarquons que t_A est compris entre $\Delta T_{\text{TDC},\text{min}}$ et $1/f_{\text{CLK}}$ et que t'_B est compris entre $\Delta T_{\text{TDC},\text{min}}$ et $\Delta T_{\text{TDC},\text{max}}$. Ainsi $t'_B - t_A$ sera compris entre 0 et $\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}}$.

Or, nous avons appelé A le détecteur sur lequel survient la première détection et B celui sur lequel survient la seconde. En pratique, la première détection peut survenir sur le détecteur de la voie 1 ($A = 1$ et $B = 2$) ou sur le détecteur de la voie 2 ($A = 2$ et $B = 1$). Si l'on trace l'histogramme comparant les instants d'arrivée des photons sur le détecteur 2 par rapport aux instants d'arrivée des photons sur la voie 1 (c'est-à-dire si l'on mesure $t'_2 - t_1$), le cas $A = 1$ et $B = 2$ donnera un point d'histogramme à une abscisse positive, tandis que le cas $A = 2$ et

$B = 1$ donnera un point à une abscisse négative. Ainsi, l'histogramme s'étendra typiquement entre $-(\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}})$ et $+(\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}})$.

Histogramme typique dans le cas d'un faisceau de pompe **continu**

Lorsque le faisceau de pompe est continu, les instants d'arrivées des photons sur les deux détecteurs sont équiprobables, et l'histogramme des corrélations temporelles entre les deux voies prend l'allure générale présentée sur la figure (3.3.7).

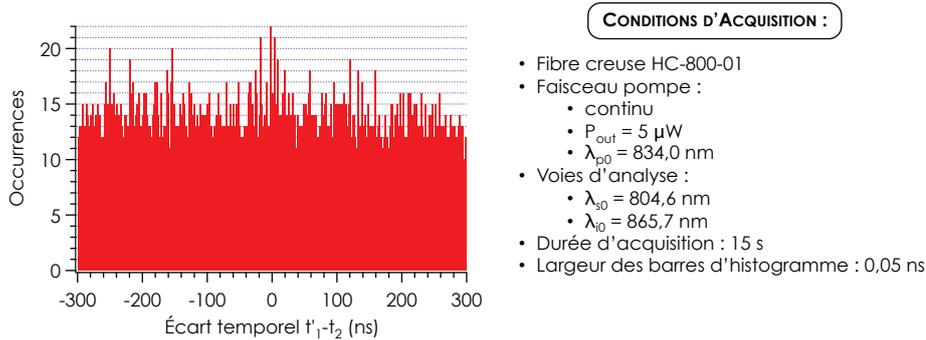


FIG. 3.3.7 – Histogramme typique dans le cas d'un faisceau de pompe continu.

Si des paires de photons corrélés sont présentes dans les deux voies d'analyse, un pic situé autour de l'écart temporel nul (appelé *pic de coïncidences*) doit apparaître. Cela suppose cependant que l'efficacité non linéaire soit assez forte et les pertes sur les deux voies assez faibles pour que ce pic de coïncidences sorte du niveau de base. L'histogramme de la figure (3.3.7) ci-dessus correspond à la fibre microstructurée à cœur creux HC-800-01, dans laquelle le processus de mélange à quatre ondes n'a pas lieu, et aucun pic de coïncidences n'est donc attendu.

Histogramme typique dans le cas d'un faisceau de pompe **impulsionnel**

Lorsque le faisceau de pompe est impulsionnel (avec un taux de répétition Γ), l'histogramme des corrélations temporelles entre les deux voies prend l'allure générale présentée sur la figure (3.3.8). Un niveau de base est toujours présent, correspondant aux détections temporellement équiprobables (en particulier les *dark counts* et les photons de fluorescence résiduelle). Mais nous observons également la présence de pics, espacés de la période de répétition du laser de pompe. Cela signifie qu'une proportion importante des détections correspond à des photons synchrones avec les impulsions de pompe. Dans le cas de la figure (3.3.8), qui a été obtenue dans la fibre creuse HC-800-01, il s'agit très majoritairement de photons de pompe diffusés sur le premier réseau du montage. Cependant, dans une fibre à cœur de silice par exemple, les photons Raman générés lors de la propagation des impulsions de pompe dans la fibre viendront aussi faire croître ces pics. Enfin, si des paires de photons corrélés sont également générées, le *pic de coïncidences*, situé autour de l'écart temporel nul, devra croître plus rapidement que les autres pics (qui seront dans ce cas désignés sous le terme de *pics secondaires*).

Notons que les pics ont une largeur de l'ordre de 2,5 ns. Cette largeur provient essentiellement de la gigue (*jitter*) des détecteurs. Enfin, le pic de coïncidences n'est pas exactement centré

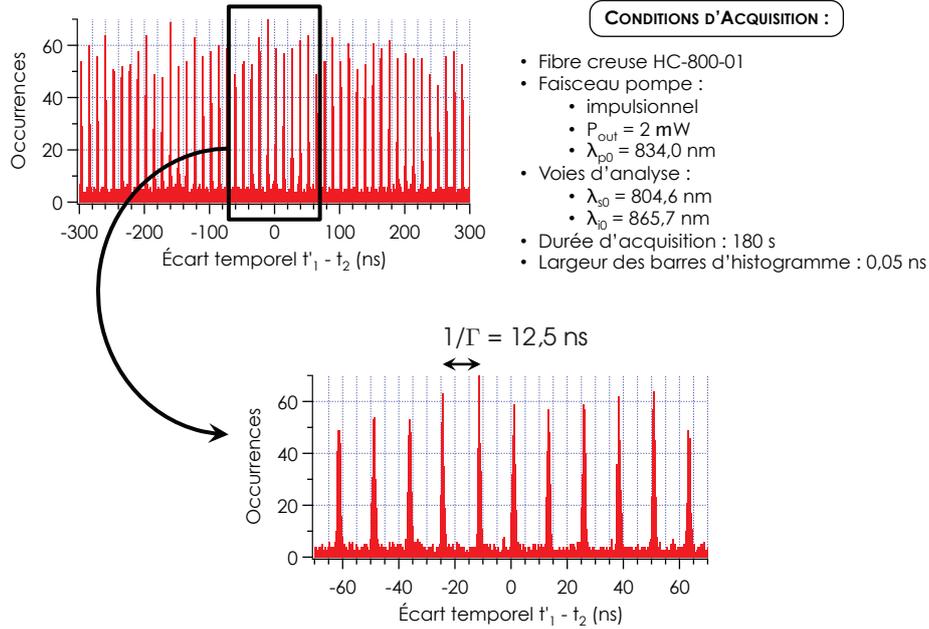


FIG. 3.3.8 – Histogramme typique dans le cas d'un faisceau de pompe impulsif.

sur l'abscisse nulle, ce qui est simplement dû au fait que les deux voies d'analyse n'ont pas rigoureusement la même longueur (d'un point de vue optique et/ou électronique).

Relation statistique entre le nombre de points dans l'histogramme et les taux de comptage

Un point de mesure sera reporté dans l'histogramme lorsque les trois conditions listées p.117 sont satisfaites.

La probabilité que la condition n°1 soit satisfaite est donnée par :

$$\text{Proba}(1) = \mathcal{C}_A \times \left(\frac{1}{f_{\text{CLK}}} - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}} \right) \quad (3.3.4)$$

où je rappelle que \mathcal{C}_A est le taux de comptage sur le détecteur A .

De même, la probabilité que la condition n°2 soit satisfaite est donnée par :

$$\text{Proba}(2) = \mathcal{C}_B \times \left(\frac{1}{f_{\text{CLK}}} - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}} \right) \quad (3.3.5)$$

où \mathcal{C}_B est le taux de comptage sur le détecteur B .

Si l'on suppose maintenant que la condition n°1 est satisfaite, la probabilité que les conditions n°2 et n°3 soient simultanément satisfaites (notée $\text{Proba}(\{2\&3\} | 1)$) correspond en fait à la probabilité qu'un *start-stop-time* soit enregistré pour le détecteur B dans la fenêtre de mesure ouverte par le clic sur le détecteur A et de largeur $\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - t_A$. En moyenne, la largeur de cette fenêtre de mesure est égale à $\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - t_{A,\text{moy}}$ (où $t_{A,\text{moy}}$ est la valeur moyenne du *start-stop-time* enregistré sur le détecteur A). Or, puisque t_A peut prendre des

valeurs comprises entre $\Delta T_{\text{TDC},\text{min}} = 6$ ns et $1/f_{\text{CLK}} = 400$ ns (nous utilisons en pratique une fréquence d'horloge de 2,5 MHz), nous pouvons considérer en première approximation que $t_{A,\text{moy}} \sim 1/(2f_{\text{CLK}}) = 200$ ns.

Ainsi, on peut montrer que la probabilité $\text{Proba}(\{2\&3\} | 1)$ est donnée par :

$$\text{Proba}(\{2\&3\} | 1) = \text{Proba}(2) \times f_{\text{CLK}} \left(\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - \frac{1}{2f_{\text{CLK}}} \right) \quad (3.3.6)$$

Enfin, l'ouverture de la fenêtre de mesure pour le détecteur B a lieu à chaque fois qu'un *start-stop-time* est enregistré pour le détecteur A , c'est-à-dire en moyenne à la fréquence $\text{Proba}(1) \times f_{\text{CLK}} = \mathcal{C}_A \times (1 - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}} f_{\text{CLK}})$. Le nombre de points de mesure reportés dans l'histogramme (ou *occurrences*) par seconde est donc égal à $\text{Proba}(1) \times f_{\text{CLK}} \times \text{Proba}(\{2\&3\} | 1)$, et le nombre total d'occurrences accumulées sur une durée d'acquisition ΔT_{acq} est donné par :

$$\begin{aligned} N_{\text{TOT}} &= \Delta T_{\text{acq}} \times \left(\text{Proba}(1) \times f_{\text{CLK}} \right) \times \text{Proba}(\{2\&3\} | 1) \\ &= \Delta T_{\text{acq}} \times \mathcal{C}_A \mathcal{C}_B \times f_{\text{CLK}}^2 \left(\frac{1}{f_{\text{CLK}}} - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}} \right)^2 \left(\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - \frac{1}{2f_{\text{CLK}}} \right) \end{aligned} \quad (3.3.7)$$

Pour finir, la prise en compte des deux cas possibles $\{A = 1, B = 2\}$ et $\{A = 2, B = 1\}$ conduit à :

$$N_{\text{TOT}} = 2 \Delta T_{\text{acq}} \times \mathcal{C}_1 \mathcal{C}_2 \times f_{\text{CLK}}^2 \left(\frac{1}{f_{\text{CLK}}} - \Delta T_{\text{TDC},\text{min}} \right)^2 \left(\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} - \frac{1}{2f_{\text{CLK}}} \right) \quad (3.3.8)$$

En l'absence de mélange à quatre ondes, \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 sont des polynômes d'ordre 1 en P_{out} (voir équations (3.3.3)), et N_{TOT} doit donc croître quadratiquement avec P_{out} . En revanche, en présence de mélange à quatre ondes, \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 sont des polynômes d'ordre 2 en P_{out} et N_{TOT} doit donc croître en puissance quatrième de P_{out} .

Dans le cas d'un faisceau de pompe impulsif, nous pouvons détailler un peu plus l'évolution du nombre de points dans l'histogramme (pour une durée d'acquisition donnée) en fonction de la puissance de pompe injectée dans la fibre microstructurée, en considérant séparément l'évolution :

- du niveau de base (entre les pics) ;
- du nombre d'occurrences dans un pic secondaire ;
- du nombre d'occurrences dans le pic de coïncidences,

et ce dans deux cas distincts :

- en l'absence de mélange à quatre ondes (par exemple, dans la fibre creuse HC-800-01) ;
- en présence de mélange à quatre ondes.

Par exemple, une occurrence dans le niveau de base correspond à deux détections dont l'une au moins est non synchrone avec les impulsions de pompe. Dans le cas où il n'y a pas de mélange à quatre ondes, \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 sont des polynômes d'ordre 1 en P_{out} , et la contribution linéaire peut être décomposée en deux termes : l'un résultant de coups synchrones avec les impulsions de pompe (coefficient $b_m^{[S]}$ dans le tableau 3.2) et l'autre résultant de coups non synchrones (coefficient $b_m^{[S]}$). Au final, le nombre d'occurrences entre les pics suivra donc une croissance

quadratique en P_{out} . En revanche, dans le cas où le mélange à quatre ondes est présent, \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 sont des polynômes d'ordre 2 en P_{out} , mais les coups non synchrones ne contribuent pas au terme quadratique : le nombre d'occurrences entre les pics suivra donc une croissance *cubique* en P_{out} .

Les occurrences dans les pics (secondaires ou de coïncidences) résultent de deux détections synchrones avec les impulsions de pompe, et leur nombre doit donc évoluer selon P_{out}^2 s'il n'y a pas de mélange à quatre ondes, et selon P_{out}^4 en présence de mélange à quatre ondes.

Le tableau 3.2 synthétise cela en indiquant l'ordre du polynôme en P_{out} décrivant l'évolution du nombre d'occurrences dans les différents cas.

TABLE 3.2 – Tableau récapitulatif : Ordre du polynôme en P_{out} décrivant l'évolution du nombre d'occurrences entre les pics et dans les pics, en présence ou en l'absence de mélange à quatre ondes.

	Absence de mélange à quatre ondes $\mathcal{C}_m = a_m + (b_m^{[S]} + b_m^{[\bar{S}]}) P_{\text{out}}$	Présence de mélange à quatre ondes $\mathcal{C}_m = a_m + (b_m^{[S]} + b_m^{[\bar{S}]}) P_{\text{out}} + \kappa_m P_{\text{out}}^2$
Niveau de base (entre les pics)	2	3
Pics secondaires	2	4
Pic de coïncidences	= pic secondaire	4
TOTAL	2	4

Bien entendu, dans le cas où le mélange à quatre ondes est présent, bien que les pics secondaires et le pic de coïncidences croissent tous en P_{out}^4 , nous nous attendons à ce que le coefficient du terme d'ordre 4 soit plus élevé pour le pic de coïncidences que pour les pics secondaires. Appelons respectivement $w_4^{\text{coïnc}}$ et w_4^{second} ces deux coefficients. Si l'on note $\eta_1 \sim \eta_2 = \eta$ le taux de transmission sur les deux voies d'analyse (entre la sortie de la fibre microstructurée et la détection effective sur le détecteur de photons uniques), $w_4^{\text{coïnc}}$ est proportionnel à la probabilité d'avoir généré une paire de photons corrélés *multipliée par* $\eta_1 \eta_2 = \eta^2$ (c'est-à-dire multipliée par la probabilité que les deux photons de la paire aient été transmis et détectés). En revanche, w_4^{second} est proportionnel à la probabilité d'avoir généré deux paires de photons corrélés à moins de 500 ns (c'est-à-dire $\Delta T_{\text{TDC}, \text{max}}$) d'intervalle *multipliée par* $2\eta_1 \eta_2 = 2\eta^2$ (ce terme traduit simplement le fait que l'un au moins des deux photons signal et l'un au moins des deux photons idler doivent être transmis et détectés). Or, pour éviter la génération de paires multiples par une même impulsion de pompe, nous devons travailler avec des efficacités non linéaires extrêmement faibles, de sorte qu'une paire de photons corrélés soit générée toutes les 100 (voire toutes les 1000) impulsions de pompe seulement (c'est-à-dire toutes les 1 à 10 μs en moyenne). Ainsi, la probabilité de générer deux paires à moins de 500 ns d'intervalle est très faible (bien plus faible que la simple probabilité de générer une paire), et w_4^{second} est donc bien plus faible que $w_4^{\text{coïnc}}$.

Une remarque supplémentaire que nous pouvons faire est que, puisque $w_4^{\text{coïnc}}$ et w_4^{second} sont proportionnels à $\eta_1 \eta_2$, le terme d'ordre 4 dans la croissance des pics est susceptible de

devenir négligeable si les pertes sur les voies d'analyse sont trop fortes. Nous travaillons en pratique avec des valeurs de η_1 et η_2 légèrement inférieures à 10% lorsque nous utilisons le jeu de fibres multimodes, et de l'ordre de 2 à 3% si l'on choisit le jeu de fibres monomodes (voir partie 3.3.1.2). Ces valeurs ne sont pas aberrantes par rapport à celles que nous avons pu trouver dans la littérature, mais peuvent sans doute être améliorées (en jouant sur le traitement des différents composants optiques du montage de détection, ainsi que sur l'optimisation de l'injection dans les fibres de collection – en particulier lorsque nous choisissons de travailler avec les fibres monomodes).

Exemple : Résultats obtenus dans la fibre creuse HC-800-01

Nous avons fait l'acquisition de deux séries d'histogrammes :

- l'une en fixant la puissance de pompe injectée dans la fibre microstructurée P_{out} à 2,0 mW et en faisant varier la durée d'acquisition ΔT_{acq} de 15 s à 180 s ;
- l'autre en fixant ΔT_{acq} à 180 s et en faisant varier P_{out} de 0,2 mW à 2,0 mW (par pas de 0,2 mW).

Dans tous les cas, le faisceau de pompe était impulsif, avec $\lambda_{p0} = 834,0$ nm et $T_0 = 0,8$ ps, et les voies d'analyse étaient réglées à 804,6 nm et 865,7 nm.

Sur ces histogrammes, nous comptons :

- le nombre d'occurrences dans chacun des 47 pics (de largeur de l'ordre de 2,5 ns), et nous en déduisons la valeur moyenne N_{pic} sur ces 47 pics ;
- le nombre d'occurrences dans chaque intervalle entre deux pics (de largeur de l'ordre de 10 ns), et nous en déduisons la valeur moyenne $N_{\text{hors-pic}}$ sur l'ensemble des intervalles ;
- le nombre total d'occurrences sur la plage [-300 ; +300] ns, N_{TOT} .

Nous traçons ensuite N_{pic} , $N_{\text{hors-pic}}$ et N_{TOT} :

- en fonction de ΔT_{acq} , pour $P_{\text{out}} = 2,00$ mW (figure (3.3.9), colonne de gauche) ;
- en fonction de P_{out} , pour $\Delta T_{\text{acq}} = 180$ s (figure (3.3.9), colonne de droite).

Remarquons que l'extension de l'histogramme est limitée par le logiciel d'*Aurea Technology* à la plage [-300 ; +300] ns (bien que les capacités du TDC puissent permettre de faire des mesures d'histogrammes sur une plage plus large : [-494 ; +494] ns – voir p.117).

Comme attendu, N_{pic} , $N_{\text{hors-pic}}$ et N_{TOT} sont proportionnels à la durée d'acquisition ΔT_{acq} . Les graphes de N_{pic} et $N_{\text{hors-pic}}$ en fonction de ΔT_{acq} semblent présenter un point aberrant pour $\Delta T_{\text{acq}} = 60$ s. Cependant, nous constatons que le point associé pour N_{TOT} est bien aligné avec les autres points, ce qui veut dire que les occurrences “perdus” dans les pics se retrouvent dans les intervalles entre les pics (de sorte que le nombre total d'occurrences reste identique). Ce phénomène semble donc être le résultat d'un passage du laser Ti:Saphir en régime continu (ou partiellement continu) au cours de la mesure associée au point d'abscisse $\Delta T_{\text{acq}} = 60$ s.

En ce qui concerne l'évolution de N_{pic} , $N_{\text{hors-pic}}$ et N_{TOT} avec P_{out} , nous constatons qu'elle est quadratique, et c'est bien ce que nous attendions (voir tableau 3.2). Nous observons également deux points aberrants, pour $P_{\text{out}} = 1,4$ mW et $P_{\text{out}} = 1,6$ mW, ce qui n'apparaît pas sur le troisième graphe (N_{TOT} en fonction de P_{out}). Encore une fois, il semble que les occurrences “perdus” dans les pics se retrouvent dans les intervalles entre les pics, et l'hypothèse d'un passage du laser Ti:Saphir en régime (partiellement) continu pendant la mesure est très probable.

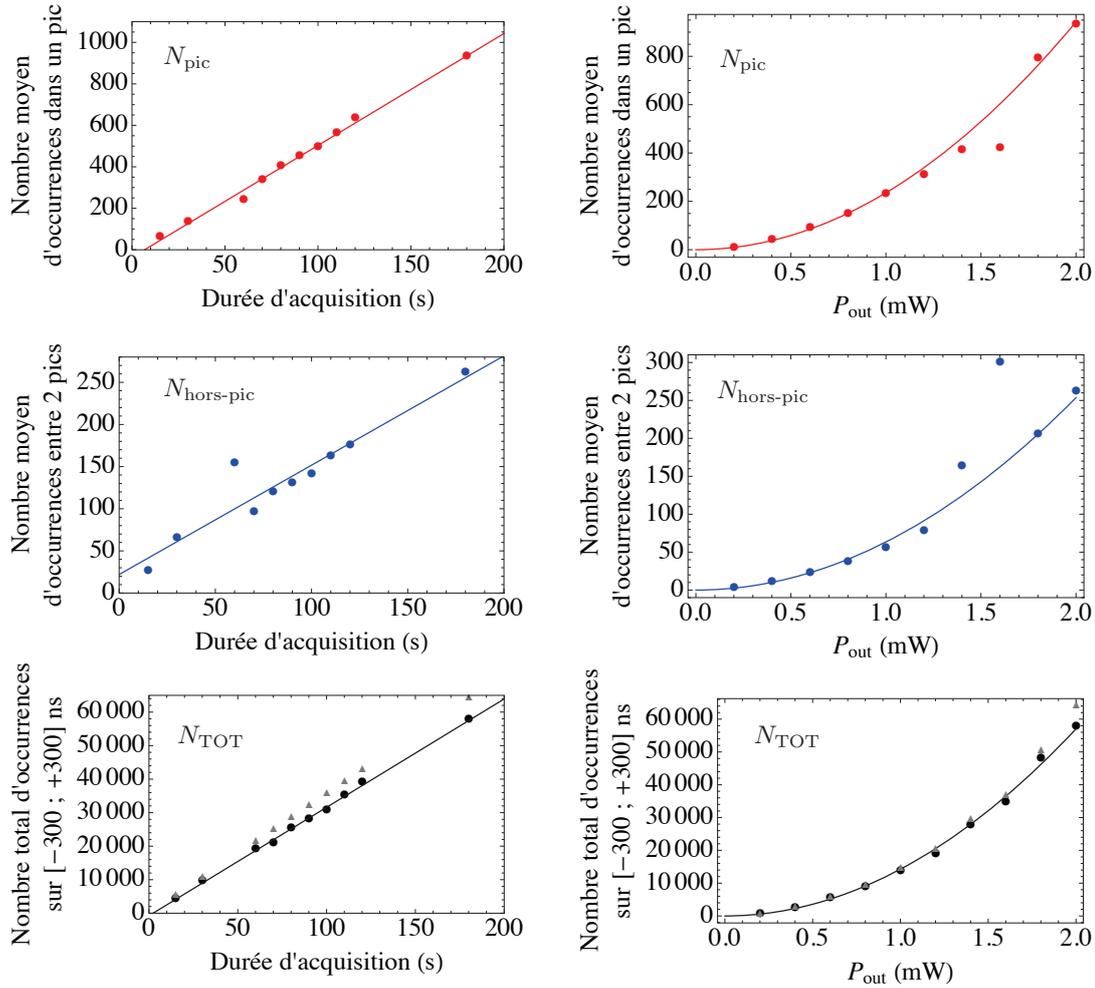


FIG. 3.3.9 – Évolution du nombre d'occurrences entre les pics, dans les pics, et dans l'ensemble de l'histogramme, en fonction de la durée d'acquisition (colonne de gauche) et de la puissance de pompe injectée dans la fibre microstructurée à cœur creux HC-800-01 (colonne de droite). Sur les graphes de N_{TOT} en fonction de la durée d'acquisition et de la puissance de pompe, les triangles représentent le résultat du calcul de l'équation (3.3.8) à partir des taux de comptage C_1 et C_2 mesurés simultanément aux acquisitions des histogrammes (et avec $f_{\text{CLK}} = 2,5 \text{ MHz}$, $\Delta T_{\text{TDC},\text{min}} = 6 \text{ ns}$ et $\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} = 500 \text{ ns}$).

Le fait que l'évolution de $N_{\text{hors-pic}}$ avec P_{out} soit quadratique comme celle de N_{pic} montre que les coups détectés en dehors des pics ne sont pas uniquement dus aux *dark counts* : cette croissance quadratique est la signature des photons de fluorescence résiduelle (ou tout au moins, de photons non synchrones avec les impulsions de pompe mais dont le nombre est proportionnel à la puissance de pompe).

Enfin, nous vérifions sur le graphe de N_{TOT} en fonction de P_{out} que le nombre total d'occurrences dans l'histogramme suit bien la relation (3.3.8), du moins tant que P_{out} reste assez faible. Pour les plus fortes valeurs de la puissance de pompe, les taux de comptage deviennent assez élevés, et un effet de saturation dû au *dead time* des détecteurs commence à se faire sentir. Le graphe de N_{TOT} en fonction de la durée d'acquisition, tracé dans le cas de la puissance de pompe P_{out} la plus élevée (2,0 mW), met également en évidence cet effet de saturation : les

points expérimentaux (ronds) sont alignés sur une droite de pente légèrement plus faible que la pente obtenue à partir de la relation (3.3.8) et de la mesure des taux de comptage individuels \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 (triangles).

3.3.3 Conclusion

Maintenant que le montage de détection des paires de photons corrélés a été présenté, que ses performances ont été caractérisées, et que nous avons pris connaissance des différents types de mesures qu'il nous permet de réaliser, je vais exposer dans la section suivante les résultats de génération de paires de photons corrélés que nous avons obtenus dans la fibre microstructurée HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée. Ces résultats seront à mettre en comparaison avec les résultats de référence auxquels nous a menés l'étude de la fibre microstructurée à cœur creux HC-800-01, ainsi qu'à ceux qui peuvent être obtenus (avec le même montage de détection) à partir d'une fibre microstructurée à cœur de silice. Si dans la fibre creuse HC-800-01 le mélange à quatre ondes et la diffusion Raman spontanée peuvent tous deux être considérés comme négligeables, ces deux processus sont au contraire simultanément présents dans la fibre à cœur de silice, et la diffusion Raman vient alors polluer la qualité quantique des paires de photons corrélés. Dans notre fibre à cœur liquide, la diffusion Raman doit pouvoir être drastiquement réduite, conduisant à la génération de paires de photons corrélés de très grande pureté.

Rappelons que les deux types de mesures que nous pouvons réaliser avec notre montage de détection sont les suivantes :

1. **Mesure des taux de comptage individuels sur chacune des deux voies** : la présence de photons paramétriques générés par mélange à quatre ondes dans la fibre microstructurée se traduira par une croissance quadratique de ces taux de comptage avec la puissance (crête) de pompe, tandis que les photons Raman éventuellement générés participeront à cette croissance sous la forme d'un terme linéaire avec la puissance (moyenne) de pompe ;
2. **Mesure de l'histogramme des corrélations temporelles entre les deux voies** : la présence de paires de photons corrélés dans les deux voies se traduira par la prédominance du pic de coïncidences par rapport au niveau de base et (dans le cas d'une pompe impulsionnelle) aux pics secondaires. La présence de photons Raman aura tendance à faire augmenter le nombre d'occurrences dans les pics secondaires et dans le pic de coïncidences de la même quantité absolue, et donc à réduire le rapport entre le nombre total d'occurrences dans le pic de coïncidences et le nombre moyen d'occurrences dans un pic secondaire. Ce rapport sera donc un critère quantitatif pour évaluer la qualité quantique de notre source de paires de photons corrélés. Notons cependant que ce critère met également en jeu les performances de notre montage de détection, et en particulier les pertes sur les deux voies d'analyse : il ne s'agira donc pas d'un critère quantifiant les performances intrinsèques de notre source, mais les performances de l'ensemble {source + montage de détection}.

3.4 Première démonstration expérimentale de génération de paires de photons corrélés dans une fibre à cœur liquide

3.4.1 Choix des longueurs d'onde de travail

3.4.1.1 Rappel des contraintes expérimentales

Sauf indication contraire, les résultats expérimentaux que je vais présenter dans cette dernière section ont été obtenus en utilisant le jeu de fibres de collection monomodes, et en injectant le faisceau de pompe sur l'un des deux axes neutres moyens de la fibre à cœur liquide décrite au tout début du présent chapitre (section 3.1) : il s'agit de la fibre microstructurée à cœur creux HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée, dont le coefficient non linéaire γ a été mesuré égal à $(0,012 \pm 0,002) \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$ (voir sous-section 3.2.2). Nous rappelons que la bande de transmission de cette fibre s'étend typiquement de 820 nm à 925 nm (voir figure (3.1.4)) et que sa longueur d'onde de dispersion nulle (λ_{ZDW}) a été évaluée autour de 896 nm (voir partie 3.2.1.4). Pour des longueurs d'onde de pompe λ_{p_0} de l'ordre de λ_{ZDW} , le spectre Raman de l'acétone deutérée donné dans la littérature [72] met en évidence la présence de trois raies Raman secondaires dans la bande de transmission de la fibre, correspondant aux écarts spectraux suivants : 331 cm^{-1} , 410 cm^{-1} et 478 cm^{-1} (voir figure (3.1.5)). Pour une longueur d'onde de pompe comprise entre 875 nm et 900 nm, cela signifie que les photons produits par diffusion Raman spontanée dans le cœur de la fibre seront décalés d'environ 25 nm (raie n°1), 32 nm (raie n°2) et 37 nm (raie n°3) des photons de pompe.

Par ailleurs, nous avons vu (partie 3.3.1.2) qu'un écart spectral d'au moins 20 nm est requis entre les photons de pompe et les photons paramétriques pour que la détection des paires ne soit pas polluée par les photons de pompe. Pour prendre une "marge de sécurité", nous avons décidé de travailler avec un écart spectral de l'ordre de 30 nm (qui conduit, comme nous l'avons vu, à une efficacité de filtrage des photons de pompe de l'ordre de 130 dB). Ce choix, guidé par les performances de filtrage spécifiques de notre montage de détection, peut paraître malvenu au premier abord, puisqu'il nous fait travailler avec des écarts spectraux paramétriques (entre les photons de pompe et les photons signal et idler qui doivent être générés) du même ordre que les écarts spectraux Raman que nous venons d'évoquer. Cependant, cette configuration est au contraire parfaite pour une démonstration de principe, puisqu'elle va nous permettre de mettre en évidence notre capacité à *positionner précisément* les longueurs d'onde des paires de photons corrélés générées *entre les raies Raman secondaires* du liquide, c'est-à-dire notre capacité à faire en sorte que les photons Raman induits par ces raies secondaires soient produits à des longueurs d'onde bien distinctes de celles des paires de photons corrélés (ce qui rend ainsi possible leur élimination par filtrage spectral en sortie de la fibre microstructurée).

Nous reportons sur la figure (3.4.1) ci-après le lieu des points où la densité de probabilité de génération d'un photon paramétrique dans cette fibre à cœur liquide (calculée à partir du modèle analytique du Chapitre 2) est maximale (ce qui, comme nous l'avons déjà vu, correspond en première approximation à la courbe d'accord de phase calculée à partir du modèle classique en régime d'amplification – à très faible puissance de pompe). Superposée à cette courbe, nous traçons également la position des raies Raman secondaires de l'acétone deutérée qui sont contenues dans la bande de transmission de notre fibre. La zone grisée correspond à notre plage spectrale d'étude préférentielle, pour laquelle l'écart spectral paramétrique est de l'ordre d'une trentaine de nanomètres. D'après cette figure (3.4.1), une longueur d'onde de pompe λ_{p_0} réglée à 882,5 nm doit conduire à la génération de paires de photons corrélés à 854,5 nm et 912,5 nm

approximativement, avec donc un écart spectral paramétrique égal à 371 cm^{-1} , c'est-à-dire exactement entre les deux raies Raman secondaires à 331 cm^{-1} et 410 cm^{-1} .

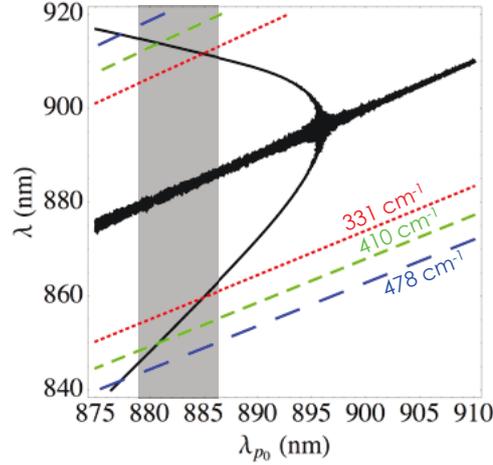


FIG. 3.4.1 – Courbe d'accord de phase de notre fibre à cœur liquide (noir) et localisation des raies Raman secondaires de l'acétone deutérée incluses dans la bande de transmission de la fibre. Ces trois raies correspondent à des écarts spectraux de 331 cm^{-1} , 410 cm^{-1} et 478 cm^{-1} par rapport au faisceau de pompe. En grisé, notre zone spectrale d'intérêt (conduisant à un écart spectral paramétrique d'une trentaine de nanomètres).

Cependant, il ne faut pas oublier que, comme l'a mis en évidence notre étude du processus de mélange à quatre ondes en régime d'amplification (sous-section 3.2.4), la courbe d'accord de phase présente une incertitude de plusieurs nanomètres en abscisses et en ordonnées. Les bandes passantes de détection des deux voies d'analyse de notre double spectromètre ayant une largeur de l'ordre de $0,5 \text{ nm}$ seulement (voir partie 3.3.1.2), il n'est pas certain qu'en réglant les longueurs d'onde centrales de ces deux voies d'analyse (λ_{s_0} et λ_{i_0}) aux valeurs prévues par la courbe d'accord de phase (pour une valeur de λ_{p_0} donnée) nous soyons en mesure de détecter effectivement des paires de photons corrélés. Une procédure de réglage et d'optimisation est donc nécessaire pour réussir à trouver une configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p_0}; \lambda_{s_0}; \lambda_{i_0}\}$ satisfaisant la condition d'accord de phase et conduisant à un écart spectral paramétrique de l'ordre de 370 cm^{-1} .

3.4.1.2 Présentation de la procédure de réglage et d'optimisation

La première phase de la procédure consiste à identifier précisément (c'est-à-dire avec une précision meilleure que la largeur des bandes passantes de détection $\Delta\lambda_s$ et $\Delta\lambda_i$) une configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p_0}; \lambda_{s_0}; \lambda_{i_0}\}$ satisfaisant la condition d'accord de phase.

Pour ce faire, la procédure est la suivante :

1. Régler la voie d'analyse idler à une longueur d'onde λ_{i_0} donnée et identifier, à l'aide de la courbe d'accord de phase (figure (3.4.1)), la longueur d'onde de pompe $\lambda_{p_0}^{(\text{simu})}$ pour laquelle des photons idler sont censés être générés à cette longueur d'onde λ_{i_0} ;
2. Régler le laser Ti:Saphir à cette longueur d'onde $\lambda_{p_0}^{(\text{simu})}$, et mesurer l'évolution du taux de comptage sur la voie d'analyse idler (C_1) en fonction de la puissance de pompe injectée dans

la fibre microstructurée (P_{out}). Nous rappelons (voir partie 3.3.2.2) que cette évolution doit prendre la forme d'un polynôme d'ordre 2, avec un terme quadratique (de coefficient c_1 , voir équation (3.3.3)) exclusivement lié aux photons paramétriques (ici, les photons idler) générés par mélange à quatre ondes dans la fibre microstructurée, et un terme linéaire (de coefficient b_1) auquel contribuent :

- les photons Raman produits dans la fibre microstructurée à la longueur d'onde λ_{i_0} ;
- les photons de pompe diffusés résiduels ;
- les photons de fluorescence résiduelle.

3. Répéter cette mesure (\mathcal{C}_1 en fonction de P_{out}) pour des valeurs de λ_{p_0} variant sur une plage d'une dizaine de nanomètres autour de $\lambda_{p_0}^{(\text{simu})}$, et tracer l'évolution du coefficient c_1 (terme quadratique de la croissance de \mathcal{C}_1 avec P_{out}) en fonction de λ_{p_0} . Cette dernière courbe doit reproduire l'allure de la densité spectrale de probabilité de génération paramétrique³³ (convoluée par la bande passante de détection de la voie d'analyse idler), et doit donc nous permettre d'identifier la longueur d'onde de pompe *optimale*, c'est-à-dire celle permettant de satisfaire au mieux la condition d'accord de phase dans le cas d'une longueur d'onde idler égale à la valeur λ_{i_0} que nous avons choisie. La longueur d'onde signal associée s'en déduit directement, à l'aide de la condition de conservation de l'énergie.

Je disais il y a quelques instants que nous souhaitions par ailleurs que la configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p_0}; \lambda_{s_0}; \lambda_{i_0}\}$ conduise à un écart spectral paramétrique de l'ordre de 370 cm^{-1} . Cette valeur est basée sur les données de la littérature, selon lesquelles les deux raies Raman secondaires de l'acétone deutérée que nous voulons éviter correspondent à des écarts spectraux de 331 cm^{-1} et 410 cm^{-1} [72]. Cependant, il est intéressant de voir que la procédure que je viens de décrire pour l'identification de la longueur d'onde de pompe satisfaisant la condition d'accord de phase (pour une longueur d'onde idler donnée) permet aussi de déterminer *experimentalement* la position des raies Raman du liquide remplissant la fibre. Mieux que cela, nous pouvons plus généralement en déduire l'allure de ces raies Raman (en particulier leur largeur, éventuellement convoluée par la largeur des bandes passantes de détection). Il suffit pour cela de tracer l'évolution du coefficient b_1 (associé au terme linéaire de la croissance du taux de comptage \mathcal{C}_1 avec P_{out}) en fonction de λ_{p_0} (ou en fonction de l'écart spectral paramétrique $|\lambda_{p_0} - \lambda_{s_0}|$, de préférence converti en cm^{-1} pour une comparaison plus confortable avec les données de la littérature). Considérant que la contribution des photons de pompe diffusés et des photons de fluorescence résiduelle ne dépend pas de l'écart spectral entre le faisceau de pompe et la voie d'analyse (au moins en première approximation, sur la plage – relativement restreinte – d'écarts spectraux étudiée), nous pouvons admettre que les variations de b_1 doivent reproduire l'allure des raies Raman du liquide remplissant la fibre (à la convolution par la bande passante de détection près)³⁴.

Il s'agit alors de vérifier d'une part que les maxima des deux raies Raman que nous mesurons sont bien situés vers 331 cm^{-1} et 410 cm^{-1} comme annoncé dans la littérature, et d'autre part que le maximum de la bande paramétrique (courbe d'évolution de c_1) est bien localisé *entre les deux raies Raman*.

33. Plus précisément, il s'agit de la coupe *horizontale* de la carte de densité spectrale de probabilité de génération d'un photon paramétrique (figure (3.2.9)) en $\lambda = \lambda_{i_0}$.

34. Je présente en Annexe C.3 une analyse détaillée montrant que ces mesures du paramètre b_1 permettent *quantitativement* de remonter à la valeur de la section efficace de diffusion Raman associée aux raies secondaires mises en jeu, et que le résultat obtenu est cohérent avec les données de la littérature.

3.4.1.3 Mise en œuvre de la procédure – Choix des longueurs d’onde de travail

Puisque la figure (3.4.1) annonce que la condition d’accord de phase est respectée avec un écart spectral paramétrique de 371 cm^{-1} dans la configuration $\{\lambda_{p_0} = 882,5 \text{ nm} ; \lambda_{s_0} = 912,5 \text{ nm} ; \lambda_{i_0} = 854,5 \text{ nm}\}$, nous avons appliqué la procédure décrite ci-dessus en réglant initialement la voie d’analyse idler à $\lambda_{i_0} = 854,5 \text{ nm}$. Ce ne sont cependant pas les mesures que je vais présenter ci-après, puisque nous avons montré que cette configuration de longueurs d’onde n’était finalement pas la configuration optimale³⁵. Ces premières mesures nous ont indiqué que l’écart spectral paramétrique devait être légèrement réduit (d’environ 25 cm^{-1} , soit environ 2 nm) pour que la bande paramétrique soit bien localisée entre les deux raies Raman.

Nous avons alors choisi de régler la voie d’analyse idler à $\lambda_{i_0} = 857,0 \text{ nm}$, et avons appliqué la procédure en faisant varier λ_{p_0} de $879,0 \text{ nm}$ à $891,0 \text{ nm}$ (par pas de $0,5 \text{ nm}$). L’évolution des paramètres b_1 et c_1 est présentée en figure (3.4.2), en fonction de λ_{p_0} d’une part, et en fonction de $|(1/\lambda_{p_0}) - (1/\lambda_{i_0})|$ (en cm^{-1}) d’autre part. Un ajustement gaussien sur les points expérimentaux de c_1 (composante quadratique) montre que la bande spectrale paramétrique est centrée en $\lambda_{p_0}^{\text{exp}} = (885,7 \pm 0,1) \text{ nm}$, avec une largeur à mi-hauteur³⁶ de $(2,0 \pm 0,2) \text{ nm}$. Un ajustement lorentzien³⁷ sur les points expérimentaux de b_1 (composante linéaire) montre que les maxima des deux raies Raman correspondent à des écarts spectraux de $(330,6 \pm 0,5) \text{ cm}^{-1}$ et $(410,5 \pm 0,6) \text{ cm}^{-1}$, avec des largeurs à mi-hauteur égales à $(21 \pm 3) \text{ cm}^{-1}$ (soit $(1,7 \pm 0,2) \text{ nm}$) et $(29 \pm 4) \text{ cm}^{-1}$ (soit $(2,3 \pm 0,3) \text{ nm}$) respectivement.

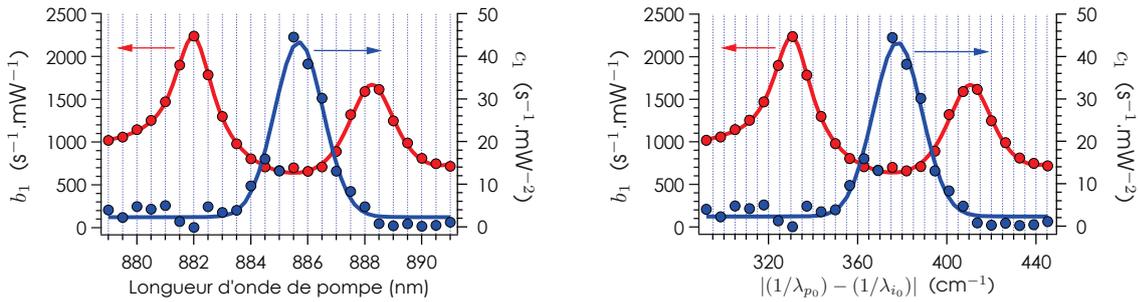


FIG. 3.4.2 – Évolutions de la composante linéaire (b_1) et de la composante quadratique (c_1) de la croissance du taux de comptage sur la voie d’analyse idler en fonction de la puissance de pompe injectée dans la fibre microstructurée à cœur liquide. Les courbes en trait plein correspondent aux ajustements réalisés sur les points expérimentaux : ajustement gaussien sur les points de c_1 , ajustement “double lorentzien” (deux pics lorentziens adjacents) avec niveau de base non constant (nous avons autorisé une évolution polynomiale d’ordre 3) sur les points de b_1 . Pour information, une courbe typique de C_1 en fonction de P_{out} , permettant de déterminer les valeurs de b_1 et c_1 , est donnée plus loin (figure (3.4.3)).

Notons que ces mesures ont été effectuées en utilisant le jeu de fibres de collection *mono-modes*, pour lesquelles nous avons montré que le niveau de photons de pompe diffusés collectés

35. Nous avons expérimentalement constaté que la longueur d’onde de pompe paramétrique optimale pour une voie idler réglée à $854,5 \text{ nm}$ n’était finalement pas située à $882,5 \text{ nm}$ mais plutôt vers $884,7 \text{ nm}$, et le maximum de la bande spectrale de génération paramétrique était alors presque confondu – à moins de 1 nm près – avec celui de l’une des deux raies Raman secondaires de l’acétone deutérée.

36. N’oublions pas que ce que nous mesurons ici est la *convolution* de la densité spectrale de probabilité de génération paramétrique avec la bande passante de détection de la voie d’analyse idler, qui a une largeur de l’ordre de $0,5 \text{ nm}$ (cette largeur reste quoi qu’il en soit relativement petite devant les largeurs de raies Raman et de bande spectrale paramétrique que nous obtenons).

37. Nous avons vu au Chapitre 1, sous-section 1.2.3, que les raies Raman des liquides présentaient un profil lorentzien.

était de l'ordre du taux de *dark counts* (quelques dizaines de coups par seconde) pour une puissance P_{out} égale à 2,0 mW. Nous obtenons ici $b_1 = 640 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-1}$ entre les deux raies Raman, ce qui correspond donc à un niveau de l'ordre de 1300 s^{-1} pour une puissance P_{out} de 2,0 mW. Cette valeur ne peut donc pas être uniquement imputée aux photons de pompe diffusés : les photons de fluorescence résiduelle, ou éventuellement les photons Raman persistants (dus au recouvrement des deux raies Raman secondaires entre elles), doivent être majoritairement responsables de ce niveau de bruit.

Les résultats expérimentaux présentés dans la suite de chapitre ont été obtenus dans la configuration de longueurs d'onde suivante : $\{\lambda_{p_0} = 885,50 \text{ nm} ; \lambda_{s_0} = 915,95 \text{ nm} ; \lambda_{i_0} = 857,00 \text{ nm}\}$ (rappelons que nous sommes capables de régler chacune de ces trois longueurs d'onde avec une précision de 0,05 nm typiquement). Certes, la valeur de λ_{p_0} choisie n'est pas rigoureusement celle pour laquelle l'ajustement gaussien de la figure (3.4.2) prévoit l'efficacité paramétrique la plus forte, mais il s'agit effectivement de celle qui nous a *expérimentalement* permis d'observer la valeur la plus forte pour le paramètre quadratique c_1 (voir le point de mesure associé sur la figure (3.4.2)³⁸). Nous avons donc préféré, au moins dans un premier temps, garder cette valeur de longueur d'onde de pompe.

3.4.2 Mise en évidence du processus de mélange à quatre ondes spontanée par la mesure des taux de comptage

Comme nous l'avons vu dans la section 3.3 du présent chapitre et venons de le mettre en évidence dans la sous-section 3.4.1 qui précède, le premier type de mesure que nous pouvons réaliser à l'aide de notre montage de détection s'intéresse à l'évolution du taux de comptage sur chacune des deux voies d'analyse en fonction de la puissance de pompe injectée dans la fibre microstructurée. La croissance quadratique de ces taux de comptage avec la puissance de pompe est la signature du processus de mélange à quatre ondes spontanée, par lequel des photons signal et idler sont générés dans la fibre à cœur liquide aux longueurs d'onde d'analyse λ_{s_0} et λ_{i_0} .

Ce type de mesure a donc été mis à profit pour le choix de la configuration *optimale* de longueurs d'onde, mais nous n'avons pas pris le temps dans la sous-section précédente de présenter en détail l'allure des courbes obtenues, ni la procédure expérimentale que nous avons suivie pour remonter le plus précisément possible aux valeurs des paramètres b_1 et c_1 . Ce sont ces points que je vais aborder ici, avant de comparer les résultats à ceux qui ont été obtenus (dans une configuration expérimentale similaire) avec la fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV³⁹, ainsi qu'aux prévisions fournies par le modèle analytique développé au Chapitre 2.

3.4.2.1 Évolutions du taux de comptage avec la puissance de pompe en régime impulsif et en régime continu

Le taux de diffusion Raman spontanée est proportionnel à la puissance moyenne de pompe P_{moy} injectée dans la fibre microstructurée (que nous mesurons en pratique en sortie de la

38. Ceci est simplement lié au pas de variation en longueur d'onde que nous avons utilisé lors de la mesure précédente (0,5 nm). Notons que l'écart entre la valeur optimale annoncée par l'ajustement (885,7 nm) et celle que nous utilisons en pratique (885,5 nm) est petit devant la largeur de la bande paramétrique ($\sim 2 \text{ nm}$).

39. Encore une fois, je rappelle qu'il s'agit de l'une des deux fibres qui nous ont servi d'exemples pour les simulations de la fin du Chapitre 2, et qui fait aussi l'objet de l'étude expérimentale présentée dans l'article fourni en Annexe E.

fibre, comme expliqué dans la partie 3.2.2.1, et c'est la raison pour laquelle nous l'appelons également P_{out}). Quel que soit le régime de fonctionnement de notre laser de pompe Ti:Saphir, impulsif picoseconde (régime de modes verrouillés en phase) ou continu, pour une même puissance moyenne de pompe le taux de diffusion Raman spontanée sera le même.

En revanche, nous avons mis en évidence au Chapitre 2 que la densité spectrale de probabilité de génération paramétrique est proportionnelle à $\mathcal{E}_{\text{imp}}^2/T_0$ ⁴⁰, où \mathcal{E}_{imp} est l'énergie contenue dans une impulsion de pompe et T_0 la durée de l'impulsion⁴¹. De manière équivalente, nous pouvons donc dire que la densité spectrale de probabilité de génération paramétrique est proportionnelle à $P_{\text{moy}} \times (P_{\text{crête}}/\Gamma)$, où Γ est le taux de répétition du laser de pompe. Rappelons que pour des impulsions de profil temporel sécante hyperbolique $\text{sech}(t/T_0)$ en amplitude, la puissance moyenne et la puissance crête sont liées par $P_{\text{moy}} = 2T_0\Gamma P_{\text{crête}}$. Dans la limite où le laser de pompe fonctionne en régime continu et non plus en régime impulsif, $2T_0\Gamma$ tend vers 1 et $P_{\text{crête}} \equiv P_{\text{moy}}$.

Or, lorsque le laser Ti:Saphir fonctionne en régime impulsif picoseconde, puisque le taux de répétition est égal à 80 MHz, la puissance crête est environ 10^4 fois plus élevée que la puissance moyenne. Cela signifie que, **pour une puissance moyenne donnée, l'efficacité du processus de mélange à quatre ondes spontané sera environ 10^8 fois plus élevé en régime impulsif picoseconde qu'en régime continu.**

Suivant ces considérations, si nous étudions dans un premier temps l'évolution des taux de détection sur les deux voies d'analyse (\mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2) en fonction de la puissance moyenne (P_{out}) injectée dans la fibre microstructurée *en régime de pompe continue*, nous ne nous attendons pas à une croissance quadratique, puisque le processus de mélange à quatre ondes sera négligeable : nous attendons plutôt une évolution linéaire (avec également un terme constant non nul, principalement dû au taux de *dark counts* des détecteurs). Évidemment, dans le cas d'une fibre à cœur de silice (telle que notre fibre RTI-1605-UV), le terme linéaire sera principalement dû aux photons Raman, tandis que dans une fibre à cœur liquide (telle que notre fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée) nous espérons pouvoir réduire drastiquement la contribution des photons Raman, et nous trouver alors limités par les photons de pompe diffusés subsistants (et éventuellement les photons de fluorescence résiduelle).

En régime de pompe impulsif picoseconde, en revanche, l'évolution de \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 avec P_{out} verra l'ajout du terme quadratique dû à la génération des photons paramétriques par mélange à quatre ondes spontané (processus dont l'efficacité aura été multipliée par 10^8 typiquement par rapport au cas du régime de pompe continue).

Expérimentalement, cette approche est intéressante car il est extrêmement facile en pratique de passer du régime de pompe impulsif picoseconde (régime de modes verrouillés en phase) au régime de pompe continue *tout en conservant la même puissance moyenne de pompe*, et vice versa : il suffit pour cela de désactiver l'alimentation du modulateur acousto-optique assurant le verrouillage des modes en phase, ou de le ré-activer.

Je présente ci-après les résultats expérimentaux obtenus dans la fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée, dans la configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p_0} = 885,50 \text{ nm}; \lambda_{s_0} = 915,95 \text{ nm}; \lambda_{i_0} = 857,00 \text{ nm}\}$, en régime de pompe continue et en régime de pompe

40. Voir les équations (2.5.2) à (2.5.5) et (2.5.11).

41. Je rappelle que les impulsions de pompe délivrées par le laser Ti:Saphir ont un profil temporel sécante hyperbolique $\text{sech}(t/T_0)$ en amplitude, ce qui correspond à une largeur à mi-hauteur en intensité $T_{\text{FWHM}} = 1,763 T_0$.

impulsionnelle picoseconde ($T_0 = 0,8$ ps). La figure (3.4.3) reporte les mesures effectuées sur la voie d'analyse idler (\mathcal{C}_1). Le cas de la voie signal sera évoqué en détails un peu plus loin (partie 3.4.2.4⁴²).

Un ajustement polynomial d'ordre 1, de la forme $\mathcal{C}_1 = a_1 + b_1 P_{\text{out}}$, sur les points expérimentaux obtenus en régime continu conduit à la valeur du paramètre linéaire :

$$b_1 = (701 \pm 31) \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-1} \quad (3.4.1)$$

la valeur de a_1 ayant été fixée à 70 s^{-1} (il s'agit de la valeur du taux de comptage affichée par le détecteur idler lorsqu'un piège à lumière est placé juste en entrée de la fibre microstructurée, et qui est très majoritairement due aux *dark counts* du détecteur).

Sur les points expérimentaux obtenus en régime impulsionnel, un ajustement polynomial d'ordre 2, de la forme $\mathcal{C}_1 = a_1 + b_1 P_{\text{out}} + c_1 P_{\text{out}}^2$, avec les paramètres a_1 et b_1 fixés à 70 s^{-1} et $701 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-1}$ respectivement, conduit à la valeur du paramètre quadratique :

$$c_1 = (44,5 \pm 1,4) \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-2} \quad (3.4.2)$$

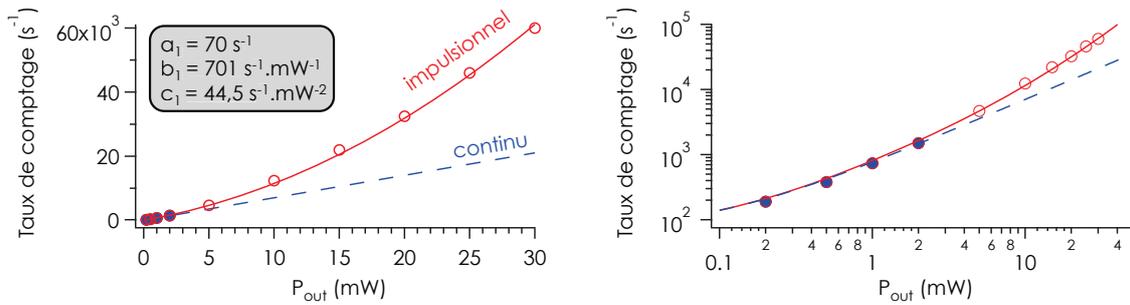


FIG. 3.4.3 – Évolutions du taux de comptage sur la voie idler en fonction de la puissance de pompe moyenne injectée dans la fibre à cœur liquide, en régime de pompe continue (ronds pleins et tirets bleus) et en régime de pompe impulsionnelle (ronds vides et trait plein rouge), en échelle linéaire (à gauche) et en échelle logarithmique (abscisses et ordonnées) (à droite). Les courbes en tirets et trait plein correspondent aux ajustements polynomiaux réalisés sur les points expérimentaux. Notons que pour les mesures réalisées en régime de pompe continue, nous nous sommes restrictes à des puissances de pompe inférieures à 2 mW pour ne pas risquer d'endommager la fibre (en particulier, de créer des bulles suite à un échauffement du liquide).

D'un point de vue qualitatif, la croissance quadratique du taux de comptage en régime impulsionnel est très nettement visible, tant en échelle linéaire qu'en échelle logarithmique. Il s'agit donc d'une signature très claire du processus de mélange à quatre ondes spontané. Avant d'aller plus loin et d'analyser *quantitativement* les résultats (voir parties 3.4.2.2 et 3.4.2.3 ci-après), il me semble indispensable de souligner le fait qu'il s'agit là de la **PREMIÈRE DÉMONSTRATION EXPÉRIMENTALE D'UN PROCESSUS DE MÉLANGE À QUATRE ONDES SPONTANÉ DANS UNE FIBRE À CŒUR LIQUIDE**. Ce point est loin d'être anodin, puisqu'il s'agit bien de la première porte *expérimentalement* ouverte vers l'obtention d'une source de paires de photons corrélés fibrée de très haute qualité quantique.

42. Je réserve une partie spécifique à cette étude car, comme nous allons le voir, cela va me permettre de monter comment certaines "mésaventures expérimentales" nous ont menés à établir une procédure d'optimisation plus aboutie, et donc plus performante, que celle que j'ai présentée jusqu'ici.

3.4.2.2 Comparaison avec la fibre à cœur de silice – Réduction du niveau de photons Raman

Le même type de mesures a été réalisé dans la fibre à cœur de silice RTI-1605-UV (présentée en Annexe A.1), dans la configuration de longueurs d’onde $\{\lambda_{p_0} = 834,00 \text{ nm} ; \lambda_{s_0} = 865,70 \text{ nm} ; \lambda_{i_0} = 804,60 \text{ nm}\}$. L’écart spectral paramétrique était alors, comme dans le cas de la fibre à cœur liquide, de l’ordre de 30 nm (et, puisque nous avons utilisé le jeu de fibres de collection multimodes, le taux de filtrage des photons de pompe était de l’ordre de 130 dB). Lorsque le laser de pompe Ti:Saphir était utilisé en régime impulsif, nous avons $T_0 = 0,8 \text{ ps}$ (comme précédemment). Deux différences sont malgré tout à noter :

- La première provient du fait que les mesures sur la fibre à cœur de silice ont été effectuées *sans les boîtes de protection*, qui ont été installées sur le montage ultérieurement (chronologiquement, les mesures sur la fibre à cœur de silice ont précédé de plusieurs mois celles réalisées sur la fibre à cœur liquide). En conséquence, le terme constant a_1 dans l’évolution du taux de comptage \mathcal{C}_1 avec P_{out} est bien plus élevé que le taux de *dark counts* du détecteur (ce qui n’est cependant pas gênant pour l’évaluation des paramètres linéaire et quadratique b_1 et c_1 , car le terme constant est loin d’être prédominant) ;
- Pour comprendre la seconde différence, il faut se rapporter à la courbe de densité spectrale de probabilité, coupe verticale de la carte de densité spectrale bidimensionnelle en $\lambda_{p_0} = 834,00 \text{ nm}$, que nous reproduisons en figure (3.4.4) ci-après. Pour la configuration de longueurs d’onde choisie, les photons paramétriques envoyés dans les voies d’analyse de notre montage de détection (à $\lambda_{s_0} = 865,70 \text{ nm}$ et $\lambda_{i_0} = 804,60 \text{ nm}$) n’ont pas été produits dans des pics latéraux d’accord de phase (qui sont d’ailleurs inexistant dans cette configuration), mais dans le lobe central (qui présente un plateau de densité de probabilité de génération maximale sur une plage spectrale très étendue – environ 60 nm de large). Ceci n’a pas d’influence importante sur le résultat obtenu, si ce n’est que le réglage des voies d’analyse est beaucoup moins critique : si, au lieu de régler la voie idler à 804,60 nm, je fais une erreur et la règle à 805 nm ou 806 nm par exemple, la densité spectrale de probabilité de génération paramétrique étant inchangée sur toute la bande passante de détection idler (qui a une largeur, rappelons-le, de l’ordre de 0,5 nm), nous ne verrons pas de différence sur l’évolution du taux de comptage avec P_{out} (si l’on néglige le fait que l’efficacité de filtrage des photons de pompe doit décroître à mesure que λ_{i_0} se rapproche de λ_{p_0}).

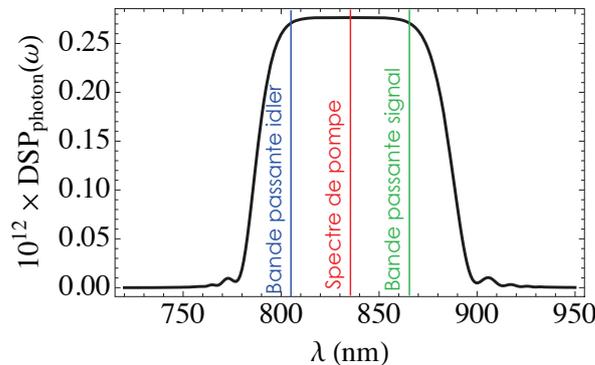


FIG. 3.4.4 – Densité spectrale de probabilité de génération d’un photon paramétrique dans la fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV, pour $\lambda_{p_0} = 834,0 \text{ nm}$, $T_0 = 0,8 \text{ ps}$ et $P_{\text{moy}} = 0,1 \text{ mW}$.

Les résultats sont présentés en figure (3.4.5). Comme précédemment, le paramètre constant a été déterminé expérimentalement : $a_1 \sim 7000 \text{ s}^{-1}$. Les ajustements polynomiaux (d'ordre 1 sur les données en continu, d'ordre 2 sur les données en impulsionnel) conduisent à :

$$b_1 = (903 \pm 4) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-1} \quad (3.4.3)$$

$$c_1 = (483 \pm 9) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-2} \quad (3.4.4)$$

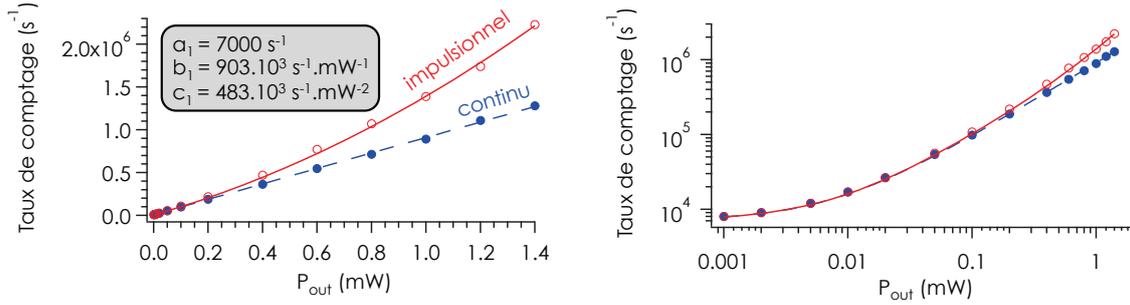


FIG. 3.4.5 – Évolutions du taux de comptage sur la voie idler en fonction de la puissance de pompe moyenne injectée dans la fibre à cœur de silice, en régime de pompe continue (ronds pleins et tirets bleus) et en régime de pompe impulsionnelle (ronds vides et trait plein rouge), en échelle linéaire (à gauche) et en échelle logarithmique (abscisses et ordonnées) (à droite). Les courbes en tirets et trait plein correspondent aux ajustements polynomiaux réalisés sur les points expérimentaux.

La première chose à constater est que le paramètre b_1 obtenu dans la fibre à cœur liquide (voir équation (3.4.1)) est plus de 1000 fois plus faible que celui que nous obtenons ici dans la fibre à cœur de silice. Ceci est une signature très claire du fait que **le niveau de photons Raman a été drastiquement réduit dans la fibre à cœur liquide**, d'environ trois ordres de grandeur. Ce résultat est extrêmement satisfaisant, car il s'agit de la mise en évidence expérimentale de l'intérêt d'utiliser une fibre à cœur liquide plutôt qu'une fibre à cœur de silice dans les réseaux de télécommunications quantiques. La réduction du niveau de photons Raman est intrinsèquement due aux propriétés Raman spécifiques des liquides, en particulier au fait que leur spectre Raman se présente sous la forme de raies très fines, dont il est donc possible de s'affranchir (soit en les rejetant en dehors de la bande de transmission de la fibre, soit en choisissant une configuration adéquate permettant de générer les paires de photons corrélés en dehors de ces raies Raman). Ce résultat, que nous avons établi sur l'exemple d'une fibre remplie d'acétone deutérée, est donc une **DÉMONSTRATION EXPÉRIMENTALE TRÈS GÉNÉRALE DE L'INTÉRÊT DE L'ARCHITECTURE FIBRÉE À CŒUR LIQUIDE POUR LES RÉSEAUX DE TÉLÉCOMMUNICATIONS QUANTIQUES**.

Intéressons-nous maintenant à la génération de paires de photons corrélés en tant que telle. Nous constatons que le paramètre c_1 obtenu dans la fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée (voir équation (3.4.2)) a lui aussi subi une forte réduction par rapport à la valeur que nous obtenons ici dans la fibre à cœur de silice, de plus d'un facteur 10 000. Une réduction était effectivement à prévoir, puisque le coefficient non linéaire de notre fibre à cœur liquide est plus faible (d'un facteur de l'ordre de 4) que celui de la fibre à cœur de silice (voir Annexe A), mais l'ampleur de cette réduction paraît plus forte qu'attendu. Pour aborder ce point de manière un peu plus quantitative, nous allons comparer les résultats expérimentaux aux prévisions fournies par le modèle analytique du Chapitre 2.

3.4.2.3 Comparaison avec le modèle analytique

D'après l'équation (2.5.17) établie au Chapitre 2, nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} c_1^{(\text{simu})} &= \Gamma \eta_1 p_{\text{idler}}^{(\omega_{i_0}; \Delta\omega_i)} \\ &= \Gamma \eta_1 \int_{\omega_{i_0} - \frac{\Delta\omega_i}{2}}^{\omega_{i_0} + \frac{\Delta\omega_i}{2}} DSP_{\text{photon}}(\omega) d\omega \end{aligned} \quad (3.4.5)$$

Ainsi, nous sommes capables d'estimer le taux de comptage attendu sur la voie idler dû aux photons paramétriques générés par mélange à quatre ondes spontanée dans la bande passante de détection idler, et donc de donner une estimation $c_1^{(\text{simu})}$ du paramètre quadratique de la croissance du taux de comptage avec la puissance de pompe. Pour les simulations, nous avons fixé :

- $T_0 = 0,8$ ps ;
- $P_{\text{out}} = 1$ mW ;
- $\Delta\lambda_i = 0,5$ nm ;
- $\eta_1 = 8\%$ pour la fibre à cœur de silice, $\eta_1 = 2\%$ pour la fibre à cœur liquide⁴³ ;
- $\Gamma = 80$ MHz.

Dans le cas de la fibre à cœur de silice, nous avons de plus imposé $\lambda_{p_0} = 834,0$ nm et $\lambda_{i_0} = 854,6$ nm, pour être en conformité avec nos conditions expérimentales. Alors, nous obtenons :

$$c_{1,\text{silice}}^{(\text{simu})} = 1,0 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-2} \quad (3.4.6)$$

Ce résultat est assez satisfaisant, car il est en bon accord, en ordre de grandeur, avec la valeur obtenue expérimentalement : $c_1 = 483 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-2}$ (seul un facteur 2 sépare ces deux valeurs, ce qui est très correct dans le cadre d'un modèle analytique et compte tenu des incertitudes que nous avons sur les valeurs de η_1 et $\Delta\lambda_i$ en particulier).

Dans le cas de la fibre à cœur liquide, nous avons imposé $\lambda_{p_0} = 885,5$ nm, et avons choisi la valeur de λ_{i_0} qui coïncide avec le maximum du pic latéral idler calculé à l'aide du modèle analytique (861,3 nm). Rappelons qu'en pratique nous avons montré que la valeur optimale était décalée de plusieurs nanomètres par rapport à celle annoncée par la simulation (857,0 nm au lieu de 861,3 nm). Nous obtenons alors :

$$c_{1,\text{liquide}}^{(\text{simu})} = 3,9 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-2} \quad (3.4.7)$$

Ainsi, $c_{1,\text{liquide}}^{(\text{simu})}$ est environ 250 fois plus faible que $c_{1,\text{silice}}^{(\text{simu})}$, alors qu'expérimentalement nous obtenons un facteur de l'ordre de 10^4 entre les deux paramètres c_1 . La valeur expérimentale de c_1 dans la fibre à cœur liquide est environ 100 fois plus faible que celle annoncée par la simulation. Autrement dit, l'efficacité non linéaire est environ 100 fois plus faible que ce que nous pouvions attendre d'après les simulations. L'origine de cet écart important reste pour l'instant indéterminée, bien que plusieurs "pistes" soient envisagées :

43. Je rappelle que les résultats présentés dans le cas de la fibre à cœur de silice ont été obtenus avec le jeu de fibres de collection multimodes, tandis que pour la fibre à cœur liquide nous avons utilisé les fibres monomodes.

- La première serait que, contrairement à ce que nous pensions, nous ne nous soyons pas placés au maximum du pic latéral de densité de probabilité de génération paramétrique, mais sur un maximum local secondaire (éventuellement un “rebond” dû à l’évolution de la densité spectrale de probabilité en sinus cardinal au carré). Ce problème n’aurait pas été rencontré dans la fibre à cœur de silice du fait que nous ayons travaillé dans le lobe central plutôt que sur les pics latéraux (voir figure (3.4.4)). Cette hypothèse semble cependant assez bien contredite par l’allure de la courbe de c_1 en fonction de λ_{p_0} que nous avons présentée en figure (3.4.2), qui suit bien un profil gaussien de largeur de l’ordre de 2 nm (ce qui est cohérent avec les simulations) ;
- La seconde hypothèse concerne les inhomogénéités de microstructuration de la fibre sur toute sa longueur (qui est de l’ordre du mètre). Ces inhomogénéités, intrinsèquement liées aux techniques de tirage des fibres microstructurées, pourraient être responsables d’une forte réduction de la longueur effective d’interaction pour le mélange à quatre ondes et/ou d’une allure plus complexe de la carte de densité spectrale de probabilité de génération (avec une subdivision des pics d’accord de phase en pics secondaires de plus faible intensité). Notre modèle analytique ne prend pas en compte ces éventuelles inhomogénéités structurales de la fibre. Notons que si l’impact de telles inhomogénéités ne semble pas se faire sentir dans le cas de notre fibre à cœur de silice, cela peut être simplement dû au fait que celle-ci est bien moins dispersive que la fibre à cœur liquide (et qu’il faudrait donc des inhomogénéités bien plus fortes pour avoir un effet de la même ampleur que ce qui est observé dans la fibre à cœur liquide).

Plus généralement, si, quelle qu’en soit l’origine, la longueur effective d’interaction pour le mélange à quatre ondes est réduite, nous devrions pouvoir le mettre en évidence en réitérant les séries de mesure précédentes avec une fibre à cœur liquide plus courte. Puisque l’efficacité non linéaire semble réduite d’un facteur ~ 100 par rapport aux simulations, cela correspond à une longueur effective d’interaction environ 10 fois plus faible que la longueur physique de la fibre actuelle ($L_{\text{fibre}} = 1,05$ m). Ainsi, en prenant une fibre de 10 cm de longueur, nous devrions pouvoir obtenir la même efficacité non linéaire qu’avec la fibre initiale de 1,05 m, tout en réduisant le taux de diffusion Raman spontanée d’un facteur 10 environ.

Les investigations concernant l’écart entre l’expérience et les simulations en terme d’efficacité de génération des paires sont actuellement en cours. Fort heureusement, cette réduction de l’efficacité non linéaire n’est pas rédhibitoire pour l’observation du processus de mélange à quatre ondes, ni (comme nous le verrons dans la sous-section 3.4.3) pour l’observation des corrélations temporelles entre les voies d’analyse signal et idler. L’inconvénient principal est avant tout que cette fibre HC-1550-PM-01 remplie d’acétone deutérée ne va finalement pas nous permettre de mettre en évidence une réelle augmentation du “rapport signal à bruit” de notre source de paires de photons corrélés par rapport aux sources fibrées à cœur de silice. Mais, puisque ce comportement est très probablement lié à la fibre à cœur liquide étudiée en elle-même, et non pas à l’architecture “fibre à cœur liquide” dans sa généralité, un autre choix de géométrie de microstructuration et/ou de liquide devrait pouvoir permettre de s’affranchir de ce problème (par exemple, en s’arrangeant pour avoir une fibre globalement moins dispersive, ou en utilisant un liquide d’indice de réfraction non linéaire n_2 bien plus fort⁴⁴...).

44. Certains liquides ont des n_2 extrêmement élevés. Le CS_2 (disulfure de carbone), par exemple, possède un n_2 environ 200 fois plus fort que celui de la silice.

3.4.2.4 Cas de la voie signal – Mise en évidence de la sensibilité du système à la température

Après avoir étudié l'évolution du taux de comptage sur la voie idler réglée à 857,00 nm (pour une pompe à 885,50 nm), nous avons réglé la voie d'analyse signal à $\lambda_{s_0} = 915,95$ nm (conformément à la condition de conservation de l'énergie) et effectué les mêmes mesures que sur la voie idler. Il est important de noter, cependant, que ces deux séries de mesures (voie idler et voie signal) n'ont pas été acquises simultanément, mais à quelques jours d'intervalle. La conséquence de cela est que les résultats obtenus sur la voie signal sont loin d'être aussi concluants que ceux obtenus sur la voie idler : le coefficient quadratique c_2 est bien plus faible que son équivalent sur la voie idler c_1 (de l'ordre de $5 \text{ s}^{-1}.\text{mW}^{-2}$ seulement).

Ce résultat est très certainement dû à la grande sensibilité de la courbe d'accord de phase de notre fibre à cœur liquide à la température : une variation de quelques °C de la température de la salle peut induire un décalage de plusieurs nanomètres de la courbe d'accord de phase, de sorte que la configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p_0} = 885,50 \text{ nm} ; \lambda_{s_0} = 915,95 \text{ nm} ; \lambda_{i_0} = 857,00 \text{ nm}\}$ (qui satisfait toujours la conservation de l'énergie) ne respecte plus la condition d'accord de phase.

Ceci a été confirmé par le fait que nous avons malgré tout réussi à trouver une longueur d'onde de pompe ($\lambda_{p_0} \sim 889 \text{ nm}$) permettant d'obtenir une valeur de c_2 proche de la valeur de c_1 démontrée précédemment ($c_2 \sim 37 \text{ s}^{-1}.\text{mW}^{-2}$). La courbe d'accord de phase semble donc avoir subi un décalage de 4 à 5 nm en abscisses par rapport au jour où ont été effectuées les mesures sur la voie idler.

Ce résultat est doublement intéressant : d'une part, il nous met en garde sur l'importance de travailler dans des conditions de température stables, avec des variations inférieures à 1°C typiquement. D'autre part, il met en évidence la possibilité d'*optimiser la détection des paires de photons corrélés en jouant sur un paramètre unique et continument variable* : si la configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p_0} ; \lambda_{s_0} ; \lambda_{i_0}\}$ choisie respecte la conservation de l'énergie et n'est pas "trop éloignée" de la condition d'accord de phase, un simple ajustement de la température du système doit pouvoir permettre de décaler la courbe d'accord de phase de sorte à la faire coïncider avec la configuration de longueurs d'onde choisie. Cette technique a été employée, comme nous allons le voir dans la sous-section suivante 3.4.3, pour optimiser la détection des coïncidences temporelles (c'est-à-dire la détection des paires de photons corrélés) entre les deux voies d'analyse.

3.4.3 Mise en évidence de la génération de paires de photons par la mesure des corrélations temporelles

Nous avons démontré (partie 3.4.2.2) que le processus de mélange à quatre ondes spontané avait bien lieu dans notre fibre à cœur liquide, en détectant les photons paramétriques générés avec une efficacité croissant quadratiquement avec la puissance de pompe. Cependant, nous n'avons pas, jusqu'à présent, étudié *simultanément* les deux voies d'analyse, et en particulier nous n'avons donc pas démontré la propriété de corrélation temporelle qui existe entre les deux photons d'une même paire (c'est-à-dire leur simultanéité d'émission lors du processus de mélange à quatre ondes), qui fait pourtant tout l'intérêt de ce type d'objet en vue d'applications dans le domaine des télécommunications quantiques. C'est la démonstration expérimentale à laquelle je m'attache dans cette dernière sous-section.

Comme expliqué dans la sous-section 3.3.2 du présent chapitre, l'association des deux détecteurs de photons uniques au dispositif électronique *Time-to-Digital Converter* nous permet

de mesurer les corrélations temporelles de détection entre les deux voies d'analyse, et donc de mettre en évidence, le cas échéant, la présence de paires de photons temporellement corrélés dans ces deux voies. Cette présence se traduira par une plus forte probabilité de détections *simultanées* (ou *en coïncidence*) sur les deux voies, et donc par la prédominance, dans l'histogramme des corrélations temporelles, d'un pic situé autour de l'écart temporel nul (appelé *pic de coïncidences*). Pour plus de précisions, je renvoie le lecteur à la partie 3.3.2.3, où la construction et les caractéristiques des histogrammes de corrélations temporelles sont décrites en détails.

L'histogramme que je présente en figure (3.4.6) a été obtenu dans les conditions expérimentales suivantes :

- Configuration de longueurs d'onde : $\{\lambda_{p_0} = 885,50 \text{ nm} ; \lambda_{s_0} = 915,95 \text{ nm} ; \lambda_{i_0} = 857,00 \text{ nm}\}$;
- Puissance de pompe moyenne injectée dans la fibre à cœur liquide : $P_{\text{out}} = 2,8 \text{ mW}$;
- Durée des impulsions de pompe : $T_0 \sim 1 \text{ ps}$;
- Température de la salle : $T^\circ = 21,6^\circ\text{C}$;
- Fibres de collection : Monomodes (diamètre de cœur égal à $9 \mu\text{m}$) ;
- Durée d'acquisition : $\Delta T_{\text{acq}} \sim 300 \text{ s}$.

Je rappelle par ailleurs que le faisceau de pompe délivré par le laser Ti:Saphir est linéairement polarisé, et que nous orientons cette direction de polarisation parallèlement à l'un des deux axes neutres moyens de la fibre à cœur liquide. La température a été ajustée finement de sorte à maximiser la prédominance du pic de coïncidences par rapport aux pics secondaires.

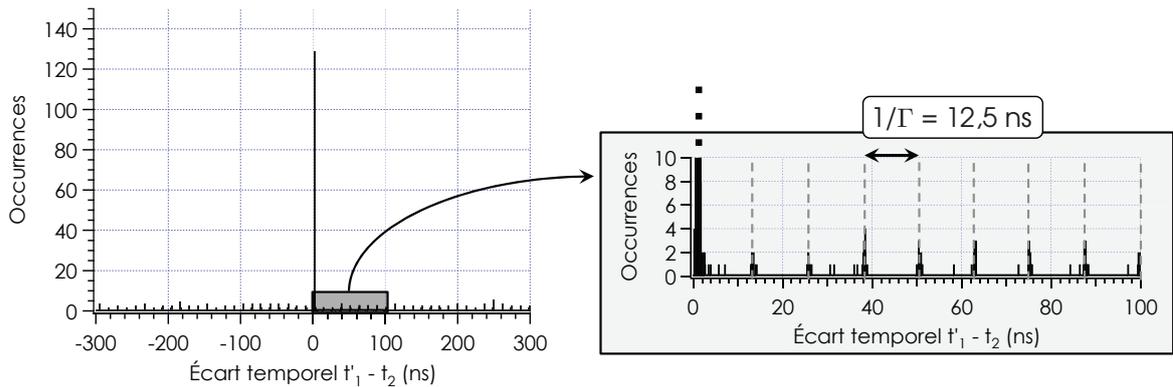


FIG. 3.4.6 – Histogramme des corrélations temporelles obtenu avec notre fibre à cœur liquide dans la configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p_0} = 885,50 \text{ nm} ; \lambda_{s_0} = 915,95 \text{ nm} ; \lambda_{i_0} = 857,00 \text{ nm}\}$, après optimisation (en particulier) de la température. La largeur des barres de l'histogramme est prise égale à $0,05 \text{ ns}$, ce qui est très inférieur tant à la gigue temporelle des détecteurs ($\sim 2,5 \text{ ns}$) qu'à la période de répétition du laser Ti:Saphir ($12,5 \text{ ns}$).

Dans cet histogramme, nous dénombrons :

- $N_{\text{TOT}} = 2031$ occurrences au total, ce qui est cohérent avec la relation (3.3.8) puisque durant l'acquisition de l'histogramme les taux de comptage valaient $\mathcal{C}_1 = (2100 \pm 100) \text{ s}^{-1}$ et $\mathcal{C}_2 = (5850 \pm 150) \text{ s}^{-1}$ ⁴⁵ ;
- dont $N_{\text{pic coïnc.}} = 1068$ occurrences dans le pic de coïncidences ;
- et $N_{\text{pic second.}} = 17$ occurrences par pic secondaire en moyenne.

⁴⁵. Ces valeurs conduisent en effet à $N_{\text{TOT}} = (2145 \pm 244) \text{ s}^{-1}$, en notant que la durée d'acquisition n'est malheureusement connue qu'à 10% près pour cette mesure, et constitue donc la principale source d'incertitude. Rappelons que $f_{\text{CLK}} = 2,5 \text{ MHz}$, $\Delta T_{\text{TDC},\text{min}} = 6 \text{ ns}$ et $\Delta T_{\text{TDC},\text{max}} = 500 \text{ ns}$.

La prédominance du pic de coïncidences devant les pics secondaires est très nette : dans l'ensemble de l'histogramme (qui s'étend sur une plage de 600 ns de large environ), plus de la moitié des occurrences sont venues s'accumuler dans le pic de coïncidences (de largeur de l'ordre de 2,5 ns à cause de la gigue temporelle des détecteurs). Nous pouvons également remarquer (en particulier sur le zoom présenté sur la partie de droite de la figure (3.4.6)) que le nombre d'occurrences *entre les pics* est extrêmement faible, signifiant la bonne efficacité de notre montage en ce qui concerne la suppression des photons de bruit non synchrones avec les impulsions de pompe.

Comme je l'expliquais dans la conclusion de la section 3.3, le rapport entre le nombre d'occurrences dans le pic de coïncidences et le nombre moyen d'occurrences dans un pic secondaire nous renseigne sur la qualité quantique de la source (autrement dit sur la pureté de génération des paires de photons corrélés), puisque la présence de photons Raman aura tendance à faire augmenter $N_{\text{pic second.}}$ et $N_{\text{pic coïnc.}}$ de la même quantité absolue, et donc à réduire le rapport $N_{\text{pic coïnc.}}/N_{\text{pic second.}}$. Dans la littérature, ce rapport est usuellement dénommé *Coincident-to-Accidental Ratio* (CAR), car il représente le rapport entre le nombre total de coïncidences et le nombre de “fausses” coïncidences, ou coïncidences “accidentelles”, dues à deux détections simultanées ne provenant pas des deux photons d'une même paire⁴⁶. En effet, statistiquement, parmi la totalité des coïncidences mesurées (c'est-à-dire parmi les occurrences contenues dans le pic de coïncidences), il y aura autant de coïncidences accidentelles que le nombre d'occurrences contenues dans un pic secondaires. Les autres coïncidences sont les “vraies” coïncidences, celles qui sont dues à deux photons paramétriques issus d'une même paire.

Dans le cas de l'histogramme présenté en figure (3.4.6), nous obtenons :

$$\boxed{\text{CAR} = \frac{N_{\text{pic coïnc.}}}{N_{\text{pic second.}}} = 63} \quad (3.4.8)$$

Du point de vue de l'expérimentateur qui admet que les deux photons d'une même paire générée par mélange à quatre ondes sont émis simultanément (puisque'il l'a *appris* ainsi), ce CAR nettement supérieur à 1 montre que les deux voies d'analyse sont bien réglées pour respecter la condition d'accord de phase à la longueur d'onde de pompe utilisée (au moins en première approximation).

Du point de vue du théoricien qui admet que les voies d'analyse étaient réglées à l'accord de phase (puisque'on le *voulait* ainsi), ce CAR supérieur à 1 est une preuve de la propriété de corrélation temporelle portée par les deux photons générés lors du processus de mélange à quatre ondes.

Plus généralement (et plus sérieusement), ce résultat met en évidence que nous avons réussi à concevoir un système permettant de générer et de détecter des paires de photons temporellement corrélés. Les performances de ce système global (c'est-à-dire de l'ensemble {source fibrée à cœur liquide + montage de détection}) peuvent être quantifiées par la valeur du CAR. La valeur obtenue ici montre que 98,4% des coïncidences sont des *vraies* coïncidences. Cette valeur est globalement satisfaisante, car elle est au minimum du même ordre de grandeur que celles que nous pouvons trouver dans la littérature pour des sources de paires de photons corrélés fibrées à cœur de silice (microstructurées ou non), du moins tant que le système est étudié à température ambiante [76–79].

⁴⁶. Une coïncidence accidentelle peut être obtenue, par exemple, si deux photons de bruit sont détectés, par hasard, au même instant sur les deux détecteurs. Ou encore un photon de bruit et un *dark count*, un photon paramétrique et un photon de bruit, etc.

Notons cependant que nous espérons obtenir un CAR beaucoup plus élevé, grâce à la suppression (ou du moins la très forte réduction) des photons Raman dans notre fibre à cœur liquide. Si nous n’obtenons pas mieux, cela est simplement dû au fait que l’efficacité non linéaire α , elle aussi, été réduite (et d’un facteur bien plus important que ce que laissent espérer nos simulations), comme je l’ai mentionné dans la partie 3.4.2.3 ci-avant. J’en profite pour rappeler que l’origine de cette réduction de l’efficacité non linéaire est actuellement en cours d’investigation, et que, par ailleurs, ce problème est très probablement intrinsèquement lié à l’association {géométrie de microstructuration + liquide} que nous avons choisie : l’utilisation d’une autre fibre microstructurée à cœur creux et/ou d’un autre liquide de remplissage, qui conduirait par exemple à une fibre à cœur liquide moins dispersive et/ou plus non linéaire (c’est-à-dire avec un coefficient non linéaire γ plus élevé), pourrait permettre de s’affranchir de ce problème, et conduire ainsi à des CAR bien plus forts.

3.4.4 Conclusion

Pour conclure ce dernier chapitre, et avant de tirer un bilan plus complet du travail réalisé et des perspectives qui sont aujourd’hui ouvertes, j’aimerais préciser que l’histogramme que je viens de présenter est le résultat d’optimisations qui ont sans doute poussé notre montage actuel jusqu’à ses limites de performances (en termes d’efficacité de génération et de détection des paires, d’efficacité de filtrage du bruit, de stabilité mécanique du montage, de stabilité du laser de pompe Ti:Saphir, etc.). De nombreuses voies d’amélioration sont envisageables (que j’évoquerai dans la partie “Bilan & Perspectives”). Mais quoi qu’il en soit, le montage actuel nous a permis :

- de faire la première démonstration expérimentale de génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes spontané dans une fibre microstructurée à cœur liquide ;
- de mettre en évidence expérimentalement la possibilité offerte par cette architecture hybride de s’affranchir du processus de diffusion Raman spontanée, qui est la limitation principale des sources de paires de photons corrélés fibrées à cœur de silice.

Ces démonstrations expérimentales constituent des preuves de principe, qui ouvrent maintenant la voie au développement de sources de paires de photons corrélés fibrées compactes et de haute qualité quantique.

Bilan & Perspectives

Sommaire

Vers une source de paires de photons corrélés compacte et de très haute qualité quantique	143
Voies d'améliorations du dispositif & Études en cours	144
Vers l'intrication des paires	146

Vers une source de paires de photons corrélés compacte et de très haute qualité quantique

Le travail de recherche présenté dans ce manuscrit s'inscrit dans le cadre de l'amélioration de la qualité quantique des sources de paires de photons corrélés fibrées pour les télécommunications quantiques. La principale limitation des sources fibrées à cœur de silice est due au processus de diffusion Raman spontanée, qui est à l'origine de la génération de photons de bruit non corrélés. Le spectre de gain Raman de la silice étant très large, une partie de ces photons Raman est nécessairement générée aux mêmes longueurs d'onde que les paires de photons corrélés utiles, et ne peut donc pas être filtrée en sortie de la source.

L'idée que nous avons proposée pour nous affranchir de ces photons de bruit tout en gardant un dispositif fibré, compact et simple de mise en œuvre consiste à remplacer le cœur de silice par un cœur liquide, et de tirer profit des propriétés Raman particulières des liquides. Contrairement à la silice (dont le spectre Raman est très large), les liquides présentent en général un spectre de gain Raman constitué de raies très fines, et avec un décalage Raman relativement important. Ainsi, si l'on part d'une fibre microstructurée à cœur creux et qu'on la remplit d'un liquide non linéaire, en choisissant de manière adéquate la géométrie de la microstructuration et l'indice de réfraction linéaire du liquide, il est possible d'une part de rejeter les raies Raman principales du liquide en dehors de la bande de transmission de la fibre (donc de s'affranchir de la majeure partie des photons Raman potentiels), et d'autre part de générer les paires de photons corrélés en dehors des raies Raman secondaires qui restent incluses dans la bande de transmission (les photons Raman dus à ces raies secondaires sont générés à des longueurs d'onde bien différentes de celles des paires de photons corrélés, et peuvent donc être filtrés en sortie de la source). Cette technique devait donc nous permettre de réduire drastiquement le niveau de bruit de la source de paires de photons. Nous en avons fait la démonstration expérimentale à l'aide d'une fibre microstructurée à cœur creux HC-1550-PM-01 de chez *NKT Photonics* (de 1 m de long) remplie d'acétone deutérée.

Cette démonstration expérimentale a été réalisée en mesurant l'évolution du taux de génération des paires de photons corrélés en fonction de la puissance de pompe injectée dans la fibre à cœur liquide, et en comparant cette évolution à celle obtenue (avec le même montage de détection) dans le cas d'une fibre microstructurée à cœur de silice. Nous avons montré qu'il était effectivement possible de générer les paires en dehors des raies Raman de l'acétone deutérée, et que la contribution des photons Raman était alors réduite d'environ trois ordres de grandeur par rapport au cas de la fibre à cœur de silice.

Par ailleurs, la mesure des corrélations temporelles entre les voies d'analyse signal et idler de notre montage de détection conduit à un CAR (*Coincident-to-Accidental Ratio*) de plus de 60. Ce rapport, qui permet de quantifier à la fois la qualité quantique de la source et les performances du système de détection, est au moins du même ordre de grandeur que ce que nous pouvons trouver dans la littérature dans le cas de sources fibrées à cœur de silice. Ce résultat, bien qu'encourageant, est moins bon que ce que nous attendions : en réduisant le niveau de photons Raman d'environ un facteur 1000 et en gardant une efficacité de génération des paires du même ordre de grandeur que dans une fibre à cœur de silice, nous espérions augmenter le CAR de plusieurs ordres de grandeur.

En comparant nos résultats expérimentaux avec les simulations réalisées à partir du modèle analytique présenté au Chapitre 2 de ce manuscrit, nous avons constaté que l'efficacité de génération des paires était en pratique réduite d'environ deux ordres de grandeur par rapport

à ce qu'annonçaient les simulations. L'origine de cette réduction "inattendue" de l'efficacité non linéaire est actuellement en cours d'investigation (j'en reparlerai un peu plus loin, lorsque j'aborderai les études expérimentales actuelles ou programmées à court terme). Il est à noter cependant que ce problème n'est sans doute pas intrinsèquement dû à l'architecture hybride (fibre microstructurée à cœur liquide) en tant que telle, mais bien aux caractéristiques propres de la fibre que nous avons utilisée, et que l'utilisation d'une autre fibre à cœur creux et/ou d'un autre liquide doit pouvoir permettre de s'en affranchir.

Le modèle analytique que je viens d'évoquer a été développé dans le but de prédire de manière quantitative les performances de notre source en termes de taux de génération des paires et de propriétés spectrales des paires émises. Ce modèle est basé sur la description quantique du processus de mélange à quatre ondes spontané en régime de pompe impulsienne et de très faible gain non linéaire, et a été validé avec les résultats expérimentaux obtenus dans la fibre à cœur de silice RTI-1605-UV. Au-delà de nous permettre d'identifier le problème de la réduction de l'efficacité non linéaire dans notre fibre à cœur liquide, ce modèle nous a été d'une aide précieuse pour la conception et le réglage du montage de détection des paires en sortie de la fibre à cœur liquide.

L'ensemble des résultats obtenus au cours de ce travail de thèse constitue la première démonstration expérimentale de génération de paires de photons corrélés dans une fibre à cœur liquide, et nous a conduits à mettre en évidence la possibilité de s'affranchir du processus de diffusion Raman spontanée, à l'origine de la majeure partie du bruit dans les sources de paires de photons corrélés fibrées à cœur de silice. Ces premiers résultats ouvrent donc la voie à la réalisation de sources de paires de photons corrélés compactes et de haute qualité quantique qui pourront être mises à profit en particulier dans le domaine des télécommunications quantiques.

Voies d'améliorations du dispositif & Études en cours

Le perfectionnement du dispositif peut être mené selon plusieurs axes. À court terme, une amélioration des performances du montage de détection peut être obtenue en optimisant le choix des composants optiques utilisés : il s'agit de maximiser la réflectivité ou la transmission de ces composants (réseaux de diffraction, miroirs, lentille d'imagerie, objectif de microscope), en particulier par des traitements de surface optimisés pour nos longueurs d'onde de travail. L'utilisation de supports d'injection dans les fibres de collection plus sophistiqués, permettant en particulier un réglage fin en inclinaison (θ et ϕ), en translation (x et y) et en focalisation (z), conduirait à une minimisation accrue des pertes de couplage dans ces fibres de collection.

En ce qui concerne la fibre à cœur liquide en tant que telle, un nouveau système de micro-cuves, développé récemment au sein du groupe MANOLIA, pourrait remplacer les deux cuves de remplissage utilisées actuellement, et accroître significativement la compacité et la stabilité de l'ensemble du dispositif.

Enfin, la question qui est actuellement à l'étude concerne l'origine de la réduction inattendue de l'efficacité de génération des paires de photons corrélés dans notre fibre HC-1550-PM-01 de 1 m de long remplie d'acétone deutérée. Au-delà même de simplement identifier l'origine de ce problème, il s'agit de répondre à la question très générale : "Quelle fibre (type de microstructuration, aire effective, longueur, dispersion) et quel liquide doit-on choisir pour maximiser les performances de la source ?" Le choix du liquide nécessite de prendre en compte à la fois ses propriétés optiques (indices de réfraction linéaire et non linéaire) et ses propriétés physico-

chimiques (viscosité, volatilité, toxicité...), de sorte à ce que le dispositif soit optimisé tant en terme de génération des paires que de simplicité et sécurité de mise en œuvre.

Comme je l'ai précisé au Chapitre 3, les inhomogénéités de la microstructuration sur toute la longueur de la fibre sont une cause potentielle de réduction de l'efficacité de génération des paires. Ces inhomogénéités, inhérentes aux techniques de tirage des fibres microstructurées, peuvent être responsables d'une forte réduction de la longueur effective d'interaction non linéaire pour le mélange à quatre ondes, en particulier dans une fibre assez fortement dispersive (comme c'est le cas de notre fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée). La comparaison de nos résultats expérimentaux avec les simulations réalisées à partir de notre modèle analytique (qui ne prend pas en compte une éventuelle réduction de la longueur d'interaction pour le mélange à quatre ondes par rapport à la longueur physique de la fibre) suggère que la longueur d'interaction est environ 10 fois plus faible que la longueur de la fibre. Ce point pourrait être facilement vérifié en réitérant nos expériences de génération de paires à partir d'une fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée dont la longueur serait de l'ordre de 10 cm seulement. Cette vérification est programmée à court terme.

Auparavant cependant, des séries de mesures systématiques sont en cours de réalisation, qui doivent nous permettre d'estimer la robustesse de notre dispositif (c'est-à-dire la stabilité de ses performances lorsqu'on fait varier différents paramètres, comme la température, la durée et l'énergie des impulsions de pompe, la longueur d'onde de pompe, etc.) et de déterminer son point de fonctionnement optimal. Par exemple, la mesure du CAR en fonction de la puissance de pompe injectée dans la fibre a déjà permis de montrer qu'il existe une valeur optimale de la puissance de pompe permettant de maximiser ce rapport (voir figure (BP.1)) :

- Pour des puissances plus faibles, le CAR diminue car les performances de détection sont intrinsèquement limitées par le niveau de *dark counts* des détecteurs, qui devient de moins en moins négligeable à mesure que nous faisons diminuer la puissance de pompe (et donc le taux de génération des paires). Il s'agit donc là d'une limitation exclusivement due au montage de détection, et non pas à la source en elle-même ;
- Pour des puissances plus élevées, le CAR subit une décroissance dont l'origine est sans doute attribuable à la fois aux performances du montage de détection (en particulier au niveau de pertes dans les deux bras du spectromètre) et à la qualité de la source (la génération de paires multiples, qui est susceptible de survenir si l'on augmente trop la puissance de pompe, induira nécessairement une diminution du CAR).

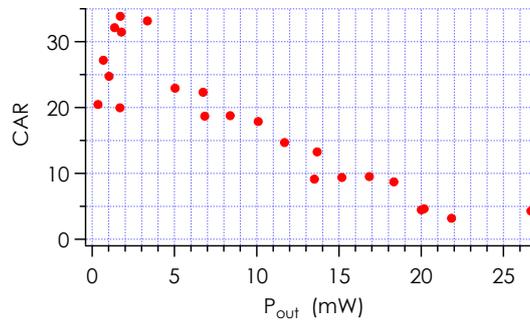


FIG. BP.1 – Première mesure de l'évolution du CAR en fonction de P_{out} , réalisée dans la configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p0} = 885,5 \text{ nm} ; \lambda_{s0} = 915,4 \text{ nm} ; \lambda_{i0} = 857,5 \text{ nm}\}$, des durées d'impulsions de l'ordre de $0,8 \text{ ps}$, et une température de $(21,5 \pm 0,2)^\circ \text{C}$.

L'influence de l'état de polarisation du faisceau pompe, ainsi que la possibilité de mettre à profit des configurations d'accord de phase en polarisations croisées (c'est-à-dire de générer les paires de photons corrélés sur un état de polarisation orthogonal à celui du faisceau de pompe), sont également en cours d'étude. Des mesures préliminaires ont déjà montré que, dans le cas de notre fibre HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée, l'efficacité du processus non linéaire en polarisations croisées n'était pas complètement négligeable (bien que beaucoup plus faible qu'en polarisations parallèles). Suivant l'application visée¹, il pourra être souhaitable d'exalter, ou au contraire d'inhiber, l'efficacité non linéaire en polarisations croisées, ce qui influencera le choix de la géométrie de microstructuration et du liquide non linéaire.

Vers l'intrication des paires

Le développement d'une source de paires de photons corrélés n'est en général que la première étape vers la réalisation d'une source de paires de photons *intriqués* : ce sont en effet ces objets particuliers, dont les propriétés semblent défier l'intuition, qui sont exploités tant dans le cadre de tests fondamentaux de la mécanique quantique (violation des inégalités de Bell pour démontrer la complétude du formalisme de la mécanique quantique) que dans celui du traitement et de la communication de l'information quantique (cryptographie quantique, calcul quantique, téléportation quantique, etc.).

L'intrication quantique se réfère à l'état d'un système constitué de deux sous-systèmes (ou plus) qui ne peuvent être décrits que dans leur ensemble, et non pas de manière individuelle : *la description du système ne peut s'exprimer comme l'ensemble des descriptions individuelles des sous-systèmes qui le constituent*. Mathématiquement, cela signifie que l'état $|\psi\rangle$ du système global ne peut être décrit comme le produit tensoriel de deux états $|\phi_1\rangle$ et $|\phi_2\rangle$ décrivant respectivement le premier et le second sous-systèmes². Pour le lecteur qui, comme moi, serait "non-quanticien", les concepts de base (mathématiques et historiques) permettant de comprendre plus précisément ce qu'est un état intriqué sont présentés en Annexe D.

Nous disposons actuellement d'un montage permettant de générer des paires de photons corrélés *non intriqués*. En effet, l'état quantique $|\psi_{\text{paire}}\rangle$ de la paire générée est parfaitement déterminé (fixé par les conditions expérimentales) et non pas en superposition de deux états quantiques distincts. Pour que les photons de la paire générée soient *intriqués*, **il faut produire cette paire dans une superposition d'états quantiques** :

$$\boxed{\text{INTRICATION} = \text{CORRÉLATION} \otimes \text{SUPERPOSITION}}$$

Conceptuellement, le principe est assez simple : il suffit que la paire de photons de pompe qui s'annihilent pour créer la paire de photons signal et idler par mélange à quatre ondes soit elle-même dans une superposition d'états quantiques. Comment réaliser cela ?

En pratique, la paire de photons de pompe est issue d'une impulsion de pompe qui possède certaines propriétés bien déterminées, comme par exemple son état de polarisation ou son instant d'entrée dans le milieu non linéaire. Si l'on est capable de séparer cette impulsion

1. Comme nous allons le voir dans la section suivante, notre source de paires de photons corrélés peut être mise à profit pour générer des paires de photons *intriqués*. Suivant le schéma d'intrication choisi, le fait d'avoir une efficacité non linéaire non nulle en polarisations croisées peut être un avantage ou un inconvénient (ou même n'avoir aucune influence).

2. Rappelons (voir Annexe B.1) qu'en mécanique quantique tout système physique peut être décrit par un vecteur d'état contenant toute l'information sur le système.

de pompe en deux impulsions filles (disons pour simplifier d'intensité identique, c'est-à-dire contenant chacune le même nombre de photons de pompe) possédant, par exemple, deux états de polarisation orthogonaux (disons $|H\rangle$ et $|V\rangle$) ou deux instants d'entrée dans le milieu non linéaire différents (disons $|t_0\rangle$ et $|t_1\rangle = |t_0 + \Delta T\rangle$), alors, si une paire est effectivement générée, il y aura 50% de chances que la paire de photons de pompe annihilés soit issue de l'impulsion fille 1, et 50% de chances qu'elle soit issue de l'impulsion fille 2. Son état quantique est donc de la forme :

$$|\psi_{\text{pompe}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|H\rangle |H\rangle + |V\rangle |V\rangle) \quad (\text{BP.1})$$

$$|\psi_{\text{pompe}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|t_0\rangle |t_0\rangle + |t_1\rangle |t_1\rangle) \quad (\text{BP.2})$$

En préparant la paire de photons de pompe dans l'état donné par l'équation (BP.1), nous génèrerons une paire de photons signal et idler *intriqués en polarisation* (voir figure (BP.2)); dans le cas de l'équation (BP.2) il s'agira d'une *intrication temporelle* (figure (BP.3)).

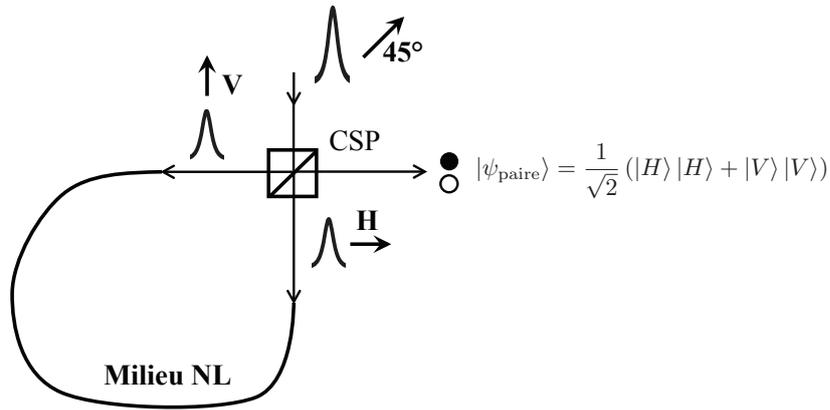


FIG. BP.2 – Préparation d'une paire de photons intriqués en polarisation. CSP = Cube Séparateur de Polarisation. Le milieu non linéaire (NL) sera notre fibre à cœur liquide.

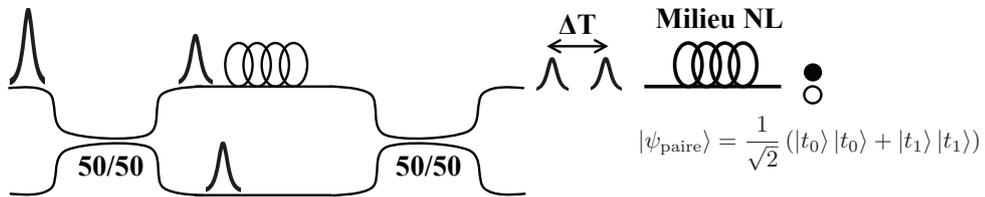


FIG. BP.3 – Préparation d'une paire de photons intriqués temporellement. 50/50 = Coupleur fibré symétrique. Le milieu non linéaire (NL) sera notre fibre à cœur liquide.

Parmi les deux procédures d'intrication que je viens d'évoquer³, l'intrication en polarisation met en jeu des contraintes expérimentales particulières. Les deux impulsions de pompe filles ont des états de polarisation orthogonaux, et pour un fonctionnement correct de la source, toutes deux doivent être injectées sur un axe neutre de la fibre non linéaire. Pour cela, deux possibilités sont envisageables :

1. L'impulsion fille 1 est injectée sur l'un des deux axes neutres, tandis que l'impulsion fille 2 est injectée sur l'autre axe neutre. Pour obtenir un état maximalelement intriqué (c'est-à-dire $|\psi_{\text{paire}}\rangle = (|H\rangle|H\rangle + |V\rangle|V\rangle)/\sqrt{2}$), il faut alors que l'efficacité non linéaire soit identique sur les deux axes neutres. Des mesures préliminaires réalisées sur notre dispositif ont montré que, pour une configuration de longueurs d'onde $\{\lambda_{p0}; \lambda_{s0}; \lambda_{i0}\}$ donnée, la génération des paires de photons corrélés avait effectivement lieu sur les deux axes neutres de notre fibre à cœur liquide, mais avec des efficacités légèrement différentes (le taux de génération des paires et le CAR étaient différents d'un axe neutre à l'autre). Cela est simplement dû au fait que les courbes de dispersion de notre fibre, bien que très proches, sont légèrement différentes sur les deux axes neutres, et que la courbe d'accord de phase pour le mélange à quatre ondes varie donc elle aussi légèrement d'un axe neutre à l'autre.
2. La seconde possibilité consiste à injecter les deux impulsions filles sur le même axe neutre. L'égalité des efficacités non linéaires vues par les deux impulsions filles serait ainsi automatiquement assurée. Dans la configuration contra-propagative présentée sur la figure (BP.2), cela suppose d'appliquer une torsion de 90° entre les deux extrémités de la fibre, de sorte à ce que les deux états de polarisation orthogonaux des impulsions filles soient alignés sur le même axe neutre.

Dans un schéma de montage tout fibré, la procédure d'intrication temporelle décrite sur la figure (BP.3) est sans doute plus simple à mettre en œuvre, puisqu'elle ne met en jeu que deux coupleurs fibrés 50/50 dans une configuration d'interféromètre de Mach-Zehnder dissymétrique (ou *déséquilibré*, c'est-à-dire dont l'un des bras est plus long que l'autre). Notons par ailleurs que, dans cette approche, la qualité de l'intrication n'est pas dégradée par les fluctuations de polarisation éventuelles. La stabilisation de la longueur des deux bras de l'interféromètre peut cependant devenir un point critique, en particulier lorsque l'on cherche à produire des photons intriqués de grande finesse spectrale.

Le travail de recherche présenté dans ce manuscrit constitue la première étape d'un projet mené en collaboration étroite entre le groupe MANOLIA du Laboratoire Charles Fabry et le groupe Sécurité et Réseaux (en la personne d'Isabelle Zaquine) du Laboratoire Traitement et Communication de l'Information (LTCI). À terme, les sources de paires de photons corrélés fibrés à cœur liquide étudiées et caractérisées au sein du groupe MANOLIA pourront être mises à profit par le LTCI pour des expériences de génération de paires de photons intriqués (temporellement et/ou en polarisation), dans l'objectif de développer des sources de très haute qualité pour les télécommunications quantiques.

3. Notons que d'autres types d'intrication existent, qui mettent à profit d'autres degrés de liberté de la lumière (comme la fréquence, le moment orbital angulaire, ou encore le mode spatial de propagation).

Annexes

Sommaire

A	Caractéristiques des trois fibres utilisées dans nos expériences . . .	151
A.1	Fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV	153
A.2	Fibre microstructurée HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée . . .	154
A.3	Fibre microstructurée à cœur creux HC-800-01	155
B	Annexes relatives au Chapitre 2	157
B.1	Représentations de Schrödinger, de Heisenberg et d'Interaction	159
	B.1.1 Quelques rappels de base	159
	B.1.2 Les trois représentations de la mécanique quantique	159
	B.1.3 Lien intuitif avec la physique classique	161
B.2	Transformées de Fourier temporelle et spatiale	162
B.3	Densité volumique d'énergie d'interaction non linéaire	163
C	Annexes relatives au Chapitre 3	165
C.1	À propos de la fluorescence du Ti:Saphir	167
C.2	Dispositif de remplissage de la fibre à cœur liquide	168
C.3	Taux de comptage en régime continu et section efficace différentielle de diffusion Raman de l'acétone deutérée	169
D	Intrication quantique & Paires de photons intriqués	173
D.1	Formalisme mathématique	175
D.2	Un peu d'histoire...	176
E	Article : <i>Frequency-dissymmetric parametric sideband generation in a microstructured fiber</i>	179
F	Liste des communications relatives à ce travail de thèse	191

A Caractéristiques des trois fibres utilisées dans nos expériences

A.1 Fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV

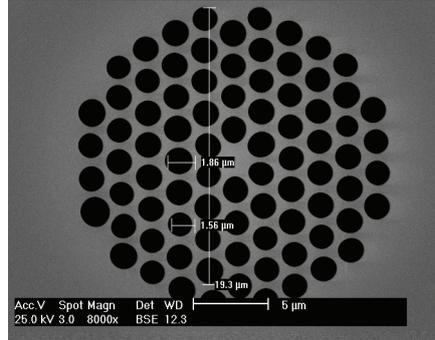


FIG. A.1 – Coupe transverse de la fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV de chez Xlim.

TABLE 1

Longueur de la fibre	$L_{\text{fibre}} = 0,97 \text{ m}$
Aire effective du mode fondamental	$A_{\text{eff}} \sim 4 \mu\text{m}^2$
Indice de réfraction linéaire de la silice (\sim indice effectif du mode fondamental)	$n_{\text{silice}} \sim 1,45$
Bande de transmission	$\sim [740 ; 920] \text{ nm}$
Dispersion de la vitesse de groupe	$\beta_2(\omega) = \sum_{m=0}^3 K_m \omega^m$ $K_0 = -1,8110500896234425 \cdot 10^{-24} \text{ s}^2 \cdot \text{m}^{-1}$ $K_1 = 2,1530389065354214 \cdot 10^{-39} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-1}$ $K_2 = -8,706787346496976 \cdot 10^{-55} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-2}$ $K_3 = 1,2061182225010229 \cdot 10^{-70} \text{ (s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-3}$
Longueur d'onde de dispersion nulle	$\lambda_{\text{ZDW}} = (834 \pm 1) \text{ nm}$
Indice de réfraction non linéaire de la silice	$n_2^{\text{silice}} \sim 2,7 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$
Coefficient non linéaire à λ_{ZDW}	$\gamma \sim 0,05 \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$

A.2 Fibre microstructurée HC-1550-PM-01 remplie d'acétone deutérée

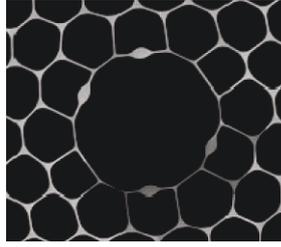


FIG. A.2 – Coupe transverse de la fibre microstructurée à cœur creux HC-1550-PM-01 de chez NKT Photonics.

TABLE 2

Longueur de la fibre	$L_{\text{fibre}} = 1,05 \text{ m}$ (1,28 m lors de la phase de caractérisations préliminaires)
Aire effective du mode fondamental	$A_{\text{eff}} \sim 30 \mu\text{m}^2$
Indice de réfraction linéaire de l'acétone deutérée (\sim indice effectif du mode fondamental)	$n_{\text{Ad6}} = 1,355$
Bande de transmission	$\sim [820 ; 925] \text{ nm}$
Dispersion de la vitesse de groupe	$\beta_2(\omega) = \sum_{m=0}^8 K_m \omega^m$ $K_0 = -6,7188826896154 \cdot 10^{-17} \text{ s}^2 \cdot \text{m}^{-1}$ $K_1 = 1,7227759696642 \cdot 10^{-31} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-1}$ $K_2 = -1,6292821912020 \cdot 10^{-46} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-2}$ $K_3 = 5,0231053368008 \cdot 10^{-62} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-3}$ $K_4 = 2,5279237557688 \cdot 10^{-77} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-4}$ $K_5 = -2,8109811175602 \cdot 10^{-92} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-5}$ $K_6 = 1,0539690566502 \cdot 10^{-107} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-6}$ $K_7 = -1,8886822369153 \cdot 10^{-123} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-7}$ $K_8 = 1,3576311149817 \cdot 10^{-139} (\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}) \cdot (\text{rad/s})^{-8}$
Longueur d'onde de dispersion nulle	$\lambda_{\text{ZDW}} = (896 \pm 1) \text{ nm}$
Indice de réfraction non linéaire de l'acétone deutérée	$n_2^{\text{Ad6}} = (5,2 \pm 0,8) \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$
Coefficient non linéaire à λ_{ZDW}	$\gamma = (0,012 \pm 0,002) \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$

A.3 Fibre microstructurée à cœur creux HC-800-01

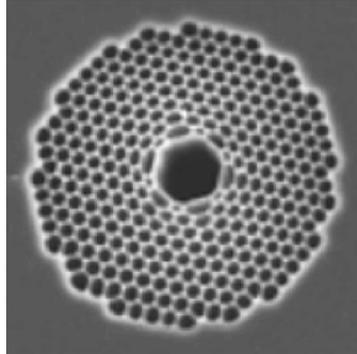


FIG. A.3 – Coupe transverse de la fibre microstructurée à cœur creux HC-800-01 de chez NKT Photonics.

TABLE 3

Longueur de la fibre	$L_{\text{fibre}} \sim 1 \text{ m}$
Aire effective du mode fondamental	$A_{\text{eff}} \sim 30 \mu\text{m}^2$
Indice de réfraction linéaire du cœur creux (\sim indice effectif du mode fondamental)	$n_{\text{air}} \sim 1$
Bande de transmission	$\sim [780 ; 880] \text{ nm}$
Coefficient non linéaire	Négligeable

B Annexes relatives au Chapitre 2

B.1 Représentations de Schrödinger, de Heisenberg et d'Interaction

B.1.1 Quelques rappels de base

En mécanique quantique, un système physique peut être décrit par un vecteur d'état (ou une fonction d'onde¹) qui contient toute l'information sur le système [80]. Par ailleurs, toute grandeur physique que nous sommes susceptibles de mesurer sur le système correspond à un opérateur hermitique qui agit sur le vecteur d'état. Lorsque la grandeur physique associée à l'opérateur \hat{O} est mesurée sur un système physique décrit par la fonction d'onde $|\psi\rangle$, nous savons que :

1. les seules valeurs possibles pour le résultat de mesure sont les valeurs propres x_k de l'opérateur \hat{O} ;
2. la probabilité $p(x_k)$ de trouver le résultat particulier x_k est donnée par :

$$p(x_k) = |\langle x_k | \psi \rangle|^2 \quad (\text{B.1})$$

où $|x_k\rangle$ est le vecteur propre de l'opérateur \hat{O} associé à la valeur propre x_k .

Supposons maintenant que nous disposons d'un ensemble de systèmes préparés dans le même état $|\psi\rangle$, et que nous effectuons sur tous ces systèmes la mesure de la grandeur physique associée à l'opérateur \hat{O} . Nous obtenons alors des valeurs différentes pour chaque mesure (comme quand on lance un dé), mais il est alors possible d'en déduire une valeur moyenne, qui est usuellement notée $\langle O \rangle$, et dont on peut montrer qu'elle est égale à :

$$\langle O \rangle = \sum_k x_k p(x_k) = \langle \psi | \hat{O} | \psi \rangle \quad (\text{B.2})$$

Or cette valeur moyenne est elle-même susceptible d'évoluer au cours du temps, et comme nous le voyons sur l'équation (B.2) ci-dessus, cette évolution temporelle peut, mathématiquement, être imputée à une évolution temporelle de la fonction d'onde et/ou à une évolution temporelle de l'opérateur. Le choix de la modélisation mathématique de cette évolution temporelle correspond exactement au choix de la représentation : Schrödinger, Heisenberg, ou Interaction.

B.1.2 Les trois représentations de la mécanique quantique

Représentation de Schrödinger

La représentation "usuellement" utilisée en mécanique quantique est la représentation de Schrödinger, dans laquelle l'évolution temporelle de la valeur moyenne d'un résultat de mesure est exclusivement imputée à une évolution temporelle de la fonction d'onde, tandis que les opérateurs sont indépendants du temps.

- Fonction d'onde : $|\Psi_S(t)\rangle$
- Opérateurs : \hat{O}_S
- Évolution temporelle de la fonction d'onde :
Équation de Schrödinger :

$$\frac{d|\Psi_S(t)\rangle}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \hat{H} |\Psi_S(t)\rangle \quad (\text{B.3})$$

1. Par abus de langage, nous assimilerons vecteur d'état et fonction d'onde, car les deux jouent le même rôle dans la théorie et représentent conceptuellement la même chose : l'état du système.

avec \hat{H} : hamiltonien du système

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}}, \text{ indépendant du temps, d'où } |\Psi_S(t)\rangle = e^{-\frac{it}{\hbar}\hat{H}} |\Psi_S(0)\rangle$$

($\hat{H}_{\text{int}} = 0$ dans le cas d'un système fermé)

Représentation de Heisenberg

La représentation “symétrique”, dans laquelle l'évolution temporelle de la valeur moyenne d'un résultat de mesure est exclusivement imputée à une évolution temporelle de l'opérateur, tandis que la fonction d'onde est indépendante du temps, est la représentation de Heisenberg.

- Fonction d'onde : $|\Psi_H\rangle = |\Psi_S(0)\rangle$
- Opérateurs² : $\hat{O}_H(t) = e^{\frac{it}{\hbar}\hat{H}} \hat{O}_S e^{-\frac{it}{\hbar}\hat{H}}$
- Évolution temporelle des opérateurs :
Équation de Heisenberg³ :

$$\frac{d\hat{O}_H(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{O}_H(t); \hat{H}] = \frac{1}{i\hbar} (\hat{O}_H(t) \hat{H} - \hat{H} \hat{O}_H(t)) \quad (\text{B.4})$$

Représentation d'Interaction

Enfin, une troisième représentation peut être utilisée, la représentation d'Interaction. Il s'agit en fait d'une combinaison des représentations de Schrödinger et de Heisenberg : les opérateurs dépendent du temps comme ils en dépendraient dans la représentation de Heisenberg si le système était fermé (c'est-à-dire qu'ils portent la dépendance temporelle due à \hat{H}_0) ; et la fonction d'onde dépend du temps sous l'effet des interactions avec l'extérieur (autrement dit, elle porte la dépendance temporelle due à \hat{H}_{int}).

- Fonction d'onde : $|\Psi_I(t)\rangle = e^{\frac{it}{\hbar}\hat{H}_0} |\Psi_S(t)\rangle = e^{-\frac{it}{\hbar}\hat{H}_{\text{int}}} |\Psi_S(0)\rangle$
- Opérateurs : $\hat{O}_I(t) = e^{\frac{it}{\hbar}\hat{H}_0} \hat{O}_S e^{-\frac{it}{\hbar}\hat{H}_0}$
- Évolution temporelle de la fonction d'onde :

$$\begin{aligned} \frac{d|\Psi_I(t)\rangle}{dt} &= \frac{1}{i\hbar} e^{\frac{it}{\hbar}\hat{H}_0} \hat{H}_{\text{int}} e^{-\frac{it}{\hbar}\hat{H}_0} |\Psi_I(t)\rangle \\ &= \frac{1}{i\hbar} \hat{H}'_{\text{int}}(t) |\Psi_I(t)\rangle \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

où $\hat{H}'_{\text{int}}(t)$ est appelé *hamiltonien d'interaction dépendant du temps*.

- Évolution temporelle des opérateurs :

$$\frac{d\hat{O}_I(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{O}_I(t), \hat{H}_0] \quad (\text{B.6})$$

Au final, dans le cas d'un système fermé, les représentations de Heisenberg et d'Interaction sont équivalentes. Comme son nom l'indique, l'intérêt de la représentation d'Interaction apparaît pour les systèmes qui sont en interaction avec leur environnement, ce qui sera le cas du

2. $\hat{H}_H(t) = e^{\frac{it}{\hbar}\hat{H}_S} \hat{H}_S e^{-\frac{it}{\hbar}\hat{H}_S} = \hat{H}_S = \hat{H}$: l'hamiltonien est identique dans les représentations de Schrödinger et de Heisenberg, et donc indépendant du temps.

3. Où l'on retrouve que \hat{H} ne dépend pas du temps, puisque $[\hat{H}; \hat{H}] = 0$.

système que nous étudions : notre système est constitué de la réunion des champs signal et idler, initialement vides de tout photons, et est en interaction avec son environnement à travers les interactions non linéaires d'ordre 3.

Cependant, les deux autres représentations peuvent aussi être utilisées dans le cas d'un système ouvert : il suffit pour cela de reporter l'intégralité de la dépendance temporelle du résultat de mesure (celle qu'on aurait si le système était fermé, et celle qui est due aux interactions extérieures) soit aux opérateurs (Heisenberg), soit à la fonction d'onde (Schrödinger).

B.1.3 Lien intuitif avec la physique classique

En physique classique, le choix de la représentation s'impose à nous assez naturellement, selon la nature localisée ou délocalisée du système étudié. La question sous-jacente à ce choix *intuitif* est la suivante : le résultat⁴ de la mesure d'une grandeur physique donnée sur un système donné *dépend-il du référentiel d'étude* ?

Prenons le cas d'un système ondulatoire (délocalisé), par exemple une onde monochromatique. Les grandeurs physiques mesurables sur ce système (= les *observables*) sont l'amplitude, la fréquence... et **les résultats de mesure ne dépendent pas du référentiel d'étude**. Si un résultat de mesure évolue au cours du temps, on attribue intuitivement cette évolution à une modification des caractéristiques du système (c'est-à-dire de sa *fonction d'onde*) et non pas à une modification de la *façon* de faire la mesure. Ce cas correspond donc à la représentation de Schrödinger, dans laquelle c'est la fonction d'onde qui porte l'intégralité de la dépendance temporelle tandis que les observables sont stationnaires.

Considérons maintenant le cas d'un système corpusculaire (localisé), par exemple une bille. Les grandeurs physiques mesurables et dont le résultat de mesure est susceptible de dépendre du temps sont la position, la vitesse, le moment angulaire⁵... et **les résultats de mesure dépendent du référentiel d'étude**. Contrairement au cas d'un système délocalisé, l'étude d'un système localisé peut donc assez naturellement se faire en représentation de Heisenberg, représentation dans laquelle les observables dépendent du temps tandis que la fonction d'onde est stationnaire.

Il est alors assez facile de comprendre que, dans une approche quantique des systèmes et des phénomènes physiques, du fait de la dualité onde-corpuscule de tout système, la représentation choisie pour étudier le système peut, sans *a priori* particulier, être la représentation de Schrödinger, de Heisenberg, ou même une combinaison des deux (représentation d'Interaction).

4. (que l'on suppose dépendant du temps)

5. Nous pouvons également mesurer la masse ou le volume de la bille, par exemple, mais le résultat de ces mesures ne doit pas dépendre du temps, donc ces observables n'ont pas d'intérêt dans notre raisonnement.

B.2 Transformées de Fourier temporelle et spatiale

Les conventions utilisées pour les transformées de Fourier spatiale et temporelle sont les suivantes :

$$f(\omega) = \int f(t) e^{i\omega t} dt \longleftrightarrow f(t) = \int f(\omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi} \quad (\text{B.7})$$

$$f(\vec{k}) = \int f(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}} d^3\vec{r} \longleftrightarrow f(\vec{r}) = \int f(\vec{k}) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \frac{d^3\vec{k}}{(2\pi)^3} \quad (\text{B.8})$$

On dira que la fonction f est normalisée si :

$$\int |f(t)|^2 dt = \int |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = 1 \quad (\text{B.9})$$

$$\int |f(\vec{r})|^2 d^3\vec{r} = \int |f(\vec{k})|^2 \frac{d^3\vec{k}}{(2\pi)^3} = 1 \quad (\text{B.10})$$

Avec ces normes, l'opération de convolution est alors définie par :

$$f * g(t) = \int f(t') g(t - t') dt' \quad (\text{B.11})$$

$$f * g(\vec{r}) = \int f(\vec{r}') g(\vec{r} - \vec{r}') d^3\vec{r}' \quad (\text{B.12})$$

$$f * g(\omega) = \int f(\omega') g(\omega - \omega') \frac{d\omega'}{2\pi} \quad (\text{B.13})$$

$$f * g(\vec{k}) = \int f(\vec{k}') g(\vec{k} - \vec{k}') \frac{d^3\vec{k}'}{(2\pi)^3} \quad (\text{B.14})$$

B.3 Densité volumique d'énergie d'interaction non linéaire

La relation que nous utilisons au début de la section 2.3 pour exprimer la densité volumique d'énergie d'interaction non linéaire provient de la référence [59] (p. 37). Cette expression peut être retrouvée à partir de la relation très générale de thermodynamique des milieux diélectriques donnée par Landau et Lifshitz [81] (équation 11.6, p. 53), qui relie l'amplitude complexe de la polarisation du milieu à une fréquence ω donnée et la densité volumique d'énergie d'interaction selon :

$$P_j^*(\omega) = \frac{\partial U_{\text{int}}}{\partial E_j(\omega)} \quad (\text{B.15})$$

avec $j = x, y$ ou z .

Pour simplifier, nous adoptons une approche scalaire en supposant que tous les vecteurs champ et polarisation sont parallèles à \vec{e}_x . Alors, l'amplitude complexe de la polarisation non linéaire d'ordre n à la fréquence ω est liée à la densité volumique d'énergie d'interaction non linéaire d'ordre n selon :

$$P^{*(n)}(\omega) = \frac{\partial U_{\text{int}}^{(n)}}{\partial E(\omega)} \quad (\text{B.16})$$

Or nous avons :

$$P^{*(n)}(\omega) = \epsilon_0 \chi_{eff}^{(n)} \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E^*(\omega + \omega_{l_1} + \omega_{l_2} + \cdots + \omega_{l_{n-1}}) \quad (\text{B.17})$$

où chacune des sommes est effectuée sur l'ensemble des modes du champ électromagnétique présent dans le milieu.

Les équations (B.16) et (B.17) nous conduisent donc à écrire :

$$U_{\text{int}}^{(n)} = \frac{\epsilon_0 \chi_{eff}^{(n)}}{n+1} \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} \sum_{l_n} E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E(\omega_{l_n}) \quad (\text{B.18})$$

En effet, en dérivant l'expression (B.18) ci-dessus par rapport à $E(\omega)$ (pour une fréquence ω quelconque associée à un mode du champ électromagnétique présent dans le milieu), nous obtenons $n+1$ fois le même terme, et l'on retrouve donc bien la relation (B.16) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial U_{\text{int}}^{(n)}}{\partial E(\omega)} &= \frac{\epsilon_0 \chi_{eff}^{(n)}}{n+1} \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} \sum_{l_n} \frac{\partial}{\partial E(\omega)} \left[E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E(\omega_{l_n}) \right] \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi_{eff}^{(n)}}{n+1} \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} \sum_{l_n} \left\{ E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) \frac{\partial}{\partial E(\omega)} \left[E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E(\omega_{l_n}) \right] \right. \\ &\quad \left. + \frac{\partial}{\partial E(\omega)} \left[E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) \right] E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E(\omega_{l_n}) \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{\epsilon_0 \chi_{eff}^{(n)}}{n+1} \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} \sum_{l_n} \left\{ E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) \frac{\partial E(\omega_{l_1})}{\partial E(\omega)} E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E(\omega_{l_n}) \right. \\
 &\quad + E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) E(\omega_{l_1}) \frac{\partial E(\omega_{l_2})}{\partial E(\omega)} \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E(\omega_{l_n}) \\
 &\quad \vdots \\
 &\quad + E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots \frac{\partial E(\omega_{l_{n-1}})}{\partial E(\omega)} E(\omega_{l_n}) \\
 &\quad + E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) \frac{\partial E(\omega_{l_n})}{\partial E(\omega)} \\
 &\quad \left. + \frac{\partial}{\partial E(\omega)} \left[E^* \left(\sum_{k=1}^n \omega_{l_k} \right) \right] E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E(\omega_{l_n}) \right\} \\
 &= \frac{\epsilon_0 \chi_{eff}^{(n)}}{n+1} \left\{ n \times \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} E^* \left(\omega + \sum_{k=1}^{n-1} \omega_{l_k} \right) E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) \right. \\
 &\quad \left. + \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) E^* \left(\omega + \sum_{k=1}^{n-1} \omega_{l_k} \right) \right\} \\
 &= \frac{\epsilon_0 \chi_{eff}^{(n)}}{n+1} \times (n+1) \sum_{l_1} \sum_{l_2} \cdots \sum_{l_{n-1}} E^* \left(\omega + \sum_{k=1}^{n-1} \omega_{l_k} \right) E(\omega_{l_1}) E(\omega_{l_2}) \cdots E(\omega_{l_{n-1}}) \\
 &= P^{*(n)}(\omega) \tag{B.19}
 \end{aligned}$$

C Annexes relatives au Chapitre 3

C.1 À propos de la fluorescence du Ti:Saphir

Dans le laser de pompe que nous utilisons, le milieu amplificateur est un cristal de saphir (Al_2O_3) dopé avec des ions titane Ti^{3+} (qui viennent se substituer, en très faible pourcentage, aux ions Al^{3+}). Le niveau électronique fondamental des ions Ti^{3+} est scindé en deux bandes d'énergie relativement larges (voir figure (C.1)-a), de sorte que les spectres d'absorption et de fluorescence s'étendent sur plusieurs centaines de nanomètres (voir figure (C.1)-b).

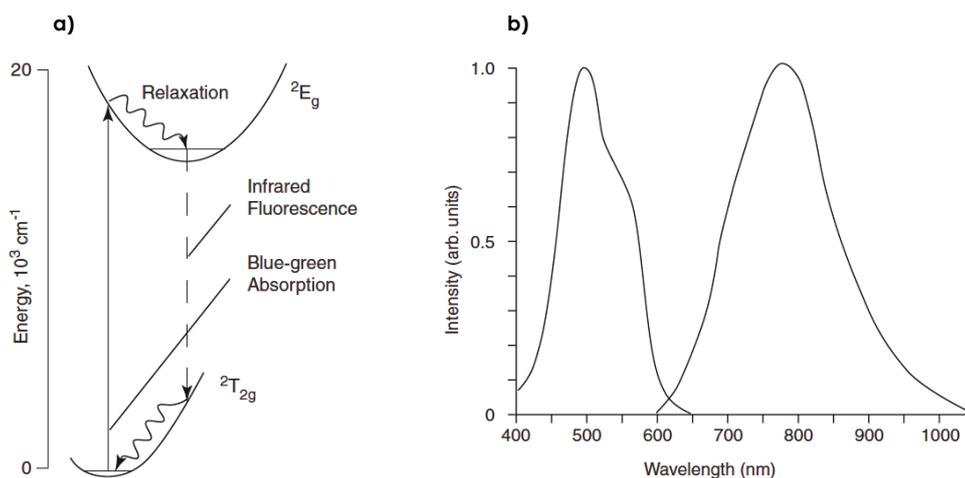


FIG. C.1 – (a) Structure des bandes d'énergie de l'ion Ti^{3+} inséré dans la matrice de saphir. (b) Spectres d'absorption (entre 400 nm et 600 nm typiquement) et d'émission par fluorescence (entre 600 nm et 1000 nm typiquement) du cristal de saphir dopé au titane. Les deux figures sont tirées de la documentation technique du laser Tsunami fournie par Spectra Physics.

En pratique, le cristal de saphir dopé au titane est pompé par un faisceau laser continu à 532 nm, et un fond de fluorescence continu est donc émis, superposé au faisceau impulsionnel obtenu grâce au verrouillage des modes en phase. Le niveau de fluorescence est extrêmement faible en comparaison de la puissance crête des impulsions générées (voir figure (C.2)), et ce fond continu n'est donc en général pas gênant. Mais ce n'est pas le cas dans le cadre des expériences que nous menons, puisque nous travaillons au niveau du photon unique. Le fond continu de fluorescence doit donc être filtré.

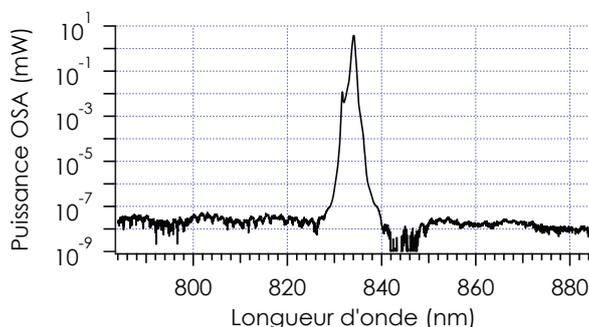


FIG. C.2 – Spectre d'émission du laser Ti:Saphir mesuré à l'aide d'un analyseur de spectre optique. Les impulsions sont générées à 834 nm, et le fond continu de fluorescence, bien qu'ayant un niveau de puissance très inférieur (~ 80 dB d'écart), est bien visualisable.

C.2 Dispositif de remplissage de la fibre à cœur liquide

La technique de remplissage de la fibre à cœur creux est très simple, puisqu'il suffit de laisser le liquide entrer et progresser dans la fibre par capillarité. La fibre à cœur creux (vide) est initialement clivée et insérée, à chacune de ses deux extrémités, dans une cuve munie d'un hublot en verre et d'un bouchon, tel que représenté sur la figure (C.3).

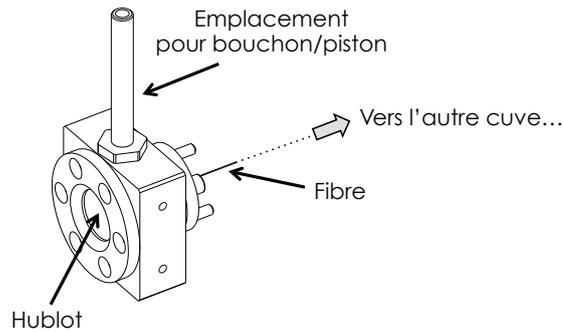


FIG. C.3 – Cuve utilisée pour les expériences présentées dans ce manuscrit.

L'une des deux cuves est alors remplie de liquide, puis fermée (de manière la plus étanche possible) pour éviter l'évaporation (en particulier lorsque le liquide utilisé est très volatil). Suivant la viscosité du liquide et la longueur de la fibre, le remplissage par capillarité peut prendre quelques heures (c'est le cas par exemple pour une fibre HC-1550-PM-01 de 1 m que l'on souhaite remplir d'acétone deutérée), voire quelques demi-journées (le processus peut éventuellement être accéléré en appliquant une légère pression dans la cuve d'entrée à l'aide d'un piston). Lorsque le liquide apparaît à l'autre extrémité de la fibre, la seconde cuve est à son tour remplie du même liquide et fermée de manière étanche. Les deux extrémités de la fibre sont alors totalement immergées dans le liquide, et orientées en direction du hublot de la cuve dans laquelle elles sont insérées. Les impulsions de pompe sont injectées dans la fibre à travers le hublot de la cuve d'entrée, et récupérées, après propagation, à travers le hublot de la cuve de sortie.

C.3 Taux de comptage en régime continu et section efficace différentielle de diffusion Raman de l'acétone deutérée

Comme mentionné dans la sous-section 3.4.1 du Chapitre 3 de ce manuscrit, lorsque le laser de pompe Ti:Saphir fonctionne en régime continu, la mesure de l'évolution du taux de comptage en fonction de la puissance de pompe injectée dans la fibre microstructurée (P_{out}) et de l'écart spectral entre les photons de pompe et le centre de la bande passante de détection de la voie d'analyse ($\sigma = |(1/\lambda_{p0}) - (1/\lambda_{i0})|$ en cm^{-1}) doit permettre de remonter à la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée de chacune des deux raies secondaires que nous avons identifiées (à $\sigma_{\text{raie 1}} = 331 \text{ cm}^{-1}$ et $\sigma_{\text{raie 2}} = 410 \text{ cm}^{-1}$).

Rappelons tout d'abord (voir Chapitre 1, équation (1.2.54)) que la puissance Stokes diffusée, mesurée dans un angle solide $\Delta\Omega_{\text{solide}}$ et sur une plage spectrale $\delta\omega$, est donnée par :

$$P_{\text{Stokes}} = \left(\frac{\partial^2 S}{\partial\omega \partial\Omega} \right) \delta\omega \Delta\Omega_{\text{solide}} I_L N \quad (\text{C.1})$$

où I_L est l'intensité du champ incident et N le nombre de molécules dans le volume de diffusion. $\frac{\partial^2 S}{\partial\omega \partial\Omega}$ est la section efficace spectrale différentielle de diffusion Raman spontanée.

La puissance Stokes associée à une raie Raman donnée, mesurée dans un angle solide $\Delta\Omega_{\text{solide}}$, est donc donnée par :

$$P_{\text{Stokes}}^{\text{raie}} = \left(\frac{\partial S}{\partial\Omega} \right) \Delta\Omega_{\text{solide}} I_L N \quad (\text{C.2})$$

où $\frac{\partial S}{\partial\Omega}$ est la section efficace différentielle associée à la raie Raman considérée.

Dans notre cas, nous pouvons considérer que l'angle solide de détection est égal à l'angle solide d'émission, c'est-à-dire :

$$\Delta\Omega_{\text{solide}} = 2\pi \left(1 - \sqrt{1 - \text{NA}^2} \right) \quad (\text{C.3})$$

où NA est l'ouverture numérique de la fibre microstructurée (de l'ordre de 0,1 dans notre cas).

L'intensité du champ incident est donnée par :

$$I_L = \frac{P_{\text{out}}}{A_{\text{eff}}} \quad (\text{C.4})$$

où je rappelle que A_{eff} est l'aire effective du mode fondamental, sur lequel se propage le faisceau de pompe (de l'ordre de $30 \mu\text{m}^2$ dans notre cas).

Enfin, le volume de diffusion étant défini par la longueur de la fibre L_{fibre} (de l'ordre du mètre dans notre cas) et l'aire effective A_{eff} , le nombre de molécules dans ce volume est égal à :

$$N = \mathcal{N}_A \frac{\rho}{m_m} L_{\text{fibre}} A_{\text{eff}} \quad (\text{C.5})$$

où \mathcal{N}_A est le nombre d'Avogadro ($\mathcal{N}_A = 6,02 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$), ρ la densité du liquide et m_m sa masse molaire ($\rho = 0,872 \cdot 10^6 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ et $m_m = 64 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ dans le cas de l'acétone deutérée).

Ainsi, la section efficace différentielle associée à la raie Raman considérée est donnée par :

$$\frac{\partial S}{\partial \Omega} = \left(\frac{1}{\Delta \Omega_{\text{solide}} L_{\text{fibre}}} \times \frac{m_m}{\mathcal{N}_A \rho} \right) \times \frac{P_{\text{Stokes}}^{\text{raie}}}{P_{\text{out}}} \quad (\text{C.6})$$

Or, comme je vais le montrer maintenant, les mesures que nous avons réalisées nous donnent accès à la valeur de $P_{\text{Stokes}}^{\text{raie}}$ (pour chacune des deux raies secondaires identifiées).

Contribution des photons Raman au taux de comptage

La voie idler étant réglée à $\lambda_{i_0} = 857,0$ nm (avec une largeur de bande passante de détection $\Delta \lambda_i$ de l'ordre de 0,5 nm), nous avons mesuré le taux de comptage (\mathcal{C}_1) en fonction de P_{out} et de l'écart spectral $\sigma = |(1/\lambda_{p_0}) - (1/\lambda_{i_0})|$ en cm^{-1} (en régime de pompe continue) :

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_1(\sigma; P_{\text{out}}) &= a_1 + b_1(\sigma) P_{\text{out}} \\ &= a_1 + b_1^{\text{diff} + \text{fluo}}(\sigma) P_{\text{out}} + b_1^{\text{anti-Stokes}}(\sigma) P_{\text{out}} \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

Nous en avons extrait la valeur du paramètre b_1 en fonction de σ , et avons ajusté sur les points expérimentaux ainsi obtenus une fonction constituée de la superposition de deux pics lorentziens adjacents avec un fond polynomial (variant relativement peu avec σ) :

- le fond représente la contribution des photons de pompe diffusés et des photons de fluorescence résiduelle ($b_1^{\text{diff} + \text{fluo}}(\sigma)$);
- les deux pics lorentziens représentent les deux raies Raman secondaires de l'acétone deutérée (nous vérifions d'ailleurs que les maxima sont bien localisés à $\sigma_{\text{raie 1}} = 331 \text{ cm}^{-1}$ et $\sigma_{\text{raie 2}} = 410 \text{ cm}^{-1}$).

Dans la suite, nous considérerons le premier pic lorentzien, c'est-à-dire la raie Raman à $\sigma_{\text{raie 1}} = 331 \text{ cm}^{-1}$. À partir de notre ajustement, nous connaissons l'aire sous le pic lorentzien :

$$A_{\text{raie 1}} = (49,2 \pm 9,2) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1} \cdot \text{mW}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1} \quad (\text{C.8})$$

autrement dit l'intégrale de $b_1^{\text{anti-Stokes}}(\sigma)$ par rapport à σ pour le premier pic :

$$\begin{aligned} A_{\text{raie 1}} &= \int_{\text{raie 1}} b_1^{\text{anti-Stokes}}(\sigma) d\sigma \\ &= \int_{\text{raie 1}} \frac{\mathcal{C}_1^{\text{anti-Stokes}}(\sigma; P_{\text{out}})}{P_{\text{out}}} d\sigma \end{aligned} \quad (\text{C.9})$$

où $\mathcal{C}_1^{\text{anti-Stokes}}(\sigma; P_{\text{out}})$ représente la contribution des photons Raman dans le taux de comptage total $\mathcal{C}_1(\sigma; P_{\text{out}})$:

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_1^{\text{anti-Stokes}}(\sigma; P_{\text{out}}) &= \eta_1 \int_{\text{BP}_{\text{dét}}} R_{\text{AS/S}}(\sigma') \frac{\lambda_{i_0}}{hc} \frac{dP_{\text{Stokes}}(\sigma')}{d\sigma'} d\sigma' \\ &\simeq \eta_1 \frac{\lambda_{i_0}}{hc} R_{\text{AS/S}}(\sigma_0(\lambda_{p_0})) \frac{dP_{\text{Stokes}}(\sigma)}{d\sigma} \Delta \sigma_{\text{BP}_{\text{dét}}} \end{aligned} \quad (\text{C.10})$$

Précisons les termes intervenant dans cette expression. Tout d'abord, je rappelle que η_1 est l'efficacité globale de détection sur la voie idler (dans le cas des mesures que nous étudions ici, elle est de l'ordre de 2 à 3% typiquement). $R_{\text{AS/S}}(\sigma)$ représente le rapport d'intensité entre

les raies de diffusion anti-Stokes et Stokes associées à un même décalage spectral σ . Il doit être pris en compte car notre mesure est effectuée, pour des raisons pratiques, du côté basses longueurs d'onde (voie d'analyse idler), c'est-à-dire sur les raies Raman anti-Stokes, tandis que les spectres et sections efficaces de diffusion Raman disponibles dans la littérature sont donnés du côté Stokes. Ce rapport est égal à :

$$R_{AS/S}(\sigma) = \left(\frac{\lambda_S}{\lambda_{AS}} \right)^4 e^{-\frac{h c \sigma}{k_B T}} \quad (\text{C.11})$$

où λ_S et λ_{AS} sont les longueurs d'onde d'émission des photons Raman Stokes et anti-Stokes respectivement (et $R_{AS/S}$ vaudra donc 0,26 dans nos conditions expérimentales et pour la raie Raman étudiée).

Enfin, $\int_{\text{BP}_{\text{dét}}}$ représente l'intégration sur l'ensemble de la bande passante de détection. Rappelons que notre bande passante de détection est centrée en $\lambda_{i_0} = 857,0$ nm et de largeur $\Delta\lambda_i$ de l'ordre de 0,5 nm. En terme de *nombre d'onde* ($\sigma = 1/\lambda$), la bande passante est donc centrée en :

$$\sigma_0(\lambda_{p_0}) = \frac{1}{\lambda_{i_0}} - \frac{1}{\lambda_{p_0}} \quad (\text{C.12})$$

(elle se déplace donc avec λ_{p_0}) et de largeur :

$$\Delta\sigma_{\text{BP}_{\text{dét}}} \sim \frac{\Delta\lambda_i}{\lambda_{i_0}^2} \quad (\text{C.13})$$

($\Delta\sigma_{\text{BP}_{\text{dét}}} \sim 6,81 \text{ cm}^{-1}$ dans notre cas).

Nous supposons par ailleurs que $\Delta\sigma_{\text{BP}_{\text{dét}}}$ est suffisamment petit pour que le terme $R_{AS/S}(\sigma') \times \frac{dP_{\text{Stokes}}(\sigma')}{d\sigma'}$ puisse être considéré comme invariant sur toute la largeur de la bande passante de détection⁶, ce qui permet d'obtenir l'expression (C.10).

Section efficace différentielle calculée pour la première raie Raman

À partir des équations (C.6), (C.9) et (C.10), on montre que :

$$\frac{\partial S}{\partial \Omega} = \left(\frac{1}{\Delta\Omega_{\text{solide}} L_{\text{fibre}}} \times \frac{m_m}{\mathcal{N}_A \rho} \right) \times \frac{A_{\text{raie 1}} h c}{\eta_1 \Delta\sigma_{\text{BP}_{\text{dét}}} R_{AS/S}(\sigma_{\text{raie 1}}) \lambda_{i_0}} \quad (\text{C.14})$$

et l'application numérique donne :

$$\boxed{\frac{\partial S}{\partial \Omega} = 1,3 \cdot 10^{-36} \text{ m}^2 \cdot \text{sr}^{-1} = 1,3 \cdot 10^{-32} \text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}} \quad (\text{C.15})$$

6. En pratique, $\Delta\sigma_{\text{BP}_{\text{dét}}}$ est environ 4 fois plus faible que la largeur de la raie Raman.

Comparaison avec les données de la littérature

Nous ne disposons pas de données directement relatives à la raie Raman secondaire à 331 cm^{-1} de l'acétone deutérée. Cependant, moyennant quelques hypothèses et approximations, les données disponibles doivent être suffisantes pour obtenir un ordre de grandeur de la section efficace différentielle de cette raie Raman, permettant de vérifier la validité de la valeur (C.15) que nous obtenons par nos mesures.

Nous disposons du spectre Raman de l'acétone deutérée (voir figure (3.1.5) [72]), qui nous permet dans un premier temps de constater que la raie Raman secondaire à laquelle nous nous intéressons est environ 39 fois moins intense que la raie Raman principale de l'acétone deutérée (à 2108 cm^{-1}).

Par ailleurs, les données de la littérature concernant divers composés présentant une forme deutérée et une forme non deutérée (eau, benzène...) montrent [82] que les sections efficaces différentielles des raies Raman principales sont du même ordre de grandeur pour les deux formes, deutérée et non deutérée. Nous supposons alors que la même règle est valable dans le cas de l'acétone, et que la section efficace différentielle de la raie principale de l'acétone deutérée peut être considérée comme du même ordre de grandeur que celle de l'acétone, soit environ $7,9 \cdot 10^{-30}\text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$ [82].

Enfin, la raie Raman principale de l'acétone (à 2925 cm^{-1}) a une largeur très proche de celle de la raie Raman secondaire de l'acétone deutérée à 331 cm^{-1} (de l'ordre de 20 cm^{-1} typiquement). Ainsi, le rapport de leurs intensités (de l'ordre de 39) donne une bonne estimation du rapport de leurs sections efficaces différentielles. La section efficace différentielle de la raie secondaire qui nous intéresse serait donc de l'ordre de $2 \cdot 10^{-31}\text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$.

Cependant, cette valeur correspondrait à une mesure réalisée avec une longueur d'onde de pompe de 488 nm (ce sont les conditions expérimentales exposées dans la référence [83], d'où sont tirées les données présentées dans la référence [82] que nous utilisons). Nous utilisons quant à nous une longueur d'onde de pompe de l'ordre de 882 nm , et la section efficace différentielle doit donc subir une atténuation de l'ordre de $(488/882)^4 \sim 0,1$. Nous attendons ainsi, *en ordre de grandeur*, une section efficace différentielle de $2 \cdot 10^{-32}\text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$.

Très clairement, cette valeur est tout à fait cohérente avec celle que nous avons déduite de nos mesures ($1,3 \cdot 10^{-32}\text{ cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$, voir résultat (C.15)). Les taux de comptage Raman observés sont donc conformes à nos attentes.

D Intrication quantique & Paires de photons intriqués

D.1 Formalisme mathématique

L'intrication quantique est une conséquence directe du principe de superposition, qui est sans doute la propriété la plus fondamentale et la plus contre-intuitive de la mécanique quantique⁷. Considérons un système de vecteur d'état $|\phi\rangle$ appartenant à l'espace bidimensionnel \mathcal{E} dont les états $|x\rangle$ et $|y\rangle$ forment une base orthonormée⁸ :

$$|\phi\rangle = \lambda|x\rangle + \mu|y\rangle \quad (\text{D.1})$$

avec $|\lambda|^2 + |\mu|^2 = 1$. Si $\lambda \neq 0$ et $\mu \neq 0$ alors le système est en superposition des deux états $|x\rangle$ et $|y\rangle$.

Une base orthonormée de l'espace $\mathcal{E} \otimes \mathcal{E}$ (à quatre dimensions) est formée par les états $|x\rangle \otimes |x\rangle$, $|x\rangle \otimes |y\rangle$, $|y\rangle \otimes |x\rangle$ et $|y\rangle \otimes |y\rangle$, et tout état $|\psi\rangle$ de cet espace peut donc être écrit sous la forme :

$$|\psi\rangle = \alpha|x\rangle \otimes |x\rangle + \beta|x\rangle \otimes |y\rangle + \gamma|y\rangle \otimes |x\rangle + \delta|y\rangle \otimes |y\rangle \quad (\text{D.2})$$

ou, pour alléger les notations :

$$|\psi\rangle = \alpha|x\rangle|x\rangle + \beta|x\rangle|y\rangle + \gamma|y\rangle|x\rangle + \delta|y\rangle|y\rangle \quad (\text{D.3})$$

avec $|\alpha|^2 + |\beta|^2 + |\gamma|^2 + |\delta|^2 = 1$.

Supposons qu'un tel état $|\psi\rangle$ de l'espace $\mathcal{E} \otimes \mathcal{E}$ puisse se factoriser en deux états $|\phi_1\rangle$ et $|\phi_2\rangle$ de l'espace \mathcal{E} (c'est-à-dire qu'il est le produit tensoriel de ces deux états $|\phi_1\rangle$ et $|\phi_2\rangle$). Cela signifie qu'il existe λ_1 , μ_1 , λ_2 et μ_2 tels que :

$$|\lambda_1|^2 + |\mu_1|^2 = 1 \quad (\text{D.4})$$

$$|\lambda_2|^2 + |\mu_2|^2 = 1 \quad (\text{D.5})$$

$$\alpha = \lambda_1\lambda_2 \quad (\text{D.6})$$

$$\beta = \lambda_1\mu_2 \quad (\text{D.7})$$

$$\gamma = \mu_1\lambda_2 \quad (\text{D.8})$$

$$\delta = \mu_1\mu_2 \quad (\text{D.9})$$

En effet, si $|\phi_1\rangle = \lambda_1|x\rangle + \mu_1|y\rangle$ et $|\phi_2\rangle = \lambda_2|x\rangle + \mu_2|y\rangle$ alors :

$$|\phi_1\rangle \otimes |\phi_2\rangle = \lambda_1\lambda_2|x\rangle|x\rangle + \lambda_1\mu_2|x\rangle|y\rangle + \mu_1\lambda_2|y\rangle|x\rangle + \mu_1\mu_2|y\rangle|y\rangle \quad (\text{D.10})$$

(Et on montre facilement que $|\lambda_1\lambda_2|^2 + |\lambda_1\mu_2|^2 + |\mu_1\lambda_2|^2 + |\mu_1\mu_2|^2 = 1$ à partir des équations (D.4) et (D.5).)

Les équations (D.6) à (D.9) impliquent directement l'égalité suivante :

$$\alpha\delta - \beta\gamma = 0 \quad (\text{D.11})$$

7. Dans le cadre de la mécanique quantique, un système physique peut se trouver en superposition de deux états classiques (ou plus), du moins tant qu'aucune mesure n'est effectuée pour déterminer effectivement l'état du système.

8. Le système en question peut par exemple être un photon, de vecteur d'état de polarisation $|\phi\rangle$ appartenant à l'espace bidimensionnel \mathcal{E} dont une base orthonormée est formée par les états $|H\rangle$ (état de polarisation horizontal) et $|V\rangle$ (état de polarisation vertical).

Ainsi, inversement, si cette égalité (D.11) n'est pas vérifiée, cela signifie que l'état $|\psi\rangle$ de l'espace $\mathcal{E} \otimes \mathcal{E}$ **ne peut pas se factoriser** en deux états $|\phi_1\rangle$ et $|\phi_2\rangle$ de l'espace \mathcal{E} . Il s'agit là de la *définition mathématique* d'un **état intriqué**.

Exemple :

Considérons un état $|\psi\rangle$ de l'espace $\mathcal{E} \otimes \mathcal{E}$ défini par l'équation (D.3) et tel que $\beta = \gamma = 0$. Nous avons donc $\alpha\delta - \beta\gamma = \alpha\delta$ (et $|\alpha|^2 + |\delta|^2 = 1$).

L'égalité (D.11) ne peut donc être vérifiée que si $\alpha = 0$ ou $\delta = 0$. Autrement dit, tout état $|\psi\rangle$ de la forme $|\psi\rangle = \alpha|x\rangle|x\rangle + \delta|y\rangle|y\rangle$ avec $\alpha \neq 0$ et $\delta \neq 0$ est un état intriqué.

D.2 Un peu d'histoire...

De tels états intriqués ont été imaginés pour la première fois par Einstein, Podolsky et Rosen dans leur célèbre article de 1935 [84] pour démontrer (ou tenter de démontrer) l'incomplétude du formalisme quantique.

Pour un tel état, initialement appelé "état EPR", une mesure qui serait réalisée sur le premier sous-système donnerait un résultat aléatoire mais *parfaitement corrélé* au résultat de la mesure qui serait ensuite effectuée sur le second sous-système, et ce quelle que soit la distance séparant les deux sous-systèmes à l'instant de ces mesures.

Prenons par exemple le cas d'une paire de photons préparée dans l'état de polarisation EPR (ou intriqué) suivant :

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|H\rangle|H\rangle + |V\rangle|V\rangle) \quad (\text{D.12})$$

où $|H\rangle$ et $|V\rangle$ représentent les états de polarisation horizontal et vertical respectivement.

La mesure de l'état de polarisation du photon 1 donnera de manière équiprobable le résultat $|H\rangle$ ou le résultat $|V\rangle$, mais la mesure réalisée par la suite sur le photon 2 donnera de manière certaine le même résultat que la mesure effectuée sur le photon 1.

Selon le formalisme quantique, cette corrélation forte s'explique par le fait que, lorsque la mesure est réalisée sur le photon 1, le photon 2 (dont l'état de polarisation n'était pas défini avant cette mesure) est *instantanément* projeté dans l'état de polarisation parallèle au résultat de cette mesure, et ce, répétons-le, quelle que soit la distance séparant les deux photons à l'instant de la mesure sur le photon 1. Cette description semble contredire le principe de relativité (selon lequel deux objets séparés d'une distance *assez grande* ne peuvent pas s'influencer mutuellement – car ils ne peuvent pas échanger d'information à une vitesse supérieure à celle de la lumière!). De ces fortes corrélations prédites par le formalisme quantique pour les états intriqués, Einstein, Podolsky et Rosen concluent donc que les deux sous-systèmes possèdent, **dès l'instant de leur création**, une propriété commune fixant leur état, de manière aléatoire mais corrélée ($|H\rangle|H\rangle$ ou $|V\rangle|V\rangle$ dans le cas de la paire de photons intriqués décrite ci-dessus). Une telle propriété commune *aléatoire d'une paire à l'autre* n'étant pas prise en compte dans le formalisme quantique (qui attribue *le même état quantique* $|\psi\rangle$ – de la forme de l'équation (D.12) – à *toutes* les paires), Einstein, Podolsky et Rosen en concluent que le formalisme quantique est incomplet.

Une trentaine d'années plus tard, Bell offre à ce débat un cadre purement mathématique, en établissant les inégalités qui portent son nom [85] et qui doivent nécessairement être vérifiées dans n'importe quelle "théorie à variables cachées" ou "théorie à paramètres supplémentaires" comme celle qu'Einstein aurait voulu voir remplacer le formalisme quantique qu'il jugeait

incomplet (mais dont il reconnaissait l'efficacité de prédiction...).

Or, il est formellement possible de démontrer [86] que, lorsque les mesures réalisées sur les deux sous-systèmes sont soumises à certaines conditions particulières, les prédictions de la mécanique quantique conduisent à une violation des inégalités de Bell⁹. Ce résultat permet donc d'affirmer qu'aucune théorie à variables cachées ne peut reproduire *l'ensemble* des prédictions de la mécanique quantique, et donc que le fait de *compléter* le formalisme quantique en y ajoutant des paramètres supplémentaires comme le suggéraient Einstein, Podolsky et Rosen n'est pas satisfaisant.

9. La démonstration expérimentale a été tentée pour la première fois (et avec plus ou moins de succès) dès le début des années 1970 [15, 16, 87], avec cependant des schémas expérimentaux très éloignés du schéma idéal. Les premiers résultats spectaculaires et concluants ont été apportés au début des années 1980 par les célèbres "expériences d'Orsay" [88].

E Article : *Frequency-dissymmetric parametric sideband generation in a microstructured fiber*

Cet article, publié en novembre 2013, est le résultat d’observations et d’analyses que nous avons menées lors de la phase préliminaire de validation du montage “amont” d’injection des impulsions de pompe dans notre fibre microstructurée (voir schéma de la figure (3.1.1)). La validation de cette partie du montage a été réalisée en utilisant, à la place de la fibre à cœur liquide, la fibre microstructurée à cœur de silice RTI-1605-UV de chez *Xlim*, dont nous connaissons déjà les propriétés linéaires et non linéaires (courbe de dispersion, coefficient non linéaire, courbe d’accord de phase et gain d’amplification par mélange à quatre ondes).

Lors de cette phase de validation, nous avons observé le processus de mélange à quatre ondes spontané amplifié dans la fibre à cœur de silice, en régime de dispersion anormale, *mais également en régime de dispersion normale*, alors que la courbe d’accord de phase (voir figure (1.2.4)) annonce que le processus ne peut pas avoir lieu de manière efficace si β_2 est positif. Plus étonnant, en régime de dispersion normale, les bandes paramétriques générées et amplifiées présentaient une claire *dissymétrie en fréquence* par rapport au spectre de pompe injecté dans la fibre microstructurée.

L’article reproduit ici présente les observations et études systématiques que nous avons réalisées et les analyses qui nous ont menés à identifier l’origine de ce phénomène à première vue surprenant. Bien qu’il nous ait occupés quelques temps, ce travail est fortement indépendant de mon sujet de thèse à proprement parler ; c’est la raison pour laquelle j’ai choisi de le mentionner en annexe de ce manuscrit.

Frequency-dissymmetric parametric sideband generation in a microstructured fiber

Margaux Barbier,^{1,*} Philippe Leproux,² Philippe Roy,² and Philippe Delaye¹

¹Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique, CNRS, Univ Paris-Sud,
2 Avenue Augustin Fresnel, 91127 Palaiseau, France

²Université de Limoges, XLIM, UMR CNRS 7252, 123 Avenue Albert Thomas, 87060 Limoges, France

*Corresponding author: margaux.barbier@institutoptique.fr

Received June 26, 2013; revised September 6, 2013; accepted September 6, 2013;
posted September 19, 2013 (Doc. ID 192963); published October 15, 2013

We experimentally demonstrate the nonlinear generation of frequency-dissymmetric sidebands by injecting picosecond pump pulses inside the fundamental mode of a silica-core photonic crystal fiber in its normal dispersion regime. A systematic analysis highlights the fact that this phenomenon is based on the combination of the two major nonlinear effects occurring inside the fiber: self-phase modulation and degenerate four-wave mixing. © 2013 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4370) Nonlinear optics, fibers; (190.4380) Nonlinear optics, four-wave mixing; (190.3270) Kerr effect; (060.5295) Photonic crystal fibers.

<http://dx.doi.org/10.1364/JOSAB.30.002889>

1. INTRODUCTION

Four-wave mixing (FWM) in optical fibers [1] is the basis of a large variety of applications. This mechanism has been demonstrated as one of the sources for supercontinuum generation [2]. On the other hand, fiber-optic parametric amplifiers (FOPAs) can be used for signal amplification and wavelength conversion, even in the visible range of the optical spectrum [3]. FOPAs can also be employed for ultrafast signal processing, due to the quasi-instantaneous nature of this nonlinear process [4]. Moreover, spontaneous FWM in optical fibers [5,6] opens the way to all-fiber quantum communication devices useful in the field of quantum communication networks [7].

The development of photonic crystal fibers (PCFs) [8] led to a leap forward in the field of nonlinear optics in fibers. Indeed, the original properties of such fibers allow us to control nonlinear effects and to reinforce their efficiency; that is to say, to optimize the performances of devices that are based on these nonlinear effects [9–13]. For example, efficient FWM occurs only when the phase-matching condition is satisfied; thus pump, signal, and idler wavelengths must be close to the zero-dispersion wavelength λ_0 of the fiber. In the case of conventional silica fibers, λ_0 is about 1.3 μm , and generated photons necessarily have wavelengths close to this value, thus covering the telecoms wavelength bands. PCFs allow us to overcome this limitation: appropriately designing the microstructuring of the fiber enables to tailor its dispersion properties and, particularly, to position the value of λ_0 in the near infrared, opening the possibility to generate pairs of photons in the visible [6].

In pulsed regime, FWM is generally associated to another well-known nonlinear effect, governed by the same nonlinear parameter: self-phase modulation (SPM), which occurs when a single pulsed pump beam is injected in the silica core of a fiber [14], and that is responsible for a spectral broadening of

the pump beam. These phenomena are usually considered as decoupled from each other in FWM experiments and treated independently in analytical models. For example, if supercontinuum generation is mainly governed by SPM in the fs regime, it is the FWM mechanism that governs supercontinuum generation in the ps regime; in that case, it was shown that simple CW FWM equations are sufficient to describe the observations [2]. Identically, for the generation of pairs of photons [5–7], where ps laser sources are usually used, the CW modeling of FWM is generally successfully used to describe the experimental results. In this paper, we demonstrate that, using a PCF in its normal dispersion regime, it is possible to reach an operating point for which such a decoupling is no longer valid. Independently describing spontaneous FWM, on the one hand, and SPM on the other hand, leads to simulation results that are not consistent with our experimental observations. Indeed, as we will see in Section 4, we actually observe for the first time to our knowledge a spontaneous FWM phenomenon when injecting pump pulses at a wavelength λ_{inj} for which the calculated phase-matching curve predicts that no efficient FWM process can occur. Moreover, this FWM phenomenon shows a clear frequency dissymmetry with respect to the injected pulse frequency.

The paper is organized as follows. Section 2 starts with a brief theoretical description of the two nonlinear processes involved in our experiments: SPM and degenerate FWM. In Section 3, we describe the properties of our PCF and the experimental setup. In Section 4, we present our experimental results and discuss the role of SPM in getting efficient frequency-dissymmetric FWM in the normal dispersion regime of a fiber. Finally, a conclusion is drawn in Section 5.

2. THEORETICAL BACKGROUND

In this section, we give a brief theoretical description of the two nonlinear phenomena involved in our experiments: SPM

and degenerate FWM. These processes are both governed by the real part of the third-order nonlinear susceptibility $\chi^{(3)}$ of the medium.

For the experiments presented in this paper, the slowly varying envelope and the quasi-monochromatic field approximations can be adopted, and all the equations presented in this section are valid in this framework. However, since the propagation duration is high (approximately 5 ns in a 1 m long fiber) compared to the pulse duration we used (about 1 ps), the effects of the group-velocity mismatch (GVM) should be taken into account, particularly regarding the FWM process. Note that we can use a scalar approach, since all the involved fields in our experiments present the same linear polarization state (see Section 3).

A. Self-Phase Modulation

SPM originates from the intensity-dependence of the refractive index in nonlinear optical media. It results in a spectral broadening of optical pulses injected inside the medium, without any temporal change [14].

Solving the nonlinear propagation equation with negligible dispersion shows that SPM gives rise to an intensity-dependent phase-shift, which reaches its maximum value at the maximum of the pulse temporal shape. This maximum value is

$$\Phi_{\text{NL,max}}(z) = \gamma P_p L_{\text{eff}}(z) = \gamma P_p \frac{1 - e^{-\alpha z}}{\alpha}, \quad (1)$$

where P_p is the injected pump peak power, α is the attenuation constant (due to linear losses), and $L_{\text{eff}}(z)$ is the effective propagation length of the pulse inside the nonlinear medium. γ is the nonlinear coefficient of the medium, given by [14]

$$\gamma = \frac{\omega_p n_2^{(l)}}{c A_{\text{eff}}}, \quad (2)$$

where c is the speed of light in vacuum, ω_p is the pump frequency, $n_2^{(l)}$ is the nonlinear refractive index of the material (in our case, the propagating mode is mainly contained in the silica core of a fiber, and thus we can use the $n_2^{(l)}$ of silica: $2.7 \times 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ [14]), which is proportional to the real part of $\chi^{(3)}$, and A_{eff} is the effective mode area.

Intensity dependence of the nonlinear phase shift results in the creation of new spectral components, due to the fact that the optical frequency is no longer constant in the total temporal width of the pulse: the pulse is chirped. The instantaneous optical frequency differs from the central frequency, and the difference $\delta\omega$ is given by

$$\delta\omega(t) = -\frac{\partial \Phi_{\text{NL}}(t)}{\partial t}. \quad (3)$$

Thus, the initial spectrum is broadened, and after a propagation length z inside the nonlinear medium, this spectral broadening is proportional to the maximum nonlinear phase shift [14]:

$$\frac{\Delta\lambda(z)}{\Delta\lambda(z=0)} \propto \Phi_{\text{NL,max}}(z). \quad (4)$$

The experiments presented in this paper involve hyperbolic secant pulses [see Fig. 1(a)]. For such a temporal shape, an

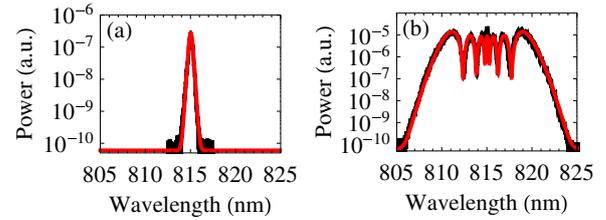


Fig. 1. Measured (black curves) intensity spectra (in logarithmic scale) for an hyperbolic secant pulse (with an injected peak power equal to 407 W) at the input (a) and at the output (b) of a third-order nonlinear medium, with the simulated (red) spectra [see Eq. (5)] using parameters $\alpha = 0.17 \text{ m}^{-1}$, $T_0 = 1.1 \text{ ps}$, $\Phi_{\text{NL,max}} = 6\pi$, and $z = 0.97 \text{ m}$ and a central wavelength equal to 815 nm.

analytical model giving the spectral evolution due to SPM [15] [see Fig. 1(b)] is available. According to this analytical model, if we call $U(t; z=0) = \text{sech}(t/T_0)$ the normalized amplitude of the injected pulse, the intensity spectrum after a propagation length z is given by

$$\begin{aligned} I(\omega; z) = & I_0 e^{-\alpha z} T_0^2 \text{sech}^2\left(\frac{\pi\omega T_0}{2}\right) \\ & \times {}_2F_2\left(\left\{\frac{1}{2} + i\frac{\omega T_0}{2}, \frac{1}{2} - i\frac{\omega T_0}{2}\right\}, \left\{\frac{1}{2}, 1\right\}, i\Phi_{\text{NL,max}}(z)\right) \\ & \times {}_2F_2\left(\left\{\frac{1}{2} - i\frac{\omega T_0}{2}, \frac{1}{2} + i\frac{\omega T_0}{2}\right\}, \left\{\frac{1}{2}, 1\right\}, -i\Phi_{\text{NL,max}}(z)\right), \end{aligned} \quad (5)$$

where ${}_2F_2(\{a_1, a_2\}, \{b_1, b_2\}, x)$ is the generalized hypergeometric function with coefficients $\{2; 2\}$.

B. Degenerate Four-Wave Mixing

In degenerate FWM, pump photons at frequency ω_p are annihilated in pairs to simultaneously create a pair of signal and idler photons at frequencies ω_s and ω_i , respectively, such as $\omega_p - \omega_s = \omega_i - \omega_p$ (energy conservation, which implies that the signal and idler photons are generated symmetrically in frequency with respect to the pump spectrum) [14]. This process occurs with high efficiency only if the phase-matching condition (i.e., momentum conservation) is satisfied. The phase-matching condition depends on the values of the propagation constant β at frequencies ω_p , ω_s , and ω_i , the nonlinear coefficient γ and the pump peak power P_p and can be written as [14]

$$\beta(\omega_s) + \beta(\omega_i) - 2\beta(\omega_p) + 2\gamma P_p = 0. \quad (6)$$

It is easy to show that this condition, which allows us to calculate the phase-matching curve of the fiber for degenerate FWM (for a given pump power), can be simplified to a condition on the group-velocity dispersion (GVD) $\beta_2(\omega)$ (second derivative of β with respect to ω) of the fiber, which can be experimentally determined (by a time-of-flight measurement, for example).

In amplified spontaneous degenerate FWM with pump photons at ω_p , the amplification gain at frequency ω is given by [14]

$$G(\omega_p; \omega) = \left(\frac{\gamma P_p}{g(\omega_p; \omega)}\right)^2 \sinh^2(g(\omega_p; \omega) L_{\text{FWM}}), \quad (7)$$

where L_{FWM} is the interaction length for FWM, and $g(\omega_p; \omega)$ is the parametric gain given by

$$g(\omega_p; \omega) = \sqrt{\frac{\Delta k(\omega_p; \omega)}{2} \left(2\gamma P_p - \frac{\Delta k(\omega_p; \omega)}{2} \right)} \quad (8)$$

with

$$\Delta k(\omega_p; \omega) = 2\beta(\omega_p) - \beta(\omega) - \beta(2\omega_p - \omega). \quad (9)$$

When the phase-matching condition is perfectly satisfied ($\Delta k(\omega_p; \omega) = 2\gamma P_p$), the parametric gain reaches its maximum value $g_{\text{max}}(\omega_p) = \gamma P_p$, and the amplification gain becomes

$$G_{\text{max}}(\omega_p; \omega_s) = \sinh^2(\gamma P_p L_{\text{FWM}}) = \sinh^2\left(\Phi_{\text{NL,max}} \frac{L_{\text{FWM}}}{L_{\text{eff}}}\right), \quad (10)$$

where $\Phi_{\text{NL,max}}$ and L_{eff} are the values of the maximum nonlinear phase shift and the effective propagation length [see Eq. (1)] at the output of the fiber, i.e., with $z = L_{\text{fiber}}$ (physical length of the fiber).

The interaction length L_{FWM} can be lower than the effective length of the fiber (which is already lower than the physical length of the fiber because of linear losses) due to temporal walk-off, which can occur between the pump pulses and the generated signal and idler pulses.

Interestingly, Eq. (10) underlines the fact that FWM and SPM are governed by the same parameter: the maximum nonlinear phase shift $\Phi_{\text{NL,max}}$ or, in other words, the nonlinear coefficient γ , i.e. the nonlinear refractive index $n_2^{(l)}$ (which is proportional to the real part of $\chi^{(3)}$).

Experiments that are presented in this paper involve high-gain regime. In such a regime, we can use a classical approach to describe amplified spontaneous FWM, which leads us to show that the expression of the generated power on a frequency range $[\omega - (\Delta\omega/2); \omega + (\Delta\omega/2)]$ when pumping at ω_p is [16]

$$P(\omega_p; \omega; \Delta\omega) = \frac{\hbar}{4\pi^2} \int_{\omega - \frac{\Delta\omega}{2}}^{\omega + \frac{\Delta\omega}{2}} \left(G(\omega_p; \omega') - \frac{1}{2} \right) \omega' d\omega'. \quad (11)$$

Note that if $\Delta\omega$ (which, in practice, represents the spectral resolution of the OSA used to measure the spectra) is small enough (that is to say, smaller than the spectral width of the generated parametric bands), we can write

$$P(\omega_p; \omega; \Delta\omega) \sim \frac{\hbar}{4\pi^2} \omega \Delta\omega \left(G(\omega_p; \omega) - \frac{1}{2} \right), \quad (12)$$

and thus, when the phase-matching condition is perfectly satisfied (i.e., at the maximum value of the amplification gain), we get [according to Eq. (10) and in the high gain limit]

$$P_{\text{max}}(\omega_p; \omega_s; \Delta\omega) \sim \frac{\hbar}{4\pi^2} \omega_s \Delta\omega \sinh^2\left(\Phi_{\text{NL,max}} \frac{L_{\text{FWM}}}{L_{\text{eff}}}\right). \quad (13)$$

C. Two Usually Decoupled Phenomena

As we already said, FWM and SPM are governed by the same parameter (the real part of $\chi^{(3)}$). However, they are usually

decoupled. Indeed, in silica, even after SPM-induced spectral broadening, the pump spectral width usually remains lower than the parametric gain spectral width, on the one hand, and lower than the spectral shift between the pump and FWM-generated signal and idler waves, on the other. Thus SPM-induced spectral broadening of the pump usually has no influence on parametric generation by FWM.

In this paper, we demonstrate that we can find a regime in which this decoupling between FWM and SPM-induced spectral broadening is not valid anymore, and that the latter plays a key role in getting a frequency-dissymmetric FWM.

3. EXPERIMENTAL SETUP

A. Photonic Crystal Fiber Properties

The silica-core PCF used in our experiments (XLIM, RTI-1605-UV, see inset of Fig. 2) exhibits a very small (but nonzero) birefringence ($\Delta n < 10^{-5}$), thus giving rise to two principal axes.

The GVD $\beta_2(\omega)$ of this PCF has been experimentally determined by an interferometric time-of-flight measurement [17] for wavelengths from 740 to 930 nm on each of the two principal axes. Due to the very small birefringence, the results are quasi-identical for the two axes. For the principal axis used in the following experiments, a polynomial fit to our experimental data leads to

$$\beta_2(\omega) = (K_0 + K_1\omega + K_2\omega^2 + K_3\omega^3), \quad (14)$$

with $\beta_2(\omega)$ in $\text{s}^2 \cdot \text{m}^{-1}$, ω in $\text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$ and polynomial fit parameter values given by:

$$\begin{aligned} K_0 &= -1.8110500896234425 \cdot 10^{-24}, \\ K_1 &= 2.1530389065354214 \cdot 10^{-39}, \\ K_2 &= -8.706787346496974 \cdot 10^{-55}, \\ K_3 &= 1.2061182225010229 \cdot 10^{-70}. \end{aligned}$$

The result is consistent with the analytical calculation provided by Saitoh and Koshiba [18] using the geometrical parameters of our PCF (a hole diameter $d = 1.7 \mu\text{m}$ and a hole pitch

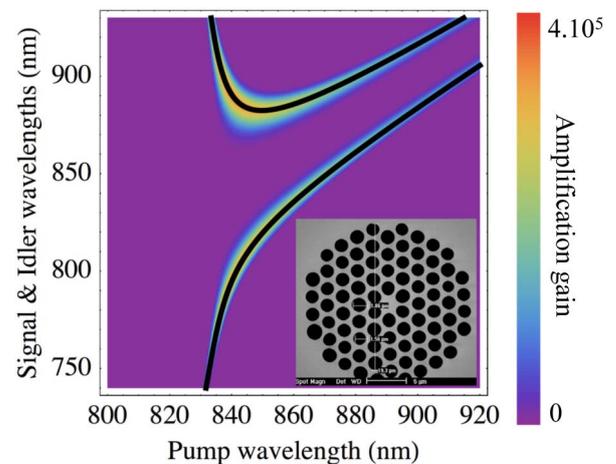


Fig. 2. Calculated phase-matching curve (black) and amplification gain profile based on the GVD measurement (plotted with a pump peak power value of 200 W). Inset: scanning electronic microscope (SEM) image of the transverse structure of our silica-core PCF.

Table 1. Properties of Our Silica-Core PCF

Property	Notation	Value	Unit
Length	L_{fiber}	0.97	m
Attenuation	α	0.17	m^{-1}
Effective length	L_{eff}	0.89	m
Birefringence	Δn	$<10^{-5}$	
Hole diameter	d	1.7	μm
Hole pitch	Λ	2.3	μm
Effective area	A_{eff}	4.0	μm^2
Nonlinear index	$n_2^{(j)}$	2.7×10^{-20}	$\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$
Nonlinear coefficient	γ	~ 0.05	$\text{m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$
Zero-dispersion wavelength	λ_0	834	nm
Vertical asymptote		~ 830	nm

$\Lambda = 2.3 \mu\text{m}$, estimated with a precision of about 5% on the SEM image of the transverse structure of the PCF, see inset of Fig. 2). This analytical model allows us to calculate the effective V parameter of our PCF, and then, using the effective mode area expression as a function of this effective V parameter [19], we find $A_{\text{eff}} = 4.0 \mu\text{m}^2$. And thus, according to Eq. (2), for a pump wavelength around 830 nm, the nonlinear coefficient of our silica-core PCF is about $0.05 \text{ m}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$.

Finally, from this GVD measurement, we estimate the zero-dispersion wavelength of the PCF: $\lambda_0 = 834 \text{ nm}$, and we deduce the phase-matching curve given in Fig. 2, in which we note that there is a vertical asymptote around 830 nm. Thus FWM should not be observed if the pump wavelength λ_p is lower than this limit value.

The various properties of our silica-core PCF are summarized in Table 1.

B. Setup

Our experimental setup is shown schematically in Fig. 3.

A Ti:sapphire laser delivers picosecond hyperbolic secant pulses [see Fig. 1(a)] with an 80 MHz repetition rate. The pulse duration T_0 is systematically measured using an autocorrelator.

The pump beam is linearly polarized, and we use a half-wave plate (HWP) to choose the orientation of this linear polarization state. As we already said, the PCF presents a residual birefringence that gives rise to two principal axes. We align the polarization state of the pump beam with one of these principal axes, and thus we get a linearly polarized beam at the output of the PCF. Even if this paper exclusively provides the results that have been obtained through a systematic analysis on *this* principal axis, it is important to note that similar results were obtained on both axes.

We inject the pump pulses through a microscope objective. At the output of the PCF, we use an imaging lens and a video camera to monitor the transverse profile of the beam. Thus we can check that the injected beam propagates on the fundamental mode of the PCF. Thanks to a removable mirror,

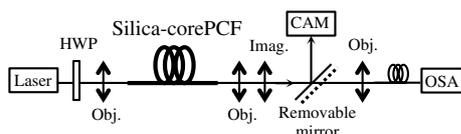


Fig. 3. Experimental setup used to observe frequency-dissymmetric FWM in our PCF. (Obj., microscope objective; HWP, half-wave plate; Imag., imaging lens.)

we can choose between viewing the transverse profile of the beam and injecting it into an optical spectrum analyzer (OSA) in order to measure the output spectrum. Note that the shape of the output spectrum also gives information about the injection quality: as soon as the injected beam propagates on more than one transverse mode, the measured output spectrum becomes unstable and oscillating. In other words, the quality and stability of the output spectrum guarantees that the beam is injected on the fundamental mode of the fiber.

Moreover, the output spectrum measurement also allows us to check that the parametric sidebands are linearly co-polarized with the pump beam. Thus the scalar approach used in Section 2 is actually valid.

C. Getting the Pump Power Value by Measuring the SPM-Induced Spectral Broadening of the Pump

In all our experiments, precise knowledge of the value of the injected peak power P_p is essential, since it drives the spectral location and the power level of the generated sidebands. Thus we need an experimental way to accurately measure this parameter. That is why the analytical model resulting in Eq. (5) is useful.

Indeed, by fitting this analytical model to the SPM-broadened spectrum measured at the output of the PCF, we can get the value of $\Phi_{\text{NL,max}}$ (maximum nonlinear phase shift at the output of the fiber), which is the only adjustable parameter in Eq. (5) [we have prior knowledge of the propagation length L_{fiber} , the attenuation constant α (see Table 1), and the pulse duration T_0 by an autocorrelation measurement]. Thus we can accurately deduce the value of P_p according to Eq. (1).

4. RESULTS AND DISCUSSION

On the phase-matching curve (see Fig. 2), the vertical asymptote at $\lambda_p \sim 830 \text{ nm}$ reveals that FWM should not be observed if the pump wavelength λ_p is lower than this limit value.

Our experimental observations are different from this prediction. Indeed, we observe, for example, that an amplified spontaneous FWM process actually occurs when injecting pulses at 815 nm, with generation of signal and idler spectral bands around 925 and 745 nm, respectively (see Fig. 4), contrary to what is expected according to the phase-matching curve. Moreover, a clear frequency dissymmetry with respect to the injected pulse frequency ($\omega_{\text{inj}} = 2c/\lambda_{\text{inj}}$) is seen: generated signal and idler frequencies ω_s and ω_i do not satisfy

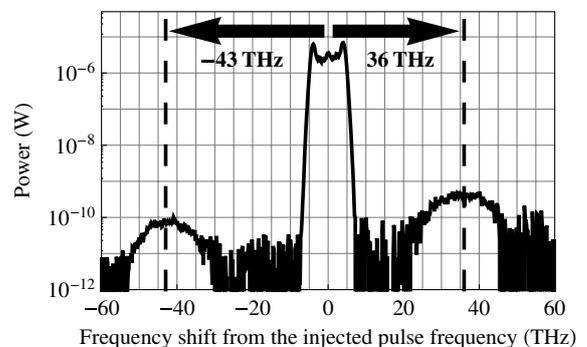


Fig. 4. Example of frequency-dissymmetric spectrum, which has been observed when injecting picosecond hyperbolic secant pulses at 815 nm inside the fundamental mode of the PCF (OSA resolution: 2 nm, i.e., 0.9 THz). The spectral width of the injected beam is increased by a factor of about 100 due to SPM.

$\omega_s + \omega_i = 2\omega_{inj}$. Of course, this result does not mean that the energy conservation is not satisfied, but that the signal and idler photon pairs are not created from two photons at frequency ω_{inj} but at a slightly different frequency ω_{source} such as $2\omega_{source} = \omega_s + \omega_i$.

To understand the origin of this phenomenon, we made some spectrum measurements varying the injected beam wavelength on the one hand, and the injected peak power on the other. The results clearly highlight the key role played by SPM-induced spectral broadening in getting an efficient frequency-dissymmetric FWM process in the normal dispersion regime of our PCF.

A. Injected Wavelength Influence

When varying the injected wavelength λ_{inj} , three operating regimes clearly appear (see Fig. 5):

- (1) The first one (zone I), which corresponds to the values of λ_{inj} much higher than λ_0 (anomalous dispersion regime), and for which our experimental results (generated sideband maxima) follow the phase-matching curve, and the FWM process is frequency-symmetric as expected.
- (2) The second one (zone II.a), which corresponds to the values of λ_{inj} much lower than λ_0 (normal dispersion regime), and for which we observe an *unexpected* and *frequency-dissymmetric* efficient FWM process.
- (3) A transition regime between these two first regimes (zone II.b), for which we can see that the generated sidebands exhibit two local maxima each (see inset of Fig. 5). The frequency dissymmetry is exhibited for both pairs of maxima (the external one, the farther from the pump spectrum; and the internal one, the closer from the pump spectrum), as it can be clearly seen in Fig. 6. The origin of such double-maximum sidebands is discussed in Subsection 4.C.

Figure 6 presents the evolution of λ_{source} as a function of λ_{inj} , clearly showing the dissymmetry that appears when moving to the normal dispersion regime. Recall that λ_{source} is simply calculated thanks to the energy-conservation condition, based on wavelengths λ_s and λ_i measured at the maxima of the

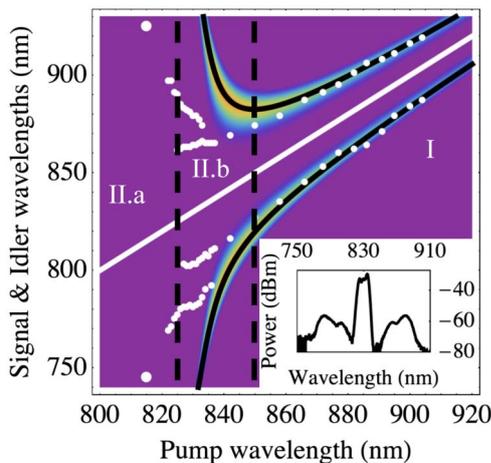


Fig. 5. Comparison between the experimental location of the generated sidebands (for a quasi-constant injected pump peak power of about 200 W) with the phase-matching curve. The white straight line ($y = x$) corresponds to the value of λ_{inj} . Inset: typical spectrum observed in zone II.b, with double-maximum sidebands.

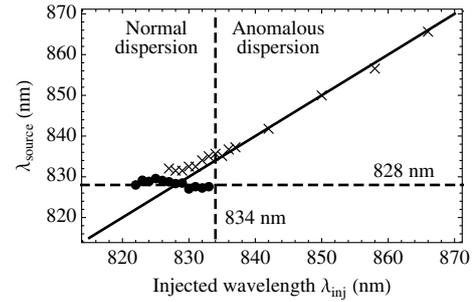


Fig. 6. Evolution of λ_{source} as a function of λ_{inj} . Crosses: anomalous dispersion regime and internal sideband (in the transition regime) results. Dots: external sideband (in the transition regime) results. Straight line ($y = x$): value of λ_{inj} . For values of λ_{inj} higher than 870 nm, λ_{source} remains equal to λ_{inj} (the corresponding crosses, which are not plotted here, are still on the straight line).

generated sidebands. We clearly see that λ_{source} is equal to λ_{inj} in the anomalous dispersion regime, as expected. But the dissymmetry is well viewed in the normal dispersion regime since λ_{source} is not equal to λ_{inj} anymore.

Moreover, the dashed straight line, corresponding to $\lambda_{source} = \lambda_{lim} = 828$ nm, shows that λ_{source} is always higher than this limit value λ_{lim} . In other words, it highlights the fact that only wavelengths higher than λ_{lim} typically can effectively be used as pump for an efficient FWM process. As this limit value seems to correspond to the vertical asymptote (located around 830 nm), this result is consistent with the phase-matching curve.

Another interesting point, which is well viewed in Figs. 5 and 6, is the continuity exhibited by the internal and external maximum pairs of zone II.b with, respectively, the sidebands of zone I and the sidebands of zone II.a. This spectral location continuity is added to a power-level continuity, shown in Fig. 7. Indeed, the internal maximum power level is different from the external maximum-power level, and this difference evolves with λ_{inj} . More precisely, the internal maxima, which follow on from the sidebands of zone I, are predominant as long as $\lambda_{inj} > 832$ nm typically. Their power level decreases, however, as λ_{inj} decreases, whereas the power level of the external maxima grows progressively. The internal maxima end up disappearing when λ_{inj} becomes lower than 824 nm typically. Only the external maxima remain observable, which are in the continuity of the sidebands of zone II.a.

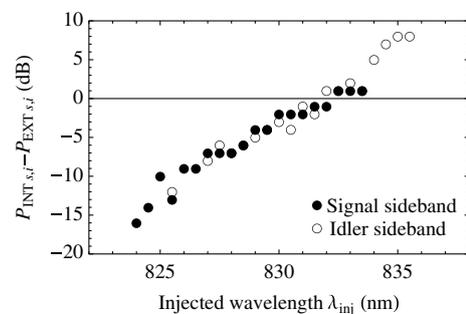


Fig. 7. Difference between internal and external maximum power level (in dB) as a function of the injected wavelength. For injected wavelengths higher than 834 nm (resp. lower than 825 nm) typically, the power difference between the two maxima can be evaluated with good reliability only on the idler (resp. signal) sideband; that is why only idler (resp. signal) data is plotted.

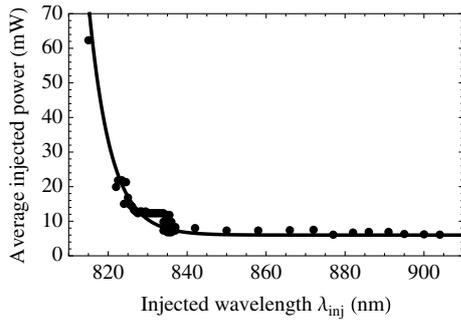


Fig. 8. Average injected power used for the spectrum measurements presented in this subsection. Our experimental criterion was to keep, on the OSA, approximately the same sideband power level for all the measured spectra. This experimental data interestingly highlights a trend showing that the injected power has to be increased when λ_{inj} decreases from λ_0 . The solid line is a guideline.

This phenomenon is a clear signature of a competition between two mechanisms responsible for the presence of the two maxima.

For this set of experiments, a last interesting point remains. Indeed, we noted that the minimum peak power that we had to inject inside the PCF in order to observe the parametric sideband generation became higher and higher when we entered more and more heavily in the normal dispersion regime (see Fig. 8). This result is far from insignificant, since it actually allows us to intuitively understand the key role played by SPM in getting a frequency-dissymmetric FWM process.

Indeed, at the input of the fiber, the spectral width of the injected pulses is very small (typically less than 0.5 nm), and if the injected wavelength is lower than 830 nm typically (vertical asymptote location), according to the phase-matching curve, no efficient FWM should be observed. But, during the propagation inside the fiber, the spectrum broadens due to SPM, and if the injected peak power is high enough to produce a sufficiently large broadening factor (see Subsection 2.B), a part of the spectrum can cross beyond the vertical asymptote and effectively be used as pump for an efficient FWM process. Of course, the lower λ_{inj} is, the larger the broadening factor has to be in order to make a part of the injected spectrum cross beyond the vertical asymptote and intercept the phase-matching curve.

Thus, understanding this phenomenon as a FWM process assisted by SPM-induced spectral broadening is consistent with all the experimental results presented in this subsection. Moreover, it has been quantitatively confirmed by our second set of experiments by varying the injected peak power (see Subsection 4.B below).

B. Injected Power Influence

For these experiments, we chose three characteristic wavelengths, one for each operating regime described in the previous subsection: 873 nm (zone I); 830 nm (zone II.b); and 825 nm (zone II.a). For each of them, we measured the output spectrum by varying the injected peak power (see Fig. 9).

We know that, when the phase-matching condition is perfectly satisfied, the amplification gain increases exponentially with the pump peak power and the interaction length L_{FWM} [see Eq. (10)]. In other words, by plotting the generated sideband maximum-power level ($P_{s,i}$, expressed in dBm) as a function of the injected peak power (P_{inj} , expressed in W),

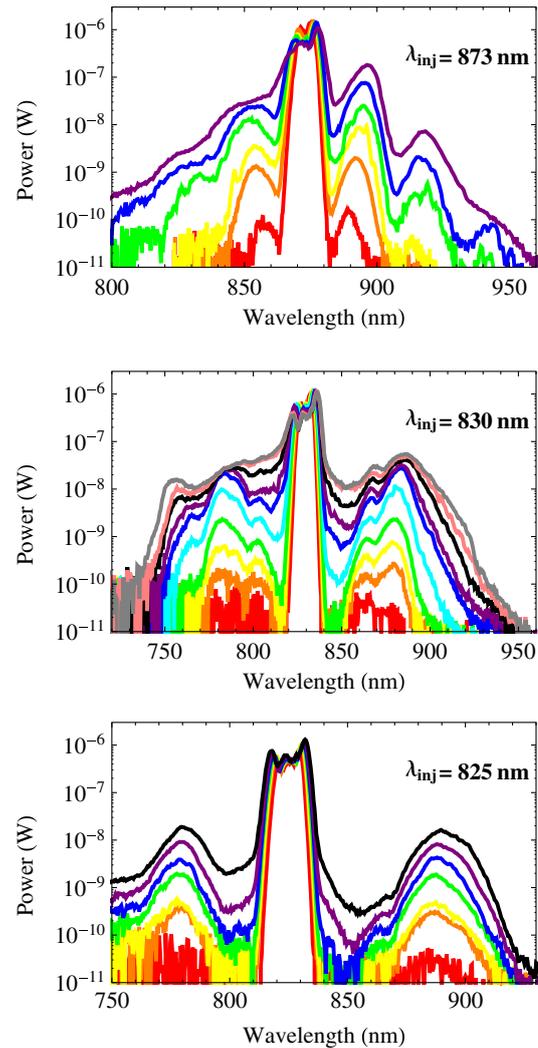


Fig. 9. Measured spectrum networks for $\lambda_{inj} = \{873; 830; 825\}$ nm and P_{inj} varying typically between 170 and 290 W for $\lambda_{inj} = 873$ nm, between 230 and 510 W for $\lambda_{inj} = 830$ nm, and between 330 and 530 W for $\lambda_{inj} = 825$ nm (OSA resolution: 2 nm). For $\lambda_{inj} = 873$ nm, we see the apparition of a cascade FWM process when P_{inj} is above 230 W typically.

we must find a straight line, whose slope is proportional to L_{FWM} and (in first approximation) independent of the wavelength.

As we can see in Fig. 10, we indeed find a straight line for experimental data in the anomalous dispersion regime (we can take this straight line as a reference, since we know that everything works as expected in this regime). Moreover, by superimposing the experimental spectra with the simulation results provided by the model described in Subsection 2.A [see Eqs. (7) and (11)], we can see that this simple model is quite consistent with the experimental observations (see Fig. 11), at least as long as the nonlinear effects remain quite weak (for high injected peak power values, the output spectrum *explodes* with the apparition of a cascade FWM process, and a simple description of the involved nonlinear processes becomes impossible). Indeed, this simple model gives:

- (1) The spectral location of the sideband maxima with only a 3- or 4-nm-shift compared to the experimental results.

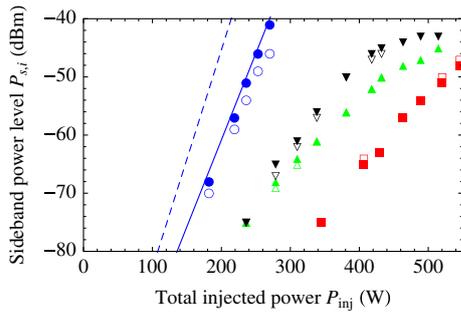


Fig. 10. Measured sideband power level (from spectra in Fig. 9) plotted as a function of the total injected power. Filled symbols: signal; empty symbols: idler; circles: anomalous dispersion regime (with $\lambda_{inj} = 873$ nm); squares: normal dispersion regime (with $\lambda_{inj} = 825$ nm); upward and downward triangles: internal and external maxima, respectively, in the transition regime (with $\lambda_{inj} = 830$ nm). The dashed and solid lines correspond to the simulation results with an interaction length $L_{FWM} = L_{eff} = 0.9L_{fiber}$ and $L_{FWM} = 0.8L_{eff} = 0.7L_{fiber}$, respectively.

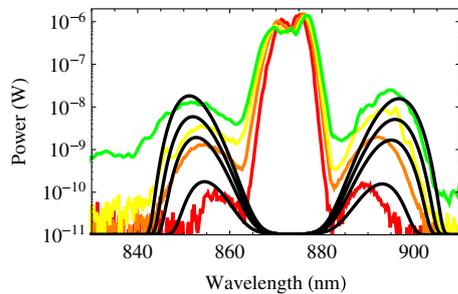


Fig. 11. Measured spectra for $\lambda_{inj} = 873$ nm and with an OSA spectral resolution of 2 nm. Black solid lines correspond to the simulation results [based on Eqs. (7) and (11)] with $L_{FWM} = 0.8L_{eff} = 0.7L_{fiber}$ and pump peak powers equal to the injected peak powers: {175; 210; 225; 240} W.

(2) The right maximum power level, provided an interaction length L_{FWM} reduced by a factor 0.8 from the effective length L_{eff} (i.e., by a factor 0.7 from the physical length L_{fiber}), thus showing that the temporal walk-off effect actually has a small but real influence.

(3) And last but not least, a sideband spectral width consistent with the experimental results, showing that SPM-induced spectral broadening of the injected pulses has no major influence (since our model is based on the quasi-monochromatic field approximation), at least in a low-power regime.

The problem is that the other data series in Fig. 10 are not aligned (as they should be, however) on the same straight line as the experimental results obtained in the anomalous dispersion regime. Interestingly, this result is consistent with our interpretation of the phenomenon. Indeed, in the anomalous dispersion regime, the total injected power is used as a pump for the degenerate FWM process. But, by contrast, it is not the case in the normal dispersion regime, in which only the part of the spectrum that has crossed beyond 830 nm typically (thanks to SPM-induced spectral broadening) is effectively used. Plotting the evolution of $P_{s,i}$ as a function of this *useful* power (rather than the total injected power) should lead to a common alignment of all data series on the same straight line.

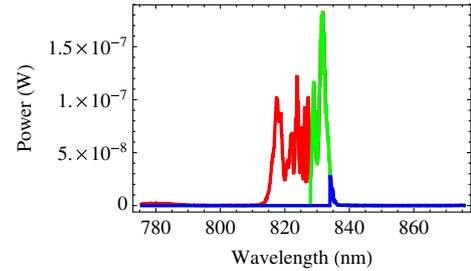


Fig. 12. Example of SPM-broadened spectrum recorded in linear scale and with an OSA resolution of 0.2 nm. P_{inj} is proportional to the integral of the entire spectrum (red); $P_{useful,828 \text{ nm}}$ and $P_{useful,834 \text{ nm}}$ are proportional to the integrals of the green part and the blue part, respectively (with the same proportionality factor).

To determine the value of the useful power, we record SPM-broadened spectra with a spectral resolution of 0.2 nm on the OSA and with a linear power scale (see Fig. 12). The total injected peak power P_{inj} is proportional to the integral of the entire associated spectrum, whereas the useful peak power is proportional (with the same proportionality factor) to the integral of this spectrum above a cutoff wavelength λ_c only. The value λ_c has to be precisely determined, knowing that it is around 830 nm.

To determine the precise value of λ_c , we record a series of spectra (as described in the previous paragraph) keeping $\lambda_{inj} = 825$ nm and varying P_{inj} from 330 to 530 W. For each of these spectra, we try out several cutoff wavelengths (from 815 to 835 nm with an increment of 1 nm), and we calculate the useful powers for each of the spectra and each of the tested cutoff wavelengths. In what follows, we call them P_{useful,λ_c} . We choose 815 and 835 nm to be the two extreme values of tried cutoff wavelengths because (1) the correction made with $\lambda_c = 815$ nm is expected to be weak, since $P_{useful,815 \text{ nm}}$ will remain close to P_{inj} , and (2) by contrast $P_{useful,835 \text{ nm}}$ will be equal to zero (for the lowest values of P_{inj}) or close to zero since a very small part of the spectra can reach wavelengths higher than 835 nm (see Fig. 12).

Then we plot the red data series of Fig. 10 as a function of all the P_{useful,λ_c} with λ_c varying from 815 to 835 nm, and we find that the only value of λ_c leading to an alignment of these red data series on the theoretical blue straight line of Fig. 10 is around 828 nm. To further confirm this result, we then calculate $P_{useful,828 \text{ nm}}$ for $\lambda_{inj} = 830$ nm and P_{inj} varying from 230 to 510 W (with still the same procedure, recording SPM-broadened spectra with a spectral resolution of 0.2 nm on the OSA), and we plot the green and black data series (associated with internal and external maxima, respectively) of Fig. 10 as a function of these $P_{useful,828 \text{ nm}}$. We also retrieved the alignment of these data series on the theoretical blue straight line (see Fig. 13, which shows the common alignment of all the data series on this blue straight line). Thus we can conclude that the correct value of λ_c is about 828 nm (with a precision of about 2 nm).

It is important to note that the fact that this correction provides a common alignment for *all* the data series (i.e., that there actually exists a unique cutoff wavelength, which is valid for all the values of λ_{inj}) is a quantitative confirmation of the analysis we made based on our first study (when varying the injected wavelength). Indeed, this result confirms that an efficient FWM can be observed even if the phase-matching

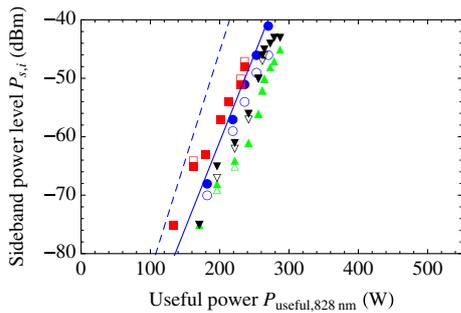


Fig. 13. Measured sideband power level plotted as a function of the “right” useful power $P_{\text{useful},828 \text{ nm}}$. (See caption of Fig. 10.)

curve (which has been calculated neglecting the effect of SPM-induced spectral broadening) predicts that it should not occur because a part of the SPM-broadened injected spectrum falls beyond the vertical asymptote and thus intercept the phase-matching curve.

We also easily understand the origin of the frequency dissymmetry, since we can clearly see that λ_{source} (which can be seen as the central wavelength of the *useful* spectrum, see Fig. 12) is necessarily higher than λ_{inj} (central wavelength of the *entire* broadened spectrum).

C. Discussion on the Origin of Double-Maximum Sideband Generation

As illustrated in Fig. 9, spectra that are recorded in the transition regime II.b, exhibit two double-maximum sidebands (whereas there is only one maximum for each sideband generated in zones I and II.a). These two maxima are clearly distinguishable, particularly when λ_{inj} ranges between 825 and 835 nm typically.

The exact origin of such a double-maximum sideband generation is not obvious. One avenue that could be explored involves the effect of temporal walk-off. The interaction length L_{FWM} changes weakly with λ_{inj} (at least on the range of λ_{inj} that we study). However, these weak variations could be responsible for the presence of two local maxima (rather than a unique one) on the amplification gain curve as a function of wavelength, for a given pump wavelength [see Eq. (7)]. In a qualitative way, we can understand the problem as follows.

When λ_{inj} moves away from the zero-dispersion wavelength of the fiber ($\lambda_0 = 834 \text{ nm}$), the GVM increases between the pump pulse and the generated pulses. In the anomalous dispersion regime, the signal and idler wavelengths are quite close to the pump wavelength, and thus GVD-induced temporal walk-off has a relatively weak impact (the interaction length is reduced by a factor of ~ 0.8 compared to the effective length of the fiber, which is already reduced by a factor of ~ 0.9 compared to the physical length of the fiber; thus we have $L_{\text{FWM}} \sim 0.7L_{\text{fiber}}$).

By contrast, when λ_{inj} decreases from λ_0 , the situation becomes more complex, with the apparition of two maxima in the FWM sidebands. We interpret this coexistence as a signature of the competition between the spectrally large FWM gain and the temporal walk-off.

The internal maxima correspond to a situation with low temporal walk-off as the frequencies stay close to the pump, but with a smaller gain as those frequencies are generated far

from the maximum of the gain curve. The amplitude of the internal maxima goes lower as λ_{inj} decreases further, since they are generated farther and farther from the gain maximum.

At the same time, the external maxima are generated with a high gain as they are closer to the gain maximum, which is enough to compensate for their larger temporal walk-off coming from a larger frequency separation from the pump. Paradoxically, those external maxima become less and less sensitive to the temporal walk-off, as they need (to be generated) a sufficiently large SPM-induced spectral broadening of the injected pulses to create the source wavelength. When λ_{inj} decreases, the source wavelength is created closer and closer to the fiber output, and the remaining fiber length is no longer sufficient to generate a substantial temporal separation between the various frequency components. Thus the amplitude of the external maxima becomes larger and larger compared to the amplitude of the internal maxima (see Fig. 7).

5. CONCLUSION

We experimentally demonstrate that an efficient FWM process can be observed in the normal dispersion regime of a fiber, in contradiction with the prediction provided by the phase-matching curve calculated from the GVD measurement of the fiber. We show that it is the result of the combination of two nonlinear phenomena: degenerate FWM and SPM. Indeed, whereas the phase-matching curve is usually plotted without taking into account the possibility of a spectral broadening of the injected pulses during their propagation inside the fiber, we can see that, under certain conditions, the decoupling between FWM and SPM-induced spectral broadening is not valid anymore.

One of the unexpected features of this phenomenon lies in its frequency-dissymmetric behavior. Of course, this frequency dissymmetry does not mean that the energy conservation is not satisfied, but *only* that the effective pump frequency ω_{source} is slightly different from the injected frequency ω_{inj} .

Such a frequency-dissymmetric FWM can be observed only if the phase-matching curve for degenerate FWM exhibits a vertical asymptote, i.e., if no efficient FWM process is expected when pumping below the zero-dispersion wavelength typically. As a result, it is worth noting that this phenomenon advantageously presents an *extension* of the spectral range on which an efficient FWM process can occur: instead of being restricted to injected pulse wavelengths higher than the zero-dispersion wavelength λ_0 of the fiber, experimenters can work with lower wavelengths, providing the availability of a high enough peak power and/or interaction length to sufficiently broaden (by SPM) the injected pulse spectrum.

Our experimental investigations, combined with some simple analytical models, have allowed us to understand the origin of this surprisingly unexpected and frequency-dissymmetric FWM process. Some more complete analytical and/or numerical models could allow us to confirm our analyses and moreover to clearly identify the origin of the double-maximum sideband generation occurring in the transition regime. Such models should take into account FWM, SPM, Raman scattering, and, last but not least, propagation effects such as temporal walk-off.

ACKNOWLEDGMENTS

This work is financially supported by the C’Nano Ile-de-France “GENEPHY” project, and Margaux Barbier acknowledges the DGA for its financial support.

REFERENCES

1. M. Marhic, *Fiber Optical Parametric Amplifiers, Oscillators and Related Devices* (Cambridge University, 2012).
2. J. Dudley, G. Genty, and S. Coen, “Supercontinuum generation in photonic crystal fiber,” *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1135–1184 (2006).
3. G. Agrawal, *Applications of Nonlinear Fiber Optics* (Academic, 2008).
4. J. Hansryd, P. Andrekson, M. Westlund, J. Li, and P.-O. Hedekvist, “Fiber-based optical parametric amplifiers and their applications,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **8**, 506–520 (2002).
5. L. Wang, C. Hong, and S. Friberg, “Generation of correlated photons via four-wave mixing in optical fibers,” *J. Opt. B* **3**, 346–352 (2001).
6. O. Alibart, J. Fulconis, G. Wong, S. Murdoch, W. Wadsworth, and J. Rarity, “Photon-pair generation using four-wave mixing in a microstructured fiber: theory versus experiment,” *New J. Phys.* **8**, 67 (2006).
7. J. Fan, A. Migdall, J. Chen, E. Goldschmidt, and A. Ling, “Microstructure fiber-based source of photonic entanglement,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **15**, 1724–1732 (2009).
8. P. Russel, “Photonic-crystal fibers,” *J. Lightwave Technol.* **24**, 4729–4749 (2006).
9. V. Finazzi, T. Monro, and D. Richardson, “Small-core silica holey fibers: nonlinearity and confinement loss trade-offs,” *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 1427–1436 (2003).
10. S. Coen, A. L. Chau, R. Leonhardt, J. Harvey, J. Knight, W. Wadsworth, and P. Russel, “Supercontinuum generation by stimulated Raman scattering and parametric four-wave mixing in photonic crystal fibers,” *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 753–764 (2002).
11. P. Roberts, P. Mangan, H. Sabert, F. Couny, T. Birks, J. Knight, and P. Russel, “Control of dispersion in photonic crystal fibers,” *J. Opt. Fiber. Commun. Rep.* **2**, 435–461 (2005).
12. F. Benabid, J. Knight, G. Antonopoulos, and P. Russel, “Stimulated Raman scattering in hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber,” *Science* **298**, 399–402 (2002).
13. S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, and G. Roosen, “High-efficiency single-mode Raman generation in a liquid-filled photonic bandgap fiber,” *Opt. Lett.* **32**, 337–339 (2007).
14. G. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic, 2007).
15. M.-C. Phan Huy, A. Baron, S. Lebrun, R. Frey, and P. Delaye, “Characterization of self-phase modulation in liquid-filled hollow core photonic bandgap fibers,” *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, 1886–1893 (2010).
16. A. Bogris, D. Syvridis, P. Kylemark, and P. Andrekson, “Noise characteristics of dual-pump fiber-optic parametric amplifiers,” *J. Lightwave Technol.* **23**, 2788–2795 (2005).
17. A. Weiner, *Ultrafast Optics* (Wiley, 2009).
18. K. Saitoh and M. Koshiba, “Empirical relations for simple design of photonic crystal fibers,” *Opt. Express* **13**, 267–274 (2005).
19. M. Koshiba and K. Saitoh, “Applicability of classical optical fiber theories to holey fibers,” *Opt. Lett.* **29**, 1739–1741 (2004).

F Liste des communications relatives à ce travail de thèse

ARTICLES DANS DES REVUES INTERNATIONALES AVEC COMITÉ DE LECTURE

- M. Barbier, P. Leproux, P. Roy, and P. Delaye, “Frequency-dissymmetric parametric sideband generation in a microstructured fiber,” *J. Opt. Soc. Am. B* 30, 2889 (2013) (cf. Annexe E).

PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS ORALES DANS DES CONFÉRENCES INTERNATIONALES

- M. Barbier, I. Zaquine, and P. Delaye, “Generation of correlated photon pairs by spontaneous four-wave mixing in liquid-core microstructured fibres,” European Conference on Optical Communication (ECOC), CLEO Focus Meeting on Fundamental Photonics for Future Telecommunications, Cannes, France, 21-25 September 2014, Tu.4.7.2.
- M. Barbier, I. Zaquine, and P. Delaye, “Generation of correlated photon pairs by spontaneous four-wave mixing in liquid-core photonic crystal fibres,” European Optical Society Annual Meeting (EOSAM), Berlin, Germany, 15-19 September 2014.
- M. Barbier, P. Delaye, S. Lebrun, G. Pauliat, and M.-C. Phan Huy, “Optimization of liquid filled hollow core photonic fibers for nonlinear applications,” 23rd Congress of the International Commission for Optics (ICO-23), Santiago de Compostela, Spain, 26-29 August 2014.
- M. Barbier, I. Zaquine, and P. Delaye, “Generation of correlated photon pairs by spontaneous four-wave mixing in liquid-filled hollow-core photonic crystal fibres,” 21st Central European Workshop on Quantum Optics (CEWQO 2014), Brussels, Belgium, 23-27 June 2014, C-7.
- M. Barbier, P. Leproux, P. Roy, and P. Delaye, “Frequency-dissymmetric parametric sideband generation in a photonic crystal fibre,” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)/Europe, Munich, Germany, 12-16 May 2013. CD-3.3.

PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS ORALES DANS DES CONFÉRENCES NATIONALES

- M. Barbier and P. Delaye, “Génération de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes dans une fibre microstructurée à cœur liquide,” Colloque sur les Lasers et l’Optique Quantique (COLOQ’13), Villetaneuse, France, 8-11 Juillet 2013. P1.
- M. Barbier, P. Leproux, P. Roy, and P. Delaye, “Génération paramétrique spontanée dissymétrique en fréquence dans une fibre microstructurée,” Journées Nationales d’Optique Guidée (JNOG’33), Villetaneuse, France, 8-11 Juillet 2013. P162.

ARTICLES EN PRÉPARATION

- M. Barbier, I. Zaquine, and P. Delaye, “Generation of correlated photon pairs by spontaneous four-wave mixing in liquid-filled hollow-core photonic crystal fibers” (soumission à *Optics Letters*)
- P. Delaye, C. Hastings, A. Laursen, M. Barbier, M.-C. Phan Huy, G. Pauliat and S. Lebrun, “Liquid filled hollow core photonic bandgap fibers transmission band shift with index contrast: influence of dispersion”.

Bibliographie

- [1] S. Coen, A. Lun Chau, R. Leonhardt, J. Harvey, J. Knight, W. Wadsworth, and P. Russell, "Supercontinuum generation by stimulated Raman scattering and parametric four-wave mixing in photonic crystal fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 753 (2002).
- [2] J. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1135 (2006).
- [3] H. Kano and H. Hamaguchi, "Characterization of a supercontinuum generated from a photonic crystal fiber and its application to coherent Raman spectroscopy," *Opt. Lett.* **28**, 2360 (2003).
- [4] T. Ohara, H. Takara, T. Yamamoto, H. Masuda, T. Morioka, M. Abe, and H. Takahashi, "Over-1000-channel ultradense WDM transmission with supercontinuum multicarrier source," *J. Lightwave Technol.* **24**, 2311 (2006).
- [5] J. Hansryd, P. Andrekson, M. Westlund, J. Li, and P.-O. Hedekvist, "Fiber-based optical parametric amplifiers and their applications," *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.* **8**, 506 (2002).
- [6] K. Wong, K. Shimizu, M. Marhic, K. Uesaka, G. Kalogerakis, and L. Kazovsky, "Continuous-wave fiber optical parametric wavelength converter with +40-dB conversion efficiency and a 3.8-dB noise figure," *Opt. Lett.* **28**, 692 (2003).
- [7] Q. Lin, R. Jiang, C. Marki, C. McKinstrie, R. Jopson, J. Ford, G. Agrawal, and S. Radic, "40-Gb/s optical switching and wavelength multicasting in a two-pump parametric device," *IEEE Photon. Tech. Lett.* **17**, 2376 (2005).
- [8] P. Russell, "Photonic-crystal fibers," *J. Lightwave Technol.* **24**, 4729 (2006).
- [9] F. Benabid and P. Roberts, "Linear and nonlinear optical properties of hollow core photonic crystal fiber," *J. Mod. Opt.* **58**, 87 (2011).
- [10] G. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, 2007), 4th ed.
- [11] D. Burnham and D. Weinberg, "Observation of simultaneity in parametric production of optical photon pairs," *Phys. Rev. Lett.* **25**, 84 (1970).
- [12] C. Hong and L. Mandel, "Theory of parametric frequency down-conversion of light," *Phys. Rev. A* **31**, 2409 (1985).
- [13] S. Friberg, C. Hong, and L. Mandel, "Measurement of time delays in the parametric production of photon pairs," *Phys. Rev. Lett.* **54**, 2011 (1985).
- [14] W. Tittel and G. Weihs, "Photonic entanglement for fundamental tests and quantum communication," *Quantum Inf. Comput.* **1**, 3 (2001).

-
- [15] S. Freedman and J. Clauser, “Experimental test of local hidden-variable theories,” *Phys. Rev. Lett.* **28**, 938 (1972).
- [16] E. Fry and R. Thompson, “Experimental test of local hidden-variable theories,” *Phys. Rev. Lett.* **37**, 465 (1976).
- [17] Z. Y. Ou, C. Hong, and L. Mandel, “Violations of locality in correlation measurements with a beam splitter,” *Phys. Lett. A* **122**, 11 (1987).
- [18] Z. Y. Ou and L. Mandel, “Violation of Bell’s inequality and classical probability in a two-photon correlation experiment,” *Phys. Rev. Lett.* **61**, 50 (1988).
- [19] A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger, “Experimental tests of realistic local theories via Bell’s theorem,” *Phys. Rev. Lett.* **47**, 460 (1981).
- [20] J. O’Brien, A. Furusawa, and J. Vuckovic, “Photonic quantum technologies,” *Nature Photonics* **3**, 687 (2009).
- [21] J. Fulconis, O. Alibart, J. O’Brien, W. Wadsworth, and J. Rarity, “Photonic crystal fiber source of photon pairs for quantum information processing,” arXiv :quant-ph/0611232v1 (2006).
- [22] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, “Quantum cryptography,” *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145 (2002).
- [23] T. Jennewein, C. Simon, G. Weihs, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, “Quantum cryptography with entangled photons,” *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4729 (2000).
- [24] Y.-H. Kim, S. Kulik, and Y. Shih, “Quantum teleportation of a polarization state with a complete Bell state measurement,” *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1370 (2001).
- [25] I. Marcikic, H. de Riedmatten, W. Tittel, H. Zbinden, M. Legré, and N. Gisin, “Distribution of time-bin entangled qubits over 50 km of optical fiber,” *Phys. Rev. Lett.* **93**, 180502 (2004).
- [26] H. Hübel, M. Vanner, T. Lederer, B. Blauensteiner, T. Lorünser, A. Poppe, and A. Zeilinger, “High-fidelity transmission of polarization encoded qubits from an entangled source over 100 km of fiber,” *Opt. Express* **15**, 7853 (2007).
- [27] M. Peev, C. Pacher, R. Alléaume, C. Barreiro, J. Bouda, W. Boxleitner, T. Debuishert, E. Diamanti, M. Dianati, J. Dynes, S. Fasel, S. Fossier, M. Fürst, J.-D. Gautier, O. Gay, N. Gisin, P. Grangier, A. Happe, Y. Hasani, M. Hentschel, H. Hübel, G. Humer, T. Länger, M. Legré, R. Lieger, J. Lodewyck, T. Lorünser, N. Lütkenhaus, A. Marhold, T. Matyus, O. Maurhart, L. Monat, S. Nauerth, J.-B. Page, A. Poppe, E. Querasser, G. Ribordy, S. Robyr, L. Salvail, A. Sharpe, A. Shields, D. Stucki, M. Suda, C. Tamas, T. Themel, R. Thew, Y. Thoma, A. Treiber, P. Trinkler, R. Tualle-Brouri, F. Vannel, N. Walenta, H. Weier, H. Weinfurter, I. Wimberger, Z. Yuan, H. Zbinden, and A. Zeilinger, “The SE-COQC quantum key distribution network in Vienna,” *New J. Phys.* **11**, 075001 (2009).
- [28] V. Scarani, H. Bechmann-Pasquinucci, N. Cerf, M. Dusek, N. Lütkenhaus, and M. Peev, “The security of practical quantum key distribution,” *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1301 (2009).
- [29] S. Tanzilli, W. Tittel, H. de Riedmatten, H. Zbinden, P. Baldi, M. de Micheli, D. Ostrowsky, and N. Gisin, “PPLN waveguide for quantum communication,” *Eur. Phys. J. D* **18**, 155 (2002).
- [30] V. Berger and J.-M. Gérard, “Sources semiconductrices de photons uniques ou de photons jumeaux pour l’information quantique,” *C. R. Physique* **4**, 701 (2003).
-

- [31] X. Caillet, V. Berger, G. Leo, and S. Ducci, "A semiconductor source of counterpropagating twin photons : a versatile device allowing the control of the two-photon state," *J. Mod. Opt.* **56**, 232 (2009).
- [32] A. Orieux, A. Eckstein, A. Lemaitre, P. Filloux, I. Favero, G. Leo, T. Coudreau, A. Keller, P. Milman, and S. Ducci, "Direct Bell states generation on a III-V semiconductor chip at room temperature," *Phys. Rev. Lett.* **110**, 160502 (2013).
- [33] G. Bonfrate, V. Pruneri, P. Kazansky, P. Tapster, and J. Rarity, "Parametric fluorescence in periodically poled silica fibers," *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2356 (1999).
- [34] K. Phan Huy, A. Nguyen, E. Brainis, M. Haelterman, P. Emplit, C. Corbari, A. Canagasabay, M. Ibsen, P. Kazansky, O. Deparis, A. Fotiadi, P. Mégret, and S. Massar, "Photon pair source based on parametric fluorescence in periodically poled twin-hole silica fiber," *Opt. Express* **15**, 4419 (2007).
- [35] L. Helt, E. Zhu, M. Liscidini, L. Qian, and J. Sipe, "Proposal for in-fiber generation of telecom-band polarization-entangled photon pairs using a periodically poled fiber," *Opt. Lett.* **34**, 2138 (2009).
- [36] X. Li, J. Chen, P. Voss, J. Sharping, and P. Kumar, "All-fiber photon-pair source for quantum communications : Improved generation of correlated photons," *Opt. Express* **12**, 3737 (2004).
- [37] C. Xiong, L. Helt, A. Judge, G. Marshall, M. Steel, J. Sipe, and B. Eggleton, "Quantum-correlated photon pair generation in chalcogenide As_2S_3 waveguides," *Opt. Express* **18**, 16206 (2010).
- [38] C. Xiong, G. Marshall, A. Peruzzo, M. Lobino, A. Clark, D.-Y. Choi, S. Madden, C. Natarajan, M. Tanner, R. Hadfield, S. Dorenbos, T. Zijlstra, V. Zwiller, M. Thompson, J. Rarity, M. Steel, B. Luther-Davies, B. Eggleton, and J. O'Brien, "Generation of correlated photon pairs in a chalcogenide As_2S_3 waveguide," *Appl. Phys. Lett.* **98**, 051101 (2011).
- [39] A. Clark, M. Collins, A. Judge, E. Mägi, C. Xiong, and B. Eggleton, "Raman scattering effects on correlated photon-pair generation in chalcogenide," *Opt. Express* **20**, 16807 (2012).
- [40] K. Lee, J. Chen, C. Liang, X. Li, P. Voss, and P. Kumar, "Generation of high-purity telecom-band entangled photon pairs in dispersion-shifted fiber," *Opt. Lett.* **31**, 1905 (2006).
- [41] S. Dyer, B. Baek, and S. Nam, "High-brightness, low-noise, all-fiber photon pair source," *Opt. Express* **17**, 10290 (2009).
- [42] J. Harvey, R. Leonhardt, S. Coen, and G. Wong, "Scalar modulation instability in the normal dispersion regime by use of a photonic crystal fiber," *Opt. Lett.* **28**, 2225 (2003).
- [43] J. Rarity, J. Fulconis, J. Duligall, W. Wadsworth, and P. Russell, "Photonic crystal fiber source of correlated photon pairs," *Opt. Express* **13**, 534 (2005).
- [44] L. Cui, X. Li, X. Guo, Y. Li, Z. Xu, L. Wang, and W. Fang, "Generation of correlated photon pairs in micro/nano-fibers," *Opt. Lett.* **38**, 5063 (2013).
- [45] Q. Lin and G. Agrawal, "Silicon waveguides for creating quantum-correlated photon pairs," *Opt. Lett.* **31**, 3140 (2006).
- [46] J. Sharping, K. Lee, M. Foster, A. Turner, B. Schmidt, M. Lipson, A. Gaeta, and P. Kumar, "Generation of correlated photons in nanoscale silicon waveguides," *Opt. Express* **14**, 12388 (2006).

-
- [47] H. Takesue, H. Fukuda, T. Tsuchizawa, T. Watanabe, K. Yamada, Y. Tokura, and S.-I. Itabashi, "Generation of polarization entangled photon pairs using silicon wire waveguide," *Opt. Express* **16**, 5721 (2008).
- [48] K.-I. Harada, H. Takesue, H. Fukuda, T. Tsuchizawa, T. Watanabe, K. Yamada, Y. Tokura, and S.-I. Itabashi, "Indistinguishable photon pair generation using two independent silicon wire waveguides," *New J. Phys.* **13**, 065005 (2011).
- [49] C. Xiong, C. Monat, A. Clark, C. Grillet, G. Marshall, M. Steel, J. Li, L. O'Faolain, T. Krauss, J. Rarity, and B. Eggleton, "Slow-light enhanced correlated photon pair generation in a silicon photonic crystal waveguide," *Opt. Lett.* **36**, 3413 (2011).
- [50] G. Antonopoulos, F. Benabid, T. Birks, D. Bird, J. Knight, and P. Russell, "Experimental demonstration of the frequency shift of bandgaps in photonic crystal fibers due to refractive index scaling," *Opt. Express* **14**, 3000 (2006).
- [51] F. Benabid, J. Knight, G. Antonopoulos, and P. Russell, "Stimulated Raman scattering in hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber," *Science* **298**, 399 (2002).
- [52] S. Konorov, A. Fedotov, and A. Zheltikov, "Enhanced four-wave mixing in a hollow-core photonic-crystal fiber," *Opt. Lett.* **28**, 1448 (2003).
- [53] S. Ghosh, J. Sharping, D. Ouzourov, and A. Gaeta, "Resonant optical interactions with molecules confined in photonic band-gap fibers," *Phys. Rev. Lett.* **94**, 093902 (2005).
- [54] D. Ouzourov, C. Hensley, and A. Gaeta, "Soliton pulse compression in photonic band-gap fibers," *Opt. Express* **13**, 6153 (2005).
- [55] S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, and G. Roosen, "Stimulated Raman scattering in an ethanol core microstructured optical fiber," *Opt. Express* **13**, 4786 (2005).
- [56] S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, and G. Roosen, "High-efficiency single-mode Raman generation in a liquid-filled photonic bandgap fiber," *Opt. Lett.* **32**, 337 (2007).
- [57] S. Lebrun, P. Delaye, and G. Roosen, "Stimulated Raman scattering in hollow core photonic crystal fibres," *Ann. Phys. Fr.* **32**, 45 (2007).
- [58] S. Lebrun, C. Buy, P. Delaye, R. Frey, G. Pauliat, and G. Roosen, "Optical characterization of a Raman generator based on a hollow core photonic crystal fiber filled with a liquid," *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* **27**, 1886 (2010).
- [59] R. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 2008), 3rd ed.
- [60] R. Sutherland, *Handbook of Nonlinear Optics* (Marcel Dekker, Inc., 2003).
- [61] M. Marhic, *Fiber Optical Parametric Amplifiers, Oscillators and Related Devices* (Cambridge University Press, 2012).
- [62] M. Barbier, P. Leproux, P. Roy, and P. Delaye, "Frequency-dissymmetric parametric sideband generation in a microstructured fiber," *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 2889 (2013).
- [63] R. Smith, "Optical power handling capacity of low loss optical fibers as determined by stimulated Raman and Brillouin scattering," *Appl. Opt.* **11**, 2489 (1972).
- [64] E. Desurvire, J. Pocholle, J. Raffy, and M. Papuchon, "Deux applications de l'optique non linéaire guidée," *Rev. Tech. Thomson-CSF* **15**, 809 (1983).
- [65] M. Maier, W. Kaiser, and J. Giordmaine, "Backward stimulated Raman scattering," *Phys. Rev.* **177**, 580 (1969).
-

- [66] W. Harris and I. Levin, "Raman spectra of polycrystalline acetone and acetone-d₆," *J. Mol. Spectrosc.* **43**, 117 (1972).
- [67] J.-L. Smirr, M. Deconinck, R. Frey, I. Agha, E. Diamanti, and I. Zaquine, "Optimal photon-pair single-mode coupling in narrow-band spontaneous parametric downconversion with arbitrary pump profile," *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 288 (2013).
- [68] J.-L. Smirr, "Vers une source de paires de photons intriqués en polarisation de spectre étroit à 1550 nm," Ph.D. thesis, Université Paris-Sud XI (2010).
- [69] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light* (Oxford University Press, 2000).
- [70] K. Garay-Palmett, H. McGuinness, O. Cohen, J. Lundeen, R. Rangel-Rojo, A. U'Ren, M. Raymer, C. McKinstrie, S. Radic, and I. Walmsley, "Photon pair-state preparation with tailored spectral properties by spontaneous four-wave mixing in photonic-crystal fiber," *Opt. Express* **15**, 14870 (2007).
- [71] O. Alibart, J. Fulconis, G. Wong, S. Murdoch, W. Wadsworth, and J. Rarity, "Photon-pair generation using four-wave mixing in a microstructured fibre : theory versus experiment," *New J. Phys.* **8**, 67 (2006).
- [72] G. Dellepiane and J. Overend, "Vibrational spectra and assignment of acetone, $\alpha\alpha\alpha$ acetone- d_6 and acetone- d_6 ," *Spectrochim. Acta* **22**, 593 (1966).
- [73] M.-C. Phan Huy, A. Baron, S. Lebrun, R. Frey, and P. Delaye, "Characterization of self-phase modulation in liquid filled hollow core photonic bandgap fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, 1886 (2010).
- [74] M.-C. Phan Huy, A. Baron, S. Lebrun, R. Frey, and P. Delaye, "Characterization of self-phase modulation in liquid filled hollow core photonic bandgap fibers : erratum," *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 1651 (2013).
- [75] B. Wetzel, "Études expérimentales et numériques des instabilités non linéaires et des vagues scélérates optiques," Ph.D. thesis, Université de Franche-Comté (2012).
- [76] J. Fan, A. Migdall, and L. Wang, "Efficient generation of correlated photon pairs in a microstructure fiber," *Opt. Lett.* **30**, 3368 (2005).
- [77] C. Liang, K. Lee, M. Medic, and P. Kumar, "Characterization of fiber-generated entangled photon pairs with superconducting single-photon detectors," *Opt. Express* **15**, 1322 (2007).
- [78] A. McMillan, J. Fulconis, M. Halder, C. Xiong, J. Rarity, and W. Wadsworth, "Narrowband high-fidelity all-fibre source of heralded single photons at 1570 nm," *Opt. Express* **17**, 6156 (2009).
- [79] Y. Sua, J. Malowicki, M. Hirano, and K. Lee, "Generation of high-quality entangled photon pair in a short highly nonlinear fiber," *Opt. Lett.* **38**, 73 (2013).
- [80] F. Laloë, *Comprenons-nous vraiment la mécanique quantique ?* (EDP Sciences, 2011).
- [81] L. Landau and E. Lifshitz, *Course of Theoretical Physics*, vol. 8 – Electrodynamics of Continuous Media (Pergamon Press, 1963), 1st ed.
- [82] J. Griffiths, "Raman scattering cross sections in strongly interacting liquid systems : CH₃OH, C₂H₅OH, i-C₃H₇OH, (CH₃)₂CO, H₂O, and D₂O," *J. Chem. Phys.* **60**, 2556 (1974).
- [83] M. Colles and J. Griffiths, "Relative and absolute Raman scattering cross sections in liquids," *J. Chem. Phys.* **56**, 3384 (1972).

- [84] A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen, “Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete?” *Phys. Rev.* **47**, 777 (1935).
- [85] J. Bell, “On the Einstein Podolsky Rosen paradox,” *Physics* **1**, 195 (1964).
- [86] Collectif, *Einstein aujourd’hui* (EDP Sciences, 2005), chap. De l’article d’Einstein, Podolsky et Rosen à l’information quantique : les stupéfiantes propriétés de l’intrication (A. Aspect, P. Grangier), pp. 39–86.
- [87] J. Clauser, “Experimental investigation of a polarization correlation anomaly,” *Phys. Rev. Lett.* **36**, 1223 (1976).
- [88] A. Aspect, “Trois tests expérimentaux des inégalités de Bell par mesure de corrélation de polarisation de photons,” Ph.D. thesis, Université Paris-Sud XI (1983).

Résumé :

Une technique couramment employée pour développer les sources de paires de photons corrélés indispensables au domaine des télécommunications quantiques repose sur le processus non linéaire de mélange à quatre ondes, qui peut avoir lieu directement dans le cœur d'une fibre optique. Cette architecture *fibrée* permet de s'adapter au mieux aux besoins des réseaux de communications quantiques (en particulier en minimisant les pertes par couplage lors de la connexion de la source aux autres composants du réseau). L'utilisation d'une fibre *microstructurée* plutôt que d'une fibre de silice conventionnelle permet d'ajuster les propriétés de dispersion de la fibre et d'optimiser l'efficacité du processus non linéaire. Cependant, les sources fibrées usuelles, à *cœur de silice*, présentent une limitation majeure : leur *pureté* quantique est fortement dégradée par la *diffusion Raman spontanée*, qui survient elle aussi dans le cœur en silice de la fibre. Pour s'affranchir de ce problème, notre idée est de *remplacer le cœur en silice par un cœur liquide*, en utilisant une fibre microstructurée à cœur creux rempli d'un liquide non linéaire. Nos recherches nous ont ainsi conduits à faire la première démonstration expérimentale de génération de paires de photons corrélés dans une fibre à cœur liquide, et à montrer que, grâce aux propriétés Raman particulières des liquides (dont le spectre Raman se présente en général sous la forme de raies très fines), il était possible de réduire de plusieurs ordres de grandeur le niveau de diffusion Raman spontanée dans la source. Ce travail ouvre donc la voie au développement de sources de paires de photons corrélés fibrées de très haute qualité quantique.

Abstract:

Quantum telecommunication technologies rely on correlated photon pair sources, which are often based on the third-order nonlinear process of spontaneous four-wave mixing in silica-core photonic crystal fibres. A *fibred* architecture is advantageous because it minimizes the coupling losses between the optical source and the other components of quantum communication networks. Moreover, using a *photonic crystal fibre* rather than a conventional silica fibre offers the possibility of improving the photon generation (thanks to a small effective core area) and extending the wavelength coverage (thanks to dispersion management through the microstructuration design). However, the performances of *silica-core* photonic crystal fibre sources are limited in terms of *quantum purity*, because of the ubiquitous *spontaneous Raman scattering* process, which is a source of uncorrelated broadband noise photons in silica. We propose an original solution to this Raman problem by *replacing the silica core by a liquid core*, thanks to a hollow-core photonic crystal fibre filled with a nonlinear liquid. We actually performed the first experimental demonstration of the generation of correlated photon pairs in a liquid-core fibre, and demonstrated that, thanks to the specific Raman properties of liquids (which usually exhibit thin-line Raman spectra), it is possible to reduce the Raman noise level by several orders of magnitude. This work opens the way for the development of high quantum quality correlated photon pair fibred sources.