



**HAL**  
open science

# Optique non linéaire dans les fibres optiques micro-et nanostructurées

Sylvie Lebrun

► **To cite this version:**

Sylvie Lebrun. Optique non linéaire dans les fibres optiques micro-et nanostructurées. Optique [physics.optics]. Université paris-saclay, 2020. tel-04567362

**HAL Id: tel-04567362**

**<https://hal-iogs.archives-ouvertes.fr/tel-04567362>**

Submitted on 3 May 2024

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

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



École doctorale Ondes et Matières (ED 572)

UMR 8501 CNRS

Mémoire pour l'obtention du

## **DIPLÔME D'HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES**

Discipline : Physique

*présenté le*

**12 mars 2020**

*par*

**SYLVIE LEBRUN**

# **OPTIQUE NON LINÉAIRE DANS DES FIBRES OPTIQUES MICRO- ET NANOSTRUCTURÉES**

*Composition du jury :*

PHILIPPE DELAYE

NICOLAS DUBREUIL

YANNICK DUMEIGE      Rapporteur

GIL FANJOUX              Rapporteur

FRANÇOIS MARQUIER

ISABELLE ZAQUINE      Rapporteur



# Table des matières

---

<b>CURRICULUM VITAE .....</b>	<b>5</b>
<b>LISTE DE PUBLICATIONS.....</b>	<b>10</b>
<b>CHAPITRE I - INTRODUCTION .....</b>	<b>19</b>
I.A. RÉSUMÉ DE THÈSE .....	19
I.B. RÉSUMÉ DE MES RECHERCHES EN ATER .....	21
I.C. INTRODUCTION À CE MANUSCRIT D’HDR.....	21
<b>CHAPITRE II - DIFFUSION RAMAN STIMULÉE DANS DES FIBRES MICROSTRUCTURÉES REMPLIES DE LIQUIDES.....</b>	<b>24</b>
II.A. CONTEXTE ET MOTIVATIONS.....	24
II.B. OPTIQUE NON LINÉAIRE ET FIBRES OPTIQUES, GÉNÉRALITÉS .....	25
II.C. ÉLÉMENTS DE PHYSIQUE ET GÉNÉRALITÉS SUR LA DIFFUSION RAMAN .....	29
II.C.1. <i>Description qualitative</i> .....	29
II.C.2. <i>Diffusion Raman stimulée</i> .....	30
II.C.3. <i>Cascade Raman</i> .....	30
II.C.4. <i>Spécificités des liquides</i> .....	31
II.D. PREMIÈRE DÉMONSTRATION EXPÉRIMENTALE DE DIFFUSION RAMAN STIMULÉE DANS UN LIQUIDE EN GUIDAGE PAR RÉFLEXION TOTALE INTERNE MODIFIÉE.....	32
II.D.1. <i>Description de la fibre</i> .....	32
II.D.2. <i>Montage expérimental</i> .....	34
II.D.3. <i>Résultats expérimentaux</i> .....	35
II.D.4. <i>Modélisation</i> .....	37
II.D.5. <i>Autres travaux</i> .....	39
II.D.6. <i>Conclusions</i> .....	40
II.E. PREMIÈRE DÉMONSTRATION EXPÉRIMENTALE DE DIFFUSION RAMAN STIMULÉE DANS UN LIQUIDE EN GUIDAGE PAR BANDE INTERDITE PHOTONIQUE .....	41
II.E.1. <i>Décalage de la bande de transmission</i> .....	41
II.E.2. <i>Montage de mesures des bandes de transmission</i> .....	43
II.E.3. <i>Convertisseur 532 nm vers 630 nm</i> .....	43
II.F. MÉLANGES DE LIQUIDES POUR L’ADAPTATION DES BANDES DE TRANSMISSION .....	52
II.F.1. <i>Élimination d’une raie Raman parasite</i> .....	53
II.F.2. <i>Contrôle de la cascade Raman au second ordre Stokes</i> .....	55
II.F.3. <i>Utilisation d’une raie Raman secondaire</i> .....	59
II.G. PREMIÈRE DÉMONSTRATION EXPÉRIMENTALE DE DIFFUSION RAMAN STIMULÉE DANS UN LIQUIDE REMPLISSANT UNE FIBRE DE TYPE KAGOMÉ.....	66
II.H. DIFFUSION RAMAN STIMULÉE DANS UN CAPILLAIRE DE SILICE À CŒUR CREUX REMPLI DE LIQUIDE .....	72
II.I. EXTENSION DES POSSIBILITÉS .....	75
II.I.1. <i>Utilisation d’un laser de pompe émettant à 355 nm</i> .....	75
II.I.2. <i>Cascade de convertisseurs</i> .....	77
II.I.3. <i>Effets de la durée de l’impulsion</i> .....	78
II.I.4. <i>Fréquence de répétition</i> .....	79
II.I.5. <i>Seuil de dommage</i> .....	79
II.J. CONCLUSION SUR LES CONVERTISSEURS RAMAN .....	80

<b>CHAPITRE III - VALORISATION .....</b>	<b>82</b>
III.A. QUEL PRODUIT ? .....	82
III.B. LICENCE D'EXPLOITATION OU CRÉATION D'ENTREPRISE ? .....	85
III.C. QUEL·LE PORTEUR·SE DE PROJET ? .....	86
III.D. QUELS SONT LES MARCHÉS ? .....	86
III.D.1. <i>Le marché des laboratoires</i> .....	86
III.D.2. <i>Le marché des microlidars</i> .....	87
III.D.3. <i>Le marché du détatouage</i> .....	87
III.E. CONCLUSION SUR LA VALORISATION .....	89
<b>CHAPITRE IV - NANOFIBRES .....</b>	<b>92</b>
IV.A. CONTEXTE ET MOTIVATIONS .....	92
IV.B. MODÈLES DE PROPAGATION .....	94
IV.B.1. <i>Description des modèles de propagation linéaire</i> .....	94
IV.B.2. <i>Critère d'adiabacité</i> .....	97
IV.C. FABRICATION .....	99
IV.D. DIFFUSION RAMAN STIMULÉE ÉVANESCENTE .....	103
IV.D.1. <i>Modélisations non linéaires</i> .....	104
IV.D.2. <i>Première démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée évanescence</i> .....	106
IV.D.3. <i>Optimisation des convertisseurs Raman évanescents</i> .....	110
IV.D.4. <i>Adiabacité des tapers dans un liquide</i> .....	112
IV.D.5. <i>Performances des convertisseurs Raman évanescents</i> .....	114
IV.D.6. <i>Seuil de dommage optique</i> .....	117
IV.E. COMPARAISON AVEC LES FIBRES MICROSTRUCTURÉES .....	119
IV.F. SOURCE DE PAIRES DE PHOTONS CORRÉLÉS .....	120
IV.F.1. <i>Accord de phase modal</i> .....	122
IV.F.2. <i>Dimensionnement de la nanofibre</i> .....	124
IV.F.3. <i>Montage préliminaire</i> .....	125
IV.G. PROJET FUNFILM .....	126
IV.H. CONCLUSION SUR LES NANOFIBRES .....	127
<b>CHAPITRE V - CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES .....</b>	<b>129</b>
<b>CHAPITRE VI - RÉFÉRENCES HDR .....</b>	<b>132</b>

# Curriculum Vitae

---

## ***Parcours professionnel***

- 2000-2003    Doctorante à l'Institut d'Optique Graduate School (IOGS), Orsay  
Recherche dans le groupe Lasers (anciennement équipe Lasers Solides et Applications) du Laboratoire Charles Fabry (UMR 8501)  
Monitrice à l'École Polytechnique, Palaiseau
- 2003-2004    Attachée temporaire d'enseignement et de recherche, Paris VII  
Recherche au Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques (UMR 7162)
- Depuis 2004    Maîtresse de conférences à l'IOGS  
Recherche dans le groupe Photonique Non Linéaire (anciennement Matériaux Non Linéaires et Applications) du Laboratoire Charles Fabry

## ***Diplômes***

- 1999    Diplôme d'ingénieur de l'École Nationale Supérieure de l'Électronique et de ses Applications (ENSEA), Cergy
- 2000    Diplôme d'Études Approfondies en Optique et Photonique, Université Paris-Sud
- 2003    Diplôme de thèse en physique, Université Paris-Sud  
**Titre de la thèse :** développement de sources laser solides de forte luminance pour les télécommunications  
**Jury :** François Balembois (directeur de thèse), Jean-Pierre Huignard (examinateur), Pierre Joubert (examinateur), Jean Le Bihan (rapporteur), Frédéric Louradour (rapporteur), Jean-Michel Lourtioz (président)

## ***Recherche et valorisation***

### **Thématiques de recherche :**

- Diffusion Raman stimulée dans des fibres à cœur liquide

Dans ce projet, nous étudions expérimentalement et théoriquement des effets optiques non linéaires dans des fibres optiques spéciales remplies de liquides afin de réaliser de nouvelles sources laser Raman. L'enjeu est de comprendre et contrôler à la fois les mécanismes de propagation linéaire de la lumière associés aux effets non linéaires en compétition dans ces composants. Le domaine spectral allant du visible au proche infrarouge ainsi que plusieurs régimes temporels sont considérés en fonction de l'application visée. J'ai attaché de l'importance à la valorisation de mes recherches à travers le projet de valorisation RAMBIO (convertisseurs de longueur d'onde Raman pour la BIOlogie) dont je suis la responsable. Jusqu'à 2015 j'ai consacré la majeure partie de mon temps de recherche à ce projet.

- Optique non linéaire dans des nanofibres optiques

Dans ce projet, nous étudions la réalisation d'effets optiques non linéaires dans des nanofibres optiques, qui sont des fibres de silice étirées jusqu'à atteindre des diamètres sub-

longueur d'onde. À ces faibles diamètres, le champ électromagnétique présente des propriétés très spécifiques. En particulier le fort confinement de la lumière favorise des effets optiques non linéaires inédits, que nous étudions expérimentalement et théoriquement. J'ai consacré progressivement davantage de temps à cette thématique, débutée vers 2010, notamment avec le projet FUNFILM (FUncionalization of tapered NanoFibers for InLine Light Manipulation), un projet ANR PRCE.

#### **Valorisation et activité contractuelle :**

- Responsable du projet de valorisation RAMBIO

Ont travaillé ou travaillent encore à ce projet : deux directeurs de recherche CNRS, plusieurs ingénieurs de recherche (2 IR CNRS permanents, 2 IR CNRS contractuels), trois stagiaires M2. Mon rôle est de coordonner l'équipe, donner les directions scientifiques, rechercher des partenaires académiques et industriels, suivre les études de marché, participer à des formations de valorisation de la recherche, rechercher des sources de financement. Je suis actuellement en lien avec FIST SA pour la valorisation du brevet en lien avec ce projet (brevet FR 1258870 déposé le 21/09/2012). Après avoir envisagé la création d'une entreprise, un transfert de technologie vers une société fabriquant des lasers est à présent l'option à l'étude.

- Contrats et financements obtenus en tant que porteuse

Le Tableau III-1 récapitule les différents financements obtenus sur le projet RAMBIO entre 2009 et 2015.

- Coordinatrice de l'ANR FUNFILM (oct. 2015-sept. 2020)

Il s'agit d'un projet dont les partenaires sont Thales Research & Technology (Palaiseau) et le laboratoire FEMTO-ST (Besançon).

#### **Encadrement :**

- Encadrement de doctorants

1. Thèse de doctorat de Liye Shan (octobre 2009 – décembre 2012) : encadrement à 50%. Thèse soutenue le 19/12/2012. En collaboration avec l'Université de Zhejiang (Chine). "Stimulated Raman scattering in the evanescent field of nanofibers." Production scientifique : A12, A13, C28, C29, C30, C33, C34.
2. Thèse de doctorat d'Abderrahim Azzoune (octobre 2016 – septembre 2019) : encadrement à 15%. Thèse soutenue le 25/07/2019. "Nanofibres optiques pour la réalisation de sources de photons corrélés." Production scientifique : C47, C49, C50, C51, C52, C53, C54, C55, C56, C57.
3. Thèse de doctorat de Maha Bouhadida (novembre 2017 – octobre 2020) : encadrement à 100%. "Nanofibres optiques pour le traitement du signal." Production scientifique : C50, C51, C52, C53, C54, C55, C56, C57, A18, A19.

- Encadrement de stagiaires M2

1. Stage de M2 de Catherine Chin (mars - juillet 2014) : encadrement à 100%. En collaboration avec la société CIMEL. "Convertisseurs de longueur d'onde pour les microlidars."

2. Stage de M2 de Pierre-Yves Perrin (mars - août 2014) : encadrement à 50%.  
"Convertisseurs de longueurs d'onde pour la biophotonique."
  3. Stage de M2 de Zhihang Wang (mars - juillet 2015) : encadrement à 50%.  
"Génération de seconde harmonique et fluorescence paramétrique dans des nanofibres hybrides."
  4. Stage de M2 de Abderrahim Azzoune (mars - juillet 2016) : encadrement à 50%.  
"Optique non linéaire dans les nanofibres hybrides."
- Autres encadrements liés à mes activités de recherche
    1. 10 étudiants en troisième année du cycle ingénieur à l'IOGS en projet de recherche (environ 3 mois à chaque fois). Production scientifique : A7, C10, C11, C12, C13, C14.
    2. 3 étudiants en première année du cycle ingénieur à l'IOGS en stage de découverte de la recherche (1 mois à chaque fois).
    3. 4 étudiants L3 du programme NFS REU avec l'Univ. du Michigan en projet de recherche (2 mois à chaque fois).
    4. 1 étudiant de M1 (3 mois, 2011).
    5. Attachée Temporaire d'Enseignement et de Recherche Christelle Buy (sept. 2008 - août 2009) : encadrement à 100%. Production scientifique : A10, C23, C24 et C27.
    6. Ingénieur de recherche Minh Châu Phan Huy sur le projet RAMBIO (novembre 2013 - août 2016) : encadrement à 100%. Production scientifique : A11, A15, A17, B1, C25, C26, C36, C37, C39, C40, C41, C42, C43, C44, C45, C46, C58.
    7. Ingénieur de recherche Xavier Theillier sur le projet RAMBIO (octobre 2015 - juin 2016) : encadrement à 50%. Production scientifique : C44.
    8. Encadrement de 2 équipes de la FIE de l'IOGS (Filière Innovation Entrepreneurs) sur le projet RAMBIO (2013, 2014).

### **Rayonnement :**

- Collaborations ayant donné lieu à une production scientifique : laboratoire FEMTO-ST (Besançon), laboratoire XLIM (Limoges), Thales Research & Technology (Palaiseau), Université de Zhejiang (Chine).
- Participation à des jurys de thèse : Liye Shan (Laboratoire Charles Fabry, 19/12/2012) en tant que co-encadrante de thèse, Baptiste Gouraud (Laboratoire Kastler Brossel, Université Pierre et Marie Curie, 11/02/2016) en tant qu'examinatrice, Adrien Godet (FEMTO-ST, Université de Besançon, 18/12/2018) en tant qu'examinatrice, David Kergoustin (XLIM, Université de Limoges, 03/12/2019) en tant qu'examinatrice.
- Relectrice pour différentes revues internationales (Annalen der Physik, Applied Physics B : Lasers and Optics, Optics Express, Optics Letters).
- Co-organisatrice d'une nouvelle session intitulée "Optical tapered fibers for light manipulation at the nanoscale" à la conférence de l'EOSAM (European Optical Society Annual Meeting) qui s'est tenue à Delft aux Pays-Bas en octobre 2018. Prochaine édition à Porto en sept. 2020.

- Co-organisatrice d'une nouvelle session intitulée "Nanofibre optique : une nouvelle plateforme pour l'optique et l'information quantique" au congrès général de la Société Française de Physique qui s'est tenu à Nantes en juillet 2019.

#### **Dissémination et vulgarisation scientifique :**

- Participation à des salons afin d'y présenter un prototype RAMBIO : salon ENOVA (Paris, porte de Versailles, novembre 2014), salon OptDiag (Paris, Institut de Physique du Globe, mai 2014).
- Participation annuelle à des manifestations grand public : Fête de la Science, démonstrations de travaux pratiques d'optique lors des visites de parents d'étudiants de l'IOGS (cérémonie de remise des diplômes, visite des parents de première année), lors des visites annuelles des professeurs de classes préparatoires.
- Participation aux Lab'oratoires dans le cadre des 80 ans du CNRS (conférences dans des lycées).
- Présentation de la photonique en classes préparatoires aux Grandes Écoles.

#### **Enseignement**

2000-2003	Monitrice à l'École Polytechnique, Palaiseau Travaux expérimentaux d'Électronique et d'Optique
2003-2004	Attachée temporaire d'enseignement et de recherche à mi-temps, Paris VII Enseignement en électronique en licence (CM, TD et TP). Enseignement en optique en DESS (TP).
Depuis 2004	Maîtresse de conférences à l'IOGS Enseignement en cycle ingénieur dans les matières suivantes : optique non linéaire (CM et TD), optique des ondes guidées (CM et TD), fibres optiques (TP), physique des semi-conducteurs (TD), sources laser à semi-conducteur (TD), lasers (TP), informatique (TD), électronique (CM, TD et TP).

#### **Responsabilités administratives**

Depuis 2004	Responsable du cours d'informatique langage C Enseignement s'adressant à ~150 élèves de 1 <sup>ère</sup> année, animation d'une équipe pédagogique de 8 enseignants, formation des moniteurs et vacataires.
Depuis 2015	Responsable des cours d'optique non linéaire et d'optique des ondes guidées
2005-2012	Adjointe à la direction des études responsable de la 2 <sup>ème</sup> année du cycle ingénieur à l'IOGS Décharge de 48h par an. 70 à 100 étudiants par année. Gestion de l'emploi du temps avec les différentes filières (classique, CFA, FIE, anglophone), gestion des relations avec les étudiants, l'administration et les enseignants. Mise en place d'enseignements dédoublés en anglais et en français pour l'accueil d'étudiants étrangers. Organisation des jurys, participation au Conseil de la Formation.
Depuis 2018	Examinatrice aux concours parallèles de l'IOGS (par la voie des Grandes Écoles d'Ingénieurs et par la voie du concours propre IOGS)

- Décharge de 12h par an. Examen des dossiers (une centaine), sélection pour les épreuves écrites et orales, rédaction des sujets d'écrits et d'oraux.
- Depuis 2015 Membre de la Commission Consultative de Spécialistes de l'IOGS
- Depuis 2019 Référente égalité homme-femme à l'IOGS
- Décharge de 12h par an.

### ***Autres***

- 2012-2017 Examinatrice au concours Centrale-Supélec (TP de physique filière PSI)
- Depuis 2018 Examinatrice au concours de l'École Polytechnique (TP de physique filière PC)
- Depuis 2018 Titulaire de la Prime d'Encadrement Doctoral et de Recherche
- Depuis 2019 Sauveteuse secouriste du travail
- Depuis 2019 Membre du groupe de travail sur l'écologie et le développement durable à l'IOGS. Mise en place d'un potager pédagogique à l'IOGS.

### ***Prix obtenus sur le projet RAMBIO***

- 2011 Prix Fibre de l'Innovation catégorie Recherche décerné par Optics Valley
- 2014 Photon d'argent aux Vitrites de l'Innovation décerné lors du salon ENOVA, porte de Versailles
- 2014 1<sup>er</sup> Prix de la Valorisation de la Recherche décerné par l'Université Paris-Sud

# Liste de publications

---

## ***Publications dans des revues internationales avec comité de lecture***

2001

A0. C. Blondel, C. Delsart, C. Valli, S. Yiou, M. Godefroid and S. Van Eck, "Electron affinities of  $^{16}\text{O}$ ,  $^{17}\text{O}$ ,  $^{18}\text{O}$ , fine structure of  $^{16}\text{O}^-$  and the hyperfine structure of  $^{17}\text{O}$ ", *Phys. Rev. A* 64 (2001).

A1. S. Yiou, F. Balembois, P. Georges and A. Brun, "High-power continuous-wave diode-pumped Nd:YAlO<sub>3</sub> laser that emits on low-gain 1378- and 1385-nm transitions", *Applied Optics* 40 (18), pp. 3019-302 (2001).

2002

A2. S. Yiou, G. Lucas-Leclin, F. Balembois and P. Georges, "Continuous-wave diode-pumped solid-state laser with an intracavity fiber Bragg grating", *Applied Optics* 41 (30), pp. 6356-6359 (2002).

A3. S. Yiou, G. Lucas-Leclin, F. Balembois et P. Georges, "Laser Nd:YVO<sub>4</sub> à réseau de Bragg fibré intracavité", *Journal de Physique IV*, 12 (5), pp. 347-350 (2002).

2003

A4. S. Yiou, F. Balembois, J.-P. Huignard and P. Georges, "Improvement of the spatial beam quality of laser sources with an intracavity Bragg grating", *Optics Letters* 28 (4), pp. 242-244 (2003).

A5. S. Yiou, F. Balembois, K. Schaffers and P. Georges, "Efficient laser operation of an Yb:S-FAP crystal at 985 nm", *Applied Optics*, 42 (24), pp. 4883-4886 (2003).

2005

A6. S. Yiou, F. Balembois and P. Georges, "Numerical modelling of an Yb-doped bulk crystal laser emitting on a three-level laser transition around 980 nm", *Journal of the Optical Society of America B*, 22 (3), pp. 572-581 (2005).

A7. S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, G. Roosen, P. Viale, S. Février, P. Roy, J.-L. Auguste, and J.-M. Blondy "Stimulated Raman scattering in an ethanol core microstructured optical fiber", *Optics Express*, 13(12), pp. 4786-4791 (2005).

2007

A8. S. Lebrun, P. Delaye, et G. Roosen, "Stimulated Raman scattering in hollow core photonic crystal fibres", *Annales de Physique*, 32, pp. 45-51 (2007).

A9. S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, and G. Roosen, "High-efficiency single-mode Raman generation in a liquid-filled photonic bandgap fiber", *Optics Letters*, 32(4), pp. 337-339 (2007).

2010

A10. S. Lebrun, C. Lesvigne-Buy, P. Delaye, R. Frey, G. Pauliat, and G. Roosen, "Optical characterizations of a Raman generator based on a hollow core photonic crystal fiber filled with a liquid", *Journal of Nonlinear Optical Physics and Materials*, 19(1), pp. 101-109 (2010).

A11. M. C. Phan Huy, A. Baron, S. Lebrun, R. Frey, and P. Delaye, "Characterization of self-phase modulation in liquid filled hollow core photonic band gap fibers", *Journal of the Optical Society of America B*, 27(9), pp. 1886-1893 (2010).

2013

A12. L. Shan, G. Pauliat, G. Vienne, L. Tong, and S. Lebrun, "Design of nanofibres for efficient stimulated Raman scattering in the evanescent field", *Journal of the European Optical Society : Rapid publications*, 8, pp. 13030 (2013).

A13. L. Shan, G. Pauliat, G. Vienne, L. Tong, and S. Lebrun, "Stimulated Raman scattering in the evanescent field of liquid immersed tapered nanofibers", *Applied Physics Letters*, 102, 201110 (2013).

2014

A14. J.-C. Beugnot, S. Lebrun, G. Pauliat, H. Maillotte, V. Laude, and T. Sylvestre, "Brillouin light scattering from surface acoustic waves in a subwavelength-diameter optical fibre", *Nature Communications*, 5, 5242 (2014).

2017

A15. M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat, N. Dubreuil, F. G r me, B. Debord, F. Benabid, and S. Lebrun, "Lowering backward Raman and Brillouin scattering in waveguide Raman wavelength converters", *Journal of the European Optical Society : Rapid publications*, 13, 31 (2017).

A16. A. Godet, A. Ndao, T. Sylvestre, V. Pecheur, S. Lebrun, G. Pauliat, J.-C. Beugnot, and K. Phan Huy, "Brillouin spectroscopy of optical microfibers and nanofibers", *Optica*, 4(10), pp. 1232-1238 (2017).

2018

A17. M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat and S. Lebrun, "Efficient Raman converter in the yellow range with high spatial and spectral brightness", *Applied Optics*, 57 (24), pp. 6892-6897 (2018).

2019

A18. M. Bouhadida, J. C. Beugnot, P. Delaye, K. Phan Huy and S. Lebrun, "Highly efficient and reproducible evanescent Raman converters based on a silica nanofiber immersed in a liquid", *Accept  pour publication dans Appl. Phys. B* (nov. 2019).

### ***Publication en cours d'écriture dans une revue internationale avec comité de lecture***

A19. M. Bouhadida, ..., S. Lebrun. Étude sur le seuil de dommage des nanofibres de silice. Revue visée : Appl. Phys. B ou Optics Letters.

### ***Brevet***

2012

B1. "Dispositif optique à fibre optique à cœur liquide et procédé de réalisation d'un tel dispositif", S. Lebrun, M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat. FR 1258870, déposé le 21/09/2012. N° PCT/EP2013/069638.

### ***Article de vulgarisation scientifique***

A20. S. Lebrun, "Convertisseurs de longueurs d'onde à fibres à cœur liquide pour la biophotonique", Cahier technique de la revue Photonique, 54, juillet-août 2011.

### ***Publications dans des actes de congrès avec comité de lecture***

2001

C1. S. Yiou, F. Balembois, P. Georges and A. Brun, "A 800-mW diode-pumped continuous-wave Nd:YAlO<sub>3</sub> laser around 1380 nm", Conference on Lasers and Electro-optics 2001, San Francisco (2001). **Oral**

C2. S. Yiou, G. Lucas-Leclin, F. Balembois et P. Georges, "Laser Nd :YVO<sub>4</sub> à réseau de Bragg intracavité", COLOQ7, Rennes, septembre 2001, (2001). **Poster**

2002

C3. S. Yiou, F. Balembois, J.-P. Huignard et P. Georges, "Amélioration de la qualité spatiale des faisceaux de diodes lasers par un réseau de Bragg épais en cavité externe", 21<sup>èmes</sup> Journées Nationales d'Optique Guidée, Dijon, septembre 2002, (2002). **Poster**

2003

C4. S. Yiou, F. Balembois, P. Georges and J.-P. Huignard, "Improvement of spatial beam quality of laser sources with an intracavity Bragg grating", Advanced Solid State Laser, Topical Meeting, San Antonio, février 2003, in Trends in Optics and photonics, Advanced Solid State Lasers, OSA Washington DC, Vol 83, pp. 343-347 (2003). **Poster**

C5. S. Yiou, F. Balembois, K. Schaffers and P. Georges, "Efficient three-level continuous-wave laser operation of an Yb:S-VAP crystal at 985 nm", Advanced Solid State Laser, Topical

Meeting, San Antonio, février 2003, in Trends in Optics and photonics, Advanced Solid State Lasers, OSA Washington DC, Vol 83, pp. 438-443 (2003). **Oral**

C6. S. Yiou, F. Balembois, J.-P. Huignard and P. Georges, "Narrow beam divergence of laser diodes with a Bragg grating in external cavity", Conference on Lasers and Electro-optics 2003, Munich (2003). **Poster**

C7. S. Yiou, F. Balembois, K. Schaffers and P. Georges, "Efficient continuous-wave Yb:SFAP laser at 985 nm", Conference on Lasers and Electro-optics 2003, Munich (2003). **Oral**

C8. S. Yiou, F. Balembois, K. Schaffers and P. Georges, "Efficient three-level continuous-wave laser operation of an Yb:SFAP laser at 985 nm", Conference on Lasers and Electro-optics 2003, Baltimore (2003). **Oral**

#### 2004

C9. S. Yiou, J.-Y. Bengloan, S. Dhillon, A. de Rossi, X. Marcadet, C. Sirtori, "Optique non linéaire dans les lasers à cascade quantique", 9èmes Journées Nano-Microélectronique et Optoélectronique (JNMO), la Grande Motte (2004). **Poster**

#### 2005

C10. S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, G. Roosen, P. Viale, S. Février, P. Roy, J.-L. Auguste, J.-M. Blondy, "Low index liquid core photonic crystal fiber for nonlinear optics", Postdeadline paper, European Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-IQEC), Munich, Germany (2005). **Oral**

C11. S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, G. Roosen, P. Viale, S. Février, P. Roy, J.-L. Auguste, J.-M. Blondy, "Diffusion Raman stimulée dans une fibre à cristal photonique à cœur creux rempli d'éthanol", Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ'9), Dijon (2005). **Poster**

C12. S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, G. Roosen, P. Viale, S. Février, P. Roy, J.-L. Auguste, J.-M. Blondy, "Raman effect in a hollow core photonic crystal fiber filled with ethanol", European Optical Society Topical Meeting on Optical Microsystems, Capri, Italy (2005). **Oral**

C13. S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, G. Roosen, P. Viale, S. Février, P. Roy, J.-L. Auguste, J.-M. Blondy, "Effet Raman dans une fibre microstructurée à cœur creux rempli d'un liquide de faible indice", Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Chambéry (2005). **Poster**

#### 2006

C14. S. Lebrun, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, G. Roosen, P. Viale, S. Février, P. Roy, J.-L. Auguste, J.-M. Blondy, "Hollow core photonic crystal fiber filled with ethanol for efficient stimulated Raman scattering", Paper CThCC7, Conference on Lasers and Electro-Optics, Long Beach, USA (2006). **Oral**

C15. S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, G. Roosen, "Efficient single mode stimulated Raman scattering in a photonic bandgap fibre filled with ethanol", European Optical Society Annual Meeting, Paris (2006). **Oral**

#### 2007

C16. S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, G. Roosen, "Efficient single spatial mode stimulated Raman scattering in a hollow core photonic band-gap fiber filled with ethanol", Paper CFD3, Conference on Lasers and Electro-Optics, Baltimore, USA (2007). **Oral**

C17. S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, G. Roosen, "Single mode single Raman order generator with a liquid filled photonic band-gap fiber", Paper CJ77-5-FRI, European Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-IQEC), Munich, Germany (2007). **Oral**

C18. S. Lebrun, P. Delaye, G. Roosen, "Diffusion Raman stimulée dans les fibres à cristal photonique à cœur creux", Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ'10), Grenoble, (2007). **Conférence invitée.**

C19. S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, G. Roosen, "Efficient Raman generation in liquid filled hollow-core photonic crystal fibers", International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO 2007), Minsk, Russie (2007). **Oral**

#### 2008

C20. G. Vienne, Ph. Grelu, A. Coillet, Y. Li, C. Meng, S. Lebrun, G. Pauliat, G. Roosen, L. Tong, "Microfiber Resonators in the Linear and the Nonlinear Regimes", OSA topical meeting in Nanophotonics, Nanjing, China (2008). **Poster**

#### 2009

C21. S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey and G. Roosen, "Efficient frequency converters based on stimulated Raman scattering in hollow core photonic crystal fibers filled with nonlinear liquids", International Conference on Quantum, Nano and Micro Technology, Cancun, Mexico (2009). **Oral**

C22. G. Roosen, S. Lebrun, P. Delaye and R. Frey, "Raman conversion in liquid core photonic crystal fibers for wavelength on demand", 9<sup>th</sup> Mediterranean Workshop and Topical Meeting on Novel Optical Materials and Applications (NOMA), Cetraro, Italie (2009). **Oral**

C23. C. Buy, S. Lebrun, P. Delaye, G. Pauliat et G. Roosen, "Générateur Raman utilisant une fibre à cristal photonique à cœur creux remplie de liquide", Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Lille (2009). **Poster**

C24. C. Buy, S. Lebrun, P. Delaye, G. Pauliat et G. Roosen, "Optimisation et caractérisations optiques d'un convertisseur Raman à base d'une fibre à cristal photonique à cœur creux remplie d'éthanol", Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ'11), Mouans-Sartoux (2009). **Poster**

C25. M. C. Phan Huy, P. Delaye, S. Lebrun, R. Frey, et G. Roosen, "Génération paramétrique dans une fibre à bande interdite photonique à cœur liquide", Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ'11), Mouans-Sartoux (2009). **Poster**

#### 2010

C26. M. C. Phan Huy, A. Baron, S. Lebrun, R. Frey, and P. Delaye, "Self phase modulation in liquid core photonic crystal fibers", European Optical Society Annual Meeting Topical, Paris, (2010). **Oral**

C27. S. Lebrun, C. Buy, P. Delaye, R. Frey, and G. Pauliat, "Efficient Raman converter emitting in the orange range on the second Stokes order of toluene", European Optical Society Annual Meeting Topical, Paris, (2010). **Oral**

#### 2012

C28. L. Shan, G. Pauliat, L. Tong, and S. Lebrun, "Optimal nanofiber dimensions for stimulated Raman scattering in the evanescent field", European Optical Society Annual Meeting, Aberdeen, Scotland, UK (2012). **Poster**

C29. L. Shan, G. Pauliat, L. Tong, and S. Lebrun, "Demonstration of stimulated Raman scattering in the evanescent field of a tapered nanofiber", European Optical Society Annual Meeting, Aberdeen, Scotland, UK (2012). **Oral**

#### 2013

C30. L. Shan, G. Pauliat, G. Vienne, L. Tong and S. Lebrun, "Experimental demonstration of stimulated Raman scattering in the evanescent field of a tapered nanofiber immersed in a liquid", Paper CD-P.22, European Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-IQEC), Munich, Germany (2013). **Oral**

C31. J.-C. Beugnot, S. Lebrun, G. Pauliat, H. Maillotte, V. Laude, and T. Sylvestre, "Observation of surface acoustic wave Brillouin scattering in optical microfibers", 3<sup>rd</sup> Workshop on Specialty Optical Fibers and their Applications (WSOF), Stockholm, Sweden (2013). **Oral**

C32. J.-C. Beugnot, S. Lebrun, G. Pauliat, H. Maillotte, V. Laude, et T. Sylvestre, "Génération optique d'ondes acoustiques de surface dans une microfibre de silice", 33<sup>èmes</sup> Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Optique Paris 13, Villetaneuse, France (2013). **Oral**

C33. S. Lebrun, L. Shan, G. Pauliat, L. Tong, and G. Vienne, "Diffusion Raman stimulée dans le champ évanescent de nanofibres immergées dans des liquides", 33<sup>èmes</sup> Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Optique Paris 13, Villetaneuse, France (2013). **Oral**

C34. S. Lebrun, L. Shan, G. Pauliat, L. Tong, and G. Vienne, "Experimental demonstration of stimulated Raman scattering in the evanescent field of a tapered nanofiber immersed in a liquid", European Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-IQEC), Munich, Germany (2013). **Oral**

C35. J.-C. Beugnot, S. Lebrun, G. Pauliat, H. Maillotte, V. Laude, and T. Sylvestre, "Observation of surface acoustic wave Brillouin scattering in optical microfibers", Proceedings of Workshop on Specialty Optical Fibers and their Applications (WSOF) 2013, page W3, Sweden (2013). **Oral**

#### 2014

C36. M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat, B. Debord, F. Gérôme, F. Benabid and S. Lebrun, "Stimulated Raman scattering with large Raman shifts with liquid core Kagome fibers", European Optical Society Annual Meeting, Berlin, Germany (2014). **Oral**

C37. M. Barbier, P. Delaye, S. Lebrun, G. Pauliat, and M. C. Phan Huy, "Optimization of liquid filled hollow core photonic fibers for nonlinear applications", ICO-23 (23<sup>rd</sup> Congress of the International Commission for Optics), Santiago de Compostela, Spain (2014). **Oral**

C38. J.-C. Beugnot, S. Lebrun, G. Pauliat, H. Maillotte, V. Laude, and T. Sylvestre, "All-optical generation of surface acoustic waves in a silica optical microwire", SPIE Photonics Europe, Nonlinear Optics and Its Applications VIII; and Quantum Optics III, volume 9136, page 91360E, Brussels, Belgium (2014). **Oral**

#### 2015

C39. M. Barbier, P. Delaye, S. Lebrun, G. Pauliat, and M. C. Phan Huy, "Liquid filled photonic fibers for non linear devices", Optics & Photonics Japan 2015, Tokyo, Japan (2015). **Oral**

C40. P. Delaye, C. Hasting, A. Laursen, M. Barbier, M. C. Phan Huy, G. Pauliat, et S. Lebrun, "Décalage de la bande de transmission des fibres à bande interdite photonique remplies de liquide avec le contraste d'indice", Optique Bretagne 2015, Rennes, France (2015). **Poster**

C41. M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat, B. Debord, F. Gérôme, F. Benabid, et S. Lebrun, "Emission Raman stimulée dans des fibres Kagomé à cœur liquide", Optique Bretagne, Rennes, France (2015). **Poster**

#### 2016

C42. S. Lebrun, P. Delaye, M. C. Phan Huy, M. Barbier, and G. Pauliat, "Liquid filled hollow core photonic crystal fibres for nonlinear applications", 10<sup>th</sup> International Conference on Optics-photonics Design & Fabrication, Weingarten, Germany (2016). **Oral**

C43. S. Lebrun, P. Delaye, G. Pauliat, and M. C. Phan Huy, "Wavelength converters for biophotonic applications", 20<sup>th</sup> Annual Symposium IEEE Benelux Chapter, Brussels, Belgium (2016). **Conférence invitée.**

C44. S. Lebrun, M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat, X. Theillier, "Convertisseurs de longueur d'onde RAMBIO, principe et applications", 36<sup>ème</sup> Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Optique Bordeaux 16, Bordeaux, France (2016). **Conférence invitée.**

C45. S. Lebrun, M. C. Phan Huy, P. Delaye, and G. Pauliat, "Efficient stimulated Raman scattering in hybrid liquid-silica fibers for wavelength conversion", SPIE/COS Photonics

Asia, Optical Design and Testing VII, volume 10021, page 1002104, Beijing, China (2016). **Oral**

2017

C46. M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat, N. Dubreuil, B. Debord, F. Gérôme, F. Benabid and S. Lebrun, "Reduction of Brillouin scattering for the optimization of liquid-core Raman wavelength converters", In Conference on Laser and Electro-Optics/Europe (CLEO/Europe-EQEC 2017), Munich, Germany (2017). **Oral**

C47. A. Azzoune, G. Pauliat, et S. Lebrun, "Optical nanofibers for correlated photon sources", INNOV-FIBRE 2017, Toulon, France (2017). **Poster**

C48. A. Godet, A. Ndao, T. Sylvestre, S. Lebrun, G. Pauliat, J.-C. Beugnot, and K. Phan Huy. "Metrology of optical microwires by Brillouin spectroscopy", Workshop on OptoMechanics and Brillouin scattering, fundamentals, Applications and Technologies (WOMBAT 2017), Besançon, France (2017). **Oral**

C49. A. Azzoune, J.-C. Beugnot, L. Divay, A. Godet, C. Larat, S. Lebrun, A. Ndao, G. Pauliat, V. Pecheur, K. Phan Huy, and T. Sylvestre. "Optical and opto-acoustical metrology of silica tapered fibers for nonlinear applications", Optics & Photonics Japan 2017, volume Proceedings 2017 OPJ-OSA Joint Symposia on Nanophotonics and Digital Photonics (Optical Society of America, 2017), paper PL3, Tokyo, Japan (2017). **Oral**

2018

C50. A. Azzoune, P. Delaye, S. Lebrun, M. Bouhadida, and G. Pauliat. "Submicrometer measurements of tapered optical fibers with low aperture optical microscopes", Optics and Photonics Algéria – OPAL 2018, Oran, Algérie (2018). **Oral**

C51. M. Bouhadida, A. Azzoune, P. Delaye, N. Dubreuil, G. Pauliat, and S. Lebrun. "Optical characterization of a nanofiber immersed in a Raman liquid", Optics and Photonics Algéria – OPAL 2018, Oran, Algérie (2018). **Oral**

C52. A. Azzoune, P. Delaye, S. Lebrun, M. Bouhadida et G. Pauliat, "Mesure par microscopie optique de fibres optiques étirées avec une résolution nanométrique", 38<sup>èmes</sup> Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG38), Congrès Optique Toulouse 2018, France (juillet 2018). **Oral**

C53. M. Bouhadida, A. Azzoune, P. Delaye, N. Dubreuil, G. Pauliat, and S. Lebrun, "Contribution to the study of Raman effect in the evanescent field of a nanofiber immersed in a liquid", European Optical Society Annual Meeting 2018 Delft, Pays-Bas (2018). **Oral**

C54. A. Azzoune, P. Delaye, S. Lebrun, M. Bouhadida and G. Pauliat, "Optical in-situ measurement of tapered optical fibers with nanometric resolution", European Optical Society Annual Meeting 2018 Delft, Pays-Bas (2018). **Poster**

2019

C55. M. Bouhadida, A. Azzoune, G. Pauliat, P. Delaye, and S. Lebrun, “Vers une source de paires de photons corrélés autour de 1,5  $\mu\text{m}$  utilisant des non-linéarités de surface dans des nanofibres de silice”, Congrès Général de la Société Française de Physique, Nantes (2019).

**Oral**

C56. A. Azzoune, P. Delaye, S. Lebrun, M. Bouhadida, G. Pauliat, “Overcoming the diffraction limit of optical microscopes for measuring tapered optical fibers”, Conference on Lasers and Electro-Optics OSA Technical Digest (Optical Society of America, 2019), paper JTh2A.102, San Jose, California United States (2019). **Poster**

C57. M. Bouhadida, A. Azzoune, G. Pauliat, P. Delaye, and S. Lebrun, “A first step towards an optimized nanofiber design for the generation of correlated photons pairs around 1550 nm”, ICO&IUPAP-C17 Topical Meeting on OPTics and Applications to Sustainable Development (OPTISUD) Carthage, Tunisie (2019). **Prix de la meilleure présentation orale (Maha Bouhadida).**

C58. M. C. Phan Huy, P. Delaye and S. Lebrun, “Efficient Raman converter at 583 nm using a photonic bandgap fiber filled with a mixture of liquids”, OSA Laser Congress, Vienne, Autriche (2019). **Oral**

C59. M. Bouhadida, J. C. Beugnot, P. Delaye, K. Phan Huy and S. Lebrun, “Conception and reproducibility study of efficient evanescent Raman converters based a nanofiber immersed in a liquid”, Photonics West, San Francisco, United States (2020). **Oral**

## CHAPITRE I - INTRODUCTION

J'ai été recrutée en tant que maîtresse de conférence en 2004 à l'Institut d'Optique Graduate School (IOGS). Pour mon activité de recherche j'ai rejoint le groupe Photonique Non Linéaire (anciennement groupe MATériaux Non LINéaires et Applications ou MANOLIA) du Laboratoire Charles Fabry, groupe dirigé à cette époque par Gérard Roosen et Gilles Pauliat et désormais par Philippe Delaye. J'effectue depuis 2004 la totalité de mon service d'enseignement dans l'école d'ingénieurs de l'Institut d'Optique Graduate School. Je résume dans la suite mes recherches antérieures à mon embauche et présente une introduction à ce manuscrit.

### ***I.A. Résumé de thèse***

Ma thèse s'est déroulée au Laboratoire Charles Fabry de 2000 à 2003 dans le groupe Lasers dirigé par Patrick Georges, sous la direction de François Balembos. Le cadre général était l'étude de nouvelles sources laser de forte luminance émettant à 980 nm pour le pompage des amplificateurs à fibre dopée erbium (EDFA pour Erbium Doped Fiber Amplifier) dans le domaine des télécommunications ou encore pour le pompage longitudinal des lasers solides pour améliorer les performances des sources laser émettant dans le bleu par doublage de fréquence.

Les diodes laser monomodes spatiales utilisées couramment pour ce pompage émettent à 980 nm une puissance maximale continue d'environ 300 mW sur une surface émettrice de  $1 \mu\text{m}$  par  $3 \mu\text{m}$ . Les diodes laser de plus forte puissance ont une surface émettrice plus large, typiquement  $1 \mu\text{m}$  sur  $100$  à  $200 \mu\text{m}$ . Il en résulte une dégradation de la qualité spatiale du faisceau dans le plan parallèle à la fonction de la diode. Dans cette direction, le faisceau est 10 à 20 fois limité par la diffraction, ce qui est un problème pour les applications visées qui nécessitent une forte densité de puissance sur une petite surface. L'enjeu de la thèse était de concevoir et réaliser une source laser monomode spatiale délivrant une puissance continue de l'ordre du watt à 980 nm.

Lors de cette thèse, nous avons étudié deux voies. La première solution a consisté à améliorer la qualité spatiale d'un faisceau de diode laser en réalisant un filtrage angulaire du faisceau. La solution proposée était la mise en cavité externe d'une diode laser de puissance, technique séduisante par sa compacité et sa relative simplicité de mise en œuvre. Le filtrage angulaire était effectué par un réseau de Bragg que nous avons conçu et réalisé dans un matériau holographique novateur de PMMA dopé avec des molécules de phénanthrénéquinone (PQ:PMMA). Nous avons ainsi démontré expérimentalement une augmentation d'un facteur 3 de la brillance spatiale du faisceau issu de diodes laser de puissance. Le principe a également été validé sur des barrettes de diodes laser. Ces résultats ont été obtenus en collaboration

avec Jean-Pierre Huignard (Thales Research and Technology, TRT) et ont fait l'objet d'une publication et de plusieurs communications orales (A4, C3, C4, C6).

La seconde solution pour obtenir une émission autour de 980 nm dans un faisceau monomode spatial a été d'utiliser le faisceau fortement multimode spatial d'une diode laser de puissance pour pomper un cristal massif placé en cavité et faire osciller le laser sur le mode fondamental gaussien, limité par la diffraction.

Les matériaux dopés par l'ion ytterbium sont de bons candidats pour obtenir une émission laser autour de 980 nm. En effet, l'ion ytterbium présente en général, selon la matrice hôte, une bande d'absorption autour de 900 nm et une transition laser autour de 980 nm. Cependant plusieurs problèmes sont à surmonter.

D'une part, il s'agit d'une transition laser à trois niveaux, qui présente donc une forte absorption à la longueur d'onde laser. Une forte densité de puissance de pompe est obligatoire pour réaliser l'inversion de population. De plus, un bon recouvrement des faisceaux pompe et laser dans le milieu amplificateur est nécessaire pour empêcher l'absorption à la longueur d'onde laser.

D'autre part, il existe une transition laser bien plus favorable autour de 1050 nm dont l'oscillation doit être bloquée. Des fibres dopées avec l'ion ytterbium ont pu émettre à 980 nm car il est possible d'avoir dans le petit cœur de la fibre à la fois une forte densité de puissance de pompe et un bon recouvrement des faisceaux pompe et laser. Ceci est beaucoup plus difficile à réaliser dans les cristaux massifs dopés ytterbium. La forte densité de puissance de pompe nécessaire pour atteindre le seuil d'oscillation laser est généralement rédhibitoire. De plus, avec un pompage par diode, le recouvrement des faisceaux n'est pas optimisé dans le cristal en raison de la forte divergence du faisceau des diodes laser.

Parmi les cristaux dopés ytterbium recensés dans la littérature nous avons trouvé que la famille des cristaux d'apatite se détache par ses fortes sections efficaces. Nous avons ainsi choisi d'utiliser un cristal de S-FAP pour nos expériences. Nous avons montré pour la première fois que par un bon choix de la matrice d'accueil et des conditions de pompage, il est possible de réaliser un laser efficace émettant vers 980 nm en pompage continu. Ces résultats ont fait l'objet d'une collaboration avec le Lawrence Livermore Laboratory (USA), et ont donné lieu à deux publications et plusieurs communications orales (A5, A6, C5, C7, C8).

Enfin, nous avons étudié la réalisation d'un laser solide pompé par diode avec une sortie fibrée, pour le pompage des EDFA. Pour cela, nous avons utilisé un réseau de Bragg fibré comme miroir de sortie de la cavité. De cette façon, le faisceau laser est automatiquement couplé dans la fibre. Nous avons réalisé une démonstration de principe de ce nouveau concept de laser à 1064 nm avec un laser solide Nd:YVO<sub>4</sub> pompé par diode. Le résultat a fait l'objet d'une publication et de plusieurs communications orales (A2, A3, C2).

### ***I.B. Résumé de mes recherches en ATER***

À la suite de ma thèse, j'ai obtenu un poste d'Attachée Temporaire d'Enseignement et de Recherche à l'Université Paris Diderot (octobre 2003-août 2004). J'ai effectué ma recherche au Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques (LPQM) dans l'équipe dirigée par Carlo Sirtori. Mon sujet de recherche portait sur le doublage de fréquence intracavité dans des lasers à cascade quantique (QCL) en GaAs pour atteindre la bande spectrale autour de  $5\ \mu\text{m}$ . L'optique non linéaire dans les QCL suscite beaucoup d'intérêt. D'une part l'énergie des photons générés par ces lasers ( $\sim 0,14\ \text{eV}$  pour une longueur d'onde de  $10\ \mu\text{m}$ ) est très inférieure à l'énergie du gap ( $1,5\ \text{eV}$ ). Le semiconducteur reste ainsi transparent pour des photons d'énergie encore deux à trois fois supérieure, ce qui n'est pas le cas des diodes laser conventionnelles. D'autre part, GaAs, qui est un matériau non centrosymétrique, possède une susceptibilité non linéaire du second ordre non nulle, bien plus élevée que celle de la plupart des cristaux ferroélectriques.

Toutefois deux problèmes majeurs se posent pour pouvoir exploiter cette non-linéarité du second ordre. La croissance épitaxiale des QCL se fait habituellement selon l'axe cristallographique  $[1\ 0\ 0]$ . Or, du fait des règles de sélectivité des transitions intersousbandes, l'émission laser issue des QCL est polarisée perpendiculairement au plan des couches et donc parallèlement à l'axe  $[1\ 0\ 0]$ . Deux des composantes du champ électrique sur les axes cristallographiques étant nulles, les trois composantes de la polarisation non linéaire du second ordre le sont également. Il en résulte que les mélanges de fréquences ne peuvent avoir lieu qu'avec l'injection d'un second faisceau.

Une solution pour générer du doublement de fréquence intracavité est de réaliser la croissance des couches selon l'axe  $[1\ 1\ 1]$ . De cette façon, le champ électrique repose de façon équitable sur les trois axes cristallographiques et les composantes de la polarisation non linéaire du second ordre sont donc différentes de zéro. Cependant, du fait de l'isotropie de GaAs, un accord de phase par biréfringence ne peut être réalisé. Une solution est alors de réaliser un accord de phase modal.

Mon travail a consisté à déterminer, grâce à un code de simulation numérique développé au laboratoire, une structure de guide d'onde permettant d'avoir à la fois un accord de phase entre deux modes ainsi qu'un fort recouvrement spatial. La structure proposée n'a pu être fabriquée pendant la courte durée de ce séjour postdoctoral et ces études n'ont pas été poursuivies à ma connaissance. Ce séjour m'a toutefois permis d'être formée aux techniques expérimentales de caractérisations électriques et optiques des QCL par Jean-Yves Bengloan et Sukdeep Dhillon, respectivement doctorant et post-doctorant au LMPQ.

### ***I.C. Introduction à ce manuscrit d'HDR***

À la suite de cet ATER, j'ai intégré en septembre 2004 le groupe Photonique Non Linéaire du LCF pour y travailler avec Robert Frey et Philippe Delaye dans une thématique qui avait débuté depuis peu, l'étude des propriétés non linéaires de matériaux nanostructurés.

Mes recherches se sont concentrées plus précisément sur l'étude de la diffusion Raman dans des fibres microstructurées remplies d'un liquide, que je désignerai par la suite en tant que "convertisseurs RAMBIO".

Les premières années nous nous sommes principalement intéressés à des démonstrations de principe et à des aspects surtout fondamentaux, à savoir la propagation linéaire et non linéaire dans ces fibres, assez récentes à l'époque. À la suite des premiers résultats très encourageants obtenus sur la diffusion Raman stimulée, Costel Subran, alors PDG de la société Opton Laser International (Orsay), a évoqué le potentiel industriel de ces convertisseurs RAMBIO pour la réalisation de sources multi longueurs d'onde. Cet intérêt industriel laissait entrevoir plusieurs types d'applications, notamment en biophotonique.

Les années suivantes, jusqu'en 2015 environ, j'ai consacré une grande partie de mon temps à la valorisation de ces convertisseurs. Derrière le terme de valorisation, concept très flou pour moi à cette époque, se cachait un nouveau monde que j'ai passé plusieurs années à découvrir et à explorer, dans lequel j'ai essayé de naviguer, à cheval entre la recherche, la technologie et surtout tout le "reste".

En parallèle de ces explorations, en 2007, Guillaume Vienne, à l'époque chercheur à l'Université de Zhejiang en Chine et intéressé par nos recherches sur les fibres microstructurées, nous a contactés en vue d'une collaboration sur des objets nouveaux pour nous, les nanofibres optiques. Comme je le détaillerai plus loin, les nanofibres optiques présentent des propriétés très originales de propagation de la lumière. De par leur diamètre sub-longueur d'onde, elles permettent un confinement très intense de la lumière, rendant possibles des effets optiques non linéaires efficaces sur de très courtes distances. Le champ électromagnétique peut également présenter une large partie évanescence, permettant par exemple de sonder le milieu extérieur.

Nous avons naturellement pensé à immerger ces nanofibres dans des liquides afin d'y exciter des non-linéarités par le champ optique évanescent, ce qui n'avait jamais été réalisé auparavant et ouvrait potentiellement la voie vers la réalisation d'une nouvelle famille de composants fibrés avec lesquels on pouvait imaginer façonner les propriétés de propagation de la lumière pour réaliser des fonctions optiques. L'ingénierie de ces nanofibres permet également de contrôler la dispersion chromatique, offrant ainsi de nouvelles possibilités. Pour moi, en plus de l'intérêt scientifique, c'était aussi l'occasion de fabriquer nous-mêmes nos propres objets d'étude sans dépendre de fournisseurs ou d'autres laboratoires de recherche et d'en étudier les propriétés linéaires et non linéaires avec l'expertise acquise lors de l'étude des fibres microstructurées remplies de liquides. Nous nous sommes donc lancés dans ces nouveaux travaux, qui nous ont amenés à établir des collaborations nationales et internationales fructueuses que je détaillerai au cours du manuscrit.

La première partie de ce mémoire décrit les différents convertisseurs RAMBIO étudiés, leurs propriétés, leurs limitations, leurs performances.

Je consacre la seconde partie à préciser la démarche de valorisation que j'ai suivie.

La troisième partie est dédiée aux non-linéarités évanescentes dans les nanofibres de silice. Je termine par exposer quelques voies de recherche envisagées pour les prochaines années.

## CHAPITRE II - DIFFUSION RAMAN STIMULÉE DANS DES FIBRES MICROSTRUCTURÉES REMPLIES DE LIQUIDES

### **II.A. Contexte et motivations**

Je suis arrivée dans le groupe Photonique Non Linéaire à une période de changement thématique. Les activités de recherche sur les matériaux photoréfractifs étaient progressivement remplacées par l'étude des non-linéarités dans des matériaux micro et nanostructurés qui peuvent être soit des cristaux photoniques soit des fibres optiques microstructurées.

Mes activités de recherche se sont concentrées sur l'étude des non-linéarités dans des fibres optiques microstructurées remplies de liquides. Ces études avaient débuté depuis environ un an à mon arrivée. Une collaboration informelle avec le laboratoire XLIM (Limoges) qui fabrique ces fibres venait d'être initiée. L'effet non linéaire auquel je me suis tout d'abord intéressée est la diffusion Raman stimulée. Depuis sa découverte en 1930 et son essor dès les années 60 avec l'utilisation des lasers, cet effet a toujours été étudié abondamment dans la littérature [AGRAWAL, BOYD]. Il s'agit parfois d'un effet parasite que l'on cherche à minimiser ou parfois, au contraire, que l'on cherche à utiliser, ses applications étant multiples. On l'exploite par exemple pour la compensation des pertes sur les lignes de télécommunication par fibres optiques [DESURVIRE], l'amplification de signaux optiques [STONE] ou encore le développement de nouvelles sources laser accordables [FREY].

La diffusion Raman est également souvent utilisée pour générer de nouvelles longueurs d'onde à partir d'une source de pompe, notamment lorsque ces longueurs d'onde sont difficilement atteignables par effet laser direct. C'est par exemple le cas du domaine visible, où il existe peu de transitions laser. Il est donc souvent nécessaire de passer par du doublement de fréquence d'un faisceau laser infrarouge dans un cristal non linéaire à l'accord de phase pour obtenir la longueur d'onde souhaitée. Changer de longueur d'onde nécessite au minimum de changer le laser de pompe. Il est aussi possible de réaliser des oscillateurs paramétriques optiques si l'on souhaite disposer d'une source laser accordable.

Des lasers Raman à base de cristaux solides ont également été réalisés. Par exemple dans [OMATSU] l'effet Raman est utilisé pour réaliser le laser infrarouge, qui est ensuite doublé en fréquence dans un cristal non linéaire. La longueur d'interaction dans les cristaux étant limitée par la distance de Rayleigh, il est intéressant d'utiliser les technologies fibrées. Des lasers Raman ont été réalisés dans des fibres de silice, les longueurs d'onde émises étant alors fixées par ce matériau et le laser de pompe.

Dans les travaux que je vais présenter nous proposons une solution alternative qui utilise la diffusion Raman stimulée dans des liquides insérés dans des fibres microstructurées. Au-delà de l'intérêt purement scientifique de ces nouvelles études, ces convertisseurs de longueur

d'onde permettent d'atteindre tout un panel de longueurs d'onde discrètes dans le visible à partir d'une seule source laser de pompe, ceci de façon très efficace. Les sources laser continues émettant dans le visible des puissances allant jusqu'à quelques watts sont déjà très présentes sur le marché grâce aux lasers tout solides, fiables et compacts. Une autre originalité de nos convertisseurs est qu'ils fonctionnent en régime impulsionnel, dans des domaines temporels peu ou pas couverts par les lasers actuels avec des durées d'impulsion pouvant aller d'une vingtaine de ps à la ns et des fréquences pouvant aller jusqu'à quelques centaines de kHz. Nos convertisseurs peuvent ainsi ouvrir de nouvelles possibilités dans des domaines où seules quelques longueurs d'onde discrètes sont nécessaires et où l'utilisation d'une source supercontinuum associée à un filtre acousto-optique pour sélectionner la longueur d'onde peut s'avérer surdimensionnée, comme nous le verrons au Chapitre III -. Le Tableau II-1 permet de positionner notre technologie par rapport aux principales technologies déjà existantes, dans le domaine des sources laser impulsionnelles multi-longueurs d'onde.

Technologie	Avantages	Inconvénients
<b>Supercontinuum</b> <i>Typ. 6 ps, 80 MHz ou 1 ns, 30 kHz</i> <i>Typ. 350 nm – 2,5 μm</i> <i>Typ. 10 mW/nm</i>	Simplicité d'utilisation Compacité Spectre étendu	Densité spectrale de puissance modérée Nécessité d'un filtre acousto-optique Coût assez élevé
<b>Oscillateurs Paramétriques Optiques</b>	Accordabilité	Mise en œuvre difficile Coût élevé
<b>Lasers à colorant</b>	Accordabilité	Mise en œuvre difficile Encombrement Coût élevé
<b>Diodes laser</b> <i>Gamme de fréquence MHz</i>	Compacité Coût peu élevé	Une diode par longueur d'onde Faible puissance crête (typ. 10 W)
<b>Laser impulsionnel + cellule de colorant</b>	Composant de coût peu élevé	Faible efficacité de conversion (quelques pourcents)
<b>Laser impulsionnel + fibre remplie de gaz</b>	Fortes efficacités de conversion	Fuites de gaz

Tableau II-1 – Technologies lasers impulsionnels multi-longueurs d'onde, principaux avantages et inconvénients en regard de la technologie RAMBIO.

## II.B. Optique non linéaire et fibres optiques, généralités

La réalisation d'effets optiques non linéaires efficaces est liée à l'optimisation du terme  $\frac{gL P_P}{A_{eff}}$ , où  $g$  est le coefficient de gain non linéaire (Raman, Brillouin ou paramétrique),  $L$  la longueur d'interaction,  $P_P$  la puissance de pompe et  $A_{eff}$  l'aire effective de l'interaction. Les fibres optiques sont ainsi des candidates de choix car il est possible d'y confiner fortement le faisceau de pompe dans un cœur de petite taille (typiquement 10 μm pour une fibre

monomode standard) sur une grande longueur d'interaction  $L$  grâce à de faibles pertes de propagation et donc d'y cumuler les non-linéarités.

Dans les fibres de silice cette grande longueur d'interaction permet de compenser la faible non-linéarité du matériau. Afin d'augmenter le gain non linéaire  $g$  et la variété des matériaux non linéaires possibles, une idée, assez ancienne, a été d'utiliser des capillaires de silice à cœur creux et de remplir le cœur par un matériau fortement non linéaire, comme un liquide [CHRAPLYVY, CHEN]. Cette solution impose cependant de fortes contraintes sur le matériau. D'une part, son indice de réfraction doit être supérieur à celui de la silice (1,45) pour garantir un guidage par réflexion totale interne, ce qui interdit l'utilisation de gaz d'indice de réfraction voisin de 1. D'autre part, pour obtenir une propagation en régime monomode de la

lumière, la fréquence réduite  $V = \frac{2\pi a}{\lambda} \sqrt{n_{\text{liquide}}^2 - n_{\text{silice}}^2}$ , où  $a$  est le rayon du capillaire, doit

être inférieure à 2,405. Par exemple, pour un capillaire de rayon  $a = 5 \mu\text{m}$  et à une longueur d'onde de  $1 \mu\text{m}$ , l'indice de réfraction du matériau doit être inférieur à 1,47 tout en restant supérieur à 1,45, l'indice de la silice. Le choix des matériaux possibles est donc très restreint. Cette solution n'est pas celle que nous avons privilégiée au début de nos études, mais nous verrons plus tard qu'elle pourra être intéressante dans certaines conditions.

Le développement des fibres optiques microstructurées à la toute fin des années 1990 a révélé des propriétés originales de propagation et de dispersion de la lumière qui rendent ces fibres particulièrement intéressantes pour l'optique non linéaire [BIRKS1].

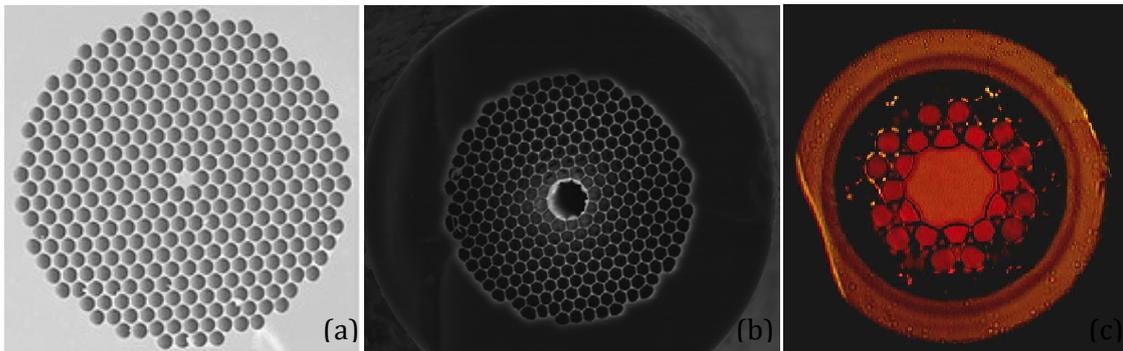


Figure II-1 – (a) Photo MEB d'une fibre à bande interdite photonique à cœur de silice. Le diamètre du cœur est de  $5 \mu\text{m}$ . (source : [https://fr.wikipedia.org/wiki/Fibre\\_%C3%A0\\_cristal\\_photonique](https://fr.wikipedia.org/wiki/Fibre_%C3%A0_cristal_photonique)).  
 (b) Photo MEB d'une fibre à bande interdite photonique à cœur creux guidant à  $1550 \text{ nm}$  dans l'air (HC-1550-02). Le diamètre du cœur est de  $10 \mu\text{m}$ . (crédit photo : MC Phan Huy).  
 (c) Photo MEB d'une fibre Kagomé (GLOphotonics, PMC-C-650/2000-7C).

Dans ces fibres la gaine est composée d'un agencement périodique de trous d'air séparés par des ponts de silice courant le long de la fibre et réalisant dans la direction perpendiculaire à la direction de propagation de la lumière un cristal photonique à deux dimensions. Il existe dans cette direction transverse des bandes interdites photoniques correspondant à des bandes spectrales dans lesquelles la lumière ne peut se propager.

Ainsi, dans ces bandes, la lumière est réfléchiée par le cristal photonique avec un coefficient de réflectivité élevé, et guidée le long de la fibre dans un défaut de cette structure qui est le cœur de la fibre. Ce cœur peut être soit plein soit creux.

Dans les fibres à cœur plein, le cœur de silice peut être de très petite dimension (de 1 à 2  $\mu\text{m}$  de diamètre, voir Figure II-1-a) ce qui permet d'augmenter les non-linéarités en diminuant  $A_{eff}$ . De nombreux travaux en optique non linéaire ont été réalisés avec de telles fibres, comme la réalisation de supercontinuum pour la spectroscopie [DUDLEY] et la biophotonique [LAROCHE] ou des sources de paires de photons corrélés pour l'optique quantique [ALIBART]. La gamme de longueurs d'onde que l'on peut atteindre est toutefois limitée par l'utilisation d'un matériau unique, la silice.

Les fibres microstructurées à cœur creux [BIRKS2, CREGAN] permettent de relâcher des contraintes sur l'indice de réfraction du matériau non linéaire tout en conservant le guidage de la lumière.

Trois types de guidage sont possibles selon la géométrie de la fibre :

- 1) Lorsque seul le cœur de la fibre est rempli de liquide, l'indice effectif de la gaine peut être rendu inférieur à l'indice de réfraction du liquide grâce à la structuration de la gaine par les trous d'air. Dans ce cas il peut y avoir guidage de la lumière par réflexion totale interne modifiée.
- 2) Lorsque la fibre est entièrement remplie de liquide ou de gaz, le guidage de la lumière peut se faire par bande interdite photonique, dans l'air ou dans des matériaux d'indice inférieur à celui de la silice, avec des pertes très faibles (le record étant actuellement de 1,2 dB/km à 1,62  $\mu\text{m}$  [ROBERTS]). Ce type de fibre peut être utilisé en tant que filtre en longueur d'onde pour favoriser ou au contraire pour empêcher l'apparition d'un effet optique non linéaire donné (voir Figure II-1-b). Les bandes de transmission de ces fibres sont relativement étroites.
- 3) Le mécanisme de "couplage inhibé" est utilisé dans les fibres dites Kagomé [BENABID2] ou les fibres à maille tubulaire [PRYAMIKOV]. Dans ces fibres la lumière peut être guidée dans l'air ou dans des matériaux d'indice inférieur à celui de la silice sur de très grandes plages spectrales avec peu de pertes, avoisinant à ce jour quelques dB/km (voir Figure II-2-c une coupe transverse prise au MEB d'une fibre Kagomé). Le mécanisme de guidage dans ces fibres a été modélisé pour la première fois en 2007 [COUNY] et récemment très détaillé dans [AMSANPALLY]. Le principe repose sur la coexistence du mode guidé du cœur d'air avec un continuum de modes de gaine sans pour autant engendrer d'interaction.

Dès leur invention en 1999 les fibres microstructurées à cœur creux ont rapidement trouvé un grand nombre d'applications très variées comme, entre autres, le transport de fortes

puissances lumineuses [OUZOUNOV], la réalisation de pinces optiques [BENABID1] ou encore de capteurs [TUCHIN].

Pour l'optique non linéaire, l'un des grands intérêts de ces fibres est la possibilité de les remplir avec un gaz ou un liquide non linéaire tout en conservant le guidage de la lumière avec peu de pertes.

Au début des années 2000, les principales études ont été réalisées par l'Université de Bath sur la diffusion Raman stimulée dans des fibres à guidage par bande interdite photonique remplies de gaz [BENABID2, BENABID3]. Une équipe a également publié des travaux sur la spectroscopie CARS de molécules d'eau présentes dans une fibre microstructurée à cœur creux [KONOROV] mais ces travaux sont restés assez isolés.

À mon arrivée en 2004, il y avait donc encore un vaste champ d'études possibles sur les non-linéarités dans ces fibres et, le groupe, sous l'impulsion de Robert Frey, a décidé d'exploiter le potentiel des liquides non linéaires, ce qui permettait notamment d'afficher une spécificité par rapport aux gaz déjà étudiés par l'équipe de l'Université de Bath. Le principe était d'assurer le guidage de la lumière par la structure de la fibre de silice microstructurée et de réaliser l'effet optique non linéaire dans le liquide remplissant la fibre.

Notre choix s'est porté en premier lieu sur un effet non linéaire du troisième ordre, la diffusion Raman stimulée, en principe plus facile à mettre en œuvre et à observer que par exemple des mélanges d'ondes. Les travaux que je présente ont tous été réalisés en régime impulsif sub-nanoseconde en pompage dans le vert à 532 nm avec des énergies de l'ordre du  $\mu\text{J}$ . La durée des impulsions est bien supérieure au temps de vie des phonons dans les liquides utilisés (de l'ordre d'une dizaine de picosecondes pour l'éthanol), assurant ainsi un régime stationnaire pour la diffusion Raman. Ce cadre d'études permet de mettre en évidence une grande richesse d'effets optiques non linéaires, et des extrapolations à d'autres régimes de fonctionnement peuvent être faites.

De nos jours, l'étude d'effets non linéaires dans des fibres microstructurées à cœur liquide reste encore relativement peu développée. On peut citer les travaux théoriques de Zhang et al. sur la génération de supercontinuum [ZHANG], les travaux expérimentaux de Bozolan et al. sur la génération de supercontinuum dans une fibre à cœur remplie d'eau [BOZOLAN] ou plus récemment les travaux de Fanjoux et al. sur la mise en évidence de la diffusion Raman-Kerr dans une fibre-capillaire remplie de toluène [FANJOUX1]. Les difficultés technologiques liées au remplissage de ces fibres (bulles, étanchéité, compatibilité des matériaux...) sont probablement un frein à ces études.

## II.C. Éléments de physique et généralités sur la diffusion Raman

### II.C.1. Description qualitative

La diffusion Raman, effet non linéaire du troisième ordre, résulte de l'interaction de la lumière avec les modes de vibration ou de rotation des molécules qui produit une diffusion inélastique. Lorsqu'on éclaire un matériau avec un faisceau pompe à la fréquence  $\omega_p$ , le spectre du faisceau diffusé contient une raie intense à la fréquence  $\omega_p$  appelée raie Rayleigh. On observe des raies de fréquences plus petites appelées raies Stokes : certaines sont très proches de la raie Rayleigh, il s'agit de raies Stokes Brillouin issues de l'interaction de la lumière avec des ondes acoustiques (par exemple le décalage Brillouin dans la silice est de l'ordre de 11 GHz). D'autres sont beaucoup plus éloignées : il s'agit des raies Stokes Raman (par exemple le décalage Raman de la silice est de l'ordre de 80 THz). On observe également des raies de fréquences plus élevées (mais d'intensité plus faible), il s'agit des raies anti-Stokes Brillouin (pour les plus proches en fréquence) et anti-Stokes Raman pour les plus éloignées. Ces raies Stokes et anti-Stokes sont symétriques en fréquence par rapport à  $\omega_p$  et sont générées par paires.

L'écart en fréquence entre une raie Stokes à la fréquence  $\omega_s$  et la raie à  $\omega_p$  ne dépend que de la molécule qui est sondée et plus exactement, dans le cas du Raman, du mode de vibration ou de rotation d'une liaison moléculaire. On appelle cet écart en fréquence le décalage Raman (voir Figure II-2-a). Ce décalage est souvent donné en  $\text{cm}^{-1}$  et sera noté par la suite  $\sigma_R$ .

On a donc la relation  $\omega_p = \omega_s + 2\pi c\sigma_R$ , qui permet notamment de déterminer la longueur d'onde du faisceau diffusé. L'effet Raman peut être observé à n'importe quelle longueur d'onde de pompe, pourvu que sa fréquence soit plus grande que le décalage Raman. En d'autres termes, étant issu du niveau fondamental et arrivant sur un niveau d'énergie virtuel, le faisceau de pompe diffuse une onde Stokes de plus petite énergie, donc de plus grande longueur d'onde, l'énergie résiduelle étant restituée sous forme d'un phonon optique d'une quantité correspondant au décalage Raman. Par exemple, le mode de vibration de la liaison CH dans l'éthanol présente un décalage Raman de  $2928 \text{ cm}^{-1}$  ou 560 THz. Ainsi, lorsqu'on excite optiquement l'éthanol à 532 nm, le premier ordre Stokes associé à ce décalage Raman se situe à 630 nm. Cet effet est a priori facile à observer et le régime stimulé en accord de phase "automatique" peut facilement être atteint.

Le mécanisme est différent pour les raies anti-Stokes puisque le système doit déjà être dans un état excité (voir Figure II-2-b). La fréquence des raies anti-Stokes est donnée par  $\omega_{as} = \omega_p + 2\pi c\sigma_R$ . En régime stimulé les raies anti-Stokes sont créés à partir d'un mélange à quatre ondes entre deux photons de pompe et un photon Stokes. Pour être efficace ce mécanisme nécessite un contrôle précis de la dispersion chromatique de la structure de guidage autour de la condition d'accord de phase  $2\vec{k}_p = \vec{k}_s + \vec{k}_{as}$  [SHEN]. Dans nos expériences il nous est arrivé d'observer des raies Raman anti-Stokes mais de façon non contrôlée. La génération de raies anti-Stokes est un vaste sujet, qui me semble d'ailleurs être

un point très intéressant à étudier dans le futur. Dans la suite du manuscrit j'évoquerai uniquement des raies Raman Stokes.

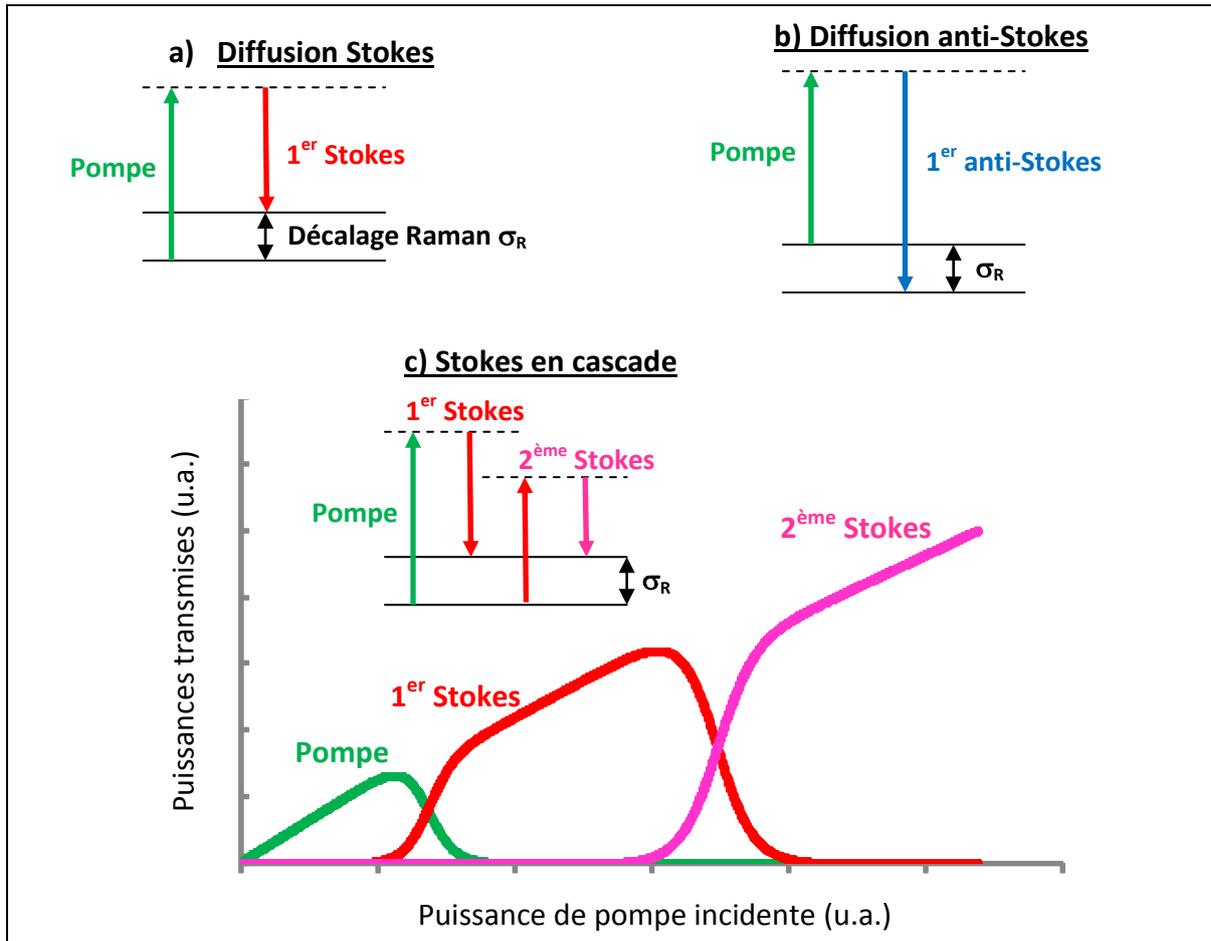


Figure II-2 – a) Diagrammes d'énergie de la diffusion Raman Stokes et b) anti-Stokes. c) Cascade d'ordres Stokes et conversion de puissance (simulation réalisée en régime continu) [A20].

### II.C.2. Diffusion Raman stimulée

Une fois générées de façon spontanée, ces raies Raman Stokes peuvent être amplifiées efficacement par diffusion Raman stimulée. En effet le battement de fréquence entre le faisceau de pompe et le faisceau Stokes correspond exactement à la fréquence de la vibration ou rotation sondée et peut donc l'entretenir et amplifier le phénomène de diffusion.

### II.C.3. Cascade Raman

Lorsque l'intensité du premier ordre Stokes devient suffisamment élevée, cet ordre Stokes peut à son tour devenir une pompe et générer le second ordre Stokes. Il est alors possible d'observer une cascade Raman d'ordres Stokes. Cette cascade Raman limite le transfert d'énergie de la pompe vers un ordre Stokes donné. L'écart en fréquence entre deux ordres Stokes successifs est constant et égal au décalage Raman. Par exemple, dans l'éthanol, en pompage à 532 nm, le second ordre Stokes est émis à 772 nm et le troisième à 995 nm.

Par exemple, on peut voir sur les simulations numériques de la Figure II-2-c que lorsque le second ordre Stokes apparaît, l'intensité du premier ordre Stokes décroît rapidement.

#### II.C.4. Spécificités des liquides

Les liquides utilisés sont transparents dans le visible aux longueurs d'onde étudiées. Les raies Raman des liquides sont discrètes et spectralement fines par rapport à la silice, typiquement de l'ordre de quelques centaines de GHz mais plus larges que celles des gaz (plutôt de l'ordre du GHz). Les décalages Raman dans les liquides peuvent s'étendre jusqu'à plus de  $3500\text{ cm}^{-1}$  ( $3600\text{ cm}^{-1}$  pour l'eau) ce qui permet d'avoir de grands décalages en longueur d'onde, de l'ordre de quelques nm à une centaine de nm dans le visible.

Pour un liquide donné, plusieurs décalages Raman sont possibles du fait de la structure complexe des molécules comme l'illustre le spectre Raman de l'éthanol en Figure II-3. Ceci donne théoriquement accès à une grande gamme de longueurs d'onde discrètes pour une seule et même source de pompe.

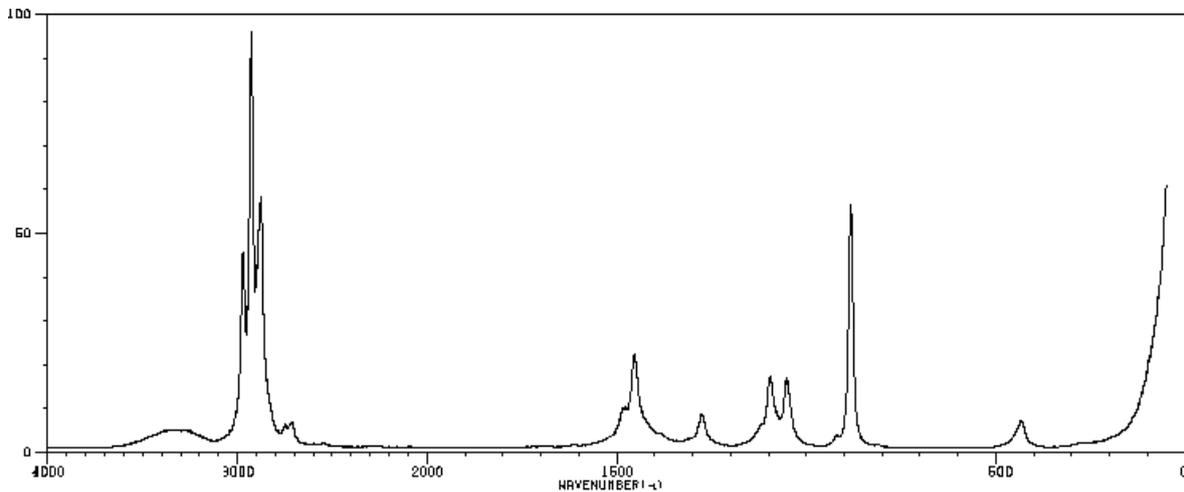


Figure II-3 – Spectre Raman de l'éthanol (en ordonnées, unité arbitraire) [SBDS].

Il est aussi possible de réaliser des mélanges de liquides pour moduler l'indice de réfraction. Côté technologique, les problèmes sont différents de ceux posés par les gaz. Avec les liquides il y a moins de problèmes de pression et d'étanchéité de la silice à gérer. Il faut néanmoins apporter une attention particulière à la compatibilité des matériaux utilisés (métaux, colles, joints), à la miscibilité des liquides lorsqu'on utilise des mélanges de liquides et aux réactions avec la lumière (formation de bulles notamment).

Les spectres Raman des liquides sont complexes, donnant accès à plusieurs raies Raman de gain Raman différent. On peut d'ores et déjà entrevoir des effets de compétition entre la raie Raman principale (celle qui a le plus fort gain Raman) et les raies Raman secondaires. Ces effets de compétition entre raies seront décrits au paragraphe II.F.1.

Nous verrons également que plusieurs effets non linéaires rétrodiffusés sont en compétition avec la diffusion Raman directe que nous souhaitons optimiser : la diffusion

Raman rétrodiffusée et la diffusion Brillouin. Ces compétitions entre effets optiques non linéaires seront décrits dans le paragraphe II.G.

Dans la démarche adoptée nous ferons tout d'abord la démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée dans une fibre microstructurée remplie d'un liquide. Ces premiers résultats présentent plusieurs limites, notamment l'émission simultanée de plusieurs ordres Stokes, et ceci dans un faisceau multimode spatial. Nous chercherons ensuite à contrôler la cascade Raman pour la stopper à l'ordre souhaité afin d'émettre à une longueur d'onde "cible" de façon efficace. Nous nous intéresserons ensuite à la gestion des autres effets non linéaires en compétition. Nous étudierons des pistes pour augmenter la puissance délivrée par ces convertisseurs de longueur d'onde.

### ***II.D. Première démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée dans un liquide en guidage par réflexion totale interne modifiée.***

Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec Sébastien Février enseignant-chercheur à XLIM (Limoges), où ont été conçues et réalisées par la technique "stack and draw" les fibres microstructurées décrites dans la suite (voir par exemple [PYSZ]). Les premiers résultats ont été obtenus lors du projet de 3<sup>ème</sup> année à l'IOGS d'Anne Rouvié et Jordy Chinaud [YIOU].

#### **II.D.1. Description de la fibre**

Les fibres étudiées sont des fibres à cœur creux avec une gaine microstructurée contenant un agencement périodique de trous d'air (voir Figure II-4-a). Aux deux extrémités de la fibre, les trous sont bouchés à l'aide d'une soudeuse à fibre optique. Les paramètres de la soudeuse sont choisis de façon à ce que le trou central se dilate jusqu'à fusionner les trous de la gaine. Ainsi il est possible de ne remplir que le trou central avec un liquide, les trous de la gaine restant remplis d'air (voir Figure II-4-b). La présence de trous d'air dans la gaine de silice permet de diminuer l'indice effectif de la gaine par rapport à celui de la silice. En jouant sur la fraction d'air, on peut ainsi jouer sur l'indice effectif de la gaine.

La fibre a été conçue de façon à ce que l'indice effectif de la gaine soit de 1,25. Ainsi, il est possible de remplir le cœur de la fibre microstructurée avec un grand nombre de liquides d'indice de réfraction supérieur à 1,25 et de conserver un guidage par réflexion totale interne, que l'on qualifiera de "modifié". Notre fibre possède une fraction d'air de 84% et un espacement entre trous de la gaine de 4  $\mu\text{m}$ . Le diamètre du cœur est de 11  $\mu\text{m}$ . Pour beaucoup de liquides, la propagation sera multimode. Par exemple, pour l'éthanol dont l'indice de réfraction est de 1,36, la fréquence normalisée  $V$  vaut 39 à la longueur d'onde de 532 nm. La fibre est ainsi très fortement multimode (380 modes !). Cet inconvénient n'est toutefois pas gênant dans un premier temps, le but étant de faire une première

démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée dans une fibre à cœur liquide puis d'étudier dans un second temps les conditions pour un guidage monomode.

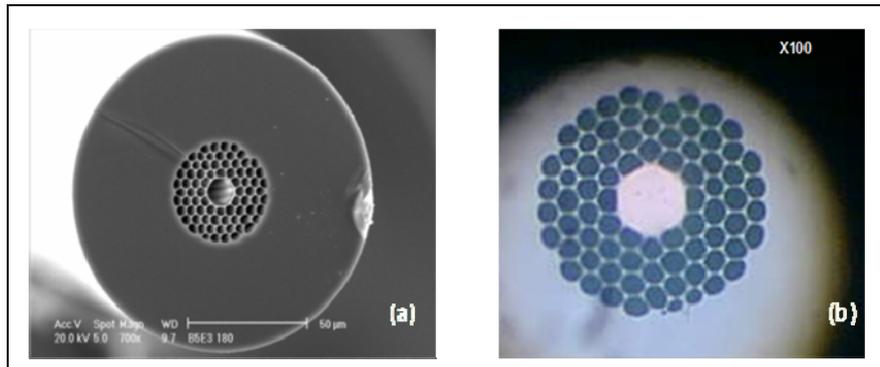
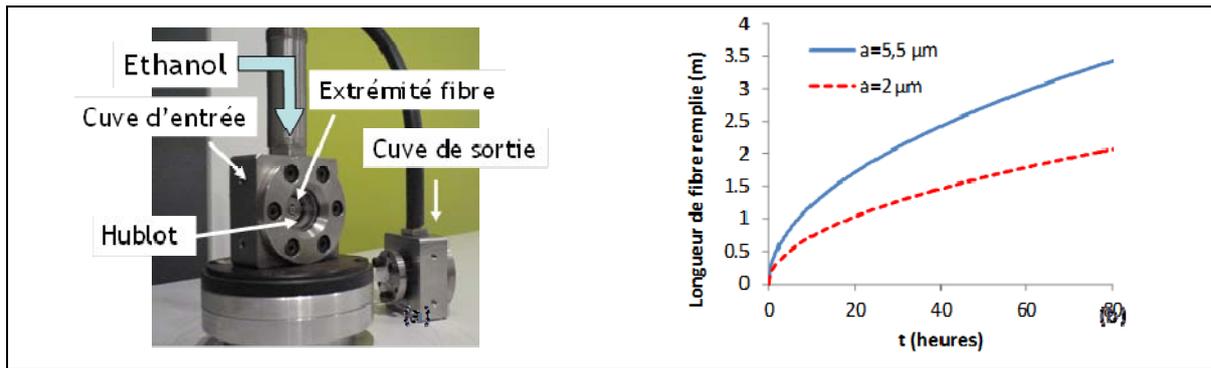


Figure II-4 – a) Image MEB de la fibre utilisée (crédit photo : Sébastien Février). b) Image au microscope optique de l'extrémité de la fibre remplie d'eau et illuminée par le dessus. Les trous de la gaine ont été fermés à l'autre extrémité, où l'eau a pu être insérée dans le cœur uniquement. On voit ici l'extrémité clivée de la fibre (crédit photo : Sébastien Février) [YIOU].

Pour les premières expériences nous avons choisi d'utiliser l'éthanol comme liquide Raman. Il s'agit d'un liquide facile à approvisionner<sup>1</sup> et à manipuler sans danger. Le décalage Raman associé à sa raie de plus fort gain se situe à  $2928\text{ cm}^{-1}$ . Lorsqu'on excite de l'éthanol à  $532\text{ nm}$ , la longueur d'onde du premier ordre Stokes est  $630\text{ nm}$  et celle du second ordre Stokes est à  $772\text{ nm}$ . L'éthanol possède une bonne transparence dans le visible à ces longueurs d'onde et commence à être légèrement absorbant autour de  $800\text{ nm}$ . Son indice de réfraction est voisin de  $1,36$  dans le visible.

Le montage initial utilise deux cuves en inox conçues à l'IOGS fermées par des hublots de verre telles que sur la Figure II-5-a. Chacune des deux extrémités de la fibre est collée dans un manchon inséré dans une cuve dont on assure l'étanchéité grâce à un joint torique. L'une des deux cuves est remplie d'éthanol. Le remplissage de la fibre se fait par capillarité et un système de piston fixé sur la cuve permet d'accélérer le processus. Nous suivons la progression du liquide en injectant un laser vert dans la fibre et en observant le déplacement de l'interface liquide/air. Une fois la fibre remplie nous remplissons la cuve de sortie. Cette technique permet de limiter les bulles d'air dans la fibre qui pourraient apporter des pertes. La durée de remplissage d'une fibre dépend de sa longueur et de la taille du cœur. La longueur de la fibre est de  $2,8\text{ m}$  et le rayon du cœur est  $5,5\text{ }\mu\text{m}$ . Comme on peut le voir sur la Figure II-5-b où nous avons simulé la longueur remplie en fonction du temps pour différents rayons de cœur [NIELSEN], deux à trois jours sont nécessaires au remplissage de notre fibre.

<sup>1</sup> Normapur, 99,8% de pureté minimum



### II.D.2. Montage expérimental

Les premières expériences ont utilisé un microlaser Nd:YAG impulsionnel émettant à 1064 nm et doublé en fréquence dans un cristal de KTP pour générer le faisceau de pompe à 532 nm. La durée des impulsions est de 560 ps, la fréquence est de 6 kHz et l'énergie maximale par impulsion est de l'ordre du  $\mu\text{J}$ . Le faisceau de pompe est injecté dans la fibre optique grâce à un objectif de microscope ( $\times 10$ , ON 0,20). L'épaisseur du hublot étant de 1 mm et la frontale de l'objectif n'étant que de quelques mm, il est important d'approcher l'extrémité de la fibre au maximum du hublot (sans le toucher!)<sup>2</sup>. En sortie de fibre, le faisceau est collecté grâce à un second objectif de microscope puis envoyé sur un réseau de diffraction.

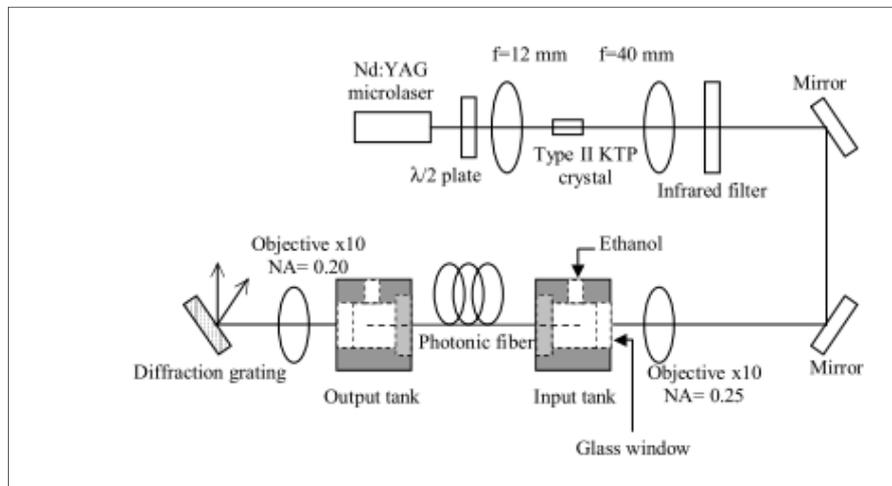


Figure II-6 – Montage expérimental pour l'observation de la diffusion Raman stimulée dans une fibre microstructurée remplie d'éthanol [YIOU].

<sup>2</sup> Pour cela on utilise les réflexions du faisceau de pompe sur le hublot et sur la fibre que l'on cherche à approcher sans toutefois les superposer grâce aux vis que l'on peut apercevoir à l'arrière de la cuve de sortie de la Figure II-5-a.

### II.D.3. Résultats expérimentaux

Nous avons observé les deux premiers ordres Stokes de l'éthanol à 630 nm et 772 nm. Le troisième ordre Stokes à 997 nm n'a jamais été observé, en raison de la trop forte absorption à cette longueur d'onde qui repousse son seuil d'apparition au-delà de la puissance de pompe disponible. La largeur spectrale de la raie à 630 nm a été mesurée à l'aide d'un spectromètre à réseau et vaut 0,237 nm, soit  $6 \text{ cm}^{-1}$  (voir Figure II-7). Cette valeur est bien plus petite que la largeur de raie Raman spontanée qui est donnée à  $17,4 \text{ cm}^{-1}$  dans la littérature [COLLES] confirmant que nous sommes bien en régime d'amplification Raman stimulée. Le faisceau présente un caractère multimodal spatial, comme on peut le voir sur la Figure II-8-b qui montre le faisceau à 630 nm projeté sur un écran blanc ("champ lointain"). L'image de la sortie de la fibre correspondante ("champ proche") montre qu'il s'agit principalement d'un mode bilobe (Figure II-8-a). Si on fait l'analogie avec deux trous d'Young séparés par une distance d'environ  $10 \mu\text{m}$ , on retrouve approximativement à la distance  $D = 10 \text{ cm}$  la figure d'interférence d'un tel système (Figure II-8-c).

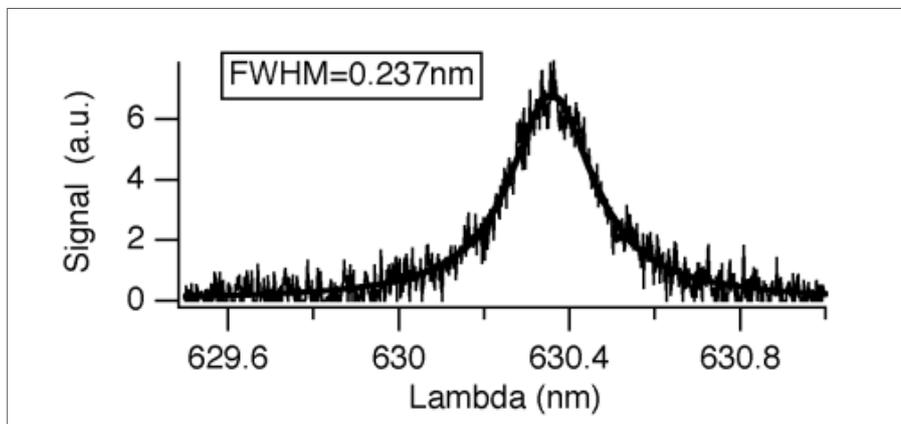


Figure II-7 - Mesure de la largeur spectrale à 630 nm. En gras, ajustement avec une Lorentzienne [YIOU].

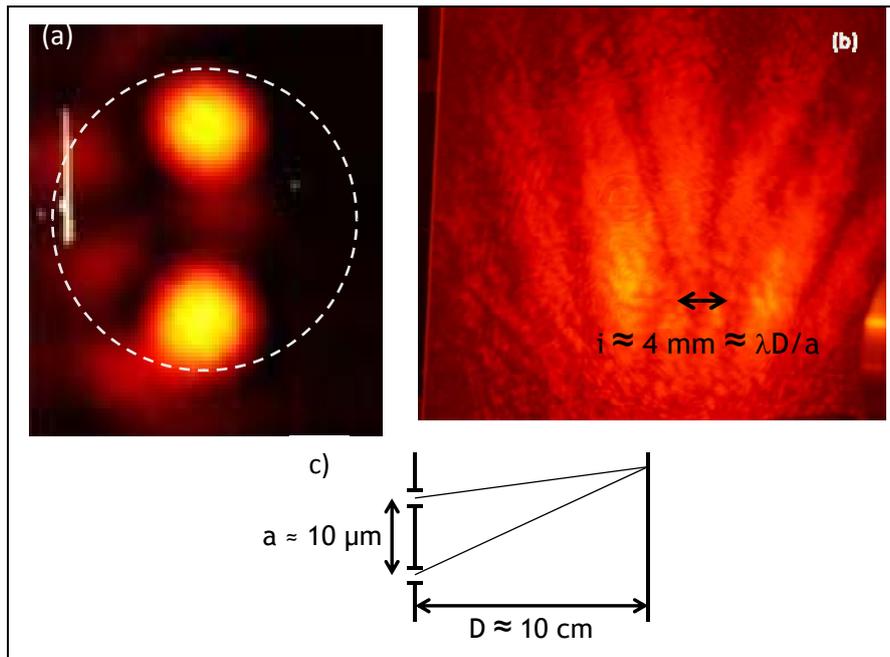


Figure II-8 – a) Champ proche à 630 nm. Le cercle pointillé représente l'emplacement du cœur de la fibre. b) Champ lointain à 630 nm visualisé sur un écran derrière un filtre coloré à 10 cm de la sortie de fibre. On observe des franges distantes d'environ 4 mm. c) Deux trous d'Young séparés de 10  $\mu\text{m}$  produisent à une distance de 10 cm un système de franges similaire au champ lointain observé.

Nous avons mesuré les énergies transmises<sup>3</sup> à 532 nm, 630 nm et 772 nm en fonction de l'énergie de pompe incidente à 532 nm en Figure II-9. L'énergie de pompe transmise augmente tout d'abord linéairement puis sature à l'apparition du premier ordre Stokes vers 0,3  $\mu\text{J}$ . De même l'énergie du premier ordre Stokes sature à l'apparition du second ordre Stokes vers 0,5  $\mu\text{J}$ .

<sup>3</sup> Sauf exception mentionnée, nous mesurons tout d'abord la puissance moyenne à l'aide d'un puissance-mètre adapté aux fréquences utilisées puis nous divisons la valeur obtenue par la fréquence des impulsions pour obtenir l'énergie par impulsion. Pour toutes les courbes de transmission de ce manuscrit, l'incertitude absolue sur les énergies est estimée à  $1 \times 10^{-2} \mu\text{J}$ .

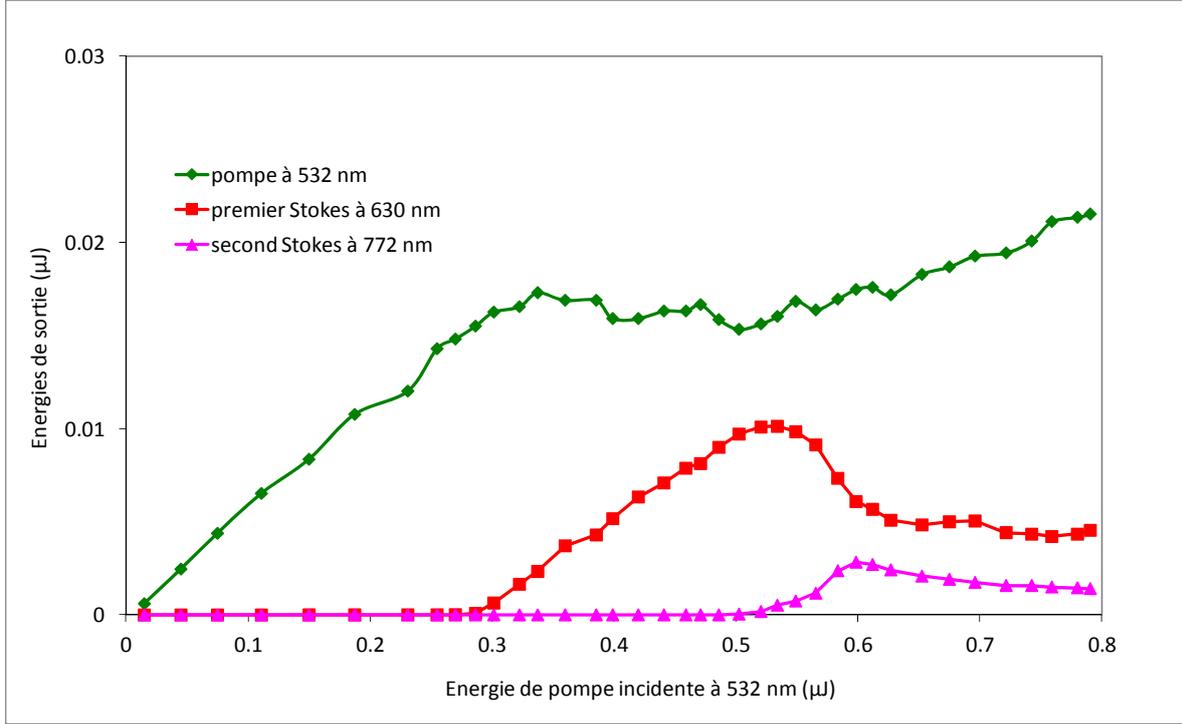


Figure II-9 – Énergies transmises à 532 nm, 630 nm et 772 nm en fonction de l'énergie de pompe incidente [YIOU].

#### II.D.4. Modélisation

Il existe deux principales catégories de méthode pour modéliser les effets non linéaires dans les fibres optiques, la résolution de l'équation de Schrödinger non linéaire, bien adaptée pour les supercontinuum, ou bien la résolution d'équations couplées, bien adaptée dans le cas de fréquences discrètes. Plusieurs degrés de raffinement de ces équations sont possibles selon les situations. Afin d'analyser nos résultats nous avons utilisé un modèle simple qui décrit la cascade Raman jusqu'au second ordre Stokes par un système de trois équations couplées sur les amplitudes des champs  $A_i$  ( $i = p$  pour la pompe,  $i = s1$  pour le premier ordre Stokes et  $i = s2$  pour le second ordre Stokes) [YIJIAN]. Nous faisons l'hypothèse d'une propagation monomode sur chacune des longueurs d'onde et les équations sont résolues en régime continu. Les trois équations couplées sont les suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{dA_p}{dz} &= -\frac{\alpha_p}{2} A_p - \frac{G_0}{2} A_p |A_{s1} + N_{s1} A_p|^2 \\ \frac{dA_{s1}}{dz} &= -\frac{\alpha_{s1}}{2} A_{s1} + \frac{G_0}{2} \frac{n_p \lambda_p}{n_{s1} \lambda_{s1}} \left( |A_p|^2 (A_{s1} + N_{s1} A_p) - A_{s1} |A_{s2} + N_{s2} A_{s1}|^2 \right) \\ \frac{dA_{s2}}{dz} &= -\frac{\alpha_{s2}}{2} A_{s2} + \frac{G_0}{2} \frac{n_p \lambda_p}{n_{s2} \lambda_{s2}} |A_{s1}|^2 (A_{s2} + N_{s2} A_{s1}) \end{aligned} \quad (\text{Eq. 1})$$

$\alpha_i$  est le coefficient d'absorption,  $n_i$  est l'indice de réfraction de l'éthanol à la longueur d'onde  $\lambda_i$ . La puissance  $P_i$  en watt est donnée par  $P_i = |A_i|^2$ .  $G_0 = \frac{g}{A_{eff}}$  où  $g$  est le coefficient de gain

Raman dont nous négligeons ici la dispersion.  $g = 0,31 \text{ cm/GW}$  pour l'éthanol.  $A_{eff}$  est l'aire effective du mode. Pour des questions de simplicité on prend dans ce modèle la même valeur de  $A_{eff}$  pour les trois modes en interaction.  $A_{eff}$  est un paramètre ajustable, qui jouera surtout sur les amplitudes maximales.  $N_{s1}$  et  $N_{s2}$  sont liés à l'amplitude de bruit Raman spontané émis dans un mode de la fibre pour les deux raies Stokes. Ces deux paramètres sont liés par la relation :  $\lambda_{s1}^2 N_{s1} = \lambda_{s2}^2 N_{s2}$ .  $N_{s1}$  est le second paramètre ajustable qui permet de contrôler la position des seuils des deux ordres Stokes. Les paramètres utilisés pour les simulations sont regroupés dans le Tableau II-2.

Longueur d'onde (nm)	Coefficient d'absorption ( $\text{cm}^{-1}$ )	Indice de réfraction
532	$1,5 \cdot 10^{-3}$	1,3637
630	$3 \cdot 10^{-3}$	1,3605
772	$15 \cdot 10^{-3}$	1,3578

Tableau II-2 - Paramètres utilisés pour les simulations. Les coefficients d'absorption ont été mesurés au spectrophotomètre dans des cuves de 2 cm de long, les indices ont été calculés à partir de la formule de Cauchy [YIOU].

Sur la courbe de la Figure II-9, avant l'apparition du premier ordre Stokes on peut estimer le taux de couplage T de la pompe dans la fibre. En prenant en compte les pertes linéiques d'absorption à 532 nm ce taux de couplage T est environ égal à 8%, ce que l'on attribue à des pertes d'insertion à l'entrée de la fibre. L'apparition du second ordre Stokes montre que nous sommes en régime de déplétion de la pompe. L'énergie de la pompe devrait donc décroître vers zéro pour les fortes énergies incidentes comme illustré sur la Figure II-2-c, ce qui n'est pas le cas.

Dans un premier temps, nous interprétons la croissance linéaire de l'énergie de pompe transmises aux fortes énergies incidentes par le couplage du faisceau de pompe gaussien sur des modes de la fibre d'ordre supérieur : certains contribuent à la diffusion Raman stimulée, d'autres restent toujours sous le seuil du Raman et se propagent donc linéairement. Il est possible d'estimer la proportion de lumière se propageant sur ces deux types de modes, les modes "linéaires" étant couplés avec un taux  $T_L$  et les modes "non linéaires" étant couplés avec un taux  $T_{NL}$ . Aux faibles énergies de pompe, on a  $T = T_L + T_{NL}$ . Aux fortes énergies de pompe, on a  $T = T_L$ . On en déduit que  $T_L$  vaut environ 3% et  $T_{NL}$  vaut environ 5%.

Nous avons ainsi résolu numériquement les équations de propagation couplées et obtenu la courbe de la Figure II-10 pour  $N_{s1} = 5 \cdot 10^{-4}$  et  $A_{eff} = 12 \mu\text{m}^2$ .

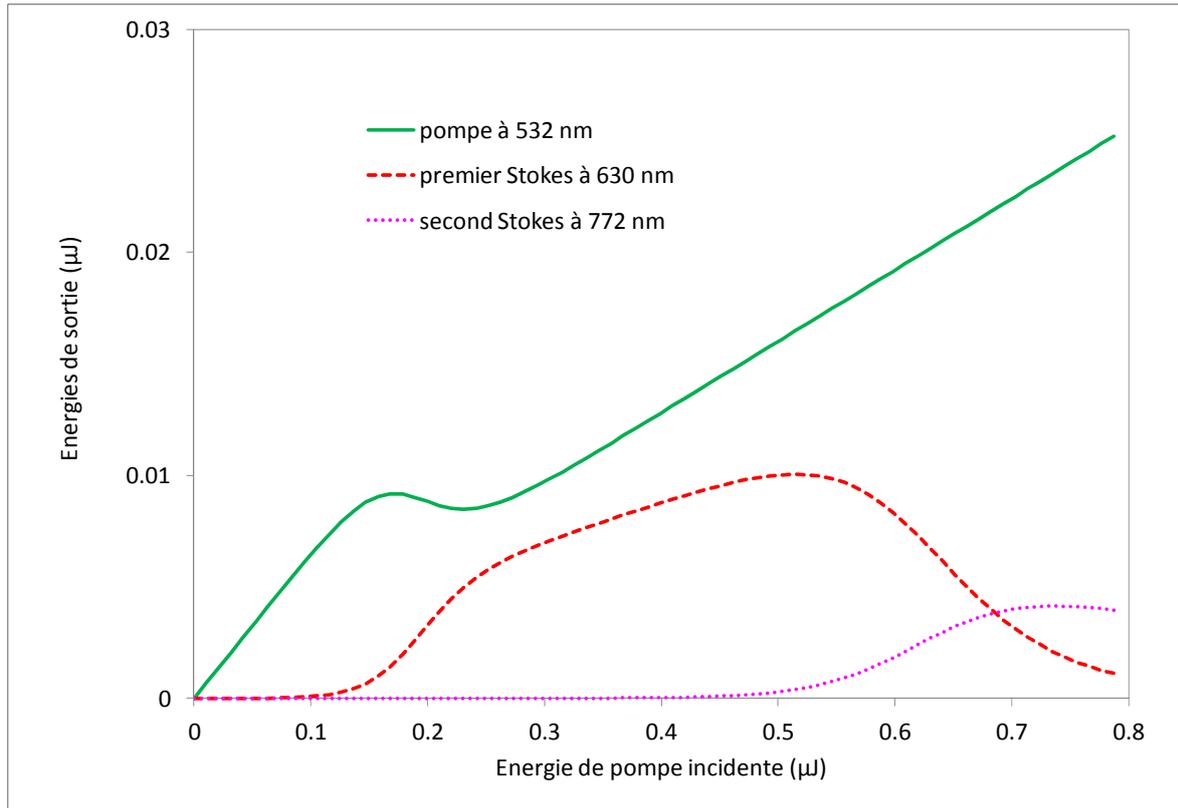


Figure II-10 – Évolution théorique des énergies transmises à 532 nm, 630 nm et 772 nm en fonction de l'énergie de pompe incidente.

Malgré sa simplicité, le modèle utilisé rend assez bien compte des résultats expérimentaux de la Figure II-9, notamment au niveau des seuils et des énergies maximales. Nous affinerons plus tard ce modèle, notamment en prenant en compte l'aspect temporel.

### II.D.5. Autres travaux

Les résultats présentés jusqu'ici sont les travaux les plus aboutis que nous avons réalisés sur ces fibres microstructurées de XLIM. D'autres liquides et d'autres fibres ont été testés. Par exemple une fibre remplie d'acétone a donné un spectre d'émission très riche comme on peut le voir sur la Figure II-11 avec, selon les conditions d'injection, soit un supercontinuum, soit une cascade Raman d'ordres Stokes et d'ordres anti-Stokes. Sur ce dernier spectre, l'origine de chaque raie (silice ou acétone) a été identifiée par sa longueur d'onde mais les mécanismes en jeu n'ont pas été précisément étudiés.

Le caractère non reproductible de ces expériences et le peu de fibres que nous avons à disposition ne nous ont malheureusement pas permis de poursuivre ces études. Ces photos illustrent la richesse des effets non linéaires que l'on peut obtenir dans ces fibres à cœur liquide et montrent qu'il y a encore beaucoup d'aspects à explorer. Des études récentes ont par exemple mis en évidence l'effet Kerr dans le champ évanescent de nanofibres baignées dans de l'acétone dans le même régime impulsif [FAN]OUX2].

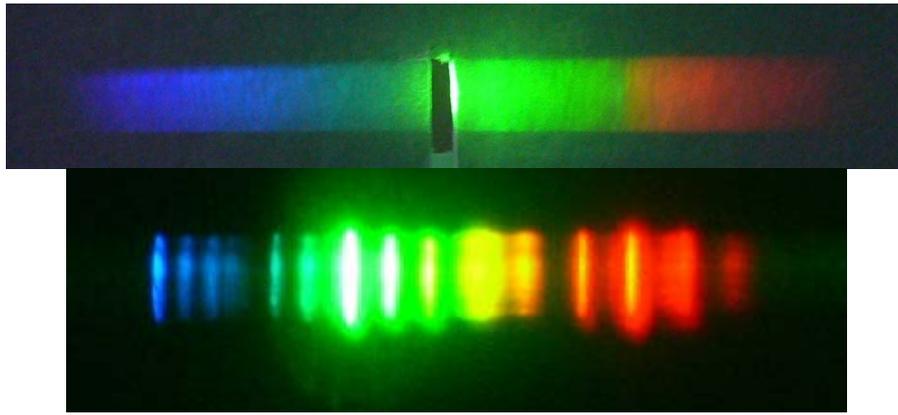


Figure II-11 - Spectres issus d'une fibre microstructurée remplie d'acétone.

Mentionnons également (surtout pour ne pas le refaire !) un mélange “explosif” avec la lumière de dichloroéthane et d'éthanol qui avait été réalisé pour obtenir un indice de réfraction permettant un guidage monomode. Nous avons ainsi rapidement pris conscience que tout changement de liquide nécessite toujours de revoir la compatibilité des colles et des joints utilisés ainsi que la réactivité avec la lumière. Pour les mélanges de liquides, il faut de plus s'assurer de leur bonne solvabilité.

#### II.D.6. Conclusions

Nous avons réalisé la première démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée dans une fibre microstructurée à cœur creux remplie d'éthanol en réflexion totale interne modifiée. Plusieurs limitations technologiques sont à noter. La manipulation de ces fibres est délicate car il ne faut pas endommager les extrémités au risque d'avoir à les boucher de nouveau.

Les cuves utilisées sont pratiques pour de premières démonstrations mais le “câblage” complet d'une fibre prend une bonne demi-journée de manipulation et le montage reste encombrant. Des efforts de miniaturisation seront menés par la suite.

Le taux de couplage de la lumière est faible, ce qui pourrait probablement être amélioré en optimisant les paramètres de la soudeuse pour boucher les trous. Toutefois, si l'on prend en compte ce faible taux de couplage, les seuils d'apparition des deux premiers ordres Stokes de l'éthanol sont relativement bas, respectivement de 14 nJ et 25 nJ (soit des puissances crête de 25 W et 45 W).

La principale limitation technique est le caractère multimodal des faisceaux émis, ce qui pose un problème d'adaptation avec des fibres optiques standard monomodes. De plus ces fibres ne permettent pas un contrôle de la cascade Raman, si bien qu'il est impossible d'extraire de grandes énergies pour un ordre Stokes donné du fait de l'atteinte rapide de la saturation. Ces deux limitations, qualité spatiale et contrôle de la cascade Raman, seront en grande partie résolues dans la suite.

## II.E. Première démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée dans un liquide en guidage par bande interdite photonique

Nos premiers travaux sur les fibres à guidage par bande interdite photonique ont débuté vers 2006 et sont relatés dans le paragraphe qui suit.

### II.E.1. Décalage de la bande de transmission

Le principe du guidage dans des fibres optiques à bande interdite photonique à cœur creux a été brièvement décrit au début du Chapitre II -. La structuration périodique de la gaine par des trous d'air crée des bandes spectrales de transmission dans lesquelles la lumière peut se propager dans le cœur de la fibre avec peu de pertes. Il est donc possible par ce mécanisme de guider la lumière dans l'air et, comme on va le voir, dans des milieux d'indice de réfraction plus petit que celui de la silice, contrairement au guidage par réflexion totale interne. Le guidage s'effectue de façon préférentielle sur le mode fondamental dont le profil est proche de celui d'un faisceau gaussien. Mais il existe d'autres modes de cœur et des modes de surface se propageant dans la première couronne de trous. Tous ces modes voient des pertes plus élevées que le mode fondamental et leur intensité décroît rapidement lors de la propagation.

Le début des années 2000 a vu la commercialisation par CrystalFiber puis NKT Photonics des premières fibres à bande interdite photonique à cœur creux dont la bande de transmission est centrée autour de quelques longueurs d'onde usuelles comme 1,5  $\mu\text{m}$ , 1,06  $\mu\text{m}$  ou 800 nm. Dans le cadre de l'approximation scalaire, Birks et al. définissent un invariant  $v$  équivalent à la fréquence réduite  $V$  dans les fibres à saut d'indice [BIRKS3]. Cet invariant  $v$  est donné par :

$$v = \frac{2\pi}{\lambda} \Lambda \sqrt{n_1^2 - n_2^2} \quad (\text{Eq. 2})$$

$\lambda$  est la longueur d'onde centrale de la bande de transmission,  $\Lambda$  est la distance entre deux trous de la gaine,  $n_1$  est l'indice de réfraction de la silice et  $n_2$  est l'indice de réfraction des trous. On voit donc que lorsque  $n_1$  et  $n_2$  sont fixes ( $n_2 = 1$  pour l'air) et que  $\Lambda$  varie, la longueur d'onde centrale  $\lambda$  varie également. Par exemple, pour  $\Lambda = 3,8 \mu\text{m}$ , on a  $\lambda = 1,55 \mu\text{m}$  et pour  $\Lambda = 2,7 \mu\text{m}$ , on a  $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ .

De la même façon, lorsque  $n_1$  et  $\Lambda$  sont fixes et que  $n_2$  varie, la longueur d'onde centrale  $\lambda$  évolue et se décale vers le bleu. On appelle  $\lambda_0$  la longueur d'onde centrale lorsque les trous sont remplis d'air. Si on remplit les trous avec un liquide d'indice  $n_2$  alors la longueur d'onde centrale  $\lambda$  devient :

$$\lambda = \lambda_0 \sqrt{\frac{n_{silice}^2 - n_2^2}{n_{silice}^2 - 1}} \quad (\text{Eq. 3})$$

Par exemple, si  $\lambda_0$  est autour de 1  $\mu\text{m}$  et qu'on remplit les trous avec de l'éthanol dont l'indice de réfraction est de 1,36, la longueur d'onde centrale de la bande de transmission est décalée autour de 530 nm. Cette loi est théoriquement valable pour de faibles contrastes d'indice

mais reste une bonne approximation pour de forts contrastes d'indice comme nous pourrions le vérifier expérimentalement, et comme cela a été fait dans [ANTONOPOULOS].

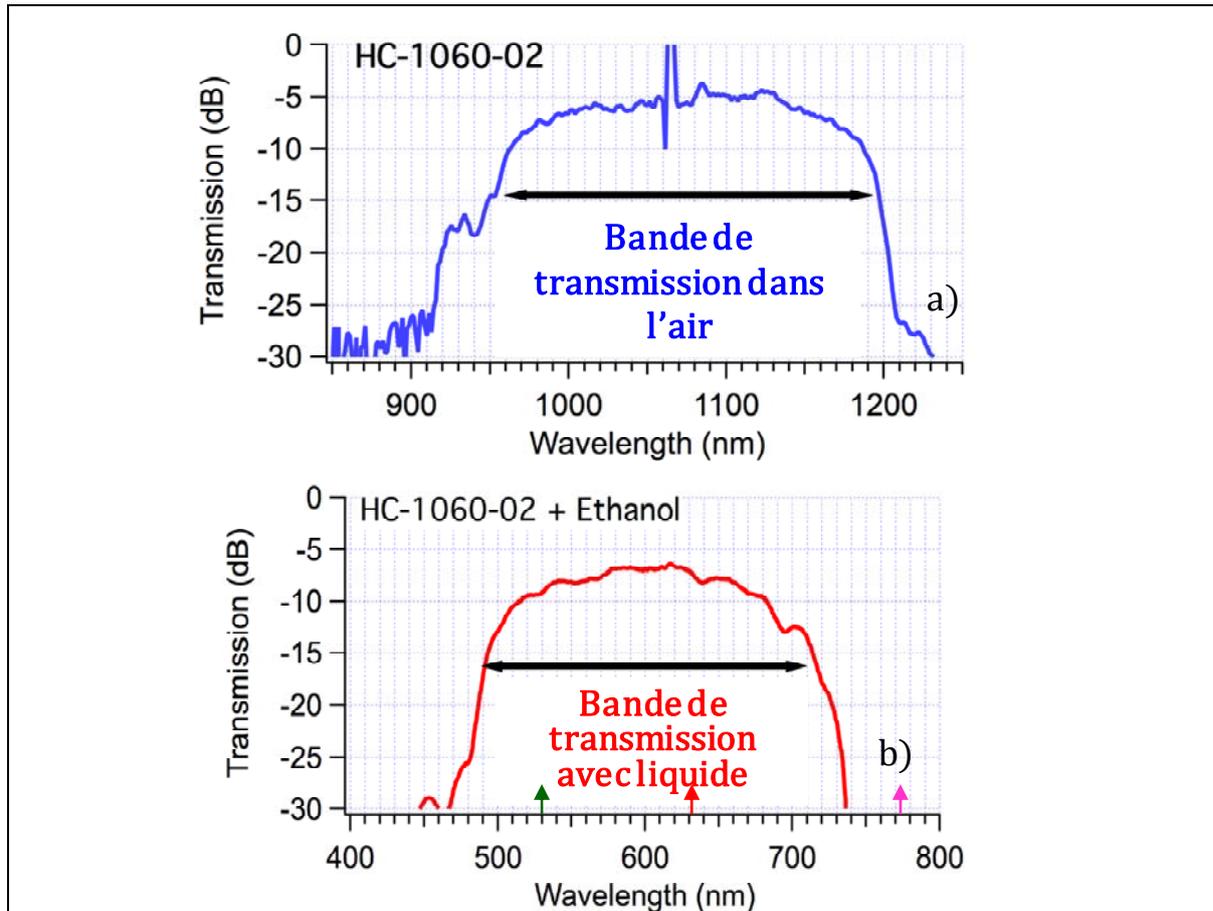


Figure II-12 – a) Bande de transmission d'une fibre HC-1060-02 remplie d'air prise à l'aide d'un supercontinuum. b) Déplacement de la bande de transmission de la même fibre remplie d'éthanol d'indice  $n = 1,36$ . Les flèches verticales de gauche à droite représentent les longueurs d'onde 532 nm, 630 nm et 772 nm [LEBRUN1].

On voit qu'il est possible de contrôler le déplacement des bandes de transmission de ces fibres en remplissant les trous d'air par un liquide d'indice de réfraction plus bas que celui de la silice. La bande de transmission joue le rôle d'un filtre spectral qui permet de transmettre avec un minimum de pertes les longueurs d'onde que l'on souhaite générer et au contraire, d'induire de fortes pertes sur les longueurs d'onde indésirables afin de retarder leur apparition. Ce principe s'applique au filtrage d'effets non linéaires. Par exemple sur la Figure II-12, les longueurs d'onde de pompe à 532 nm et du premier ordre Stokes de l'éthanol à 630 nm appartiennent à la bande de transmission décalée tandis que le second ordre Stokes à 772 nm est en dehors de la bande et subit trop de pertes pour être généré efficacement. Dans la suite nous montrerons que grâce à l'ajustement de la position des bandes de transmission avec l'indice du liquide il est possible de contrôler la cascade d'ordres Stokes en la stoppant au premier ordre puis au second ordre Stokes afin d'atteindre une longueur d'onde "cible". Nous montrerons également qu'il est possible de sélectionner des raies qui sont en compétition avec la raie Raman principale, ce qui multiplie le nombre de longueurs d'onde que l'on peut atteindre à partir d'un seul liquide Raman.

## II.E.2. Montage de mesures des bandes de transmission

Au cours des expériences, nous avons mis au point un montage et un protocole de mesure de bandes de transmission afin de rendre ces mesures, qui sont indispensables, propres et systématiques. Le montage actuel est représenté en Figure II-13.

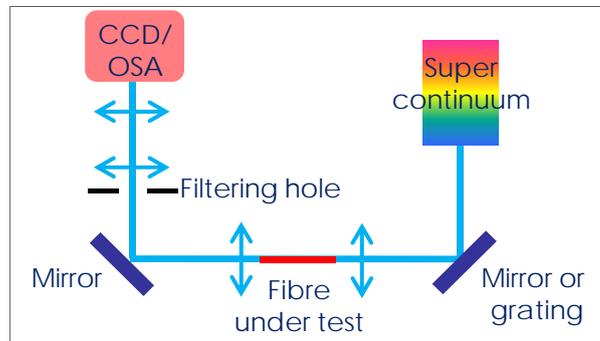


Figure II-13 – Montage de mesure de la bande de transmission des fibres à bande interdite photonique.

Nous injectons à l'aide d'un objectif de microscope une source laser supercontinuum (Leukos, SP-20-OEM) dans la fibre testée via un miroir lorsqu'on souhaite faire un spectre complet ou via un réseau de diffraction lorsqu'on s'intéresse à une seule longueur d'onde. En sortie de fibre, le faisceau est collecté par un second objectif de microscope et on image de la sortie de la fibre sur une caméra CCD. Un trou de filtrage permet de sélectionner la lumière provenant uniquement du cœur. Cette lumière est envoyée soit sur un analyseur de spectre optique (OSA) pour la mesure de la bande de transmission soit sur la caméra CCD pour imager les modes en sortie de fibre.

Nous mesurons tout d'abord le spectre de la fibre vide puis nous remplissons un petit tronçon de fibre de quelques cm de long avec le liquide souhaité. Le tronçon est placé dans une grosse cuve remplie du liquide afin de s'affranchir des effets de lentille aux extrémités de la fibre. Nous mesurons le spectre transmis par ce tronçon. Cette mesure permet de vérifier que la bande de transmission s'est globalement bien décalée avant de remplir la fibre entière dont la longueur est d'environ un mètre.

Le spectre du tronçon est souvent plus large que celui de la fibre entière car les modes d'ordre supérieur ne sont pas encore totalement filtrés. Un ajustement fin de l'indice de réfraction du liquide par l'utilisation de mélanges est parfois nécessaire pour positionner de façon optimale les bords de bande, comme on le verra plus loin.

## II.E.3. Convertisseur 532 nm vers 630 nm

### II.E.3.a) Conception du premier convertisseur

Notre but dans cette partie est de démontrer qu'il est possible de stopper la cascade Raman au premier ordre Stokes en utilisant la bande de transmission d'une fibre à bande interdite photonique à cœur creux. Pour cela nous utilisons un alcool, l'éthanol, qui est un liquide bas indice, facile d'emploi et (surtout) non toxique, avec un gain Raman convenable. Le premier

ordre Stokes de l'éthanol de la raie Raman principale à  $2928\text{ cm}^{-1}$  permet d'atteindre la longueur d'onde de  $630\text{ nm}$ .

Nous réalisons donc un convertisseur Raman pompé à  $532\text{ nm}$  et émettant à  $630\text{ nm}$  transférant un maximum d'énergie à cette longueur d'onde. Stopper la cascade Raman à ce premier ordre Stokes nécessite de mettre des pertes importantes sur la longueur d'onde du second ordre Stokes à  $772\text{ nm}$  en plaçant cette dernière en dehors de la bande de transmission.

Nous avons choisi d'utiliser la fibre HC-PCF 1060-02 commercialisée par NKT Photonics [NKT]. La longueur de ce premier convertisseur est de  $1,14\text{ m}$ . Le diamètre du cœur est de  $9,7\text{ }\mu\text{m}$ , la fraction d'air dans la gaine est supérieure à  $90\%$ . La mesure de la bande de transmission de cette fibre vide est donnée en Figure II-12-a.

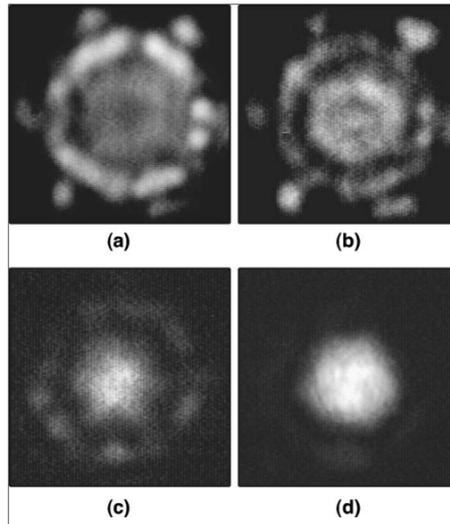
Après remplissage de la fibre par l'éthanol d'indice  $1,36$ , la bande de transmission se décale vers le bleu (Figure II-12-b). Une fois rempli, le convertisseur est placé dans un montage similaire à celui de la Figure II-6. Nous avons ajouté en sortie de fibre un système d'imagerie associé à des filtres colorés permettant de visualiser le champ proche de la fibre à différentes longueurs d'onde.

### II.E.3.b) Résultats

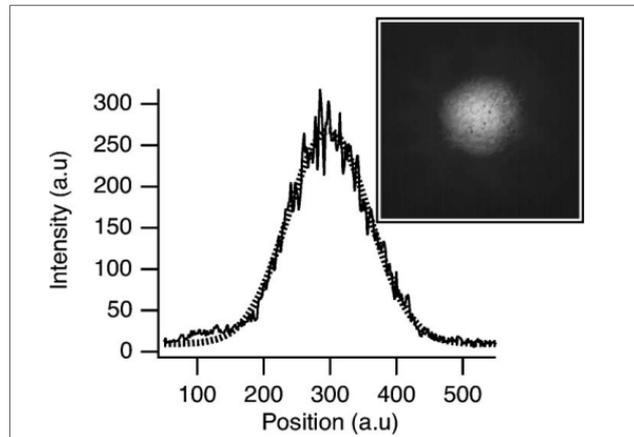
#### (1) Étude modale

Le champ proche de la fibre a été mesuré à  $532\text{ nm}$  et  $630\text{ nm}$  en utilisant tout d'abord une lampe blanche à large spectre permettant d'exciter tous les modes de la fibre (Figure II-14-a et Figure II-14-b). Le faisceau transmis présente une allure multimodale avec un cœur hexagonal et une structure en "pétale" typique de ces fibres, due aux motifs périodiques de la gaine [ANTONOPOULOS].

Lorsque nous injectons le faisceau de pompe, nous observons le premier ordre Stokes de l'éthanol et observons de nouveau les champs proches à  $532\text{ nm}$  et  $630\text{ nm}$ . La structure modale de la pompe ressemble beaucoup à celle excitée en lumière blanche, avec un profil plus proche de celui d'une gaussienne, ce que nous attribuons à un meilleur recouvrement du faisceau de pompe avec les modes de la fibre (Figure II-14-c). La structure modale du premier ordre Stokes est en revanche quasi-gaussienne avec très peu de lumière dans la couronne de "pétales" (Figure II-14-d). Cette structure spatiale se retrouve en champ lointain (Figure II-15). Cette meilleure qualité spatiale est due à l'origine non linéaire de la raie Stokes, favorisée par la partie gaussienne du mode de pompe de densité de puissance élevée au centre et présentant donc plus de gain. La non-linéarité Raman "nettoie" en quelque sorte le faisceau. La largeur du mode à mi-hauteur du profil d'intensité est de  $4\text{ }\mu\text{m}$  à  $532\text{ nm}$  et  $630\text{ nm}$ , plus petite que le diamètre du trou central ( $9,7\text{ }\mu\text{m}$ ). L'ouverture numérique du convertisseur est mesurée à environ  $0,1$ .



*Figure II-14 – Champ proche en sortie de convertisseur obtenu avec une lampe blanche et (a) un filtre vert (b) un filtre rouge. (c) Champ proche du faisceau de pompe à 532 nm et (d) du premier ordre Stokes à 630 nm [LEBRUN2].*



*Figure II-15 - Profil d'intensité en champ lointain du premier ordre Stokes à 630 nm. Ajustement par une gaussienne [LEBRUN2].*

## (2) Énergies transmises

Nous avons relevé en Figure II-16 les énergies transmises par les différentes longueurs d'onde en fonction de l'énergie de pompe incidente.

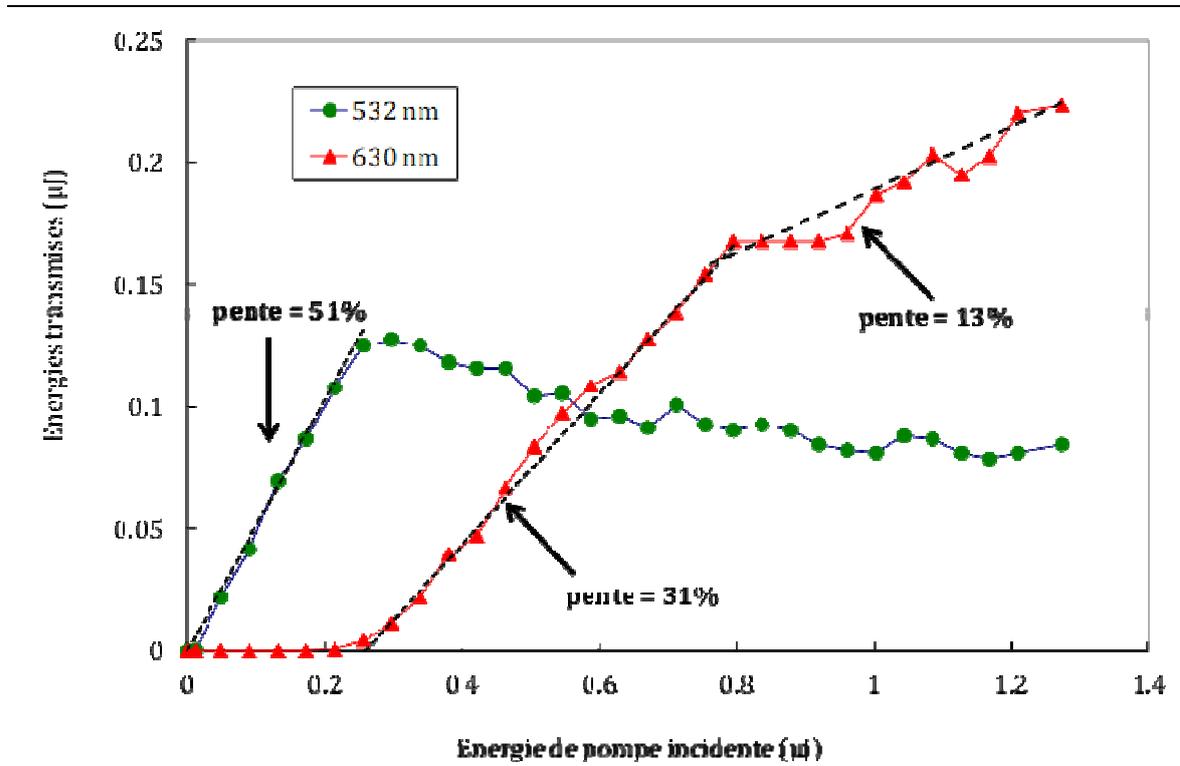


Figure II-16 – Énergies transmises à 532 nm et 630 nm par la fibre HC-1060-02 remplie d'éthanol en fonction de l'énergie de pompe incidente [LEBRUN2].

Avant l'apparition du premier ordre Stokes (vers 250 nJ), l'énergie de la pompe transmise évolue linéairement avec une transmission de 51%. Lorsque le premier ordre Stokes apparaît, la pompe commence à se dépeupler et l'énergie du premier ordre Stokes croît, tout d'abord avec une pente de 31% puis avec une pente de 13% lorsque le régime de conversion est atteint.

À ce stade, il est important de noter qu'il n'y a pas de saturation de la conversion Raman contrairement à ce que nous avons obtenu avec la fibre microstructurée en guidage par réflexion totale interne modifiée (Figure II-9) : le second ordre Stokes apparaissait alors à une énergie incidente double de celle nécessaire à l'apparition du premier ordre Stokes. Ici, à cinq fois l'énergie d'apparition du premier ordre Stokes, nous n'observons toujours pas de second ordre Stokes : comme prévu, le filtrage par la bande de transmission de la fibre retarde l'apparition du second ordre Stokes et permet un bon transfert des photons de pompe vers les photons du premier ordre Stokes aux énergies élevées.

En comparant la pente du premier ordre Stokes transmis en régime de conversion (13%) à la pente de la pompe transmise avant l'apparition du Raman (51%), on estime un taux de conversion interne de 25% en énergie (soit 30% en nombre de photons). Même si ce taux est assez élevé pour une première démonstration, les performances seront améliorées dans la suite par le choix d'une fibre plus courte et l'optimisation de l'injection du faisceau de pompe.

### (3) Spectre

Afin de confirmer l'absence du second ordre Stokes à 772 nm aux hautes énergies de pompe, nous avons envoyé le faisceau de sortie du convertisseur sur un analyseur de spectre optique. Dans un premier temps nous n'avons observé que les raies de la pompe et du premier ordre Stokes. À l'énergie de pompe maximale, nous avons observé l'apparition d'une raie à 667 nm, qui correspond au premier ordre Stokes de la raie secondaire de l'éthanol à 883  $\text{cm}^{-1}$ , pompée par le premier ordre Stokes de la raie principale à 2928  $\text{cm}^{-1}$  (Figure II-17). Habituellement cette raie Raman secondaire possède un gain trop faible pour pouvoir être générée efficacement, au profit de la raie Raman principale. Dans le cas présent, le filtrage par la bande de transmission de la fibre permet de l'observer car l'inégalité suivante est satisfaite :

$$(\text{gain de la raie à } 883 \text{ cm}^{-1} - \text{pertes})_{\text{à } 667 \text{ nm}} > (\text{gain de la raie à } 2928 \text{ cm}^{-1} - \text{pertes})_{\text{à } 772 \text{ nm}}.$$

Nous détaillerons ces effets de compétition entre les raies au paragraphe II.F.1.

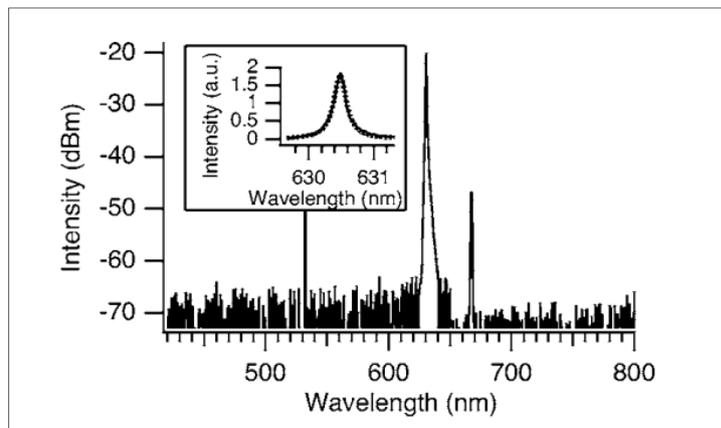


Figure II-17 – Spectre transmis par la fibre HC-1060-02 remplie d'éthanol à énergie de pompe maximale. En insert, profil de la raie à 630 nm, montrant une largeur à mi-hauteur de 0,21 nm [LEBRUN2].

#### II.E.3.c) Études complémentaires sur le convertisseur 532 nm → 630 nm

Après cette première démonstration de principe nous avons réalisé des études complémentaires sur le convertisseur 532 nm → 630 nm. Les études que je présente dans la suite ont été réalisées lors de l'année d'ATER de Christelle Buy (2008-2009).

##### (1) Effet de la longueur

Augmenter la longueur de la fibre permet de diminuer le seuil Raman et d'aller plus haut en énergie dans le régime de conversion. Le remplissage de plusieurs mètres de fibre peut cependant être très long (et très onéreux étant donné le prix de ces fibres). Il est aussi intéressant d'exploiter pleinement le régime de saturation en utilisant des fibres plus courtes. Dans cet objectif nous avons conçu une nouvelle cuve permettant de réaliser des tests "faciles" sur le plan expérimental (voir Figure II-18). Comme on peut le voir sur cette phot, cette cuve de test permet un accès facile aux extrémités de la fibre et nous affranchit de la longue étape de câblage.

Une extrémité de la fibre est immergée dans la cuve entièrement remplie d'éthanol puis lorsqu'elle est remplie – par capillarité – la fibre est enroulée et totalement immergée dans la

cuve. Les rayons de courbure sont suffisamment grands pour ne pas introduire de pertes notables dans le taux de couplage. Nous avons utilisé cette cuve pour tester des fibres courtes, allant d'une dizaine à une quarantaine de cm de longueur. Il est beaucoup plus aisé d'y cliver les extrémités de la fibre, la qualité du clivage étant un point-cléf pour une bonne injection. L'inconvénient est que la gaine de protection s'imbibe progressivement d'éthanol et peut se détacher, polluant ainsi le liquide. Le couplage et la collection de la lumière sont effectués à travers deux hublots de verre sur l'enceinte de la cuve.

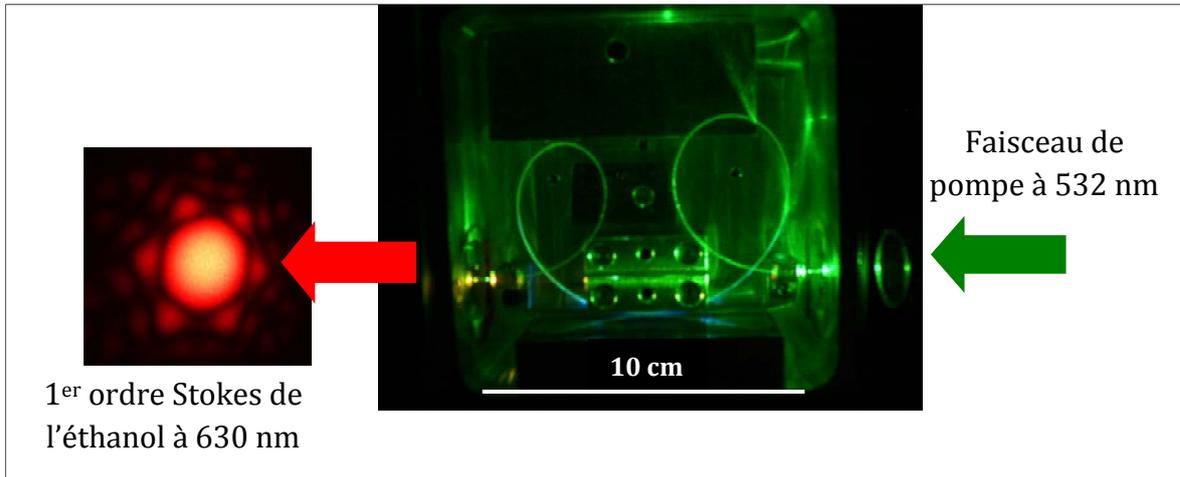


Figure II-18 – Vue de haut d'un convertisseur Raman placé dans une cuve en inox remplie d'éthanol en pompage à 532 nm, fermée sur les côtés par deux hublots de verre permettant le couplage de la lumière dans la fibre. Une plaque de verre posée sur la cuve permet de limiter l'évaporation du liquide et son retrait facile permet de cliver facilement les extrémités de la fibre. À gauche, on voit la structure spatiale du 1<sup>er</sup> ordre Stokes de l'éthanol en sortie de cuve. Au niveau du plus grand rayon de courbure on observe de la lumière bleue diffusée par la fibre, dont la longueur d'onde correspond au premier anti-Stokes de l'éthanol.

Nous avons optimisé le taux de couplage du faisceau de pompe dans le convertisseur en testant plusieurs objectifs de microscope dont l'ouverture numérique est voisine de celle du convertisseur, soit 0,1. Nous avons choisi d'utiliser un objectif  $\times 4$  d'ouverture numérique 0,14 donnant un taux de couplage de 77%, bien meilleur que celui obtenu précédemment avec l'objectif  $\times 10$  d'ouverture numérique 0,2 (50%). L'atténuation de la fibre vide à 1060 nm étant inférieure à 0,1 dB/m, nous pensons que ce taux est majoritairement limité par des pertes d'insertion et par un recouvrement non optimal entre le mode gaussien de pompe et le mode fondamental de la fibre.

Nous avons donc testé des longueurs de fibre courtes (une dizaine de cm à une quarantaine de cm).

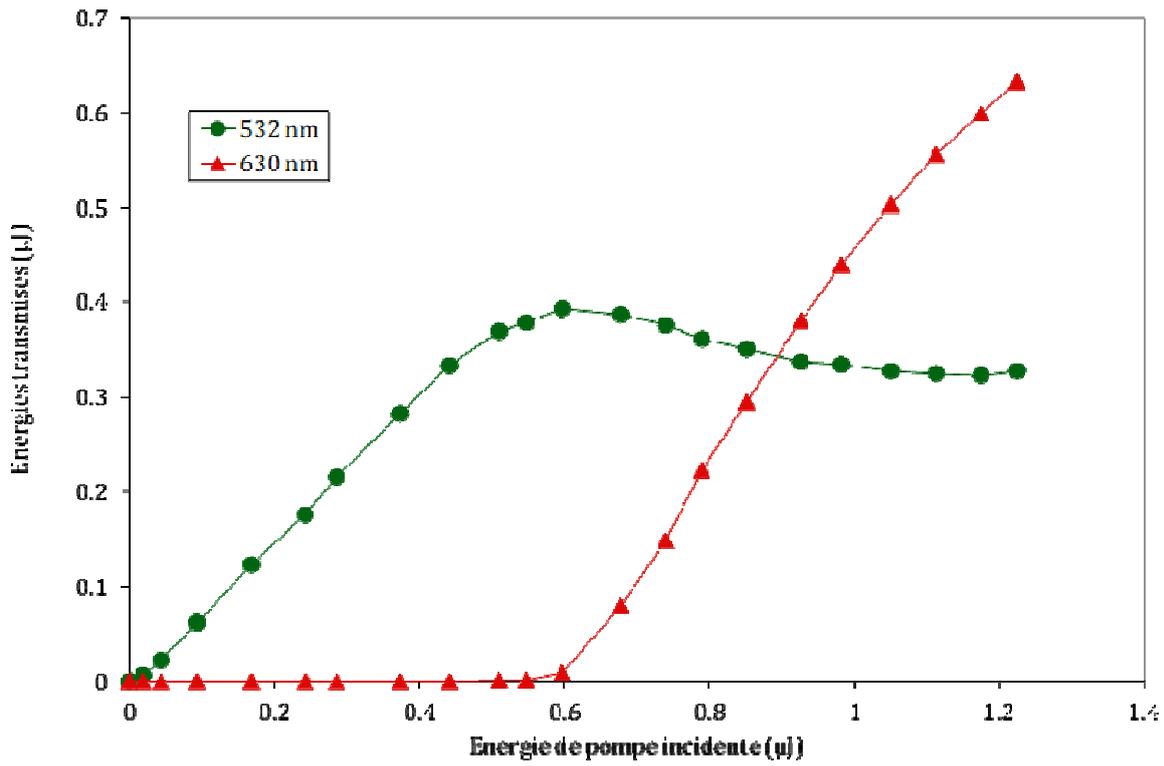


Figure II-19 – Énergies transmises à 532 nm et 630 nm par une fibre HC-1060-02 remplie d'éthanol de 35 cm de long [LEBRUN3].

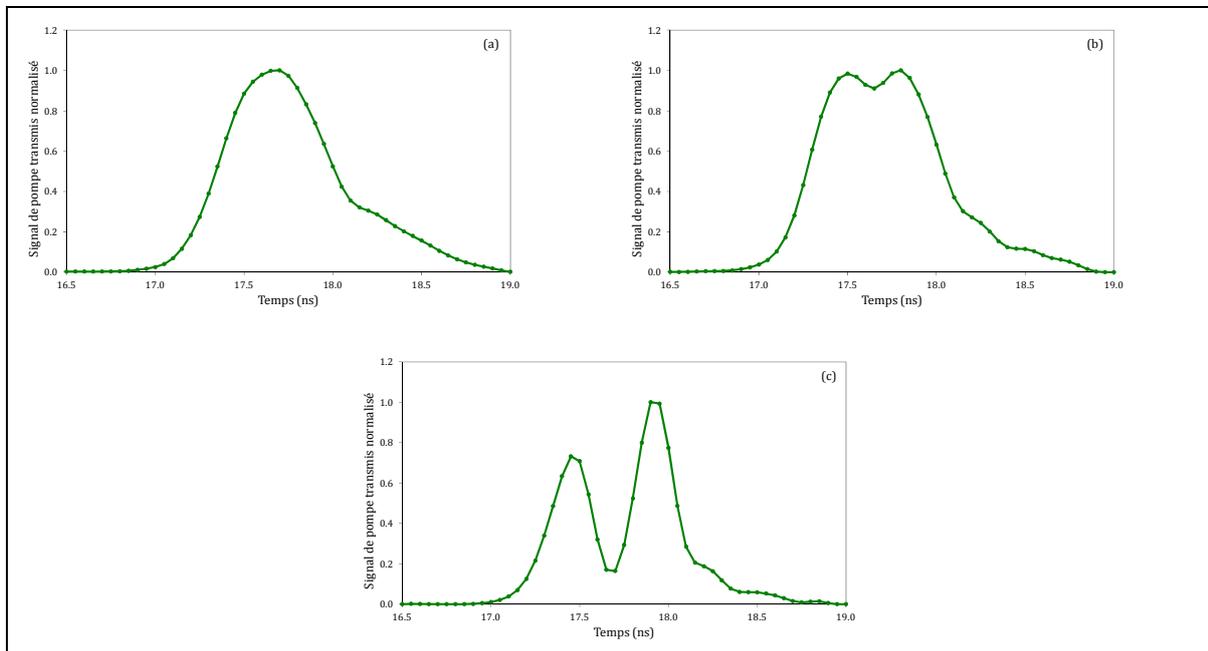


Figure II-20 – Profil temporel de la pompe transmise a) sous le seuil Raman, à une énergie de pompe incidente de  $0,3 \mu$ J. b) au seuil Raman, à une énergie de pompe incidente de  $0,6 \mu$ J. c) à énergie de pompe incidente maximale de  $1,22 \mu$ J [LEBRUN3].

Nous vérifions expérimentalement que lorsque la longueur de fibre diminue le seuil Raman est plus haut. En première approximation, pour une fibre de longueur  $L$ , le seuil Raman est  $n$  fois plus haut que pour une fibre de longueur  $n \times L$ . Le régime de conversion est atteint pour des énergies plus hautes, plaçant le régime de déplétion de la pompe à des énergies incidentes plus élevées, permettant donc d'extraire de plus fortes énergies.

Nous présentons en Figure II-19 une courbe de transmission obtenue avec une fibre HC-PCF 1060-02 remplie d'éthanol et dont la longueur est de 35 cm. Le premier ordre Stokes apparaît pour une énergie de pompe incidente de 0,6  $\mu$ J. Sous cette énergie, la pompe est transmise linéairement avec une pente de 77%, correspondant au taux de couplage. À l'apparition du premier ordre Stokes la pompe transmise sature et le premier ordre Stokes croît jusqu'à atteindre une énergie de 0,63  $\mu$ J pour une énergie de pompe incidente maximale de 1,22  $\mu$ J. Cette énergie est 2,4 fois supérieure à l'énergie d'apparition du premier ordre Stokes. Le rendement énergétique interne (énergie du premier ordre Stokes / énergie de pompe injectée) est de 67%, soit 79% de rendement photonique, bien meilleur que celui de nos premières expériences lors desquelles où nous obtenions un rendement énergétique de 25%. Nous avons observé le spectre d'émission à puissance maximale, qui confirme bien l'absence d'émission du second ordre Stokes à 772 nm.

### (2) Autres effets non linéaires

La longueur d'interaction dans la direction contrepropageante est estimée à  $\frac{c\Delta t}{2n}$ , où  $\Delta t = 660$  ps est la largeur à mi-hauteur de la durée de l'impulsion et  $n=1,36$  est l'indice de réfraction de l'éthanol. Cette longueur vaut environ 13 cm et est comparable à la longueur de notre fibre. Nous avons donc vérifié si des effets non linéaires rétrodiffusés limitaient notre rendement de conversion. Au-delà de 1,2  $\mu$ J d'énergie incidente, nous avons observé dans la direction contrepropageante l'apparition d'un faisceau à 630 nm correspondant à de la diffusion Raman ainsi qu'un signal à 532 nm évoluant de façon non linéaire, attribué à de la diffusion Brillouin. Ces deux signaux étaient de très faible amplitude (de plusieurs ordres de grandeur inférieurs à l'énergie incidente). Notons également qu'à ces hautes énergies, nous avons observé l'apparition du premier anti-Stokes de l'éthanol à 460 nm comme on peut le voir en Figure II-18 (ceci a été confirmé par une mesure à l'OSA), alors que cette longueur d'onde est voisine du bord bas de la bande de transmission et voit donc des pertes importantes, montrant bien l'efficacité de notre convertisseur. En conclusion, pour cette longueur de fibre commencent à apparaître des effets non linéaires en compétition avec la diffusion Raman stimulée rétrodiffusée pour les plus fortes énergies de pompe, qui restent toutefois très en-deçà du seuil.

### (3) Études temporelles

Les profils temporels de la pompe transmise à 532 nm ont été mesurés à l'aide d'une photodiode rapide en fonction de la puissance de pompe incidente (Figure II-20). L'impulsion commence à se creuser en son centre à l'apparition du premier ordre Stokes (Figure II-20-b). En augmentant l'énergie de pompe incidente, le creux s'accroît et l'impulsion de pompe se dépeuple mais les "ailes" restent toujours sous le seuil d'apparition du premier ordre Stokes

(Figure II-20-c). L'impulsion de pompe n'est donc jamais totalement dépeuplée même pour de plus fortes énergies. Nous avons simulé de façon qualitative l'évolution des énergies transmises en fonction de l'énergie de pompe incidente en résolvant le système d'équations couplées ci-dessous [BLOEMBERGEN]. Nous ne considérons que le premier ordre Stokes, comme confirmé expérimentalement.

$$\begin{cases} \frac{dN_P}{dz} = -\alpha_P N_P - k N_P (N_S + 1) \\ \frac{dN_S}{dz} = -\alpha_S N_S + k N_P (N_S + 1) \end{cases} \quad (\text{Eq. 4})$$

où  $k = \frac{g_R}{A_{eff}}$  avec  $g_R = 0,31 \text{ cm/GW}$  le coefficient de gain Raman de l'éthanol et  $A_{eff}$  l'aire effective d'interaction.  $N_P$  et  $N_S$  sont respectivement les flux de photons de la pompe et du Stokes.

Le profil temporel de l'impulsion Stokes à 630 nm a également été mesuré. Comme attendu, sa forme épouse le creux de l'impulsion de pompe. À énergie incidente maximale, sa largeur à mi-hauteur est d'environ 400 ps.

La principale différence avec le modèle précédent (voir paragraphe II.D.4) est l'introduction du photon d'émission spontané par le terme +1 à droite des signes d'égalité, point de départ du régime stimulé. Nous nous affranchissons ainsi du paramètre ajustable lié à la puissance de bruit du Raman spontané  $N_{S1}$ . L'aire effective d'interaction se définit comme le recouvrement des profils d'intensité des faisceaux Stokes et pompe. Comme nous l'avons souligné au paragraphe (1), le premier ordre Stokes possède une structure spatiale quasi-gaussienne du fait de son origine non linéaire, quelle que soit l'énergie incidente. En revanche le faisceau de pompe transmis est spatialement légèrement multimode. De plus au-dessus du seuil d'apparition du Raman, ce faisceau se dégrade spatialement car il est en partie dépeuplé par le premier ordre Stokes. Il est donc difficile d'établir une expression mathématique pour son profil spatial et par conséquent d'évaluer  $A_{eff}$ . Le but de ces simulations étant de mettre en évidence de façon qualitative l'influence du profil temporel de la pompe, j'ai choisi de garder l'aire effective  $A_{eff}$  comme seul paramètre ajustable des simulations.

Nous modélisons l'impulsion de pompe incidente par une gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est de 660 ps, correspondant à la mesure expérimentale. L'impulsion est discrétisée et nous calculons en chaque point de l'impulsion les puissances de pompe et Stokes transmises en résolvant le système d'équations couplées. Nous reconstituons ensuite en sortie de fibre les profils temporels des impulsions de pompe et Stokes transmises, la durée de l'impulsion étant bien supérieure au temps de réponse du Raman. Nous traçons ensuite les énergies transmises par impulsion en fonction de l'énergie de pompe incidente. La Figure II-21 montre le résultat de ces simulations ( $L = 35 \text{ cm}$ ,  $A_{eff} = 6,5 \mu\text{m}^2$ ).

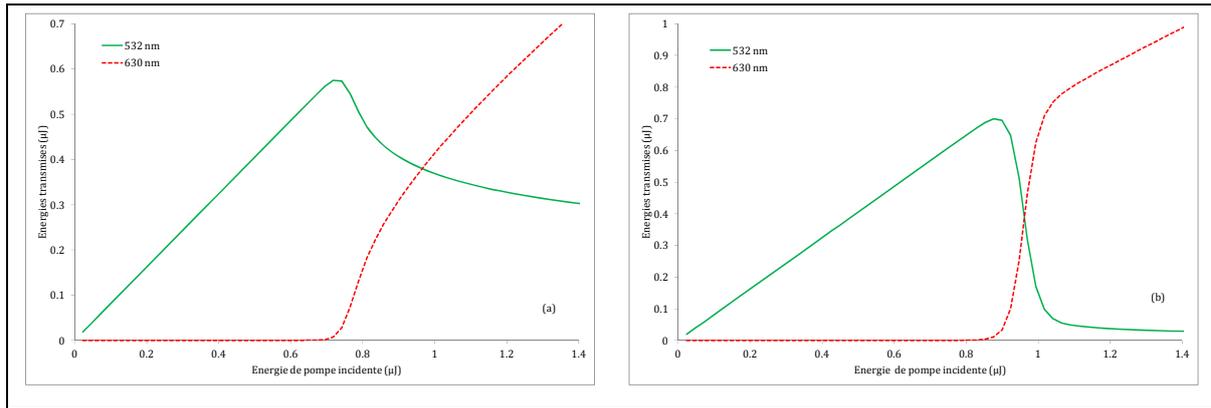


Figure II-21 - Évolution théorique des énergies de pompe et Stokes transmises en fonction de l'énergie de pompe incidente a) pour un profil temporel d'impulsion gaussien. b) pour un profil temporel d'impulsion supergaussien (super Gaussienne d'ordre 20, de 700 ps de largeur à mi-hauteur, de même énergie et de même puissance crête que la Gaussienne) [LEBRUN3].

Nous observons que l'énergie de pompe transmise décroît lentement après l'apparition du premier ordre Stokes et ne retombe pas à zéro (Figure II-21-a). L'évolution de l'énergie des différentes raies transmises est en bon accord qualitatif avec les données expérimentales. Nous avons également calculé pour comparaison l'évolution des énergies transmises en fonction de l'énergie de pompe incidente pour une impulsion dont le profil temporel serait supergaussien afin de simuler une impulsion rectangulaire (Figure II-21-b). Comme attendu, l'énergie de pompe transmise retombe rapidement à zéro après l'apparition du premier ordre Stokes et la pompe est quasiment entièrement dépeuplée, occasionnant un plus fort rendement de conversion. Nous concluons que la principale limitation au rendement de conversion de notre système est le profil temporel de l'impulsion.

#### (4) Étude de stabilité en énergie

Pour compléter la caractérisation de ce convertisseur, nous avons mesuré la stabilité en énergie du faisceau émis à 630 nm à énergie de pompe maximale. Les stabilités à court (1 seconde) et moyen termes (1 heure) sont de 1,7% rms, ce qui correspond à la stabilité de notre pompe. Le convertisseur n'introduit donc pas d'instabilités significatives d'énergie sur ces durées. Bien sûr, même si cette stabilité est encourageante, il sera nécessaire d'effectuer des mesures sur des plus longues durées si des applications industrielles sont visées.

## II.F. Mélanges de liquides pour l'adaptation des bandes de transmission

Les résultats présentés dans le paragraphe précédent ont été obtenus en utilisant une cuve qui permet de cliver facilement les extrémités de la fibre afin d'améliorer l'injection lorsqu'une poussière s'y est déposée, de changer facilement la fibre lorsqu'on repère un point de diffusion dû à un défaut le long de la fibre et de faire des tests rapides. Cette méthode a évidemment des limites si l'on souhaite réaliser des composants fibrés manipulables et transportables.

Nous avons étudié la possibilité de fermer les extrémités de la fibre, une fois remplie, et proposons une solution détaillée au paragraphe III.A. Cette solution ne permet pas de cliver les extrémités de la fibre une fois câblée ni de modifier sa longueur. De plus, pour des questions de sécurité, le nombre de liquides que nous utilisons est restreint (éthanol, isopropanol, eau ...). Les trois études que je présente dans la suite ont été réalisées avec des convertisseurs câblés, soit avec des cuves telles que celles de la Figure II-5-a, soit avec des microcuves telles que celles que nous présenterons au paragraphe III.A. Pour les raisons évoquées au début de ce paragraphe, les performances notamment en termes de couplage et de longueur de fibre ne sont pas optimales mais permettent de mettre en évidence plusieurs intérêts des mélanges de liquides pour l'adaptation des bandes de transmission.

Nous allons voir qu'il est possible d'éliminer des raies parasites qui peuvent prendre de l'énergie à la raie Raman que l'on souhaite émettre. Il est également possible de stopper la cascade Raman à un ordre souhaité afin d'atteindre une longueur d'onde cible, ceci en conservant de bonnes efficacités de conversion. Enfin cette adaptation des bandes permet d'exploiter efficacement des raies Raman non usuelles qui ne sont pas la raie Raman principale. Ces trois possibilités permettent donc d'enrichir le panel de longueurs d'onde discrètes que l'on peut atteindre à l'aide d'un seul et unique laser de pompe.

### **II.F.1. Élimination d'une raie Raman parasite**

Ces études ont été réalisées lors d'un contrat d'ingénieur de recherche de Min Châu Phan Huy (2013-2016).

Comme nous l'avons remarqué sur la Figure II-17, avec le convertisseur rempli d'éthanol de un mètre de long, il est possible d'observer pour les plus fortes énergies de pompe une raie à 667 nm correspondant au premier ordre Stokes d'une raie Raman secondaire de l'éthanol pompée par le premier ordre Stokes de la raie Raman principale à 630 nm. L'observation de cette raie est très intéressante car elle permet de confirmer le rôle de filtre spectral de la bande de transmission stoppant la cascade Raman à un ordre souhaité. Elle permet également d'entrevoir la possibilité de générer de nouvelles longueurs d'onde à partir de raies Raman secondaires.

Toutefois, dans notre cas précis, cette raie peut être considérée comme parasite car elle peut prendre de l'énergie de la pompe à 532 nm au détriment du premier ordre Stokes à 630 nm. De plus, même de faible amplitude, elle peut être gênante pour certaines applications, comme nous nous en sommes aperçu de façon fortuite en testant un convertisseur 532 nm → 630 nm sur l'expérience de fluorescence en molécule unique de Karen Peronnet au LCF sur des molécules absorbant à 630 nm (ATTO647N) et dont la fluorescence se situe autour de 660 nm.

Les objectifs "pratiques" de ce test étaient de savoir si notre convertisseur pouvait être utilisé facilement par des scientifiques non laseristes et s'il était suffisamment stable en puissance pendant le temps de cette expérience. L'objectif scientifique était de comparer les

performances de notre convertisseur avec une diode laser émettant à 640 nm, de même puissance moyenne de 2 mW.

Nous avons constaté lors des premiers tests la présence d'un signal de fluorescence anormalement élevé qui a été identifié comme provenant de la raie à 667 nm de notre convertisseur. Le filtrage spectral du faisceau de sortie de notre convertisseur par un filtre interférentiel diminuant de façon trop importante la puissance de la raie à 630 nm (la puissance moyenne à cette longueur d'onde seule n'étant que de 1,7 mW), nous avons souhaité décaler la bande de transmission de notre convertisseur vers les courtes longueurs d'onde afin d'introduire des pertes importantes à 667 nm et d'empêcher l'apparition de cette raie aux plus fortes énergies.

Nous avons réalisé pour cela un mélange de liquides afin d'augmenter l'indice du liquide remplissant la fibre. Le but était de trouver un liquide de plus fort indice, miscible avec l'éthanol, compatible avec les matériaux utilisés. L'indice de ce liquide devait être suffisamment fort pour que sa proportion dans le mélange final soit la plus faible possible afin que le liquide Raman reste l'éthanol. Le diméthyl sulfoxyde (DMSO) s'est révélé intéressant vis-à-vis de ces critères. Il est de plus transparent sur toute la gamme de longueurs d'onde utilisée. Son indice de réfraction est de 1,47 dans le visible. Il est possible de calculer théoriquement l'indice d'un mélange de liquides (voir par exemple [ONSAGER]). Toutefois une simple règle de proportionnalité donne un très bon ordre de grandeur de cet indice, comme nous avons pu le vérifier expérimentalement à l'aide d'un réfractomètre d'Abbe :

$$n_{\text{mélange}} = \%V_{\text{liquide1}} \times n_{\text{liquide1}} + \%V_{\text{liquide2}} \times n_{\text{liquide2}} \quad (\text{Eq. 5})$$

où  $\%V_{\text{liquide}i}$  est la fraction volumique du liquide  $i$  ( $i=1$  ou  $2$ ) dans le mélange,  $n_{\text{liquide}i}$  est l'indice de réfraction du liquide  $i$  et  $n_{\text{mélange}}$  est l'indice de réfraction du mélange.

La méthode employée pour adapter l'indice du mélange est la suivante : à partir des formules de Cauchy des deux liquides, nous déterminons les indices de réfraction des deux liquides aux longueurs d'onde de travail. À partir de la bande de transmission de la fibre vide, nous déterminons grâce à la formule du décalage des bandes (Eq. 3) l'indice de réfraction du liquide qui permet ce décalage. Nous calculons la fraction volumique de chaque liquide puis nous réalisons le mélange de liquides. Nous mesurons son indice de réfraction au réfractomètre d'Abbe (l'indice est alors donné à 589 nm) et s'il est correct, nous en remplissons un tronçon de fibre de 5 cm de long. Nous mesurons la bande de transmission de ce tronçon. Si elle est satisfaisante nous remplissons le convertisseur grâce à notre système microfluidique.

Une fois le convertisseur rempli nous mesurons sa bande de transmission. Cette bande est toujours plus étroite que celle du tronçon de 5 cm du fait d'effets de filtrage des modes lors de la propagation. Un réajustement fin de l'indice du mélange est parfois nécessaire. Notre système microfluidique permet de vider le convertisseur et de le remplir avec le nouveau mélange. Nous avons estimé expérimentalement qu'une modification de l'indice de réfraction du mélange de  $10^{-3}$  entraîne un décalage du bord haut de la bande de transmission d'environ

5 nm (voir paragraphe II.F.3). Cette précision est facilement atteinte avec le réfractomètre (qui donne une précision de  $10^{-4}$ ). Il est ainsi possible de contrôler et d'optimiser très finement l'emplacement de la bande de transmission avec l'indice du mélange.

Afin de filtrer la raie à 667 nm, nous avons utilisé un mélange d'éthanol et de DMSO. L'indice du mélange doit être de 1,374. La proportion en volume d'éthanol est de 92% et celle de DMSO est de 8%. Cette faible proportion de DMSO nous garantit que le liquide Raman reste l'éthanol. La Figure II-22 montre le déplacement de la bande de transmission d'une fibre HC-PCF 1060-02 remplie d'éthanol pur ( $n=1,36$ ) et de la même fibre remplie du mélange.

Dans le premier cas, la raie à 667 nm est dans la bande de transmission alors qu'elle est sur le bord droit de cette bande dans le second cas. On peut voir en insert les spectres de sortie des deux convertisseurs (HC-PCF 1060-02 + éthanol et HC-PCF 1060-02 + mélange). La raie à 667 nm a bien disparu avec le mélange. La puissance de sortie moyenne à 630 nm est alors de 1,9 mW. Cette puissance aurait pu être suffisante pour des premiers tests sur l'expérience de fluorescence en molécule unique, mais une autre solution utilisant une fibre différente sera préférée par la suite. Nous tirons toutefois de cette expérience une méthode permettant le contrôle fin de l'emplacement des bandes de transmission d'une fibre à bande interdite photonique.

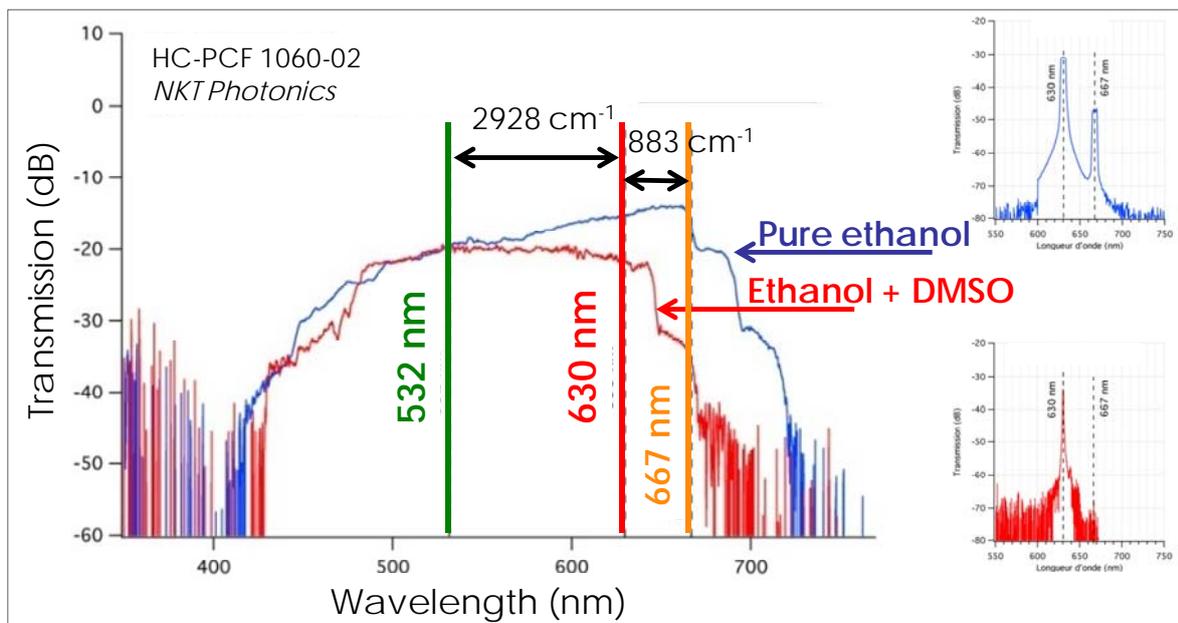


Figure II-22 – Ajustement de la bande de transmission d'une fibre HC-PCF 1060-02 avec l'indice du liquide (éthanol pur et mélange éthanol + DMSO). En haut à droite, spectre de sortie du convertisseur rempli d'éthanol pur. En bas à droite, spectre de sortie du convertisseur rempli du mélange de liquides [LEBRUN4].

## II.F.2. Contrôle de la cascade Raman au second ordre Stokes

Lors de cette étude réalisée pendant la période d'ATER de Christelle Buy (2008-2009), nous nous sommes intéressées à la réalisation d'un convertisseur émettant à une longueur d'onde cible, 595 nm. Il s'agit d'une longueur d'onde d'intérêt biologique correspondant à un pic

d'absorption de l'hémoglobine et de protéines fluorescentes. Notons que cette étude est antérieure à celle présentée dans le paragraphe précédent, notamment les cuves utilisées sont celles présentées en Figure II-5.

Il n'existe pas de liquide Raman usuel avec un décalage Raman d'environ  $2000 \text{ cm}^{-1}$  permettant d'atteindre cette longueur d'onde à partir d'une pompe à  $532 \text{ nm}$  par diffusion Raman sur le premier ordre Stokes. En revanche, la raie Raman principale des composés aromatiques tels que le benzène, toluène ou xylène étant située autour de  $1000 \text{ cm}^{-1}$ , le second ordre Stokes de cette raie pompée à  $532 \text{ nm}$  se situe à  $595 \text{ nm}$ . Les trois composés précités sont classés par ordre décroissant de valeur de gain Raman, mais aussi (et malheureusement) par ordre décroissant de toxicité. Privilégiant la minimisation de ce dernier aspect, nous avons commencé par réaliser des mélanges avec du xylène. Nous n'avons jamais observé de diffusion Raman dans le xylène, ce qui corrobore le fait qu'il est très difficile de trouver des données sur le gain Raman sur ce liquide dans la littérature (son gain Raman doit donc être très faible). Nous avons donc finalement sélectionné le toluène et présentons dans la suite les résultats obtenus avec un mélange contenant ce liquide.

Nous utilisons une fibre à bande interdite photonique commerciale dont la bande de transmission initiale est située à  $1,5 \mu\text{m}$  (réf. HC-PCF 1550-02 de chez NKT-Photonics). Pour décaler la bande de transmission autour de  $595 \text{ nm}$ , le calcul montre qu'il faut la remplir avec un liquide dont l'indice vaut  $1,42$ . L'indice de réfraction du toluène étant de  $1,49$ , il faut le diluer dans un liquide bas indice. Nous avons choisi d'utiliser du méthanol, dont l'indice de réfraction est de  $1,33$ . Toutes les manipulations de ces liquides se font en salle de chimie sous hotte aspirante. Les fractions volumiques des liquides dans le mélange final sont de  $45\%$  de méthanol et de  $55\%$  de toluène. Avec des fractions aussi voisines, il est légitime de se demander si le liquide Raman reste bien le toluène. Comme les liquides sont dilués dans le mélange, leur coefficient de gain Raman  $g_R^{\text{liquide}}$  va diminuer. Nous estimons les coefficients de gain Raman  $g_R^{\text{liquide,mélange}}$  des deux liquides dans le liquide final par une simple règle de proportionnalité :

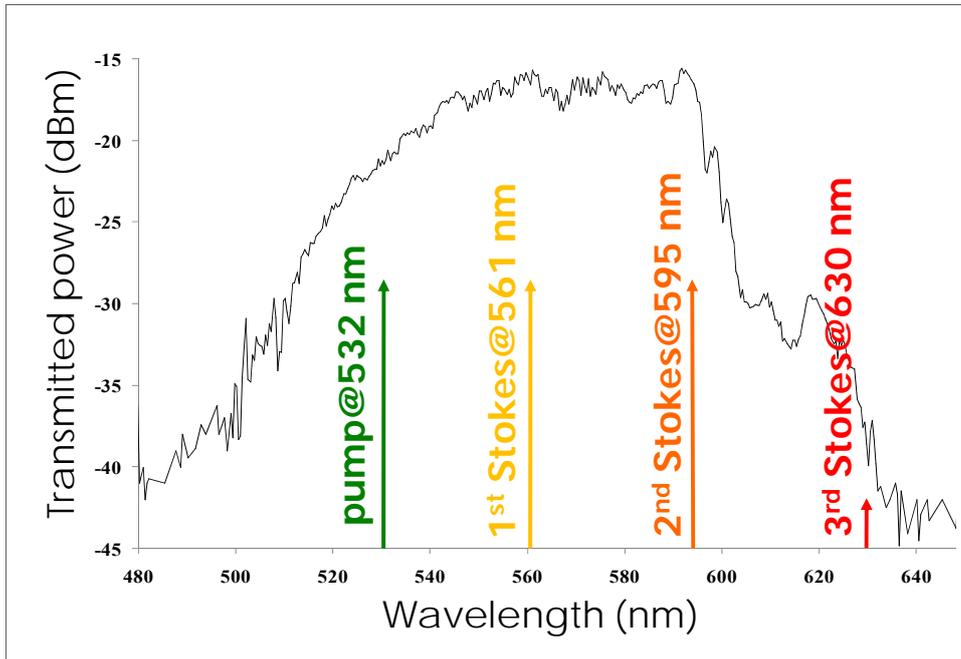
$$g_R^{\text{liquide,mélange}} = \%V_{\text{liquide}} \times g_R^{\text{liquide}} \quad (\text{Eq. 6})$$

où  $\%V_{\text{liquide}}$  est la fraction volumique du liquide dans le mélange final. Comme nous le verrons au paragraphe II.F.3, nous pouvons dire qu'une raie Raman 2 pourra être négligée devant une raie Raman 1 lorsque le rapport  $g_{R2}/g_{R1}$  est inférieur à  $0,7$ .

On a :  $g_R^{\text{méthanol}} = 0,21 \cdot 10^{-11} \text{ cm/W}$  et  $g_R^{\text{toluène}} = 3,5 \cdot 10^{-11} \text{ cm/W}$ . Dans notre mélange, on a donc  $\frac{g_R^{\text{méthanol,mélange}}}{g_R^{\text{toluène,mélange}}} \approx 0,05$ . On peut donc considérer que le toluène est bien le liquide Raman dans le mélange.

Nous présentons en Figure II-23 la bande de transmission du convertisseur rempli du mélange d'indice  $1,42$ . Nous voyons que les longueurs d'onde de pompe à  $532 \text{ nm}$ , du premier ordre Stokes du toluène à  $561 \text{ nm}$  et du second ordre Stokes du toluène à  $595 \text{ nm}$  sont bien

dans la bande de transmission. En revanche le troisième ordre Stokes à 630 nm est sur le bord de la bande et ne devrait donc pas apparaître.



*Figure II-23 – Bande de transmission d’une fibre HC-PCF 1550-02 de 80 cm de long remplie d’un mélange de toluène et de méthanol d’indice de réfraction égal à 1,42 [LEBRUN5].*

Le schéma expérimental est similaire à celui présenté en Figure II-6, exception faite du laser de pompe dont la fréquence de répétition est réduite à 1 kHz.

Nous présentons en Figure II-24 une courbe de transmission typique obtenue avec une fibre HC-PCF 1550-02 remplie d’un mélange de toluène et de méthanol d’indice de réfraction égal à 1,42. Le premier ordre Stokes du toluène à 561 nm apparaît pour une énergie de pompe incidente de 0,15  $\mu$ J. L’énergie de pompe transmise sature et l’énergie à 561 nm atteint 0,07  $\mu$ J. Le second ordre Stokes à 595 nm apparaît pour une énergie de pompe incidente d’environ 0,4  $\mu$ J. Le premier ordre Stokes sature alors et l’énergie à 595 nm croît jusqu’à atteindre 0,11  $\mu$ J à l’énergie de pompe incidente maximale de 0,95  $\mu$ J, sans saturation. Le taux de couplage de la pompe dans le convertisseur est estimé sous le seuil d’apparition du premier ordre Stokes à 28%. Ce taux relativement modeste s’explique en grande partie par des difficultés expérimentales et pourrait être amélioré au besoin.

En prenant en compte ce taux de couplage, nous évaluons une efficacité de conversion interne de la pompe à 532 nm vers le second ordre Stokes du toluène à 595 nm égale à 42%.

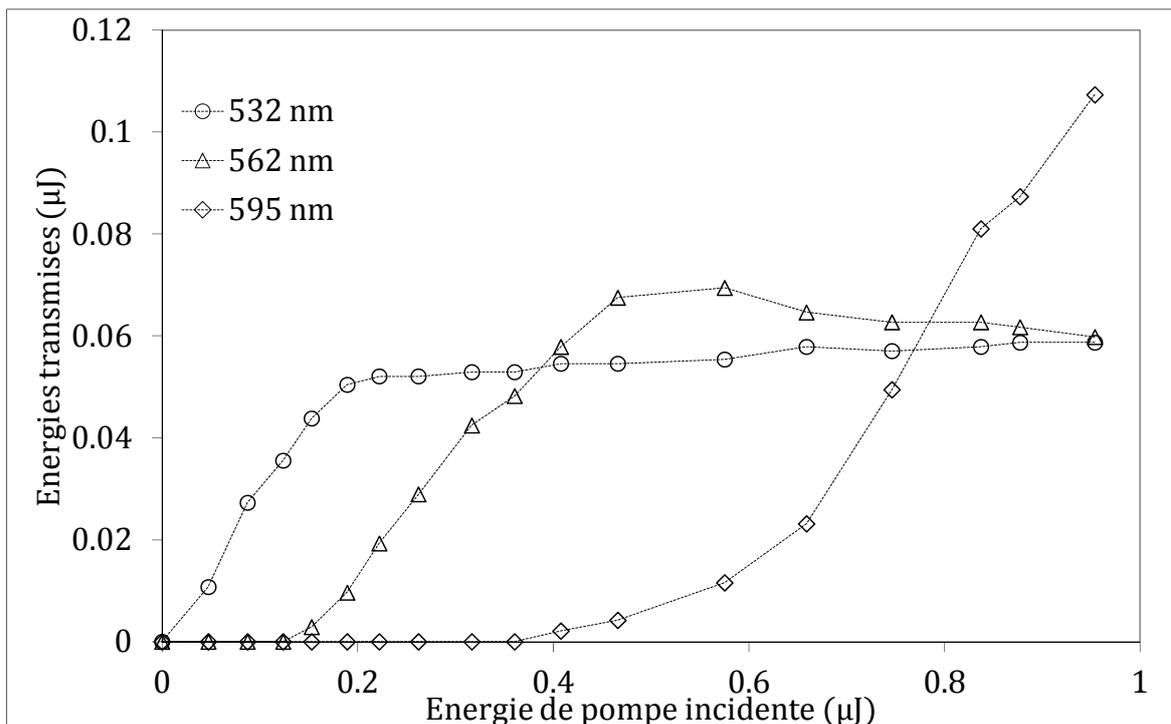


Figure II-24 – Énergies transmises à 532 nm, 561 nm et 595 nm en fonction de l'énergie de pompe incidente à 532 nm par un convertisseur HC-PCF 1550-02 rempli d'un mélange de toluène et de méthanol [LEBRUN5].

Le fait qu'à la fois l'énergie de la pompe et celle du premier ordre Stokes ne décroissent pas vers zéro aux fortes énergies de pompe incidentes s'explique encore par le profil temporel gaussien de l'impulsion de pompe.

Nous montrons en Figure II-25 un relevé du spectre de sortie de ce convertisseur pris au-dessus du seuil d'apparition du second ordre Stokes. Selon les conditions d'injection du faisceau de pompe, il est possible d'y voir l'apparition du troisième ordre Stokes du toluène à 630 nm (mais dans un mode de gaine, montrant qu'il est sur un bord de bande) et de son premier ordre anti-Stokes à 505 nm, illustrant le fait que nous sommes dans un régime de forte conversion et que la bande de transmission peut encore être optimisée.

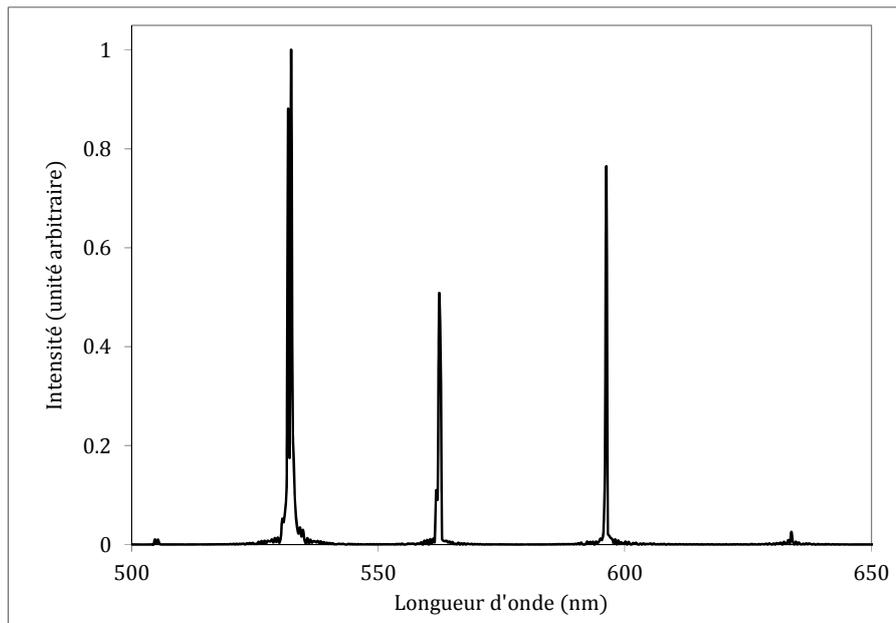


Figure II-25 – Spectre de sortie du convertisseur 532 nm ->595 nm à énergie de pompe maximale. Mesure faite à l’OSA, échelle linéaire [LEBRUN5].

Pour conclure, cette expérience nous a permis de démontrer qu’il est possible de stopper la cascade Raman au second ordre Stokes en repoussant l’apparition du troisième ordre Stokes grâce à l’utilisation de la bande de transmission d’une fibre à bande interdite photonique. Le rendement photonique de la pompe vers le second ordre Stokes est élevé (42%). Cette possibilité étend le domaine des longueurs d’onde que l’on peut atteindre avec nos convertisseurs.

### II.F.3. Utilisation d’une raie Raman secondaire

Dans cette étude réalisée lors d’un contrat de Minh Châu Phan Huy (2013-2016), nous avons analysé la possibilité de réaliser un convertisseur de longueur d’onde émettant sur une raie Raman n’ayant pas forcément le coefficient de gain le plus important. Nous avons fixé une longueur d’onde d’intérêt en biologie, 583 nm, afin d’enrichir encore la gamme de longueurs d’onde couverte par nos convertisseurs à partir d’un laser de pompe à 532 nm. Cette longueur d’onde correspond à une raie d’absorption de plusieurs fluorophores, comme le Bodipy 581/591 ou encore la X-Rhodamine [THERMOFISHER, BIOTECH], ce qui pourrait donc être intéressant pour des applications en biologie.

Nous avons vu que les liquides présentent des spectres Raman complexes avec de nombreuses raies, parmi lesquelles celle qui possède le coefficient de gain Raman le plus important  $g_{R1}$  sera appelée raie Raman principale. Les autres raies avec des coefficients de gain Raman  $g_{Ri}$  seront appelées raies Raman secondaires. Jusqu’à présent, pour définir le seuil de la diffusion Raman nous avons utilisé un critère purement expérimental, à savoir le “seuil d’apparition” du Raman, c’est-à-dire une valeur de l’énergie de pompe incidente à partir de laquelle il est possible de détecter et mesurer avec notre puissance-mètre ou notre OSA de la lumière diffusée sur l’ordre Stokes étudié.

À ce stade, il est utile de définir de façon plus formelle le seuil Raman. Nous introduisons le paramètre critique  $\gamma$  donné par  $\gamma = g_R \frac{P_p \times L}{A_{eff}}$ .  $g_R$  est le coefficient de gain Raman,  $P_p$  est la puissance de pompe crête interne,  $A_{eff}$  est l'aire effective d'interaction et  $L$  est la longueur d'interaction. En régime sub-nanoseconde, on peut définir le seuil Raman comme étant la puissance de pompe interne crête  $P_p$  à laquelle le paramètre  $\gamma$  vaut environ 20 [SMITH, PHANHUY1]. Lorsqu'on augmente  $P_p$ , et si l'on néglige les pertes, l'énergie du Stokes varie exponentiellement en  $\exp(\gamma)$  avant la saturation. Autour du seuil Raman, si  $\frac{g_{Ri}}{g_{R1}} \lesssim 0,7$ , l'énergie du Stokes de la raie principale est plus de 1800 fois plus grande que l'énergie du Stokes de la raie secondaire. Nous proposons donc cette valeur de 0,7 comme critère pour considérer que la diffusion Raman stimulée aura lieu uniquement sur la raie Raman principale, les raies Raman secondaires pouvant être alors négligées. Au-dessus du seuil Raman, nous avons vu que la pompe commence à être dépeuplée au profit du premier ordre Stokes de la raie principale et ne peut donc amplifier les raies secondaires, ce qui atténue encore l'effet de compétition.

Lorsque le rapport  $\frac{g_{Ri}}{g_{R1}}$  est proche de 1, il est difficile de distinguer la raie Raman principale de la raie secondaire en question. Dans ce cas, il y a une forte compétition entre les deux raies et une solution pour en favoriser l'une est d'ajouter des pertes supplémentaires à l'autre. En effet, la raie non désirée sera amplifiée en  $\exp(\gamma - \alpha L)$  où  $\alpha$  représente le coefficient de pertes et disparaîtra donc pour  $\gamma < \alpha L$ .

Dans cette étude, nous souhaitons décaler la longueur d'onde de pompe à 532 nm vers la longueur d'onde cible de 583 nm en utilisant un liquide Raman. Ce décalage en longueur d'onde correspond à un décalage Raman d'environ  $1640 \text{ cm}^{-1}$  qui n'est pas directement accessible avec des liquides Raman usuels et non toxiques [MARTIN, SBDS]. Ce décalage correspond également au second ordre Stokes d'une raie possédant un décalage Raman d'environ  $820 \text{ cm}^{-1}$ . Un tel décalage correspond à une raie Raman de la famille des alcools. Afin de choisir l'alcool qui convient le mieux, il faut pouvoir calculer les coefficients de gain Raman. En effet, ces coefficients sont donnés dans la littérature par des mesures effectuées à des longueurs d'onde qui ne sont en général pas celles auxquelles nous travaillons.

Le lecteur intéressé trouvera le détail du calcul dans [PHANHUY1]. Dans les alcools les deux principales bandes Raman sont situées autour de  $2800\text{-}3000 \text{ cm}^{-1}$  (appelée bande I dans la suite) et  $800\text{-}1040 \text{ cm}^{-1}$  (appelée bande II dans la suite). Ces deux bandes possèdent plusieurs raies Raman. Nous présentons dans le Tableau II-3 et le Tableau II-4 les coefficients de gain Raman pour différents alcools à la longueur d'onde de pompe  $\lambda_p$  de 532 nm, pour la raie Raman la plus intense de la bande I (notée  $g_{R,I}$ ) et pour la raie Raman la plus intense de la bande II (notée  $g_{R,II}$ ), d'après les données publiées dans [GRIFFITHS] et [COLLES]. Nous présentons également  $g_{R,II}$  pour le premier ordre Stokes émettant à  $\lambda_{1S}$  (noté  $g_{R,II}$  à  $\lambda_p$ ) et pour le second ordre Stokes émettant à  $\lambda_{2S}$  (noté  $g_{R,II}$  à  $\lambda_{1S}$ ,  $\lambda_{1S}$  étant alors la longueur d'onde de pompe). Nous présentons enfin le rapport  $\frac{g_{R,II} \text{ à } \lambda_{1S}}{g_{R,I} \text{ à } \lambda_p}$ .

Liquide	Décalage Raman (cm <sup>-1</sup> )	λ <sub>1s</sub> (nm)	g <sub>R,I</sub> à λ <sub>p</sub> (×10 <sup>12</sup> m/W)
Méthanol	2837	626	2,16
Éthanol	2928	630	2,92
Propan-2-ol	2882	628	2,43

Tableau II-3 – Calcul des coefficients de gain Raman de différents alcools pour la raie Raman la plus intense de la bande I. La longueur d’onde de pompe est λ<sub>p</sub>=532 nm, λ<sub>1s</sub> est la longueur d’onde du premier ordre Stokes [PHANHUY1].

Liquide	Décalage Raman (cm <sup>-1</sup> )	λ <sub>1s</sub> (nm)	λ <sub>2s</sub> (nm)	g <sub>R,II</sub> à λ <sub>p</sub> (×10 <sup>12</sup> m/W)	g <sub>R,II</sub> à λ <sub>1s</sub> (×10 <sup>12</sup> m/W)	$\frac{g_{R,II} \text{ à } \lambda_{1s}}{g_{R,I} \text{ à } \lambda_p}$
Méthanol	1037	563	598	0,57	0,54	0,25
Éthanol	881	558	587	1,04	0,99	0,34
Propan-2-ol	819	556	583	2,50	2,37	0,97

Tableau II-4- Calcul des coefficients de gain Raman de différents alcools pour la raie Raman la plus intense de la bande II. La longueur d’onde de pompe est λ<sub>p</sub> = 532 nm, λ<sub>1s</sub> est la longueur d’onde du premier ordre Stokes [PHANHUY1].

Dans le méthanol et l'éthanol, le rapport  $\frac{g_{R,II} \text{ à } \lambda_{1s}}{g_{R,I} \text{ à } \lambda_p}$  est largement inférieur à 0,7. On peut donc s'attendre à ce que la diffusion Raman stimulée ait lieu sur la raie Raman de la bande I uniquement. Le propanol possède deux isomères, le propan-1-ol et le propan-2-ol, appelé encore isopropanol. Dans la littérature nous n'avons pas trouvé les sections efficaces Raman du propan-1-ol, donc nous n'avons pas pu calculer les gains Raman de ce liquide. Toutefois, dans [KRISHNAN] et [WOOD], les auteurs ont évalué que la raie Raman à 2876 cm<sup>-1</sup> est plus intense que la raie Raman à 860 cm<sup>-1</sup>. Ce résultat est en adéquation avec la comparaison visuelle des spectres Raman du propan-1-ol et de l'éthanol, montrant les mêmes tendances [SBDS]. Ceci nous laisse à penser que la raie la plus intense de la bande I est la raie principale dans le propan-1-ol ainsi que dans le méthanol et dans l'éthanol et sera donc fortement favorisée au détriment de la raie la plus intense de la bande II.

Il existe plus de données dans la littérature pour le propan-2-ol que pour le propan-1-ol, ce qui permet d'estimer les coefficients de gain Raman [GRIFFITHS, COLLES]. Comme on peut le voir dans le Tableau II-3 la raie Raman du propan-2-ol à 2882 cm<sup>-1</sup> possède un coefficient de gain égal à 2,43.10<sup>-12</sup> m/W. D'après le Tableau II-4, la raie Raman à 819 cm<sup>-1</sup> possède un coefficient de gain égal à 2,50.10<sup>-12</sup> m/W pour le premier ordre Stokes et un coefficient de gain égal à 2,37.10<sup>-12</sup> m/W pour le second ordre Stokes que nous souhaitons générer. Contrairement aux autres alcools étudiés, le rapport  $\frac{g_{R,II} \text{ à } \lambda_{1s}}{g_{R,I} \text{ à } \lambda_p}$  est très proche de 1.

En comparaison avec le méthanol, l'éthanol et le propan-1-ol, le propan-2-ol est ainsi le plus favorable pour la diffusion Raman stimulée sur la raie à 819 cm<sup>-1</sup>. Nous avons donc choisi ce liquide pour réaliser ce nouveau convertisseur émettant à 583 nm. Les objectifs sont d'une part de stopper la cascade Raman au second ordre Stokes de la raie à 819 cm<sup>-1</sup> afin d'optimiser le transfert d'énergie de la pompe vers la longueur d'onde cible et d'autre part d'empêcher l'apparition de la raie à 2882 cm<sup>-1</sup>.

Nous avons utilisé une fibre à bande interdite photonique de 1 mètre de long avec une bande de transmission centrée autour de 1  $\mu\text{m}$  (HC 1060-02 de chez NKT Photonics). Afin de décaler la bande de transmission autour de 580 nm, le calcul montre que la fibre doit être remplie avec un liquide d'indice 1,39. L'indice de réfraction du propan-2-ol étant de 1,37, nous devons utiliser un mélange de liquides. Encore une fois, nous choisissons d'utiliser le DMSO comme diluant, car il se mélange bien avec les alcools. Son indice de réfraction étant assez élevé (1,48), sa proportion dans le mélange est bien plus faible que celle du propan-2-ol, qui reste donc le liquide Raman actif. Les fractions volumiques dans le mélange sont respectivement de 11% pour le DMSO et de 89% pour le propan-2-ol.

La procédure de remplissage du convertisseur et d'ajustement de l'indice du liquide est identique à celle décrite précédemment au paragraphe II.F.1. Afin d'illustrer l'optimisation de l'indice du mélange, nous avons mesuré en Figure II-26 les bandes de transmission de la fibre HC 1060-02 pour trois mélanges d'indice différent. Entre chaque remplissage, la fibre est rincée grâce à notre système microfluidique.

Nous pouvons estimer à l'aide de ces mesures que dans cette gamme de longueurs d'onde le bord droit de la bande de transmission se décale vers le bleu d'environ 5 nm pour une augmentation de  $10^{-3}$  de l'indice de réfraction du mélange. Cette estimation est très utile pour pouvoir ajuster finement la position de la bande de transmission.

Dans le cas étudié, la bande de transmission doit contenir la longueur d'onde de pompe à 532 nm, la longueur d'onde du premier ordre Stokes à 556 nm et la longueur d'onde du second ordre Stokes à 583 nm. Elle ne doit en revanche contenir ni la longueur d'onde du troisième ordre Stokes à 612 nm ni la longueur d'onde du premier ordre Stokes de la raie à  $2882\text{ cm}^{-1}$  à 628 nm. D'après les mesures de la Figure II-26, on peut voir que le convertisseur avec  $n=1,394$  n'est pas optimisé car la raie à 583 nm présente trop de pertes. Les deux autres convertisseurs ont été testés ( $n=1,384$  et  $n=1,388$ ) et nous présentons dans la suite les résultats les plus significatifs, obtenus avec le convertisseur  $n=1,388$ .

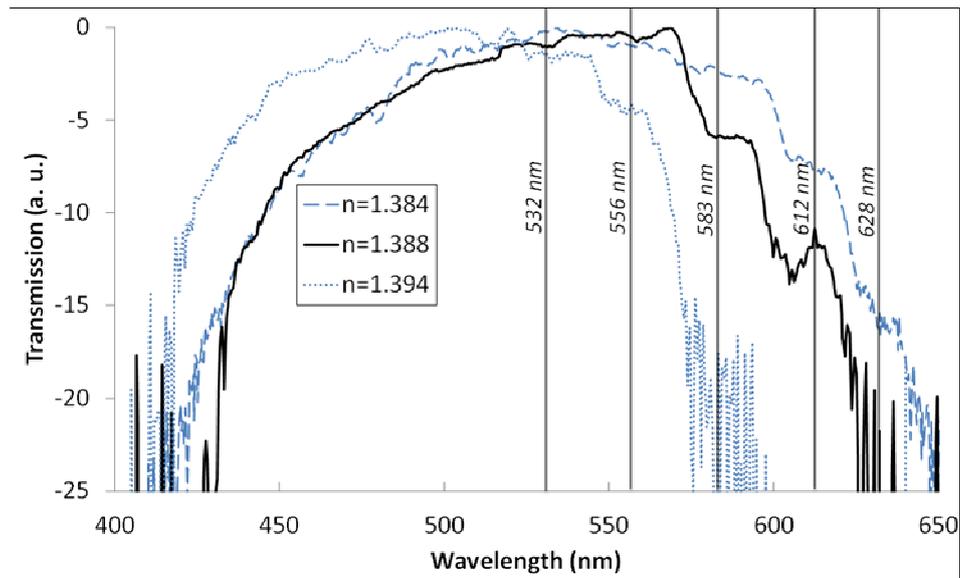


Figure II-26 – Optimisation de la bande de transmission d'une fibre HC 1060-02 de 1 mètre remplie par un mélange de propan-2-ol et de DMSO. L'indice de réfraction du mélange est respectivement de 1,384 (tirets), 1,388 (plein) et 1,394 (pointillés) [PHANHUY1].

Le convertisseur a été réalisé avec les microcuves fabriquées au LCF. En Figure II-27 nous présentons un exemple des énergies transmises aux différentes longueurs d'onde générées par le convertisseur en fonction de l'énergie de pompe incidente à 532 nm. Sous le seuil d'apparition du premier ordre Stokes du propan-2-ol à 556 nm, nous mesurons une transmission de la pompe de 30%.

Le premier ordre Stokes apparaît pour une énergie de pompe incidente d'environ 0,3  $\mu\text{J}$ . En augmentant encore l'énergie de pompe nous atteignons le seuil d'apparition du second ordre Stokes à 583 nm pour une énergie incidente de pompe d'environ 0,55  $\mu\text{J}$ . Le premier ordre Stokes voit alors son énergie transmise saturer et l'énergie du second ordre Stokes croît ensuite sans saturation, jusqu'à atteindre une énergie de 0,19  $\mu\text{J}$  pour une énergie de pompe maximale de 1,03  $\mu\text{J}$ .

Le rendement énergétique interne de la pompe (prenant en compte la transmission de 30% de la pompe dans le convertisseur) vers le second ordre Stokes du propan-2-ol à 583 nm est de 61%. Théoriquement, sans filtrage par la bande de transmission, le troisième ordre Stokes aurait dû apparaître pour une énergie de pompe d'environ 0,9  $\mu\text{J}$ . Or nous ne l'observons qu'à énergie de pompe maximale de 1,03  $\mu\text{J}$ , montrant bien l'effet de filtrage par la bande de transmission. Nous observons également à cette énergie le premier ordre Stokes de la raie en bande I à 628 nm, dans un mode de gaine. Les énergies à ces deux longueurs d'onde sont trop faibles pour être mesurées ce qui illustre d'une part la difficulté d'ajuster correctement la bande de transmission, celle-ci pouvant encore être optimisée, et d'autre part l'efficacité de conversion Raman de ce convertisseur.

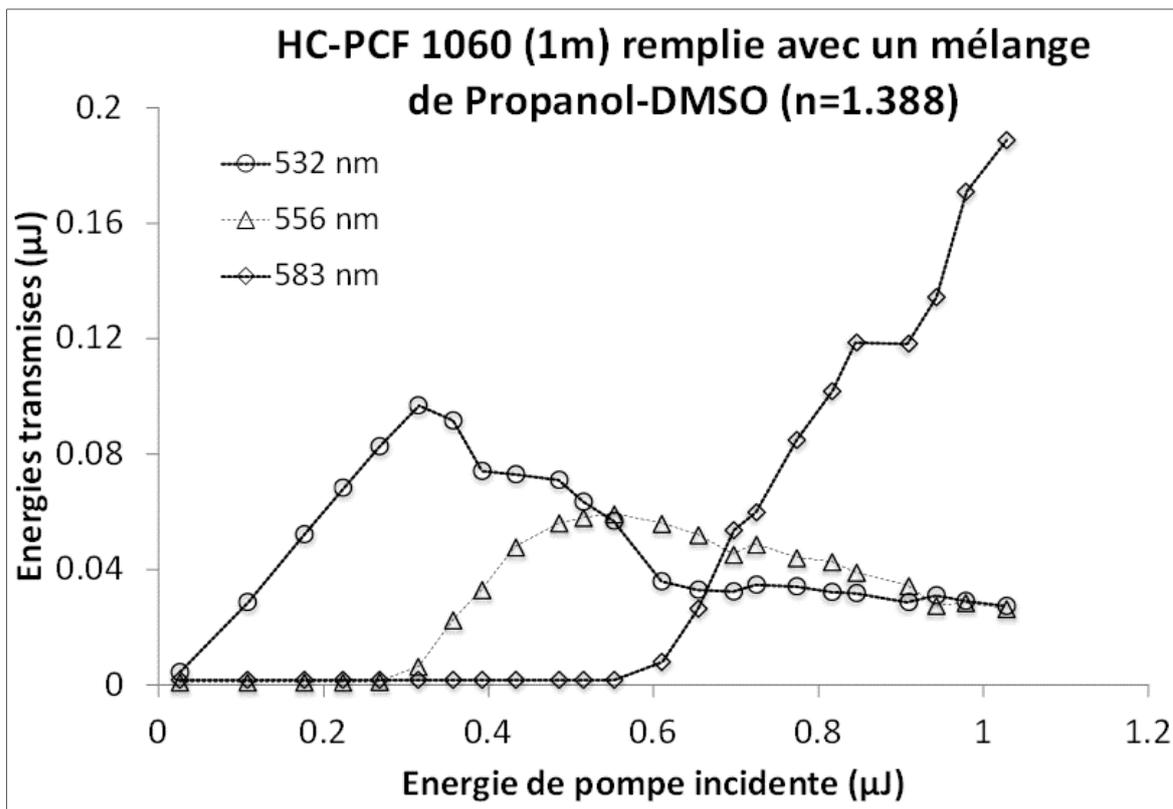


Figure II-27 – Énergies transmises à 532 nm, 556 nm et 583 nm en fonction de l'énergie de pompe incidente à 532 nm par une fibre HC 1060-02 de 1 mètre de long remplie d'un mélange de propan-2-ol / DMSO d'indice de réfraction égal à 1,388 [PHANHUY1].

La résolution de l'OSA est au mieux de 50 pm, ce qui est de l'ordre de grandeur de la largeur de raie des liquides Raman. Par conséquent nous n'avons pas pu mesurer précisément les largeurs des raies émises mais disposons d'une limite haute de ces valeurs (voir par exemple le spectre de la raie à 583 nm avec une résolution de 50 pm en Figure II-28).

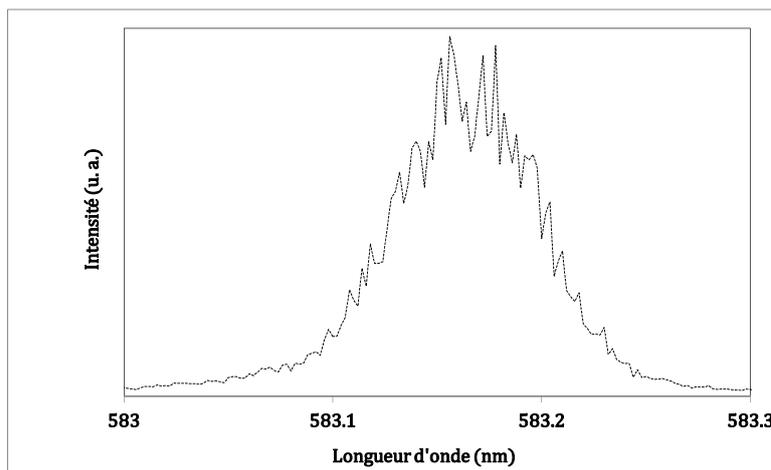


Figure II-28 – Exemple de spectre à 583 nm en sortie du convertisseur 532 nm → 583 nm. La résolution de l'OSA est 50 pm [PHANHUY1].

Afin d'obtenir une valeur plus précise nous avons utilisé le fait que la largeur spectrale du Stokes  $\Delta\omega_{1/2}$  (FWHM) diminue lorsque le gain augmente selon la formule [WANG] :

$$\Delta\omega_{1/2} \cong \left( \frac{\ln 2}{2\gamma \times L} \right)^{1/2} \cdot \Gamma \quad (\text{Eq. 7})$$

L est la longueur du convertisseur,  $\Gamma$  est la largeur spectrale du Raman spontané (FWHH). Nous avons pris  $L = 1 \text{ m}$  et  $\Gamma = 6,6 \text{ cm}^{-1}$  [COLLES]. Afin de calculer le paramètre  $\gamma$  nous avons déduit de la Figure II-27 une puissance de pompe crête  $P_p$  égale à 59 W. Le coefficient de gain Raman du propan-2-ol est évalué en multipliant simplement sa valeur à l'état pur obtenue dans le Tableau II-4 par sa fraction volumique dans le mélange, à savoir 89%. Nous obtenons ainsi  $g_R = 2,11 \cdot 10^{-12} \text{ m/W}$ .

Nous avons choisi  $A_{eff} = 12 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  comme dans l'étude que nous avons menée dans [LEBRUN2] avec le convertisseur rempli d'éthanol, la fibre étant la même et l'indice du liquide sensiblement identique. Avec ces valeurs nous trouvons  $\Delta\omega_{1/2} = 1.2 \text{ cm}^{-1}$ , ce qui correspond à 47 pm.

À ce stade il est intéressant d'évaluer la densité spectrale de puissance à 583 nm, qui est égale à 22 mW/nm, au-delà de celle que l'on peut avoir dans cette gamme spectrale avec des sources supercontinuum sub-ns, qui sont plutôt autour de 700  $\mu\text{W/nm}$ . Cette valeur montre l'un des intérêts de nos convertisseurs par rapport à ces sources supercontinuum lorsqu'une ou seules quelques longueurs d'onde discrètes sont nécessaires.

Le faisceau de sortie est envoyé sur un réseau de diffraction et nous observons les modes spatiaux projetés sur un écran (Figure II-29-a). L'image est très saturée mais on y voit l'allure typique des modes issus des fibres à bande interdite photonique avec une symétrie hexagonale due à la structure de la gaine. La structure périodique des trous de la gaine explique également la présence de pétales autour du centre. Ces pétales font partie intégrante du mode fondamental de la fibre et transportent une très petite proportion de l'énergie. Sur les profils en champ lointain de la Figure II-29-b et de la Figure II-29-c nous pouvons voir que les raies Stokes à 556 nm et 583 nm sont émises dans des modes quasi-gaussiens.

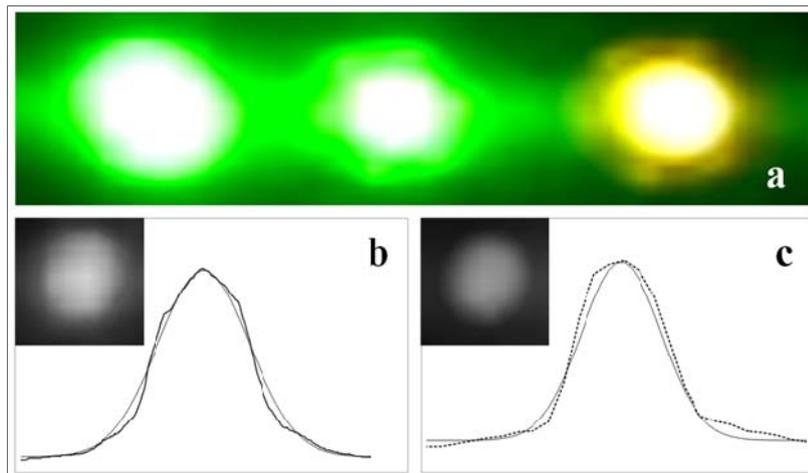


Figure II-29 – a) Modes spatiaux en champ lointain à 532 nm, 556 nm et 583 nm (de la gauche vers la droite) issus du convertisseur 532 nm  $\rightarrow$  583 nm à énergie de pompe maximale. b) Exemple de champ lointain à 556 nm. c) Exemple de champ lointain à 583 nm (pointillé : données expérimentales, trait plein : ajustement avec une Gaussienne) [PHANHUY1].

Nous n'avons pas mesuré expérimentalement le profil temporel de l'impulsion à 583 nm. D'après la largeur de l'impulsion de pompe (560 ps (FWHM)) et nos simulations numériques, nous pouvons l'évaluer autour d'une centaine de ps (FWHM).

Dans cette étude nous avons montré que l'exploitation des raies Raman de liquides usuels, comme des alcools, associée à l'ajustement fin des bandes de transmission des fibres à bande interdite photonique par des mélanges de liquides permet d'élargir encore la gamme de longueurs d'onde atteignables par nos convertisseurs, à partir d'un seul laser de pompe. Les rendements énergétiques sont élevés et les faisceaux sont émis dans des modes spatiaux quasi-gaussiens avec une densité spectrale de puissance élevée.

### ***II.G. Première démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée dans un liquide remplissant une fibre de type Kagomé***

Dans ce paragraphe nous présentons une étude réalisée dans le cadre d'un contrat ACTPHAST avec la société CIMEL Electronics (contrat de Minh Châu Phan Huy pendant la période 2013-2016). CIMEL propose des microlidars pour l'étude des aérosols et des nuages à des altitudes allant typiquement de 100 m à 30 km. Leurs systèmes utilisent des microlasers émettant à 532 nm. Afin d'étendre les possibilités de leurs produits, CIMEL étudie la possibilité de réaliser des microlidars avec une source émettant simultanément à deux longueurs d'onde différentes, 532 nm et une longueur d'onde dans le proche infrarouge autour de 800 nm, ce qui permet d'avoir des informations complémentaires sur les tailles de particules. L'utilisation de deux sources différentes a déjà été étudiée par CIMEL mais semble poser trop de problème d'aberration à l'émission et une synchronisation complexe. L'avantage de nos convertisseurs est que l'émission demeure ponctuelle aux deux longueurs d'onde.

Dans les systèmes la longueur d'onde dans le proche infrarouge est habituellement délivrée par une diode laser affinée spectralement par un réseau de Bragg pour atteindre une largeur spectrale  $\Delta\lambda$  voisine de 0,6 nm. Un des objectifs est de disposer d'une source émettant dans le proche infrarouge un spectre encore un peu plus fin afin d'augmenter la portée du microlidar, la portée étant inversement proportionnelle à la racine carrée de  $\Delta\lambda$ .

Afin de minimiser les coûts de développement d'un nouveau système, l'idée dans ce projet est de remplacer la fibre optique reliant la source laser au télescope du microlidar par un convertisseur de longueur d'onde Raman. Le laser actuellement utilisé émet à 532 nm des impulsions nanosecondes à 4,5 kHz et sera donc le laser de pompe, ses caractéristiques correspondant aux gammes de fonctionnement déjà testées de nos convertisseurs. Ainsi le laser restera inchangé, de même que les chaînes de détection et de synchronisation. La qualité spatiale du faisceau n'est pas un critère primordial, la fibre de liaison utilisée étant multimode.

Dans le cahier des charges, une énergie minimale de 2,5  $\mu\text{J}$  sur chaque longueur d'onde est requise ainsi qu'une largeur de raie inférieure à 0,3 nm dans l'infrarouge. Des contraintes sur

la stabilité en puissance dans le temps et sur la résistance à de grandes amplitudes thermiques sont également spécifiées. Enfin un faisceau polarisé apporterait un avantage pour détecter la forme des particules sondées.

Le plus grand décalage Raman dans les liquides est de  $3400\text{ cm}^{-1}$  obtenu avec une raie de l'eau. À partir d'une source de pompe émettant à  $532\text{ nm}$  on atteint ainsi au mieux avec le premier ordre Stokes la longueur d'onde de  $650\text{ nm}$ . Afin d'atteindre le proche infrarouge avec un convertisseur Raman rempli de liquide à partir d'une source laser à  $532\text{ nm}$ , il est nécessaire de passer par une cascade Raman. Le second ordre Stokes de l'éthanol est situé à  $772\text{ nm}$  et convient pour l'application de CIMEL, car située en dehors des bandes d'absorption du dioxygène<sup>4</sup>. Deux défis se posent alors : la fibre remplie d'éthanol doit pouvoir guider à la fois à  $532\text{ nm}$  et  $772\text{ nm}$ , et il doit être possible de coupler suffisamment d'énergie pour atteindre le besoin exprimé par le cahier des charges.

Les fibres de type Kagomé permettent de répondre en grande partie à ces deux problématiques [AMSANPALLY]. Ces fibres présentent de larges bandes de transmission, typiquement de l'ordre de  $1\text{ }\mu\text{m}$ , ce qui permet de gérer de grands décalages en longueur d'onde. Ceci n'est en effet pas possible avec les fibres à bande interdite photonique dont la bande de transmission est de l'ordre de  $100\text{ à }200\text{ nm}$ . De plus, ces fibres peuvent avoir des diamètres de cœur assez gros, pouvant aller jusqu'à plus de  $40\text{ }\mu\text{m}$ . Il est toujours possible, théoriquement, d'y guider la lumière sur un mode fondamental proche d'un mode gaussien. Ces gros diamètres de cœur permettent d'augmenter les aires effectives d'interaction et par conséquent d'y coupler davantage d'énergie tout en restant sous le seuil de dommage (nous reviendrons sur ce seuil de dommage au paragraphe II.1.5). L'énergie nécessaire pour atteindre le seuil Raman pourra être compensée par une augmentation de la longueur de la fibre.

Le groupe Gas-Phase Photonic and Microwave de l'Institut XLIM nous a fourni plusieurs échantillons différents de ces fibres pour effectuer des tests. Ces fibres sont par ailleurs commercialisées par sa spin-off, la société Glophotronics. Quatre fibres Kagomé ont ainsi été caractérisées. Nous présentons par la suite les résultats obtenus avec la fibre qui a donné les résultats les plus complets (PMC-C-650/2000-7C GLOphotronics). Les caractéristiques de cette fibre sont données en Figure II-30. On peut noter la géométrie particulière du cœur, dont le contour est en configuration hypocycloïdal. Il a en effet été démontré qu'une telle géométrie permet de diminuer les pertes (les modes de cœur ne sont en contact qu'avec les sommets des grandes arches des contours, contrairement à une configuration plus circulaire). La gaine est faite d'une structure en "étoile de David", avec des ponts de silice très fins (de l'ordre de quelques centaines de nm). Le diamètre du cœur est de  $44\text{ }\mu\text{m}$ , bien supérieur au diamètre des fibres à bande interdite photonique qui est plutôt de l'ordre de  $10\text{ }\mu\text{m}$ . La bande de transmission de cette fibre vide est centrée autour de  $1,2\text{ }\mu\text{m}$  et sa largeur est d'environ  $800\text{ nm}$ . Remplie d'éthanol la bande de transmission se décale vers les courtes longueurs d'onde. La limite de détection de notre OSA étant de  $400\text{ nm}$ , nous n'avons pas pu mesurer l'étendue de la bande décalée mais avons constaté que les trois longueurs d'onde

---

<sup>4</sup> <http://hitran.iao.ru/molecule>

d'intérêt, 532 nm, 630 nm et 772 nm y sont bien présentes. Notons qu'étant donnée la longueur limitée de nos échantillons et le prix de ces fibres, nous n'avons pas fait d'études systématiques de déplacement des bandes avec l'indice de réfraction du liquide.

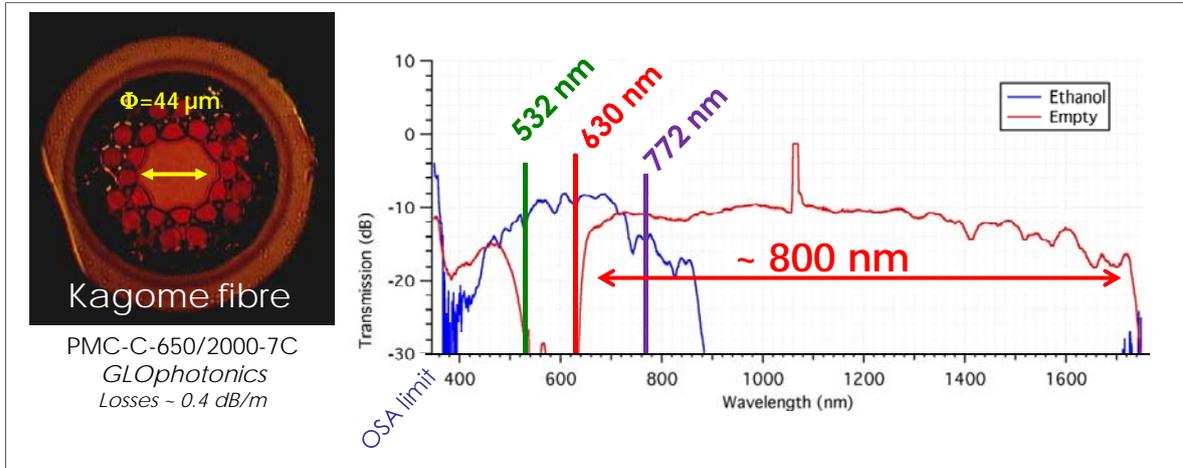


Figure II-30 – À gauche, photo prise au microscope optique d'une facette de la fibre PMC-C-650/2000-7C (crédit photo : GLOphotonics). À droite, bande de transmission de la fibre vide (800 nm de largeur) et remplie d'éthanol. Les longueurs d'onde 532 nm, 630 nm et 772 nm sont bien contenues dans la bande de transmission de la fibre remplie [LEBRUN4].

Lors de ces études, nous avons observé de la lumière rétrodiffusée par le convertisseur dans la direction contrepropageante avec le faisceau de pompe. Ces effets étant assez forts et limitant nos efficacités de conversion, nous nous sommes intéressés plus précisément aux effets non linéaires en compétition avec la diffusion Raman stimulée copropageante et avons cherché à les limiter. Dans le régime temporel dans lequel nous nous plaçons, pouvant aller de quelques centaines de picosecondes à quelques nanosecondes, deux effets rétrodiffusés sont potentiellement importants : la diffusion Raman et la diffusion Brillouin.

Intéressons-nous tout d'abord à la diffusion Raman rétrodiffusée. On estime la longueur effective d'interaction dans la direction contrepropageante  $L_{eff}^{contra}$  à la plus petite valeur entre  $L$ , la longueur de la fibre, et  $c\Delta t/2n$ , où  $\Delta t$  est la durée à mi-hauteur de l'impulsion et  $n$  l'indice de réfraction du liquide. Avec le laser utilisé pour cette étude,  $\Delta t$  vaut 900 ps et donc  $c\Delta t/2n$  vaut environ 10 cm, ce qui fixe  $L_{eff}^{contra}$ .

Dans la direction copropageante, considérant des longueurs maximales de fibre de l'ordre du mètre et la dispersion chromatique étant de l'ordre d'une centaine de ps/(km.nm), la longueur effective de l'interaction  $L_{eff}^{co}$  est la longueur de la fibre  $L$  (elle est en fait limitée par les pertes de propagation, que nous négligeons ici). Dans les liquides les coefficients de gain Raman copropageant  $g_R^{co}$  et rétrodiffusé  $g_R^{contra}$  sont sensiblement les mêmes. En comparant les produits  $g_R^{co} \times L_{eff}^{co}$  et  $g_R^{contra} \times L_{eff}^{contra}$  on voit qu'il suffit de prendre une longueur de fibre  $L$  légèrement supérieure à  $L_{eff}^{contra}$  pour supprimer la diffusion Raman rétrodiffusée, ce qui est facile à réaliser expérimentalement.

Intéressons-nous maintenant à la diffusion Brillouin. Le temps de relaxation de l'effet Raman ( $T_2$ ) dans les liquides étant de quelques dizaines de picosecondes (12 ps pour l'éthanol), nous

considérons que nous sommes en régime stationnaire pour le Raman et bénéficions ainsi du maximum de gain Raman. Le temps de relaxation de la diffusion Brillouin est plus élevé, de l'ordre de 450 ps pour l'éthanol par exemple [BOYD]. Même si dans les régimes temporels étudiés nous pouvons être en limite du régime transitoire pour le Brillouin avec par conséquent un gain Brillouin  $g_B$  non maximum, ce gain reste bien plus élevé que le gain Raman  $g_R$ . Par exemple, dans l'éthanol  $g_B$  vaut  $120 \cdot 10^{-12}$  m/W [BOYD] alors que  $g_R$  vaut seulement  $3 \cdot 10^{-12}$  m/W. Dans la littérature, les liquides sont d'ailleurs utilisés en tant que milieux Brillouin en régime nanoseconde, sans même que des effets de diffusion Raman soient mentionnés [WIGGINS]. Pour favoriser la diffusion Raman par rapport à la diffusion Brillouin, il est donc nécessaire de choisir une longueur de fibre  $L$  très supérieure à  $L_{eff}^{contra}$ .

Afin d'illustrer l'effet de la longueur de la fibre sur la compétition entre la diffusion Raman et la diffusion Brillouin et dans le but d'optimiser l'émission à 772 nm, nous avons construit deux convertisseurs ne différant que par leur longueur. Ces deux convertisseurs sont réalisés avec une fibre Kagomé remplie d'éthanol, telle que caractérisée en Figure II-30. Les deux longueurs de fibre choisies sont  $L_1 = 0,5$  m et  $L_2 = 1,5$  m. Le laser de pompe (Horus HLX-G-F004) émet des impulsions de 900 ps (FWHM) à 532 nm pouvant délivrer une énergie d'une dizaine de  $\mu$ J par impulsion à une fréquence de répétition de 4,5 kHz. Le taux de couplage du faisceau de pompe dans chacun des deux convertisseurs est voisine de 70%. Nous présentons en Figure II-31 l'évolution des énergies transmises et rétrodiffusée en fonction de l'énergie de pompe interne (donc prenant en compte le taux de couplage) pour les deux convertisseurs.

Comme attendu, nous observons l'absence de diffusion Raman rétrodiffusée dans les deux cas. Nous remarquons également que la diffusion Brillouin est fortement atténuée lorsqu'on passe de  $L_1 = 0,5$  m à  $L_2 = 1,5$  m. Pour chiffrer ce résultat, nous notons qu'au point critique (lorsque l'énergie transmise du premier Stokes égale l'énergie de la pompe transmise) l'énergie contenue dans le faisceau Brillouin vaut 66% de l'énergie contenue dans le premier ordre Stokes pour  $L_1 = 0,5$  m. Cette fraction d'énergie n'est plus que de 9% pour  $L_2 = 1,5$  m. La conséquence de cette optimisation de la longueur de la fibre est que l'énergie de sortie à 772 nm sur le second ordre Stokes est nettement augmentée puisqu'à l'énergie de pompe maximale injectée de 5,8  $\mu$ J elle passe d'une valeur à peine mesurable pour  $L_1 = 0,5$  m à une énergie de quasiment 1  $\mu$ J pour  $L_2 = 1,5$  m. Des simulations numériques effectuées dans [PHANHUY2] viennent appuyer ces résultats expérimentaux.

L'énergie de sortie à 772 nm ne satisfait pas encore tout à fait au cahier des charges et nous allons étudier dans la suite une autre solution utilisant un capillaire à cœur creux. Une autre limitation rencontrée est que ces fibres Kagomé sont légèrement multimodes et très sensibles aux courbures et perturbations mécaniques. Des couplages de modes ont donc lieu et rendent les puissances de sortie assez instables. Il est indispensable de bien fixer la fibre afin de limiter ces effets.

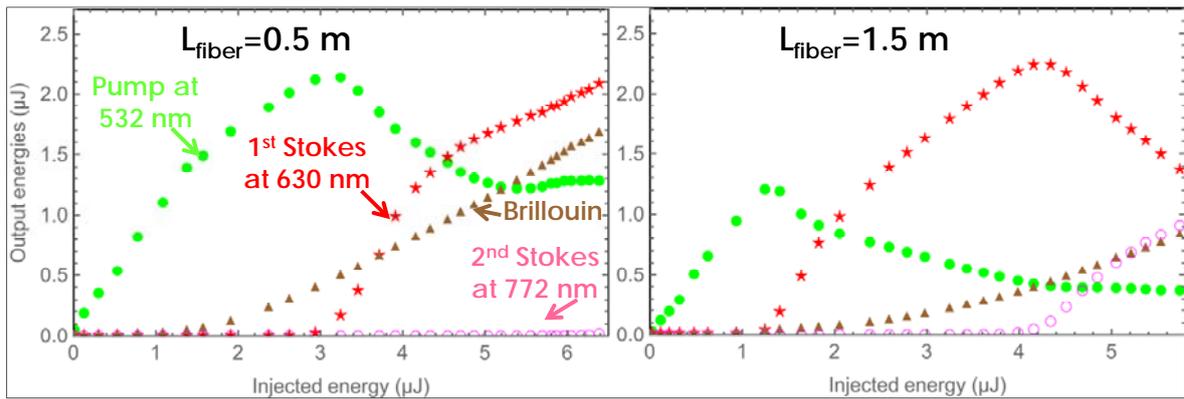


Figure II-31 – Énergies de la pompe transmise à 532 nm (disques verts), du premier ordre Stokes à 630 nm (étoiles rouges), du second ordre Stokes à 772 nm (cercles roses) et du Brillouin (triangles marrons) en fonction de l'énergie de pompe interne, pour le convertisseur de longueur  $L_1=0,5$  m (à gauche) et pour le convertisseur de longueur  $L_2=1,5$  m (à droite) [PHANHUY2].

On peut voir par exemple sur la Figure II-32 le convertisseur de longueur  $L_2 = 1,5$  m utilisé sur l'expérience de fluorescence en molécule unique de Karen Peronnet (LCF). Afin de délivrer des puissances stables, la fibre doit être légèrement enroulée et maintenue avec de l'adhésif sur un support horizontal.

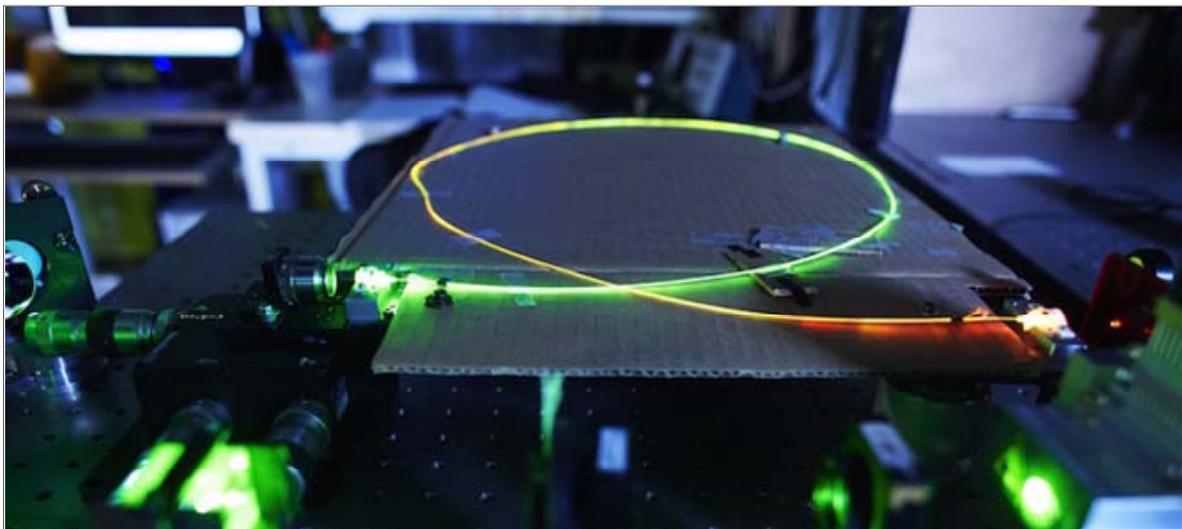


Figure II-32 – Convertisseur de longueur  $L_2=1,5$  m utilisé sur l'expérience de fluorescence en molécule unique du LCF pour son émission à 630 nm.

Nous avons observé en champ proche les modes issus du convertisseur de longueur  $L_2 = 1,5$  m aux différentes longueurs d'onde (532 nm, 630 nm et 772 nm) et donc à différentes énergies incidentes (Figure II-33). Nous observons que ces modes ne sont pas uniformes, ce qui n'est toutefois pas un problème pour l'application microlidars à l'étude.

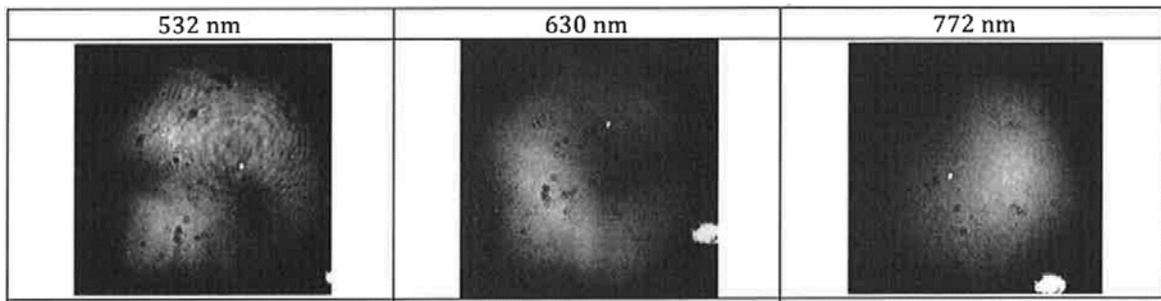


Figure II-33 – De gauche à droite : modes en champ proche en sortie de convertisseur à 532 nm (énergie incidente de  $0,37 \mu\text{J}$ ), à 630 nm (énergie incidente de  $1,27 \mu\text{J}$ ) et à 772 nm (énergie incidente de  $6,6 \mu\text{J}$ ).

Nous avons estimé les largeurs de raie aux différentes longueurs d'onde à l'OSA. Comme évoqué au paragraphe II.F.3, la limite de résolution est de 50 pm, ce qui correspond à la largeur de raie dans les liquides. Cependant cette raie s'élargit lorsque l'ordre Stokes augmente, ce que nous avons pu constater expérimentalement. Si la largeur de raie mesurée à 630 nm est bien limitée par l'OSA, celle à 772 nm est d'environ 300 pm à énergie de pompe maximale, ce qui reste dans le cahier des charges.

Nous avons également réalisé quelques mesures de polarisation sur le convertisseur de longueur  $L_2 = 1,5 \text{ m}$ . Notons que ces mesures ont toujours été faites en "fin de vie" du convertisseur et qu'elles mériteraient d'être plus poussées. Nous avons toutefois obtenu quelques résultats intéressants : nous avons pu mesurer que la polarisation linéaire du faisceau de pompe à 532 nm est conservée par le convertisseur, quelle que soit sa direction. Des mesures sur le faisceau du premier ordre Stokes à 630 nm ont montré que ce faisceau est polarisé linéairement avec un taux proche de 80%. Mais nous n'avons pas pu vérifier si cette direction de polarisation est la même qu'à 532 nm (ce à quoi nous nous attendons dans un liquide) et n'avons pas pu identifier la provenance des 20% restants.

Même si le cahier des charges pour le projet ACTPHAST n'a été que partiellement atteint, ces études sur les fibres Kagomé nous ont permis d'avancer sur la compréhension des effets non linéaires en compétition dans nos convertisseurs dans des régimes temporels où la diffusion Raman dans les liquides n'était a priori pas évidente. Nous avons également enrichi la gamme de longueurs d'onde accessible avec nos convertisseurs en atteignant le proche infrarouge.

Un effet collatéral de cette étude avec la société CIMEL est que nous avons amélioré les performances de notre convertisseur à 630 nm qui répond au cahier des charges en termes de puissance moyenne et de stabilité nécessaire à l'expérience de fluorescence en molécule unique du LCF (Figure II-32). Le convertisseur a été testé, mais les expérimentatrices se sont aperçues que notre source blanchit les fluorophores de façon trop brutale à cause d'une puissance crête trop élevée et qu'elle n'est donc pas adaptée à cette expérience. Une source de plus grande cadence et délivrant des puissances crête plus faibles serait nécessaire. Quoi qu'il en soit, cette expérience nous a montré que nos convertisseurs peuvent être utilisés aisément par d'autres collègues scientifiques, ce qui est important dans le cadre de leur valorisation.

Dans la suite, nous présentons une solution alternative aux fibres Kagomé permettant d'augmenter l'énergie délivrée à 772 nm.

## **II.H. Diffusion Raman stimulée dans un capillaire de silice à cœur creux rempli de liquide**

Nous reprenons ici une idée assez ancienne qui consiste à utiliser un capillaire de silice à cœur creux et à le remplir par un liquide Raman [CHRAPLYVY]. Ces travaux ont été réalisés dans le cadre d'un contrat d'ingénierie de recherche de Minh Châu Phan Huy (2013-2016).

Il y a plusieurs avantages pratiques à cette solution. Il existe un grand choix de diamètres de cœur, allant de quelques  $\mu\text{m}$  à plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$ , permettant de tester plusieurs convertisseurs à moindre coût : quelques euros le mètre comparé à plusieurs centaines d'euros le mètre pour les fibres microstructurées. De plus le cœur se remplit facilement et rapidement car il n'y a pas de microtrous à remplir dans la gaine.

En revanche, avec les diamètres de plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$  que nous allons utiliser, les convertisseurs sont très fortement multimodes. Par exemple, pour un diamètre de 50  $\mu\text{m}$  et un indice de cœur de 1,48 (choisi supérieur à celui de la gaine de silice pour permettre un guidage par réflexion totale interne), la fréquence réduite  $V$  vaut plus de 70 et le nombre de modes guidés avoisine les 2000. Un autre inconvénient est qu'il n'y a pas de bande de transmission permettant de filtrer les longueurs d'onde non souhaitées.

Nous avons testé plusieurs marques de capillaires et plusieurs diamètres de cœur, l'application pour les microlidars de CIMEL nous limitant à un diamètre de 50  $\mu\text{m}$ . Le liquide Raman choisi est le DMSO car son indice est de 1,48 et son décalage Raman est le même que celui de l'éthanol, autour de 3000  $\text{cm}^{-1}$ .

À ce stade, nous pouvons préciser que si le DMSO possède beaucoup de propriétés intéressantes (il n'est pas toxique et très utile pour la dilution), il s'agit d'un liquide visqueux donc difficile à nettoyer et surtout, il est déconseillé de l'utiliser pur sous une température de 18,5°C car sinon il gèle. Mais fort heureusement, légèrement dilué dans de l'eau cette température baisse à 0°C. Pour effectuer des tests préliminaires, nous avons utilisé du DMSO pur et travaillé à 20°C.

Nous présentons dans la suite les meilleures performances obtenues avec un capillaire de chez Polymicro de 1 mètre de long, 50  $\mu\text{m}$  de diamètre de cœur et rempli de DMSO. La source de pompe est toujours le laser Horus (HLX-G-F004). Nous avons obtenu les trois premiers ordres Stokes du DMSO, à 630 nm, 772 nm et 995 nm et n'avons pas observé d'effets rétrodiffusés. Nous avons mesuré les énergies transmises en fonction de l'énergie de pompe incidente en Figure II-34. Sous le seuil Raman, le taux de couplage du faisceau de pompe dans le convertisseur est de 65%. Le premier ordre Stokes à 630 nm apparaît pour une énergie de pompe incidente de 0,5  $\mu\text{J}$ , son énergie augmente jusqu'à l'apparition du second ordre Stokes à une énergie de pompe incidente de 2  $\mu\text{J}$ . L'énergie maximale délivrée par le convertisseur est de 1,41  $\mu\text{J}$  à 772 nm pour une énergie de pompe incidente de 5  $\mu\text{J}$ . Le troisième ordre Stokes à 995 nm apparaît alors au détriment de l'énergie à 772 nm qui diminue.

Nous avons mesuré le spectre transmis par ce convertisseur à l'aide de la source supercontinuum (Figure II-35). Nous voyons que les raies à 532 nm, 630 nm et 772 nm sont bien dans la bande de transmission du convertisseur et ne subissent pas d'absorption

notable. En revanche, la raie à 995 nm est fortement absorbée par le DMSO, ce qui explique son seuil Raman assez élevé (sans absorption, il devrait se situer vers 3,5  $\mu\text{J}$  au lieu de 5  $\mu\text{J}$ ). Ce troisième ordre Stokes est gênant à double titre : il limite l'énergie délivrée par le convertisseur à 772 nm et, de par son absorption, est susceptible de générer des effets thermiques provoquant l'apparition de bulles. Cela étant, les bulles générées dans ces convertisseurs utilisant des capillaires sont moins difficiles à évacuer que dans les fibres microstructurées et présentent moins d'effets destructeurs et irréversibles.

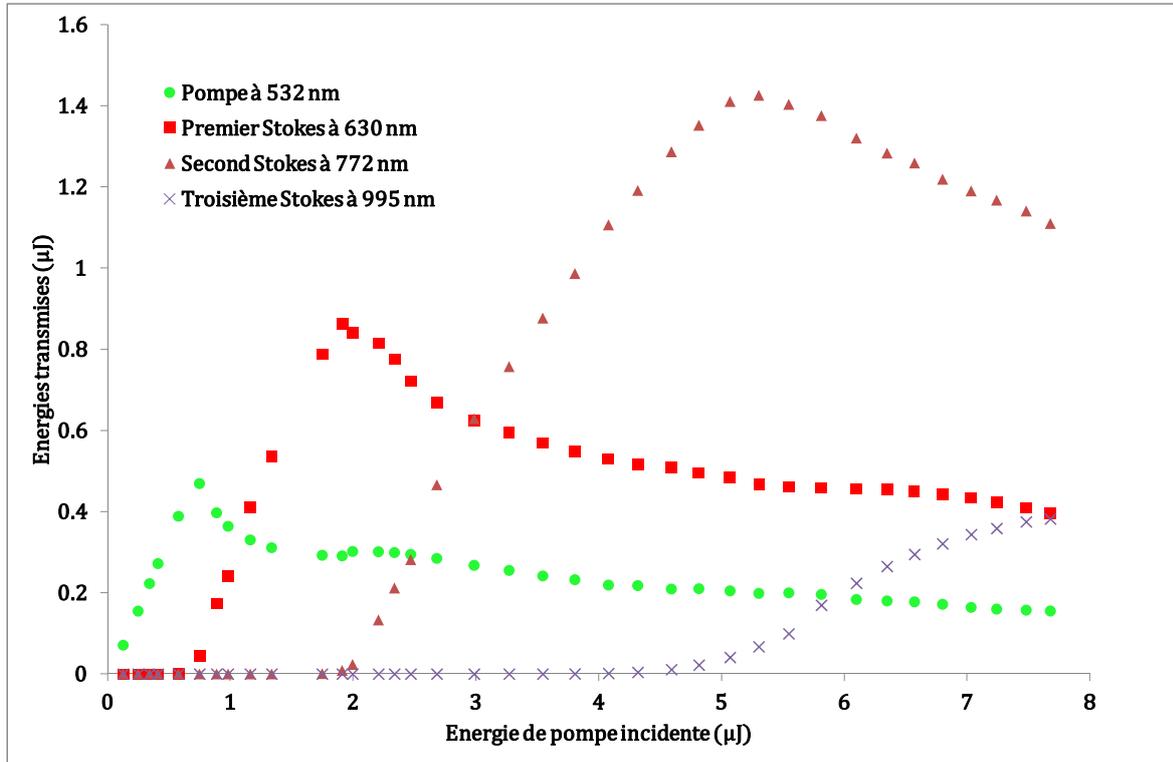


Figure II-34 – Énergies transmises de la pompe (cercles verts), du premier ordre Stokes à 630 nm (carrés rouges), du second ordre Stokes à 772 nm (triangles roses) et du troisième ordre Stokes à 995 nm (croix violettes) en fonction de l'énergie de pompe incidente pour un convertisseur réalisé avec un capillaire de 50  $\mu\text{m}$  de diamètre rempli de DMSO.

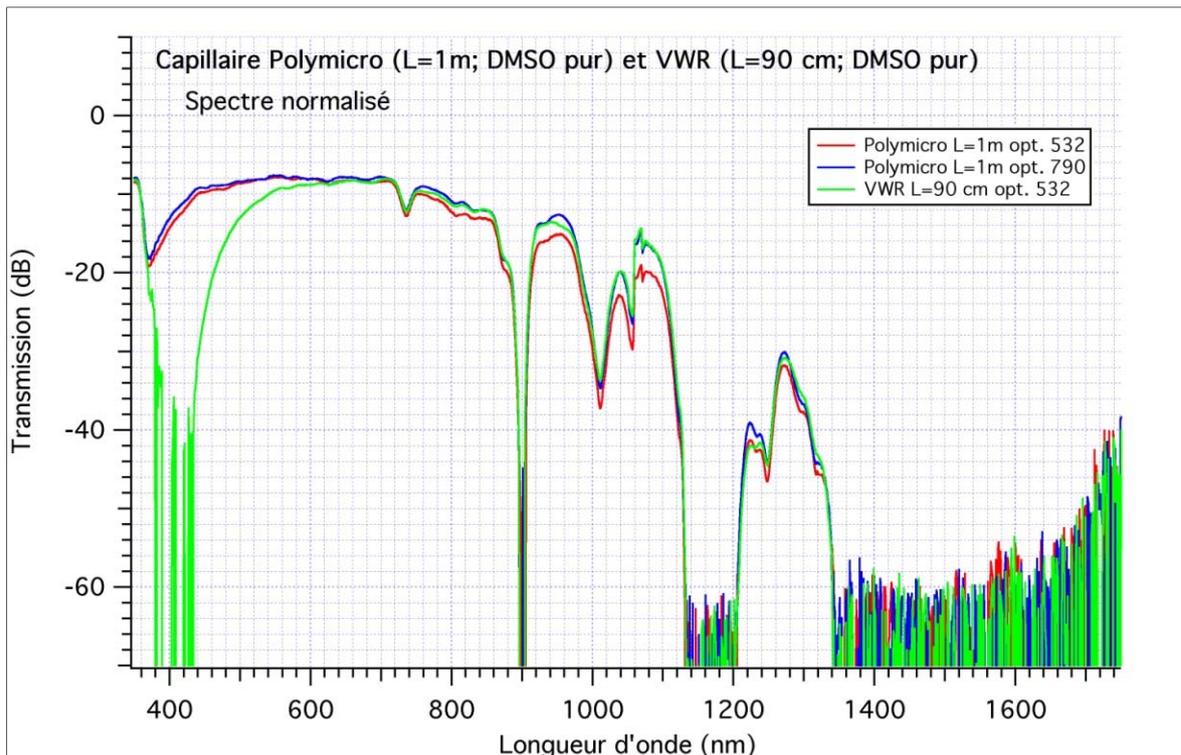


Figure II-35 – Bandes de transmission de deux capillaires remplis de DMSO, l'un provenant de chez Polymicro (longueur de 1 mètre, optimisé à deux longueurs d'onde différentes, 532 nm et 790 nm), l'autre de chez VWR (longueur de 90 cm).

Comme attendu, les faisceaux issus de ce convertisseur sont très multimodes, comme on peut le voir en Figure II-36.

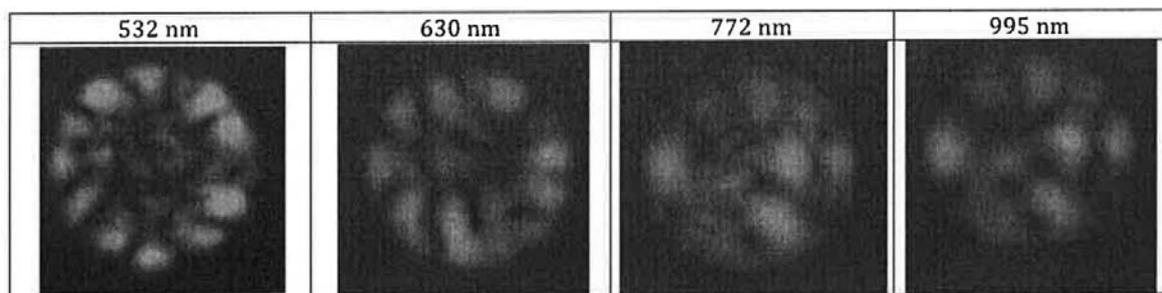


Figure II-36 – De gauche à droite : modes en champ proche en sortie de convertisseur réalisé avec un capillaire Polymicro de 50 µm de diamètre de cœur rempli de DMSO, à 532 nm (énergie incidente de 0,1 µJ), à 630 nm (énergie incidente de 0,74 µJ), à 772 nm (énergie incidente de 1,78 µJ) et 995 nm (énergie incidente de 2,9 µJ).

Par conséquent ces convertisseurs sont également très sensibles aux conditions expérimentales (injection du faisceau de pompe, positionnement de la fibre). Une solution pourrait être de coupler tout d'abord le faisceau de pompe gaussien dans une fibre multimode afin d'obtenir un speckle en sortie, puis d'injecter ce nouveau faisceau dans le convertisseur, afin d'exciter de façon plus uniforme les modes du capillaire et d'avoir une puissance de sortie plus stable. Cependant, en plus d'ajouter de la complexité au montage, l'inconvénient de cette solution est qu'il faut utiliser un capillaire beaucoup plus long car les modes sont moins confinés et les seuils Raman sont ainsi plus élevés.

En conclusion de cette étude, nous avons amélioré l'énergie de sortie à 772 nm en passant de 1  $\mu$ J avec la fibre Kagomé à 1,41  $\mu$ J avec un capillaire. Plusieurs pistes d'amélioration pourraient être envisagées pour atteindre l'énergie requise à 772 nm par le cahier des charges fixé par CIMEL, comme l'optimisation de la bande de transmission de fibres Kagomé à large cœur permettant un guidage sur le mode fondamental ou l'utilisation de liquides de plus fort gain Raman (avec une fibre Kagomé ou un capillaire). Des travaux récents sur l'optimisation de fibres guidant par couplage inhibé laissent entrevoir de telles possibilités [DESBORD].

## **II.1. Extension des possibilités**

Les études les plus complètes ont été réalisées avec des convertisseurs utilisant la diffusion Raman stimulée dans l'éthanol en pompage sub-nanoseconde avec un microlaser à 532 nm avec une cadence de l'ordre du kHz et des énergies de l'ordre du  $\mu$ J, pour une émission à 630 nm. D'autres longueurs d'onde dans le visible ont été démontrées expérimentalement de façon ciblée : 595 nm, 583 nm. Pour obtenir ces longueurs d'onde, il a été nécessaire de générer leur premier ordre Stokes : 561 nm et 556 nm.

Nous avons également pu observer de la diffusion Raman stimulée sur une raie secondaire de l'éthanol à 667 nm. Enfin, nous avons atteint le proche infrarouge à 772 nm. D'autres liquides dont nous n'avons pas parlé dans le manuscrit ont été testés, comme l'eau, le méthanol, l'acétone, les fluorocarbones, le dichloroéthane, le propan-1-ol. Lors du stage de Mason Carney (2009) un convertisseur rempli d'eau a notamment permis de générer le premier ordre Stokes à 650 nm avec une efficacité de conversion interne de 30%. En tout, une petite dizaine de longueurs d'onde ont été obtenues à partir d'un laser de pompe à 532 nm.

D'autres paramètres peuvent être changés pour étendre les possibilités de nos convertisseurs : la longueur d'onde du laser de pompe, la durée de l'impulsion, la fréquence de répétition. Nous présentons dans la suite les essais qui ont été réalisés.

### **II.1.1. Utilisation d'un laser de pompe émettant à 355 nm**

Ces études ont été réalisées dans le cadre du stage de M2 de Pierre-Yves Perrin (2014) et d'un contrat d'ingénierie de recherche de Minh Châu Phan Huy (2013-2016). Le but est d'étendre la gamme de longueurs d'onde de nos convertisseurs vers le bleu, ce qui est intéressant pour l'excitation de nombreux fluorophores.

Une collaboration a été initiée en ce sens avec Rainer Siebert et Darine Haïdar, chercheurs au laboratoire d'Imagerie et de Modélisation en Neurobiologie et Cancérologie (IMNC, Université Paris XI, Université Paris VII et IN2P3). Dans le cadre d'un modèle animal (tumeur cérébrale chez le rat), l'équipe de l'IMNC exploite le spectre d'autofluorescence des tissus à 405 nm dans l'objectif de développer de nouvelles méthodologies optiques in vivo pour le diagnostic en cancérologie.

À cette longueur d'onde, l'analyse spectrale de la fluorescence des flavins, lipopigments et porphyrines est possible et peut potentiellement renseigner sur la malignité du tissu [SIEBERT]. Nous proposons de développer un convertisseur Raman émettant autour de 400 nm pour comparer dans un premier temps les résultats aux nombreuses données déjà obtenues et valider ainsi son aptitude pour de telles expériences. Cette validation est assez facilement réalisable, étant donné que le dispositif de mesure existe déjà à l'IMNC et que seule la source d'excitation est à changer. Une puissance moyenne d'une centaine de  $\mu\text{W}$  autour de 400 nm est nécessaire pour cette application.

Pour atteindre des longueurs d'onde autour de 400 nm, une possibilité est de partir d'un laser de pompe à 532 nm et de réaliser de la diffusion Raman stimulée anti-Stokes. Cette solution basée sur un mécanisme de mélange à quatre ondes est très intéressante et ambitieuse car elle nécessite le contrôle de la condition d'accord de phase et demande donc une gestion fine de la dispersion chromatique de la fibre microstructurée.

Une autre solution plus simple est de partir d'un laser à plus basse longueur d'onde, 355 nm par exemple, et de trouver un liquide permettant par diffusion Raman stimulée Stokes d'atteindre la longueur d'onde souhaitée. Nous avons choisi d'étudier cette solution et avons approvisionné un laser émettant à 355 nm des impulsions de 0,85 ns avec une énergie maximale de 10  $\mu\text{J}$  par impulsion à une fréquence de répétition de 1 kHz (CryLas, FTSS355-Q3).

Il y a plusieurs difficultés à travailler dans le bleu-UV par rapport au visible. Tout d'abord les liquides usuels commencent à absorber la lumière, rendant les problèmes de formation de bulles potentiellement très critiques. De plus nous avons été confrontés à plusieurs difficultés expérimentales en travaillant à ces nouvelles longueurs d'onde : les optiques étant moins transparentes que dans le visible, il est plus difficile de visualiser les faisceaux et notre source supercontinuum voit sa puissance chuter sous 400 nm, rendant les mesures de déplacement des bandes plus compliquées.

Le liquide Raman choisi pour réaliser le premier convertisseur est le propan-1-ol qui a un indice de réfraction de 1,37 et dont la raie Raman principale est à  $2876\text{ cm}^{-1}$ . Pompé à 355 nm, le premier ordre Stokes du propan-1-ol se situe à 395 nm. La fibre choisie est une fibre commerciale à bande interdite photonique (réf. HC 800-02 de chez NKT Photonics). La bande de transmission de cette fibre dans l'air est située autour de 800 nm. Lorsqu'elle est remplie de propan-1-ol, elle se décale autour de 400 nm. Nous avons observé le premier ordre Stokes du propan-1-ol à 395 nm dans un convertisseur de 1 mètre à une énergie incidente de 114 nJ (voir Figure II-37). Faute de temps il n'a pas été possible de réaliser d'autres mesures mais ces résultats sont très prometteurs car l'énergie couplée dans la fibre était très faible, seulement de l'ordre de quelques pourcents.

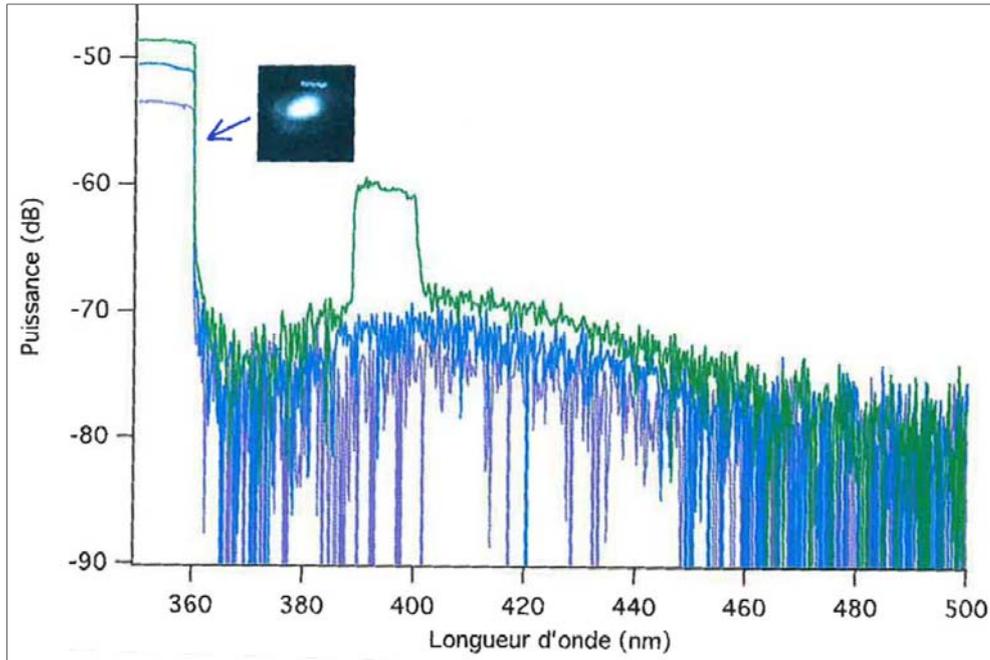


Figure II-37 – Spectre en sortie du convertisseur HC 800-02 rempli de propan-1-ol. L'énergie avant la lentille de couplage dans la fibre vaut 19 nJ, 50 nJ et 114 nJ (respectivement en violet, bleu et vert).

### II.1.2. Cascade de convertisseurs

Cette étude a été réalisée dans le cadre du stage de première année à l'IOGS d'Alexis Cojan (2011). L'objectif était d'étendre la gamme spectrale de nos convertisseurs en cascade deux convertisseurs Raman : un premier convertisseur 532 nm → 630 nm vient pomper un second convertisseur émettant à 672 nm.

Le premier convertisseur est notre convertisseur "standard", une fibre HC 1060-02 remplie d'éthanol. Le second convertisseur a comme liquide Raman le toluène. Il doit avoir une bande de transmission contenant la nouvelle longueur d'onde de pompe de 630 nm et la longueur d'onde du premier ordre Stokes du toluène à 672 nm (le décalage Raman étant de 1000 cm<sup>-1</sup> pour le toluène).

Le calcul montre qu'en utilisant une fibre dont la bande de transmission dans l'air est à 1,5 μm, il faut utiliser un liquide dont l'indice est de 1,401. Un mélange contenant 44% de toluène et 56% de méthanol convient. Le rapport  $\frac{g_R^{\text{méthanol,mélange}}}{g_R^{\text{toluène,mélange}}}$  vaut environ 0,07 : le toluène reste bien le liquide Raman dans le mélange malgré sa forte dilution.

D'après les résultats obtenus en Figure II-24, le seuil Raman du second convertisseur peut être atteint pour une énergie couplée d'environ 0,03 μJ, ce qui est largement possible avec notre convertisseur 532 nm → 630 nm. La durée très limitée de ce stage (1 mois) nous a seulement permis de réaliser, caractériser les deux convertisseurs et commencer à injecter le faisceau issu du premier convertisseur à 630 nm dans le second convertisseur. Les cuves utilisées étaient similaires à celle de la Figure II-5, ajoutant une certaine complexité au montage. Reprendre ces études avec les microcuves mises au point plus tard et décrites au

paragraphe III.A rendrait probablement les manipulations plus commodes. Cette piste reste donc à envisager.

### II.1.3. Effets de la durée de l'impulsion

Cette étude a été réalisée dans le cadre du stage de M2 de Catherine Chin (2014) cofinancé par la société CIMEL. Les expériences sur les convertisseurs Raman ont été principalement effectuées avec une source de pompe sub-nanoseconde. Descendre à quelques centaines de picosecondes serait très favorable pour nos convertisseurs car le seuil de dommage serait augmenté et l'effet Brillouin serait en régime transitoire. La société TeemPhotonics commence à commercialiser des sources de type microlaser dans ce régime temporel et il serait très intéressant de les tester.

Aller au-delà de la nanoseconde est en revanche beaucoup moins favorable. Nous avons en effet vu que dans ce régime temporel la diffusion Brillouin est privilégiée par rapport à la diffusion Raman. Ces durées d'impulsion intéressent cependant la société CIMEL qui utilise également des impulsions d'une quinzaine de nanosecondes comme source de ses microlidars. Afin de réaliser des tests nous avons eu à notre disposition un laser délivrant des impulsions à 532 nm de 15 ns (CrystaLaser, QG-532-050YAG), utilisé à la fréquence de 1 kHz et d'environ 10  $\mu$ J par impulsion. Contrairement aux lasers utilisés précédemment, nous avons constaté que celui-ci est multimode longitudinal. Cette caractéristique permet de diminuer le gain Brillouin et donc d'augmenter son seuil d'apparition [AOKI].

Nous avons réalisé un convertisseur "standard" à partir d'une fibre HC 1060-02 remplie d'éthanol. Nous avons choisi une longueur de 1,3 m. Notons qu'à ces longueurs, les convertisseurs deviennent très longs à préparer et il est difficile de s'assurer que tous les trous de la gaine sont remplis convenablement. Le taux de couplage de ce convertisseur à 532 nm est de 30%.

À énergie de pompe incidente maximale, correspondant à une énergie couplée dans la fibre d'environ 3  $\mu$ J, nous avons observé le seuil d'apparition de la diffusion Raman à 630 nm, sans observer d'effet Brillouin rétrodiffusé alors que la longueur effective de l'interaction dans la direction contrepropagante est de l'ordre de la longueur de la fibre, voire même un peu plus grande. Le fait que le laser soit multimode longitudinal a vraisemblablement eu un effet sur la compétition entre l'effet Raman et l'effet Brillouin.

Si nous comparons le seuil Raman de cette expérience avec celui obtenu en Figure II-19 en terme de puissance crête de pompe injectée, on voit que pour la fibre de 35 cm en régime sub-nanoseconde ce seuil est à 600 W, tandis que pour la fibre de 1,3 m (soit environ trois fois plus grande) avec une durée d'impulsion de 15 ns, ce seuil est atteint pour une puissance trois fois plus faible d'environ 200 W. Tout semble se passer comme si la durée de l'impulsion pour la gamme considérée n'avait pas d'influence notable sur le seuil Raman.

Bien sûr ces résultats sont très préliminaires et demandent des études plus poussées pour pouvoir conclure définitivement. Nous avons toutefois mis en évidence un effet de diffusion

Raman dans ce régime temporel peu favorable, qu'il serait assez facile d'optimiser ne serait-ce qu'en améliorant le taux de couplage de la pompe dans la fibre.

#### II.1.4. Fréquence de répétition

Les fréquences de répétition testées varient d'une centaine de Hz à 40 kHz, sans que l'on note d'effets notables sur les efficacités de conversion ni sur les seuils de dommage. Passer à des fréquences de répétition de l'ordre du MHz serait très intéressant pour des applications en biophotonique. Les puissances crête risquent toutefois d'être trop faibles pour générer de la diffusion Raman et les effets d'échauffement du liquide par des puissances moyennes élevées pourraient être accentués.

#### II.1.5. Seuil de dommage

La formation de bulles dans le liquide remplissant le convertisseur est peut-être la principale limite de nos systèmes. Dans la littérature, ces bulles sont appelées bulles de cavitation. La physique de ces bulles est assez complexe et décrite notamment dans [LAUTERBORN,]. En quelques mots, ces bulles sont dues à l'absorption locale par le liquide de l'énergie laser, à l'endroit où sa densité est la plus importante. Au-delà d'une certaine densité d'énergie, il se produit le phénomène de claquage optique du liquide, caractérisé par le développement d'une bulle de vapeur et l'émission d'une onde de choc pouvant endommager la microstructure de la fibre.

Le point de départ de la formation de ces bulles est l'absorption de la lumière par des impuretés mais le liquide pur, de par son absorption résiduelle, peut aussi être le siège de ce claquage optique par des mécanismes d'ionisation multiphotonique et d'électrons en avalanche. Les impuretés peuvent être présentes vers l'entrée de la fibre (poussières résiduelles lors du clivage) ou dans le liquide lui-même malgré toutes les précautions prises. La présence de défauts le long de la fibre, peut jouer le même rôle de "point chaud". Parmi ces facteurs potentiels, il est difficile d'identifier celui ou ceux qui sont à l'origine de la formation d'une bulle dans nos convertisseurs. Le seuil d'apparition de ces bulles est par conséquent difficile à prévoir précisément. Nous estimons toutefois expérimentalement que l'ordre de grandeur du seuil de claquage en régime sub-ns est d'une densité de puissance crête de l'ordre de quelques  $\text{GW}/\text{cm}^2$ , correspondant à une densité d'énergie de quelques  $\text{J}/\text{cm}^2$ . Pour les convertisseurs utilisant la fibre HC 1060-02 avec un diamètre de mode d'environ  $4 \mu\text{m}$ , cela correspond à une énergie de l'ordre du  $\mu\text{J}$ . Pour une fibre Kagomé possédant un diamètre de mode de  $18 \mu\text{m}$ , cela correspond à une énergie d'une vingtaine de  $\mu\text{J}$ .

Expérimentalement, nous effectuons tous les réglages préliminaires à faible énergie injectée puis augmentons progressivement l'énergie incidente. Dès l'apparition d'une bulle, nous stoppons l'injection du laser et cherchons à la faire disparaître. La bulle peut se former vers l'entrée de la fibre ou à un emplacement le long de la fibre, de façon imprévisible. Lorsque la bulle se forme à l'entrée, un nouveau clivage, lorsqu'il est possible, permet souvent de retrouver les performances. Dans le cas contraire, nous évacuons cette bulle grâce à notre

système de microfluidique. Après l'évacuation d'une bulle formée le long de la fibre, le convertisseur peut retrouver ses performances mais la plupart du temps celles-ci se dégradent lentement jusqu'à ce que le convertisseur ne transmette plus du tout la lumière.

Des études ont montré que le seuil de claquage dépend de la longueur d'onde mais surtout de la durée d'impulsion [VOGEL]. Le seuil de claquage en densité de puissance crête augmente lorsque la durée de l'impulsion diminue. Afin de favoriser les non-linéarités, sensibles à la puissance crête, une solution serait de disposer d'une source laser de pompe dont la durée d'impulsion serait plus largement sub-nanoseconde (100 à 200 ps par exemple).

## **II.J. Conclusion sur les convertisseurs Raman**

En conclusion de ces études, nous avons mis au point des convertisseurs de longueur d'onde utilisant la diffusion Raman stimulée dans des liquides non linéaires remplissant des fibres microstructurées. Les mécanismes de propagation linéaire et non linéaire ont été étudiés. Plusieurs types de fibres ont été testés (fibres microstructurées à guidage par réflexion totale interne modifiée, à guidage par bande interdite photonique, à guidage par couplage inhibé, capillaires de silice).

Nous avons rapidement concentré nos travaux sur le caractère impulsionnel de ces convertisseurs, l'aspect continu étant déjà très bien couvert par les cristaux. Nous avons mis au point une technique de fermeture étanche des fibres ainsi qu'un outillage pour leur remplissage et leur vidange, ce qui a pu être réalisé grâce à l'aide des ateliers d'optique et de mécanique du LCF et a nécessité le déploiement d'une main d'œuvre très spécifique. Le remplissage et l'étanchéité sont probablement des points bloquants pour d'autres équipes de recherche travaillant sur des fibres remplies de liquides car nous avons été plusieurs fois contactés pour savoir comment nous procédions.

Ces convertisseurs nous ont permis d'atteindre une dizaine de longueurs d'onde discrètes dans le visible à partir d'une seule source de pompe impulsionnelle à 532 nm. Les énergies délivrées sont de l'ordre du  $\mu\text{J}$ , avec des durées d'impulsion sub-nanoseconde. Les puissances crête délivrées par nos convertisseurs peuvent atteindre quelques kW. Les efficacités de conversion sont élevées, pouvant atteindre plus de 70% sur le premier ordre Stokes et 40% sur le second ordre Stokes. Les raies sont assez fines spectralement, typiquement de l'ordre de 0,2 nm. Les faisceaux émis sont de bonne qualité spatiale et compatibles avec des fibres optiques standard, rendant possible sans trop de perte l'insertion de ces convertisseurs dans des réseaux fibrés.

Le contrôle de la physique et de la technologie de ces convertisseurs a été mis à profit dans notre groupe de recherche dans les expériences de mélanges à quatre ondes dans des fibres remplies de liquides menées par Philippe Delaye. Il reste encore beaucoup de possibilités à explorer avec ces convertisseurs, possibilités que j'évoquerai à la fin de ce manuscrit.

Nos convertisseurs associés à une source de pompe type microlaser constituent des sources laser impulsionnelles multi longueurs d'onde originales, brillantes spatialement et

spectralement, qui n'existent pas sur le marché et pourraient offrir de nouvelles possibilités en recherche ou dans l'industrie. Ils reçoivent régulièrement un très bon accueil dans la communauté scientifique, que ce soit au niveau des laboratoires ou des entreprises commercialisant des lasers, ce qui nous a encouragés à mener une vaste étude de valorisation pour sonder les marchés. La démarche de valorisation suivie fait l'objet du chapitre suivant.

## CHAPITRE III - VALORISATION

Nous avons entamé une démarche de valorisation de nos convertisseurs en 2008, suivie par FIST SA (organisme de valorisation du CNRS). À cette époque, le mot “valorisation” était assez flou et ne représentait pas le cœur de métier d’une enseignante-chercheuse. Il y a un tel décalage entre le “temps enseignant-chercheur” finalement assez lent, rythmé par les cours, l’échéance des appels à projets, la rédaction d’articles etc ... et le “temps valorisation industrielle” rythmé par tout un panel de “speed dating” et de “pitch” qu’il est très compliqué d’entreprendre des recherches académiques en parallèle. Et ceci sans parler du fossé culturel qui sépare le monde académique du monde industriel. Je pense qu’il est toutefois légitime de parler de cette période de ma carrière dans ce manuscrit d’habilitation à diriger des recherches, ayant encadré plusieurs ingénieurs et stagiaires sur ce projet.

Ces actions de valorisation ont été bien accueillies par la communauté scientifique puisque nous avons obtenu plusieurs prix pour ce projet RAMBIO : prix Fibre de l’Innovation 2011 décerné par Optics Valley, Photon d’Argent 2014 aux Vitrines de l’Innovation sur le salon ENOVA, 1<sup>er</sup> prix au 11<sup>ème</sup> prix de la valorisation de l’Université Paris-Sud 2014. Nous avons également reçu un certain nombre de financements pour mener à bien nos études. Ces financements sont répertoriés dans le Tableau III-1 page 90.

Je vais structurer ce chapitre en répondant à plusieurs questions-clefs que j’estime importantes de se poser quand on parle valorisation, et en présentant les actions qui en ont découlé. Ces questions sont :

- Quel produit ?
- Quelle forme ?
- Quel porteur de projet ?
- Quels marchés ?

### ***III.A. Quel produit ?***

Deux possibilités sont envisageables : vendre des convertisseurs RAMBIO à l’unité à connecter à la sortie d’un laser (un convertisseur = une ou deux nouvelles longueurs d’onde), ou vendre un système comprenant le laser de pompe et un convertisseur connecté (pour changer de longueur d’onde l’utilisateur doit changer de convertisseur). Quelle que soit la solution retenue, la première étape est de trouver un moyen pour fermer les extrémités de la fibre une fois remplie de liquide.

Nous avons fait des tests à l’aide d’une soudeuse à fibre (GPX 3400, Vytran) en faisant varier les paramètres de chauffage du filament de graphite et en essayant de fermer les extrémités d’une fibre microstructurée remplie d’eau. En utilisant une montée de la température de

chauffage par palier il est possible de refermer les trous de la fibre à une extrémité avec une zone de transition assez petite (quelques mm) en conservant le liquide dans les trous. Les pertes sont assez élevées et surtout il est difficile de conserver un guidage dans le cœur. La fermeture de la seconde extrémité a été réalisée mais une bulle de gaz reste systématiquement enfermée dans la fibre et ne se résorbe pas.

Nous avons alors étudié une solution mécanique pour miniaturiser les cuves en inox utilisées pour les premières démonstrations de principe. Cette solution est présentée schématiquement en Figure III-1 où l'on voit une microcuve dans laquelle on vient placer une extrémité de la fibre. Il y a donc deux microcuves par convertisseur. Une des deux microcuves est remplie de liquide par le trou transverse du manchon et le liquide entre dans la fibre par capillarité. Un système de microfluidique permet d'accélérer le remplissage de la fibre. Une fois remplie la microcuve de sortie est remplie à son tour puis fermée hermétiquement par un microbouchon, et on procède de même avec la microcuve d'entrée. L'introduction contrôlée d'une bulle d'air permet d'absorber des variations de température et de pression. Un brevet a été déposé sur ce dispositif en 2012. Le hublot, le manchon et le microbouchon sont fabriqués par les ateliers d'optique et de mécanique de l'IOGS. La férule est un produit commercial.

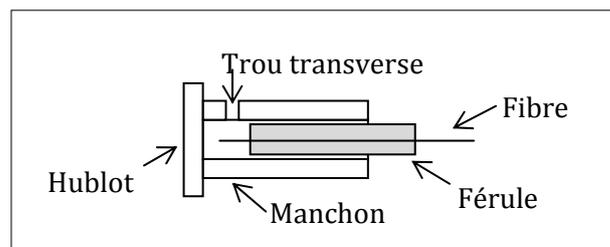


Figure III-1 – Schéma d'une microcuve fabriquée à l'IOGS. Le microbouchon refermant le trou transverse n'est pas représenté.

Nous présentons en Figure III-2 un convertisseur de longueur d'onde RAMBIO fabriqué à l'IOGS, résultat de plusieurs années de savoir-faire dans le choix des matériaux et des colles, la réalisation d'un outillage dédié au câblage des convertisseurs, la définition des procédures de câblage, le remplissage, le mode de vidange de la fibre, le développement d'un système de microfluidique.

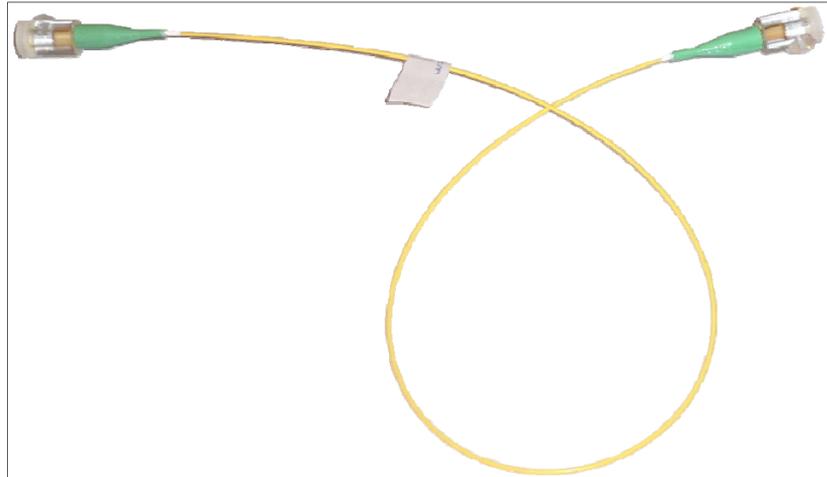
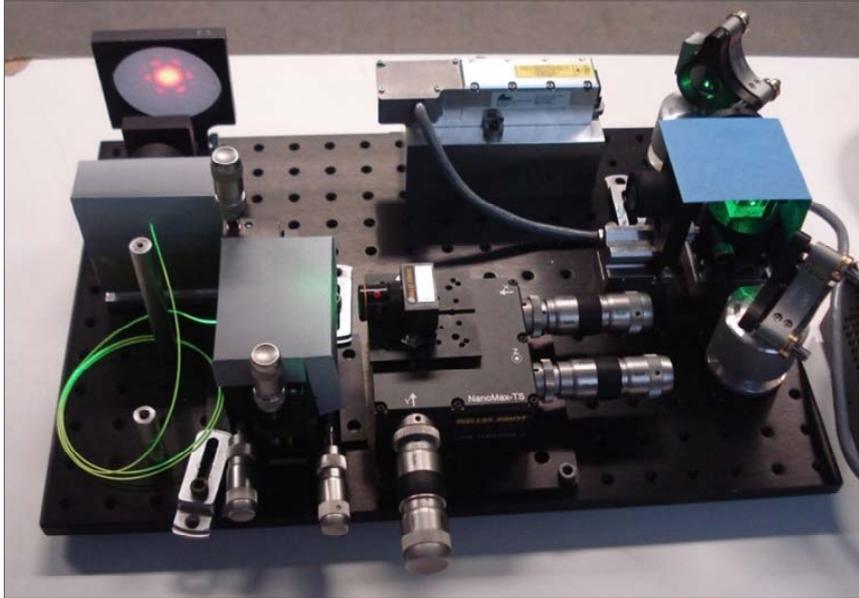


Figure III-2 – Convertisseur de longueur d'onde RAMBIO 532 nm → 630 nm. On voit les extrémités hermétiquement fermées par deux microcuves fabriquées à l'IOGS.

En parallèle de ces travaux de miniaturisation nous avons entrepris des tests de fiabilité de nos convertisseurs : étude de l'étanchéité des microcuves, réponse à des variations de température, évolution de la transmission optique sur le long terme grâce à un banc de caractérisation spécifique. Ces deux dernières études n'ont pas pu être menées tout à fait à leur terme faute de temps, mais pourraient être reprises au besoin.

Parmi les deux possibilités évoquées au début de ce paragraphe la solution qui nous semble la plus pertinente est de proposer dans un premier temps un système comprenant un laser de pompe avec un convertisseur délivrant une nouvelle longueur d'onde. Il s'agit d'une part de la solution présentant la plus forte plus-value et d'autre part elle fournit à l'utilisateur un produit "clef en main". Le couplage dans le convertisseur s'effectue en espace libre, par une mécanique qu'il reste à étudier. Afin de se faire une idée du système final, la Figure III-3 montre un prototype RAMBIO tel que nous l'avons présenté lors de plusieurs salons. D'autres architectures peuvent être envisagées comme distribuer la pompe sur plusieurs convertisseurs pour délivrer plusieurs nouvelles longueurs d'onde en parallèle.



*Figure III-3 – Prototype RAMBIO présenté sur le salon du colloque OptDiag 2014 avec un convertisseur 532 nm → 630 nm. On voit le faisceau de sortie à 630 nm en aval d'un filtre rouge. L'injection du laser de pompe dans le convertisseur est effectuée par un objectif de microscope. Les optiques en amont de l'objectif permettent de contrôler la puissance de pompe injectée dans le convertisseur.*

Se pose également la question du prix et de l'approvisionnement des "matières premières", le point le plus critique étant bien sûr la fibre. À plusieurs centaines d'euros le mètre chez CrystalFiber ou chez GloPhotonics, il est difficile de faire baisser le coût de fabrication d'un convertisseur, d'autant plus qu'actuellement seules ces deux sociétés peuvent fournir des fibres microstructurées avec peu de pertes. Afin d'augmenter le nombre de fournisseurs potentiels de fibre, nous avons réalisé des tests avec des fibres microstructurées fournies par la plateforme de technologie PERFOS à Lannion. Si les performances ne sont pas encore optimisées pour nos applications, cette piste peut encore être creusée.

### **III.B. Licence d'exploitation ou création d'entreprise ?**

La création d'entreprise, si le marché s'y prête, nous a semblé être dans un premier temps la solution la plus intéressante, probablement car étant la plus ambitieuse. Nous réservons la solution de vendre des licences d'exploitation en cas d'échec. Des sociétés fabriquant des microlasers pourraient être intéressées par étendre leur gamme de longueurs d'onde disponibles grâce à notre technologie. Avec du recul, je pense que nous aurions dû nous orienter beaucoup plus rapidement vers cette solution de repli, dès lors qu'une entreprise s'est montrée intéressée par nos convertisseurs.

### **III.C. Quel·le porteur·se de projet ?**

Nous bénéficions à l'IIOGS d'un environnement favorable à la création d'entreprise, notamment par des étudiants de la filière innovation-entrepreneurs (FIE), en 2<sup>ème</sup> ou en 3<sup>ème</sup> année. En quelques mots, un groupe de deux à trois étudiants de cette filière choisit un sujet à potentiel entrepreneurial, et sur son temps dédié au projet, fait une étude de marché et un début de "business plan". Le groupe décide à la fin de sa scolarité si l'un ou plusieurs d'entre eux souhaite se diriger vers la création d'entreprise. Nous avons encadré deux groupes d'étudiants de la FIE, l'un en 2012, l'autre en 2015, mais pour faire simple et sans polémique, la mayonnaise n'a pas pris. Nous avons cherché par d'autres moyens de recruter un·e porteur·se de projet (étudiant·e en MBA, étudiant·e en sortie d'école d'ingénieur etc ...), sans succès. Avec un peu de recul je pense que d'une part notre technologie n'était pas assez mature et d'autre part les marchés n'étaient pas assez bien identifiés pour espérer convaincre un·e porteur·se de projet.

Convaincue malgré tout de l'intérêt de nos convertisseurs, j'ai commencé à étudier la possibilité de créer moi-même cette entreprise, en assistant à des présentations d'entrepreneurs, à une formation sur l'entreprenariat ("Laboratoire et start ups" en 2015, formation délivrée par le CNRS). Je suis également entrée en contact avec deux chargés de mission chez IncubAlliance (incubateur de Paris-Saclay) pour bénéficier de leurs conseils. Après une phase un peu grisante où l'on se projette CEO d'une start-up, et pour reprendre une métaphore culinaire, le soufflé est retombé progressivement lorsque j'ai réalisé que je n'étais décidément pas faite pour cette aventure. La solution de la licence d'exploitation est donc celle privilégiée à l'heure actuelle et est entre les mains de FIST SA.

### **III.D. Quels sont les marchés ?**

Au fil des mois et des contacts que nous avons pu avoir lors de nos prospections, trois marchés se sont dégagés : celui des laboratoires (le plus naturel), le marché des microlidars et celui du détatouage. Une étude de marché menée par la société LMDC (Laser Medical Devices Consulting) a été intégralement dédiée au détatouage. Une seconde étude de marché a été réalisée par la société Tech2market sur tous les marchés possibles, hormis détatouage et microlidars.

#### **III.D.1. Le marché des laboratoires**

Afin d'évaluer le marché des laboratoires et de sonder l'intérêt des chercheurs pour notre technologie, nous avons réalisé une plaquette de présentation de nos convertisseurs, qui a été diffusée sur plusieurs réseaux. Nous avons également présenté un prototype de système RAMBIO sur le salon du colloque OptDiag en 2014 et en 2016, colloque national et pluridisciplinaire sur le thème du diagnostic et de l'imagerie optique en médecine et en biologie. À chaque fois, nos convertisseurs ont reçu un très bon accueil - et j'ai même eu

plusieurs demandes de commande que nous n'avons malheureusement pas pu honorer. Les applications visées sont par exemple la spectrométrie de fluorescence ou encore la réalisation d'une source pour microscope STED. Le marché des laboratoires reste toutefois un marché de niche.

### III.D.2. Le marché des microlidars

Le marché des microlidars nous a semblé être intéressant même s'il s'agit également d'un marché de niche. Avec la société CIMEL nous avons vu que si nous souhaitons pouvoir y prétendre, il est nécessaire d'augmenter l'énergie par impulsion et donc de poursuivre les études de développement de nos convertisseurs.

### III.D.3. Le marché du détatouage

Un contact avec la société LMDC nous a aiguillés vers le marché très prometteur du détatouage en dermatologie. Une étude de marché sur le détatouage a été financée par OSEO. Rien qu'aux États-Unis, on estime que 45 millions de personnes sont tatouées. Au moins 20% de ces personnes souhaitent faire enlever leur tatouage dans les années qui suivent sa création. Ce détatouage s'effectue actuellement principalement à l'aide de lasers impulsionsnels. Néanmoins, moins de 2% de ces détatouages se passent parfaitement.

Différentes études montrent que la durée optimale des impulsions laser doit être de l'ordre de la centaine de picosecondes. Cette durée est en effet suffisante pour chauffer les particules de pigment et les faire exploser, le système lymphatique les éliminant ensuite. Une durée d'impulsion plus longue n'est non seulement pas plus efficace mais, en outre, l'énergie supplémentaire déposée chauffe les tissus et les endommage. Les impulsions employées dans les dispositifs commerciaux ont une durée de 10 ns à plusieurs dizaines de nanosecondes et ne sont donc pas adaptées. Dans les mois qui ont suivi notre étude de marché, en 2013, une société leader dans ce domaine a d'ailleurs commercialisé une source laser délivrant des impulsions de 750 ps. De plus, seul un petit nombre de longueurs d'onde sont disponibles (755 nm, 1064 nm et 532 nm parmi les plus fréquentes). Des embouts avec des colorants solides permettent à partir du Nd:YAG doublé d'obtenir 585 nm et 650 nm, mais les rendements sont très faibles. Une meilleure couverture en longueur d'onde permettrait de s'attaquer efficacement à n'importe quel pigment coloré.

Les sources RAMBIO que nous développons présentent donc un double intérêt, puisqu'elles peuvent délivrer une durée d'impulsion de quelques centaines de ps, voire moins en théorie, à des longueurs d'onde qui peuvent être adaptées selon la couleur du pigment à détruire. De plus, nos systèmes utilisent comme source de pompe un microlaser, dont le prix est un ordre de grandeur moins cher que les sources laser habituellement utilisées pour le détatouage.

Pour donner des ordres de grandeur le laser "idéal" doit délivrer plusieurs longueurs d'onde, avec une durée d'impulsion de 300 ps. Étant donnée la meilleure efficacité du mécanisme, la densité d'énergie déposée doit être de l'ordre de  $30 \text{ mJ/cm}^2$  sur une surface d'un diamètre de

1 mm. Avec nos sources RAMBIO réalisées à partir d'une fibre à bande interdite et émettant des impulsions d'une durée de 400 ps, nous pouvons atteindre  $5 \text{ J/cm}^2$  à 630 nm mais sur des surfaces beaucoup plus petites, d'environ  $4 \mu\text{m}$  de diamètre. En étalant le faisceau à la sortie de fibre sur un diamètre de 1 mm, nous obtenons une densité d'énergie de  $80 \mu\text{J/cm}^2$ , et avec un diamètre de  $100 \mu\text{m}$ , une densité d'énergie de  $8 \text{ mJ/cm}^2$ .

Nous avons également vu qu'il est possible d'augmenter le diamètre du mode en sortie de fibre. Avec une fibre de type Kagomé nous avons obtenu un diamètre de mode d'une vingtaine de  $\mu\text{m}$ , une énergie sur le premier ordre Stokes d'environ  $2 \mu\text{J}$  et une durée d'impulsion inférieure à 900 ps (non mesurée, mais nous pouvons l'estimer à environ 700 ps). La densité d'énergie disponible en sortie de fibre est de  $0,6 \text{ J/cm}^2$ . Si l'on étale le faisceau sur 1 mm, nous obtenons une densité d'énergie de  $240 \mu\text{J/cm}^2$ , qui passe à  $24 \text{ mJ/cm}^2$  avec un diamètre de faisceau de  $100 \mu\text{m}$ .

Ces ordres de grandeur nous montrent que les performances de nos systèmes RAMBIO ne sont pas très éloignées de celles requises pour le détatouage. Pour répondre au cahier des charges nous constatons qu'il faut augmenter l'énergie délivrée par nos convertisseurs. Diminuer la durée de l'impulsion devrait permettre d'augmenter la puissance crête couplée dans le convertisseur. Nous avons vu qu'il est difficile d'augmenter la taille du mode en faisceau de fibre au-delà de  $20 \mu\text{m}$  en conservant une assez bonne qualité spatiale. Une possibilité pour atteindre la densité d'énergie requise sur le derme serait d'utiliser des tailles de faisceaux de l'ordre de  $100 \mu\text{m}$ , donc plus petites que celles qui sont utilisées habituellement dans le détatouage laser, et de compenser par un balayage.

Beaucoup de développements restent donc à faire pour proposer un prototype de laser pour le détatouage. Nous avons souhaité dans un premier temps valider l'hypothèse de base, à savoir que le régime sub-nanoseconde est plus efficace que le régime multi-nanoseconde pour détruire les pigments de tatouage, ce qui a été observé lors d'une étude clinique [ROSS].

Nous avons monté une expérience avec deux lasers à 532 nm de durées d'impulsion différentes, 725 ps et 15 ns. La même densité d'énergie est déposée sur des pigments de tatouage noirs commerciaux placés dans une cuve. Après illumination de l'échantillon nous avons cherché à mesurer une différence de densité optique qui témoignerait d'une réduction des tailles de particules de tatouage, différente selon la durée de l'impulsion. Les premières expériences n'ont pas montré de diminution notable de densité optique. Les durées d'impulsion étaient peut-être trop voisines (Ross et al. avaient utilisé des durées de 30 ps et de 15 ns, pour mesurer une différence de densité de seuls quelques pourcents).

Même si le marché du détatouage laser est très prometteur et en pleine expansion, nous n'avons pas poussé cette étude plus loin pour plusieurs raisons : tout d'abord, de tels travaux ne constituent pas notre cœur de métier et demandent beaucoup d'investissement en termes de temps et de bras pour être menés à bien, sans compter les développements à réaliser pour atteindre un produit commercial.

### **III.E. Conclusion sur la valorisation**

Ces études de valorisation des convertisseurs RAMBIO se sont étalées sur une dizaine d'années, avec un pic d'activité entre 2009 et 2016. Ce fut pour moi une période très riche d'enseignements où j'ai eu l'occasion de mener un projet avec une équipe composée de chercheurs, d'ingénieurs et de stagiaires, dont le nombre a évolué au fil des contrats obtenus.

Nous avons également déposé un brevet, j'ai découvert le monde des start-ups et ai été confrontée à la vision des industriels sur le monde de la recherche. Le Tableau III-1 et le Tableau III-2 sont assez représentatifs des efforts mis sur ce projet.

Du point de vue technologique et scientifique, la miniaturisation des convertisseurs RAMBIO a été utilisée pour câbler des fibres utilisées sur une autre expérience, sur les sources de photons corrélés par mélange à quatre ondes dans une fibre à bande interdite photonique remplie de liquide, menée par Philippe Delaye, ce qui permet de rendre le montage plus compact et plus fiable.

Les actions de valorisation industrielle sur ces convertisseurs sont un peu laissées de côté dernièrement de manière à remettre davantage l'accent sur nos travaux scientifiques.

La compréhension des effets optiques non linéaires et les techniques mises en œuvre pour caractériser nos convertisseurs vont pouvoir s'appliquer à l'étude d'autres composants fibrés.

Contrats obtenus					
Type de financement	Année	Montant	Durée	Partenaires	Études menées
<b>Action de Soutien à la Technologie et à la Recherche en Essonne (A.S.T.R.E.)</b>	2009	52,8 k€	18 mois	Opton Laser International	Sources Raman compactes pour la biophotonique
<b>Collaboration de recherche Opton Laser International</b>	2009	24 k€	36 mois	Opton Laser International	Sources Raman compactes pour la biophotonique
<b>OSEO Aide au transfert technologie laboratoire</b>	2010	30 k€	18 mois		Ingénieur + étude PI
<b>Triangle de la Physique (valorisation)</b>	2010	50 k€	37 mois	IMNC	Ingénieur + matériel
<b>AIMA</b>	2014	20 k€	12 mois		Étude de marché sur le détatouage menée par LMDC, manip détatouage
<b>ActPhast</b>	2015	45 k€	6 mois	CIMEL	Convertisseur proche infrarouge pour microlidar
<b>Aide CNRS Ingénieur</b>	2014	60 k€	12 mois		Projet RAMBIO
<b>Aide Direction de l'Innovation et des Relations avec les Entreprises CNRS</b>	2015	18 k€	6 mois		Étude de marché globale (sauf détatouage) menée par Tech2market
<b>Prix de la valorisation de l'Université Paris XI</b>	2015	40 k€	1 mois		Projet RAMBIO, ingénieur et matériel
<b>Prématuration IDEX</b>	2015	67 k€	12 mois		Ingénieurs Étude de fiabilité et amélioration du système de convertisseurs de longueur d'onde

Tableau III-1 – Sources de financement du projet RAMBIO.

Contrats non obtenus			
Type de financement	Année	Partenaires	Études prévues
<b>ANR Programme blanc</b>	2008	Opton Laser International – OXXIUS – PERFOS	Sources Raman multiraies compactes et adaptables pour des applications en biophotonique
<b>ANR Programme blanc</b>	2009	Opton Laser International – OXXIUS – PERFOS	Sources Raman multiraies compactes et adaptables pour des applications en biophotonique
<b>Triangle de la Physique (valorisation)</b>	2009	IMNC	Sources Raman compactes pour la biophotonique (détection in vivo de cancers)
<b>Triangle de la Physique (valorisation)</b>	2010	IMNC	Sources Raman compactes pour la biophotonique (détection in vivo de cancers)
<b>CNano Programme francilien de recherche en nanosciences (valorisation)</b>	2011		Connectorisation bas coût pour convertisseurs de longueurs d'onde

Tableau III-2 – Financements demandés mais non obtenus pour le projet RAMBIO.

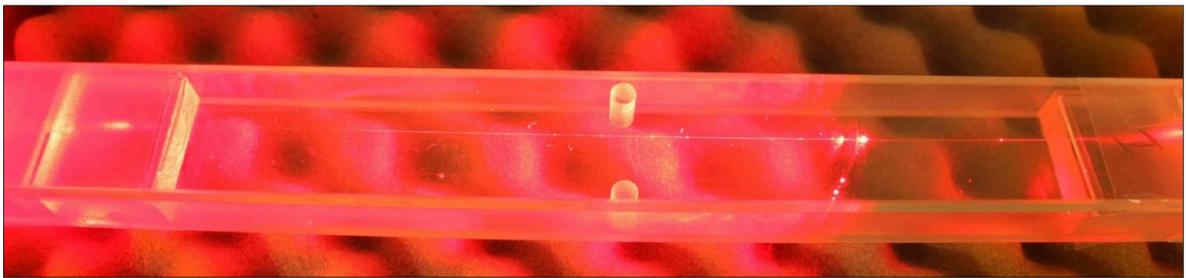
## CHAPITRE IV - NANOFIBRES

### IV.A. Contexte et motivations

Une nanofibre optique est obtenue par étirage à chaud d'une fibre optique jusqu'à ce que son diamètre atteigne quelques centaines de nanomètres. La nanofibre, reliée par deux sections coniques, appelés communément "tapers", à deux sections non-étirées de la fibre initiale est ainsi obtenue (cf. photo de la Figure IV-1 et schéma de principe de la Figure IV-3).

Étiré à partir d'une fibre optique standard de silice utilisée dans les télécommunications, le composant peut ainsi être facilement inséré dans les réseaux optiques fibrés, avec des pertes d'insertion minimales. Il existe une littérature très abondante sur les nanofibres, que ce soit sur les méthodes de fabrication, leurs caractérisations ou leurs applications.

J'essaie dans la suite de donner des articles de revue et des ouvrages assez généraux auxquels le lecteur pourra se référer pour plus de détails. L'ouvrage de [TONG1] constitue par exemple une approche très complète des nanofibres.



*Figure IV-1 - Nanofibre de 1  $\mu\text{m}$  de diamètre et de 5 cm de longueur protégée dans une boîte de verre d'une trentaine de cm de long, utilisée pour les échanges entre laboratoires. Un laser He:Ne est injecté à l'entrée pour vérifier sa transmission. Crédit photo : FEMTO-ST.*

Dans une fibre de silice standard utilisée pour les télécommunications, la lumière est guidée dans le cœur et isolée de l'environnement extérieur par la gaine de silice, permettant ainsi une propagation avec de faibles pertes et peu de perturbations sur de longues distances. Au contraire, dans les nanofibres optiques, grâce à leur petit diamètre, le mode optique est à la fois très fortement confiné dans la silice et présente un champ évanescent intense enrobant la nanofibre.

Du fait de ces propriétés originales de transport de la lumière, ces composants ont été largement exploités dans de multiples applications. Le champ évanescent intense enrobant la nanofibre permet de contrôler l'interaction de la lumière avec des matériaux qui sont soit déposés sur le composant soit à sa proximité. Ce champ évanescent a par exemple été utilisé pour concevoir de nouveaux capteurs [TONG2], pour le piégeage et la manipulation d'atomes [GOURAUD] ou encore pour des applications en spectroscopie [GARCIA-FERNANDEZ].

Dans la nanofibre elle-même, le fort confinement de la lumière combiné à un seuil de dommage optique élevé fait de ces composants une plateforme idéale pour la réalisation de

phénomènes d'optique non linéaire. Le diamètre de la nanofibre ainsi que l'indice de réfraction de l'environnement extérieur peuvent également offrir deux degrés de liberté pour contrôler la dispersion chromatique. On peut voir par exemple sur la Figure IV-2 la grande variabilité de la dispersion chromatique de nanofibres selon le rayon et le milieu extérieur, air ou éthanol. Ces paramètres permettent d'être soit en régime de dispersion normale (celui de nos expériences de Raman évanescents) soit en régime de dispersion anormale (pour la réalisation de supercontinuum par exemple).

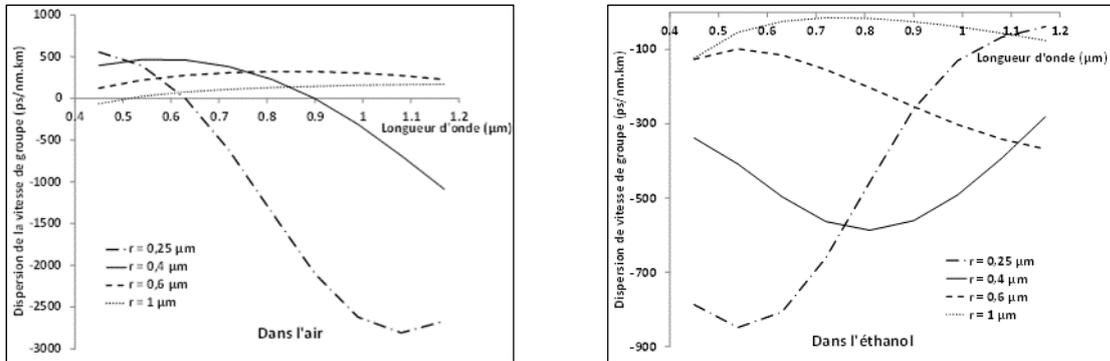


Figure IV-2 – Dispersion chromatique de nanofibres de différents rayons, dans l'air (à gauche) et dans l'éthanol (à droite).

On trouvera dans [FORSTER] beaucoup d'exemples de travaux sur les non-linéarités dans les nanofibres. Parmi ces effets, on peut citer la génération de supercontinuum [LEON-SAVAL], de paires de photons corrélés par mélange à quatre ondes [CUI] ou encore la génération de troisième harmonique [GRUBSKY1, GRUBSKY2]. Des nanofibres fabriquées à partir d'autres matériaux que la silice tels que des chalcogénures ont également réalisées et ont permis d'augmenter très fortement les non-linéarités [MÄGI]. Encore plus récemment, des nanofibres polymères ont été fonctionnalisées grâce à des colorants, des nanoparticules d'or et des quantum dots [WANG] et dopées au graphène, pour la réalisation d'effets optiques non linéaires à faible seuil [MENG].

Nos travaux de recherche sur les nanofibres ont débuté en 2008 par le biais d'une collaboration avec l'Université de Zhejiang en Chine et le séjour de plusieurs semaines de deux chercheurs dans notre laboratoire, Guillaume Vienne puis Limin Tong, l'un des pionniers dans le domaine des nanofibres [TONG3].

L'objectif général de ces recherches est de proposer de nouveaux composants optiques fonctionnalisés pouvant être insérés directement dans les réseaux fibrés avec un minimum de pertes. Faisant écho à nos travaux sur la diffusion Raman dans les fibres à cœur liquide, la première idée a été d'utiliser le champ évanescent d'une nanofibre pour mettre en évidence des non-linéarités dans un liquide immergeant le composant. Seule une étude théorique évoquait cette possibilité dans la littérature, laissant donc une large place à nos recherches [BURES1].

Dans ce contexte, la thèse de Liye Shan, cofinancée par l'École Doctorale Ondes et Matière, s'est déroulée de 2009 à 2012 en étroite collaboration avec Limin Tong. Lors de cette thèse,

nous avons mis au point un système d'étirage de nanofibres optiques adapté à nos applications (voir paragraphe IV.C) et mis en évidence pour la 1<sup>ère</sup> fois des effets de diffusion Raman stimulée dans le champ évanescent de nanofibres immergées dans différents liquides (voir paragraphe IV.D). Lors de la thèse de Maha Bouhadida (2017-2020), ces premiers résultats ont été améliorés et nous avons réalisé des convertisseurs de longueur d'onde Raman évanescents avec de fortes efficacités de conversion et une grande répétabilité (voir paragraphe IV.D.5).

Nous nous sommes également intéressés aux effets de surface dans les nanofibres afin d'exciter des non-linéarités du second ordre. Le but à long terme est la réalisation de sources de photons corrélés par fluorescence paramétrique pour l'optique quantique. Les stages de M2 de Zhihang Wang (2015) puis d'Abderrahim Azzoune (2016) ont constitué une étude préliminaire dans laquelle nous avons étudié le doublement de fréquence dans des nanofibres de silice, qui est l'effet inverse de la génération paramétrique et permet de caractériser la non-linéarité du second ordre.

Nos premiers résultats sur les non-linéarités évanescentes nous ont permis d'étendre nos collaborations, notamment avec le laboratoire FEMTO-ST de Besançon. Nous avons ainsi obtenu en 2016 un financement ANR PRCE pour la poursuite de ces études, avec comme partenaires Thales Research and Technology (TRT) et FEMTO-ST. L'un des enjeux de ce projet réside dans la manipulation et donc la protection des nanofibres afin d'en faire des composants pour l'industrie. Ce projet sera décrit au paragraphe IV.G.

Après une présentation des modèles de propagation utilisés et une description succincte de l'étireuse développée au LCF, je présente les résultats obtenus lors des thèses de Liye Shan (2009-2012) et Maha Bouhadida (2017-2020) sur les effets de diffusion Raman évanescente. Je poursuis en décrivant les études menées actuellement sur les sources de paires de photons corrélés dans le cadre de la thèse de Maha Bouhadida avant de conclure.

## ***IV.B. Modèles de propagation***

### **IV.B.1. Description des modèles de propagation linéaire**

Je décris ici la propagation de la lumière dans le composant de la Figure IV-3 : une nanofibre optique reliée par deux tapers symétriques à deux fibres d'accès standard. Les tapers et la nanofibre peuvent être immergés dans un milieu extérieur. L'indice du cœur de la fibre standard  $n_c$  est légèrement supérieur à celui de la gaine  $n_g$ , qui lui-même est supérieur à celui du milieu extérieur  $n_{ext}$ .

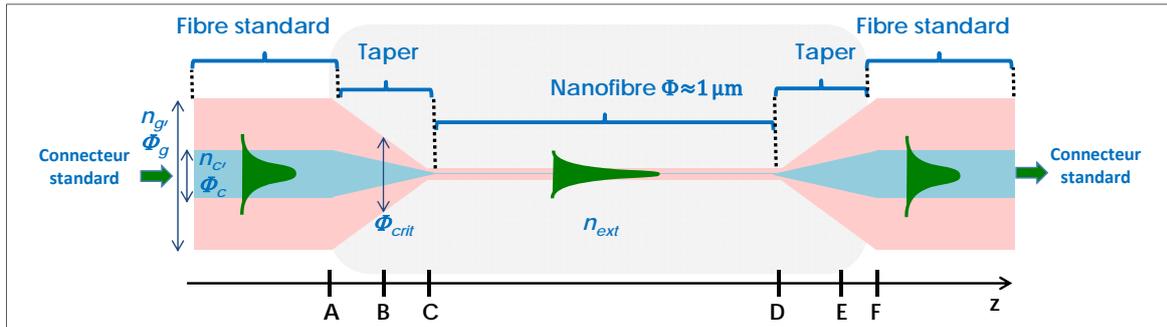


Figure IV-3 – Schéma de principe d'une nanofibre optique étirée à partir d'une fibre optique standard. La nanofibre est reliée par deux sections évasées, les tapers, aux deux fibres d'accès standard non étirées, éventuellement connectées à leurs extrémités. Le cœur de la fibre standard est figuré en bleu, la gaine en rose. La nanofibre et les tapers baignent dans un milieu d'indice  $n_{ext}$ .

La résolution des équations de Maxwell dans le domaine vectoriel utilisant un modèle à trois couches cœur/gaine/milieu extérieur donnerait bien sûr des résultats très rigoureux, mais il s'agit de calculs lourds et nous n'avons pas ici l'utilité d'une telle précision. Nous présentons dans la suite les modèles que nous avons choisis pour simuler la propagation dans les différentes parties du composant, dont l'un des avantages est qu'ils sont assez facilement implémentables et très bien documentés dans la littérature [LOVE, BURES2].

La résolution de l'équation aux valeurs propres et l'écriture des conditions de continuité des champs et de leurs dérivées aux interfaces permettent de calculer les indices effectifs et les champs. Nous considérons uniquement les modes liés, c'est-à-dire les modes de cœur ou les modes de gaine et négligeons le supercontinuum des modes de radiation, ce qui est légitime puisque nous cherchons à minimiser les pertes de propagation du mode fondamental (ou d'un mode d'ordre immédiatement supérieur comme on le verra au paragraphe IV.F.1) le long du composant. Le mode fondamental se propage selon la direction  $z$ , comme on peut le voir sur la Figure IV-3.

La fibre standard est constituée d'un cœur de silice et d'une gaine de silice d'indice plus faible mais voisin. En amont du point A, le guide est cylindrique et invariant selon  $z$ . Le mode est fortement confiné dans le cœur de silice, la gaine pouvant être considérée comme infinie. L'approximation du guidage faible  $y$  est tout à fait légitime et nous utilisons donc ici un modèle scalaire à deux couches. Le mode fondamental est appelé mode LP01.

Le mode entre dans le taper au point A. Le guide n'est plus invariant selon  $z$ . Nous utilisons dans les tapers entre A et C le concept des modes locaux, qui va nous permettre de décrire assez simplement la propagation de la lumière dans les tapers et d'introduire un critère d'adiabacité utile pour leur conception. Nous reviendrons plus loin sur ce critère.

Je résume dans la suite des concepts qui sont très bien décrits, notamment dans [LOVE] et dans [BURES2]. Localement, nous calculons en chaque position longitudinale  $z$  du taper l'indice effectif et les champs en considérant un cylindre infini. Les diamètres de la gaine et du cœur diminuent dans un rapport constant si bien que le mode "voit" de plus en plus l'interface gaine/milieu extérieur et son indice effectif décroît de façon monotone avec  $z$ . Un

modèle à trois couches est donc nécessaire pour décrire la propagation du mode, avec une interface cœur/gaine et une interface gaine/milieu extérieur. Le saut d'indice entre la gaine et le milieu extérieur est plus important que celui entre le cœur et la gaine, mais le champ dans le milieu extérieur reste faible. Un modèle scalaire suffit donc à décrire la propagation.

Sur la première partie du taper, le mode reste principalement confiné dans le cœur et guidé par l'interface cœur/gaine. Il s'agit d'un mode de cœur, son indice effectif étant compris entre celui du cœur et celui de la gaine. Cet indice effectif décroît avec  $z$  jusqu'à atteindre l'indice de la gaine (point B sur la Figure IV-3). À partir de ce point, appelé point critique, le mode devient un mode de gaine, son indice effectif devenant plus petit que celui de la gaine. Le mode est de plus en plus guidé par l'interface gaine/milieu extérieur. De façon asymptotique, le cœur devient négligeable et le guide d'onde devient assimilable en première approximation à un guide de diamètre très large (typiquement une vingtaine de  $\mu\text{m}$ ) et donc fortement multimode. Dans cette zone il y a un fort risque de couplage du mode fondamental avec des modes d'ordre supérieur, point sur lequel nous reviendrons un peu plus loin.

Au point C, le mode arrive dans la zone de la nanofibre, dont le diamètre est typiquement inférieur à  $1\ \mu\text{m}$ . Nous considérons que le cœur de la fibre standard initiale est totalement fondu dans la gaine. Le guide considéré est donc formé d'un cœur de silice dont l'indice est très voisin de celui de la gaine de la fibre standard et entouré par une gaine infinie constituée par le milieu extérieur. Un modèle à deux couches est donc utilisé dans cette zone.

Dans ce guide à deux couches, le saut d'indice à l'interface est assez grand et le mode est très confiné. Nous voyons sur la Figure IV-4 que l'allure du champ électrique en mode vectoriel (Figure IV-4-b) peut être très différente de celle du champ électrique en mode scalaire (Figure IV-4-a) notamment au voisinage de l'interface où l'on observe une très forte discontinuité due à la composante longitudinale. Comme nous souhaitons réaliser des effets optiques non linéaires dans le champ évanescent de la nanofibre, il est donc pertinent d'utiliser le modèle vectoriel. Le mode fondamental est appelé mode HE<sub>11</sub>.

Le mode fondamental se recouple ensuite à partir du point D dans le second taper, symétrique du premier, puis dans la fibre standard.

La description qui vient d'être faite est également valable pour les modes d'ordre supérieur.

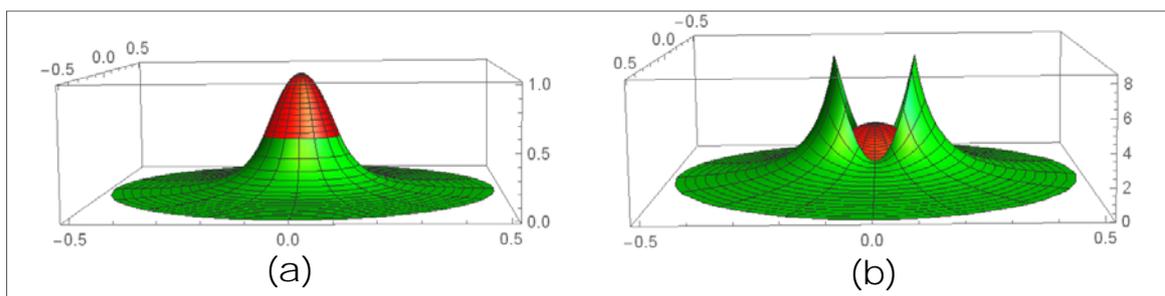


Figure IV-4 - Module au carré du champ électrique du mode fondamental dans une nanofibre de 200 nm de diamètre entourée d'air, à 532 nm, dans le cas du modèle scalaire (a) et dans le cas du modèle vectoriel (b). En abscisses, distance en  $\mu\text{m}$ . En ordonnées, unités arbitraires.

Le Tableau IV-1 résume les modèles utilisés selon la partie du composant.

Partie du composant	Modèle utilisé
Fibre non étirée	Scalaire à deux couches
Taper	Scalaire à trois couches
Nanofibre	Vectoriel à deux couches

Tableau IV-1 – Tableau récapitulatif des modèles de propagation utilisés pour décrire le composant.

#### IV.B.2. Critère d'adiabacité

On voit sur la Figure IV-3 que le mode fondamental de la fibre standard est converti dans le mode fondamental de la nanofibre à travers le premier taper traversé. Il s'agit donc de minimiser les pertes lors de cette conversion pour amener un maximum d'énergie dans la nanofibre. Les tapers seront alors dits "adiabatiques" pour le mode considéré.

On comprend intuitivement que l'angle du taper doit être suffisamment petit pour que le mode puisse s'adapter progressivement dans le taper. Mais plus cet angle est faible, plus le taper est long, ce qui pose des problèmes expérimentaux (encombrement, fragilité, manipulation). Plusieurs critères peuvent être utilisés pour déterminer un profil de taper adiabatique et on en trouvera une description très précise dans [LOVE] et [BURES1]. Je décris ci-dessous le critère que nous avons choisi, encore une fois pour sa simplicité et son adéquation avec nos expériences. Ce critère ne nécessite que la connaissance des indices effectifs des modes et ne prend pas en compte le profil des champs. C'est le critère généralement adopté dans la littérature.

Considérons une fibre supportant plusieurs modes de propagation. Sur une portion de fibre parfaitement cylindrique et invariante selon  $z$ , les modes sont orthogonaux entre eux et se propagent sans couplage donc sans échange d'énergie. Parvenus dans le taper les modes rencontrent une section évasée qui n'est plus invariante selon  $z$ . Cette non-invariance revient à introduire une perturbation et donc un couplage entre les modes. La fibre étant à symétrie de révolution selon  $z$ , le mode fondamental LP01 se couple avec le mode de même symétrie azimutale dont l'indice effectif est le plus proche, c'est-à-dire le mode LP02. Nous négligeons les couplages avec des modes d'ordre supérieur. Avec les notations de la Figure IV-5, on introduit deux longueurs caractéristiques :

- la longueur locale du taper  $z_t \approx \frac{r(z)}{\Omega(z)}$  (on se place dans le cas où l'angle du taper est petit). Il s'agit de la longueur sur laquelle les modes voient essentiellement une fibre cylindrique et donc sur laquelle on peut négliger les couplages entre modes.
- la longueur locale de couplage entre deux modes définie par la longueur de battement entre le mode LP01 et le mode LP02 :  $z_b = \frac{2\pi}{\beta_1 - \beta_2}$ .  $\beta_1$  et  $\beta_2$  sont respectivement les constantes de propagation des modes LP01 et LP02.

Si  $z_t \gg z_b$ , l'angle du taper est suffisamment faible pour que les couplages soient négligeables, le taper pouvant être localement considéré comme un cylindre. Dans le cas contraire, lorsque  $z_t \ll z_b$ , on observe un couplage entre les modes. La condition  $z_t = z_b$  délimite donc deux

zones, l'une où le taper est adiabatique, l'autre où le taper est à pertes. En pratique, on calcule  $1/z_b$  qui donne la pente maximale du taper autorisée  $\frac{1}{r(z)} \frac{dr}{dz} \Big|_{max}$ . Plus la pente du profil expérimental du taper en est éloignée, plus le taper est considéré comme adiabatique.

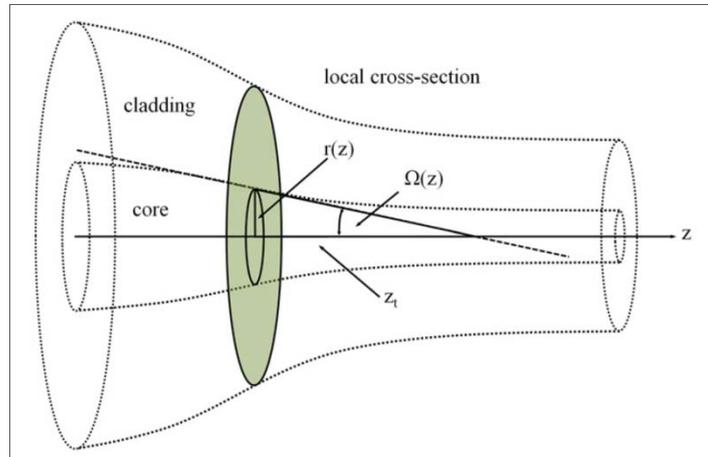


Figure IV-5 – Schéma d'un taper montrant le rayon de cœur local  $r(z)$ , l'angle local  $\Omega(z)$  et la distance  $z$ . Issu de [FRAWLEY].

On peut voir sur la Figure IV-6 un exemple de courbes d'adiabacités. Dans cet exemple, on voit que le taper expérimental n'est pas adiabatique dans l'air mais qu'il le devient lorsqu'il est plongé dans l'éthanol ou l'isopropanol [BOUHADIDA1]. On définit le rayon relatif  $R$  comme étant  $R = \frac{r_g(z)}{r_g(0)}$  (avec  $r_g(0) = 62,5 \mu\text{m}$  dans le cas de la figure). On remarque la présence d'un minimum assez prononcé pour un rayon relatif  $R$  d'environ 0,15. Ce minimum vaut environ  $0,0037 \mu\text{m}^{-1}$  pour la nanofibre baignée dans de l'éthanol. Si l'on considère un taper de pente constante égale à cette valeur, la longueur du taper est d'environ 2,2 cm, ce qui est court et donc pratique expérimentalement.

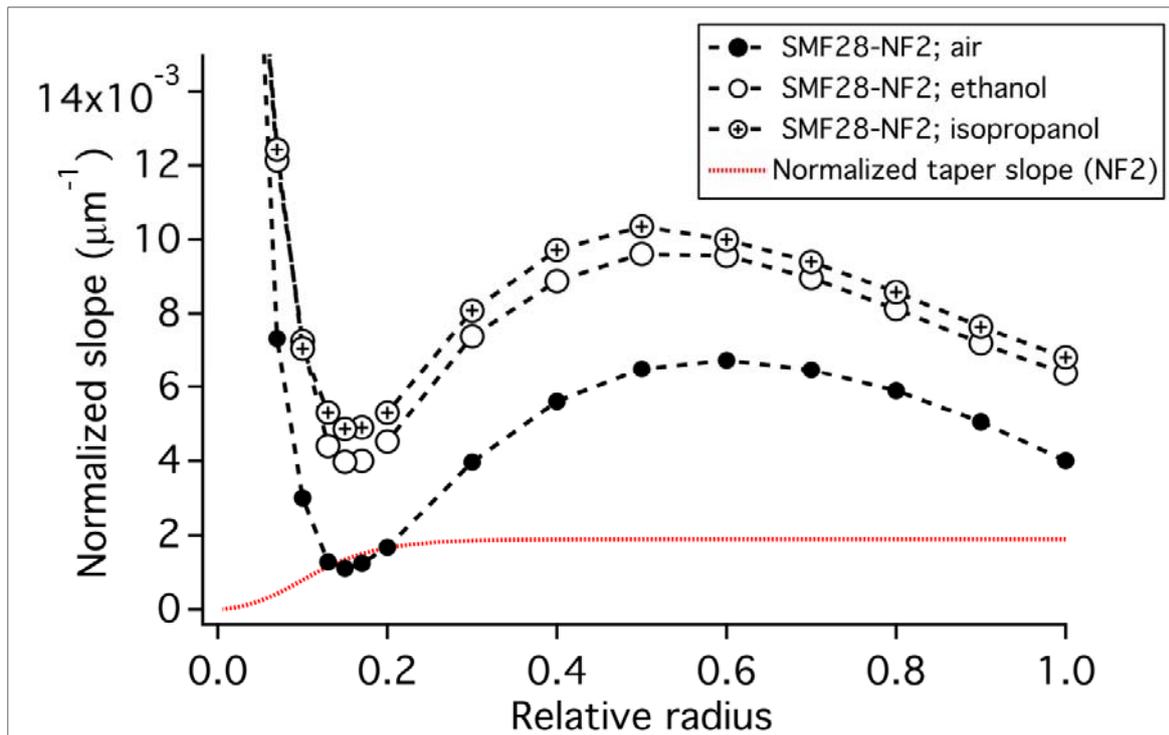


Figure IV-6 – Courbes d'adiabacité à 532 nm pour une nanofibre de 300 nm de diamètre étirée à partir d'une fibre SMF-28, dans l'air ( $n=1$ , ronds pleins), dans l'éthanol ( $n=1,36$ , cercles) et dans l'isopropanol ( $n=1,38$ , cercles avec croix). Au-dessous de ces courbes, le taper est considéré comme adiabatique. En trait pointillé rouge, pente normalisée du taper expérimental  $\frac{1}{r(z)} \frac{dr}{dz}$  [BOUHADIDA1].

#### IV.C. Fabrication

Au début de nos études, lors des visites de Guillaume Vienne et de Limin Tong, nous avons tiré les nanofibres de façon très artisanale, c'est-à-dire manuellement à l'aide d'une lampe à alcool. Évidemment cette technique n'est absolument pas reproductible. Dans un second temps, au début de la thèse de Liye Shan en 2009, nous nous sommes tournés vers l'achat d'une soudeuse de fibres optiques (GPX 3400 de chez Vytran) qui devait permettre, selon le commercial, de tirer des fibres avec un diamètre de 1  $\mu\text{m}$ .

Cette solution a présenté de multiples inconvénients. La soudeuse possède effectivement un programme permettant de descendre à des diamètres micrométriques, mais deux étapes sont nécessaires. Si l'on souhaite descendre sous le  $\mu\text{m}$ , il faut ajouter une, voire plusieurs, étapes de tirage. Or l'élément chauffant est un filament de graphite, dont le prix est exorbitant ( $\sim 300$  € pièce) et dont la durée de vie est celle du tirage d'une fibre sub-micrométrique (une trentaine de minutes). Ces considérations financières mises à part, le fait de devoir réitérer les tirages sur des parties de fibres déjà étirées a pour conséquence la réalisation de profils de microfibrilles de très mauvaise qualité, comme le montre le profil de la Figure IV-7. De plus réaliser ses propres programmes avec cette soudeuse est fort peu convivial (langage de programmation avec très peu d'instructions et peu clair, redémarrage des appareils très fréquent, ...).

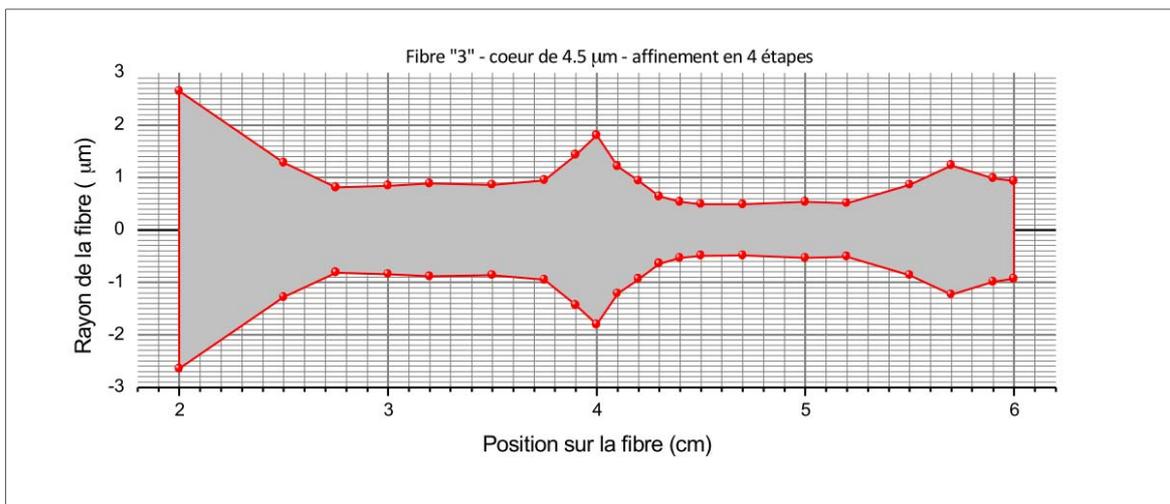


Figure IV-7 – Mesure au microscope à force atomique réalisé par Mireille Cuniot du profil d'une nanofibre étirée à l'aide de la soudeuse Vytran GPX 3400. Quatre étapes ont été réalisées. Le diamètre cible théorique était inférieur à 1 µm, le diamètre minimum mesuré est de 1,6 µm.

Au bout de quelques mois d'essais, nous avons décidé d'abandonner cette voie. Lors d'un séjour doctoral à l'Université de Zhejiang chez Limin Tong, Liye Shan (2009-2012) a commencé à développer un système de tirage utilisant une simple flamme de butane et des platines motorisées. À son retour, nous avons décidé de mettre au point un banc d'étirage de nanofibres sur le même principe.

Il existe de nombreux systèmes d'étirage de nanofibres dans la littérature [WARD], la plupart du temps basés sur le principe de conservation de la masse. Souvent l'équipe de recherche construit son propre système adapté à ses besoins

Le système de chauffage permet de ramollir suffisamment la silice pour la déformer, sans toutefois la faire fondre. Il est alors possible d'appliquer une elongation sur une ou les deux extrémités de la fibre afin d'amincir la zone qui a été chauffée. Parmi les systèmes de chauffage, on trouve des flammes de butane, d'oxy-butane et d'oxy-hydrogène, un laser à CO<sub>2</sub> focalisé, des microfours thermoélectriques, des tubes de saphir chauffés par laser à CO<sub>2</sub>.

Chaque système a ses avantages et ses inconvénients. Par exemple le laser à CO<sub>2</sub> fournit un système stable dont la chaleur est bien contrôlée mais il ne permet pas de descendre sous le µm. Les microfours le permettent mais la conception de la zone de chauffage est difficile à réaliser. Les systèmes à flamme sont très utilisés pour tirer des fibres de silice mais une des difficultés techniques est l'instabilité de la flamme générée par la régulation du gaz et l'environnement de travail. Nous avons choisi d'utiliser une flamme de butane pour débiter, puis les résultats obtenus étant très satisfaisants dès les premiers essais, nous avons poursuivi avec cette solution. Le contrôle précis du débit de gaz grâce à un régulateur de débit massique permet d'ajuster la taille de la flamme et la gestion des microturbulences par une mécanique adaptée nous a permis de limiter leurs effets. Enfin, la mise en place d'un plafond soufflant a été déterminante pour augmenter de façon très notable la durée de vie des nanofibres qui était grandement limitée jusqu'à lors par la présence de poussières.

Il y a plusieurs façons d'étirer une fibre à l'aide d'une flamme [BIRKS4]. La fibre est initialement dénudée sur quelques cm et ses extrémités sont fixées sur deux platines de translation. La flamme chauffe la fibre au milieu de la partie dénudée.

Dans le cas d'un tirage non-symétrique, la flamme est fixe et les deux platines vont dans le même sens, à des vitesses différentes, un aller dans un sens, le retour dans l'autre. Cette solution demande un contrôle précis des vitesses des platines, nous ne l'avons pas utilisée.

Dans le cas d'un tirage symétrique, la flamme est fixe et les deux platines de translation se déplacent à la même vitesse mais dans le sens opposé. La forme des tapers est alors nécessairement exponentielle et la longueur de la nanofibre est celle de la flamme, donc relativement petite.

Pour allonger les nanofibres, la première idée est d'utiliser une source de chauffage plus large. Il est toutefois difficile d'avoir une telle source sur plusieurs cm avec une bonne uniformité. Afin de simuler une large source de chauffage, l'idée est de balayer de façon oscillante la flamme le long de la fibre pendant le tirage. Il s'agit de la technique dite "pull and brush". La longueur de chauffage simulée peut varier au cours des cycles de tirage. La variation peut être une fonction mathématique quelconque, fixée par l'utilisateur. Faire osciller la flamme risque cependant de la déformer et donc d'introduire des non-uniformités dans les tapers et la nanofibre. Laisser la flamme fixe et ajuster au cours du tirage la vitesse relative des deux platines de translation permet de simuler des oscillations de la flamme, qui ne se déforme donc pas.

Nous avons ainsi utilisé pour les études suivantes d'utiliser cette technique avec une variation non linéaire de la longueur de chauffage, variation que nous avons choisie polynômiale en puissance  $q$  du numéro du cycle,  $q$  pouvant varier de 2 à 6 (un cycle correspond à un aller-retour des platines). Si  $n$  est le numéro du cycle, la longueur chauffée  $L_n$  au cours du cycle  $n$  vaut  $(L_{max} - L_{min}) \left(\frac{n}{N}\right)^q + L_{min}$ , où  $L_{min}$  est la zone chauffée initiale,  $L_{max}$  la longueur finale de la nanofibre et  $N$  le nombre total de cycles. Le rapport de diminution du rayon par cycle est choisi constant dans nos études et égal à  $R_0$ . On a ainsi  $r_n = r_0(R_0)^n$ , où  $r_0$  est le rayon initial de la fibre (62,5  $\mu\text{m}$  pour une fibre SMF-28) et  $r_n$  est le rayon obtenu après le cycle numéro  $n$ .

Cette technique, assez classique, permet de fabriquer des tapers adiabatiques relativement courts, typiquement de quelques cm de long.

Le système qui a été mis au point au laboratoire lors de la thèse de Liye Shan (2009-2012) par G. Pauliat et grâce à l'atelier de mécanique du LCF est montré sur la Figure IV-8. On y voit la fibre optique chauffée par la flamme de butane, amenée par un tuyau en laiton équipé d'un bec percé d'un trou de petit diamètre. La fibre est fixée sur deux platines de translation pilotées par ordinateur. Le débit de la flamme est contrôlé par un régulateur de débit massique. Pour plus de détails sur le fonctionnement de ce système, le lecteur-rice pourra se référer au manuscrit de thèse [SHAN1]. Pour résumer, l'utilisateur-rice peut paramétrer la longueur initiale de chauffage  $L_{min}$ , le rapport de diminution du rayon par cycle (pris constant dans les études menées), le facteur  $q$ , le rayon initial, le rayon final et la longueur de

nanofibre souhaités. Le programme définit les trajectoires des platines et le nombre de cycles à effectuer.

On voit en Figure IV-9 une image MEB d'une de nos nanofibres montrant une très bonne qualité spatiale. Pour conclure, ce système nous permet de fabriquer des nanofibres optiques de silice avec des rayons pouvant descendre à des diamètres d'environ 300 nm sur une longueur maximale limitée par la course des platines à 8 cm avec des tapers quasi-adiabatiques, comme le prouvent les transmissions de plus de 90% que nous obtenons de façon routinière.

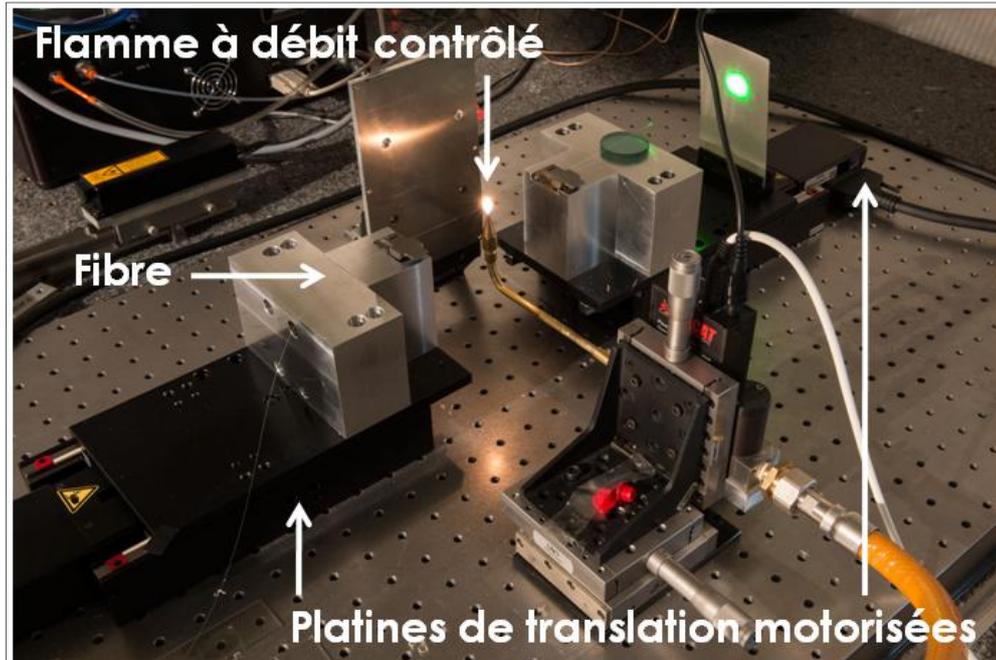


Figure IV-8 – Système d'étirage de nanofibres optiques de silice réalisé au laboratoire Charles Fabry. En encart, image prise au microscope électronique à balayage d'une de nos nanofibres.

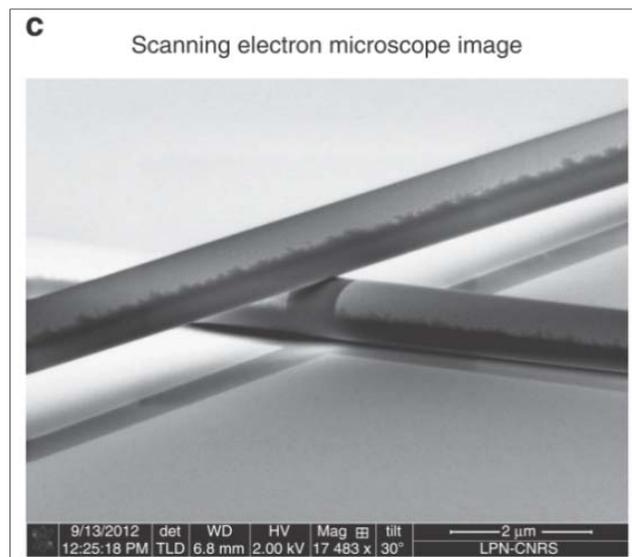


Figure IV-9 – Image prise par Anne-Lise Coutrot et Christophe Dupuis au microscope électronique à balayage d'une nanofibre de silice fabriquée au LCF.

Plusieurs moyens de contrôle ont été mis en place sur le système d'étirage. Nous pouvons enregistrer au cours du tirage la transmission optique en injectant un faisceau laser à l'entrée de la fibre non étirée et en envoyant le faisceau transmis sur une photodiode. Cette mesure permet de voir les battements entre les différents modes présents lors du tirage et de caractériser ainsi l'adiabaticité des tapers. Nous exploitons aussi la transformée de Fourier de ce signal (ou spectrogramme) qui est un outil couramment utilisé permettant d'identifier les modes en présence [RAVETS].

#### IV.D. Diffusion Raman stimulée évanescente

Comme annoncé en introduction, notre premier but était d'utiliser une nanofibre en tant que guide de lumière pour mettre en évidence des non-linéarités dans son champ évanescent sondant un liquide non linéaire. Nous avons choisi comme effet optique non linéaire la diffusion Raman car encore une fois, il s'agit d'un effet ne nécessitant pas la réalisation d'un accord de phase et donc relativement simple à obtenir. Nous avons utilisé différents liquides Raman (éthanol, toluène).

Comme pour les fibres à bande interdite photonique, nous nous plaçons en régime sub-nanoseconde avec un laser de pompe délivrant à 532 nm des impulsions  $\mu\text{J}$ . Comme illustré sur la Figure IV-10, le mode de pompe fondamental HE11 se propage dans la fibre optique standard non étirée, puis se couple via un premier taper dans la nanofibre immergée dans un liquide Raman. Les photons de pompe présents dans le champ évanescent diffusent par effet Raman dans le liquide. Les photons Stokes diffusés se couplent au mode fondamental HE11 de la nanofibre et se propagent jusqu'au second taper où ils se couplent via le second taper au mode fondamental HE11 de la fibre de sortie non étirée.

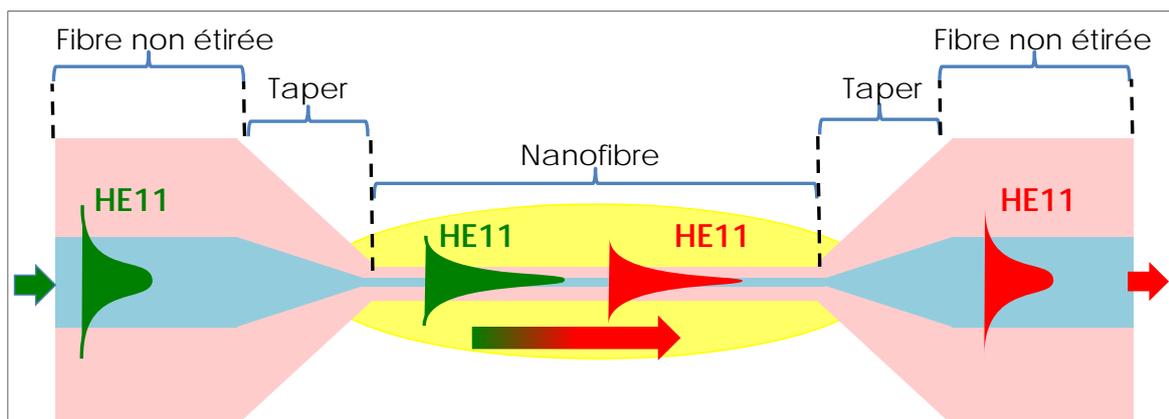


Figure IV-10 – Principe de la diffusion Raman évanescente dans un liquide baignant une nanofibre optique de silice. Le liquide Raman est représenté en jaune. En vert, mode de pompe. En rouge, mode Stokes.

La démonstration expérimentale de cette nouvelle source Raman a été réalisée lors de la thèse de Liye Shan [SHAN1, SHAN2], puis le composant a été optimisé lors de la thèse de Maha Bouhadida [BOUHADIDA1].

#### IV.D.1. Modélisations non linéaires

Nous faisons l'hypothèse que la diffusion Raman évanescence n'a lieu que dans la zone de la nanofibre (pas dans les tapers bien qu'ils baignent aussi dans le liquide). Les calculs non linéaires n'auront donc lieu que dans cette partie. Du fait du fort confinement de la lumière dans la nanofibre et du contraste d'indice assez important entre la silice et le liquide (typiquement  $n_{Si} \approx 1,45$  et  $n_{\text{éthanol}} = 1,36$ ), on a vu que l'approximation du guidage faible sera peu précise et qu'il est nécessaire d'utiliser les expressions vectorielles des champs.

Afin de dimensionner la nanofibre qui nous permettra d'observer la non-linéarité Raman évanescence, nous utilisons le paramètre critique  $\gamma = g_R \frac{P_p \times L}{A_{eff}}$  introduit au paragraphe II.F.3 qui vaut environ 20 lorsque la puissance (ou énergie) de pompe transmise est égale à la puissance (ou énergie) Stokes transmise. On s'intéresse dans la suite à la conversion de la pompe à 532 nm vers le premier ordre Stokes. Nous notons  $g_R^{mod} = \frac{g_R}{A_{eff}}$  le gain Raman modal du premier ordre Stokes.

La structure que nous étudions est inhomogène dans la direction transverse, avec un fort confinement et un fort contraste d'indice et reste invariante dans la direction de propagation. En partant des équations de Maxwell vectorielles, Turner et al. ont établi une équation de Schrödinger vectorielle non linéaire permettant de décrire précisément un tel guide d'onde.

Le gain Raman modal (en  $m^{-1}.W^{-1}$ ) s'exprime de la façon suivante [TURNER] :

$$g_R^{mod} = \frac{\epsilon_0 c^2 \iint_{\text{liquide}} g_R n^2 |\vec{e}_p \cdot \vec{e}_s|^2 dA}{\iint_{\text{aire totale}} (\vec{e}_p \times \vec{h}_p) \cdot \vec{z} dA \iint_{\text{aire totale}} (\vec{e}_s \times \vec{h}_s) \cdot \vec{z} dA} \quad (\text{Eq. 8})$$

$\epsilon_0$  est la permittivité diélectrique du vide,  $c$  la célérité de la lumière dans le vide,  $\vec{e}_p$  et  $\vec{e}_s$  sont les champs électriques respectivement aux fréquences de pompe et Stokes,  $\vec{h}_p$  et  $\vec{h}_s$  sont les champs magnétiques respectivement aux fréquences de pompe et Stokes.

L'intégrale du numérateur est réalisée sur la zone Raman active, c'est-à-dire dans le liquide.  $n$  est l'indice du liquide et  $g_R$  est son coefficient de gain Raman. Les deux intégrales du dénominateur sont des facteurs de normalisation. On voit ainsi que le gain Raman modal va dépendre du rayon de la nanofibre.

Nous avons calculé ce gain en fonction du rayon en faisant varier différents paramètres, et montrons sur la Figure IV-11 quelques tendances [BOUHADIDA2]. Sur les courbes de gauche, les deux ondes en interaction (onde pompe et onde Stokes) se propagent selon le mode fondamental HE11. On note que chaque courbe passe par un maximum pour un rayon  $r_{max}$ . Lorsque le rayon de la nanofibre est inférieur à ce rayon  $r_{max}$ , les ondes se déconfinent dans le liquide, s'approchant de façon asymptotique d'un comportement en ondes planes.

L'amplitude maximale du champ électrique en dehors de la nanofibre décroît de plus en plus à mesure que le rayon diminue, diminuant le gain Raman modal. Au contraire, au-delà de  $r_{\max}$ , les ondes sont de plus en plus confinées dans la fibre de silice, diminuant la fraction du champ évanescent dans le liquide et donc le gain Raman modal.

On voit également que la position de  $r_{\max}$  dépend de l'indice du liquide baignant la nanofibre. Lorsque l'indice augmente,  $r_{\max}$  augmente : par exemple, pour  $n_{\text{liquide}}=1,36$  (éthanol pur)  $r_{\max}$  vaut 220 nm, tandis que pour  $n_{\text{liquide}}=1,38$  (mélange éthanol/DMSO)  $r_{\max}$  vaut 250 nm. En effet, plus l'indice du liquide est élevé, plus le mode est déconfiné et plus la tendance "ondes planes" est valable lorsqu'on augmente le rayon de la nanofibre jusqu'à  $r_{\max}$ .

La valeur du gain Raman maximum dépend à la fois du coefficient de gain Raman et de l'indice du liquide. Pour connaître l'influence de l'indice du liquide uniquement, on peut voir que pour un même coefficient de gain Raman mais deux indices différents (même si en pratique, c'est difficile voire impossible à trouver), le liquide d'indice le plus faible aura le maximum de gain Raman modal le plus élevé car le mode sera globalement plus confiné et l'amplitude maximale du champ évanescent sera plus importante. Le lecteur pourra se référer à la thèse de Liye Shan [SHAN1] et à [SHAN3] pour des données plus précises, notamment sur les mélanges de liquides.

Sur la droite de la Figure IV-11, nous avons également tracé les courbes de gains Raman modaux lorsque les modes de pompe et Stokes se propagent sur un mode d'ordre supérieur, le mode TM<sub>01</sub>. La première idée était de voir si nous pouvions utiliser des nanofibres avec des diamètres un peu plus grands afin d'en faciliter la manipulation. La seconde idée, que nous détaillerons plus loin, était d'étudier la faisabilité d'interactions non linéaires sur des modes d'ordre supérieur.

On peut voir que le rayon  $r_{\max}$  est de l'ordre de 0,5  $\mu\text{m}$ , ce qui rend la nanofibre beaucoup moins fragile et plus facile à manipuler.

Le gain Raman est en revanche réduit d'un facteur 3. Signalons également que les interactions croisées entre modes d'ordre supérieur donnent des gains beaucoup plus faibles du fait d'un plus modeste recouvrement spatial et sont donc encore moins efficaces.

Le premier objectif est de tirer des nanofibres permettant d'atteindre un paramètre critique d'environ 20 avec les énergies de pompe dont nous disposons (de l'ordre de 1  $\mu\text{J}$ ) tout en restant sous le seuil de dommage de la silice (évalué à environ 20  $\text{J}/\text{cm}^2$  dans [KUZUU] mais nous reviendrons plus tard sur ce point).

Dans un premier temps, nous nous sommes placés au maximum des courbes de gain, les rayons des nanofibres devant ainsi être de l'ordre de 200 nm à 300 nm. Par conséquent la longueur des nanofibres doit être de l'ordre de plusieurs cm. L'étireuse mise au point permet de réaliser de telles nanofibres avec des transmissions optiques élevées (70% à 90% en "routine").

Les premières expériences menées lors de la thèse de Liye Shan (2009-2012) ont été réalisées avec une nanofibre baignant dans de l'éthanol, puis avec une nanofibre baignant dans un mélange de toluène et de méthanol.

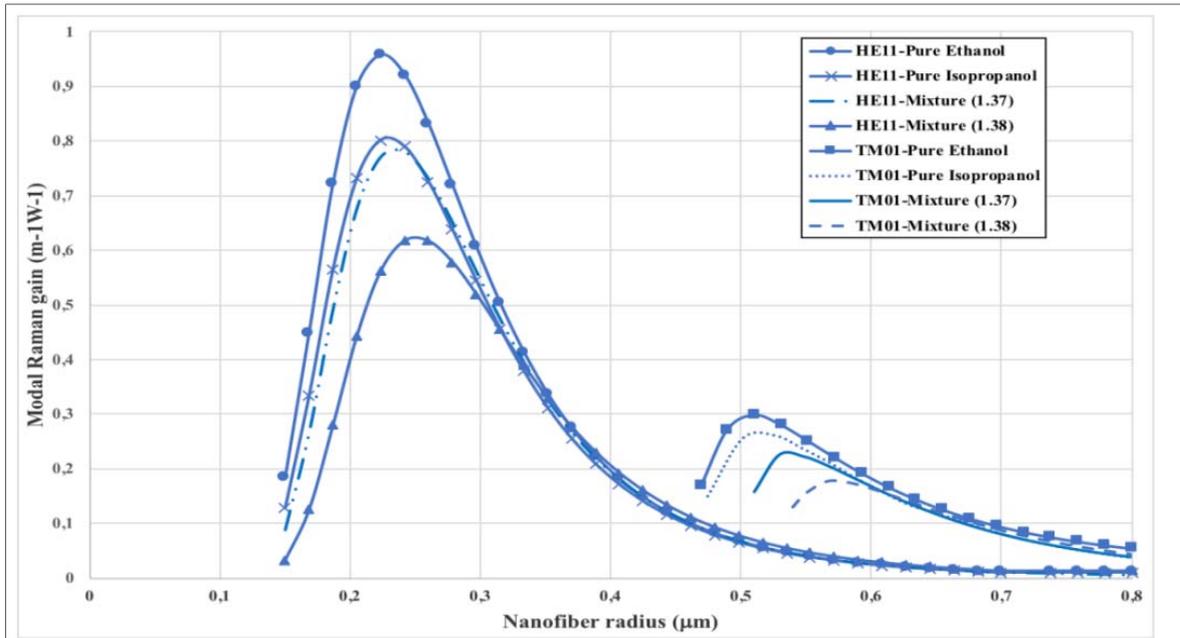


Figure IV-11 – Variations du gain Raman modal en fonction du rayon de la nanofibre. Sur les courbes de gauche les modes de pompe et Stokes sont émis sur le mode HE11. Sur les courbes de droite les modes de pompe et Stokes sont émis sur le mode TM01. Les courbes sont calculées pour différents liquides baignant la nanofibre, l'indice et le coefficient de gain variant ainsi pour chaque courbe [BOUHADIDA2].

#### IV.D.2. Première démonstration expérimentale de diffusion Raman stimulée évanescente

Les premières expériences ont été menées lors de la thèse de Liye Shan (2009-2012), sans prendre de précaution particulière quant à la propreté du laboratoire. La durée de vie des nanofibres était parfois suffisante pour mener des expériences mais elles cassaient néanmoins fréquemment à cause de la présence de poussières. À partir de fin 2013, la mise en place d'un plafond soufflant nous a permis de travailler en atmosphère propre et la durée de vie des nanofibres a augmenté de façon drastique, ce qui permet depuis ce moment de travailler de façon beaucoup plus sereine.

Malgré ces premières difficultés expérimentales, Liye Shan a mis en évidence pour la première fois un effet de diffusion Raman stimulée dans le champ évanescent d'une nanofibre baignant dans de l'éthanol, puis dans un mélange de toluène et d'éthanol [SHAN2]. Le montage expérimental initial est illustré sur la Figure IV-12.

Le laser de pompe est un microlaser Nd:YAG impulsionnel émettant à  $1,06 \mu\text{m}$  doublé en fréquence par un cristal de KTP extracavité. Le faisceau à  $532 \text{ nm}$  après le filtre infrarouge (IR filter) émet des impulsions à la fréquence de  $500 \text{ Hz}$  dont l'énergie maximum est de  $1 \mu\text{J}$  par impulsion et la largeur à mi-hauteur est de  $510 \text{ ps}$ . Une lame demi-onde associée à un cube séparateur de polarisation permet de faire varier l'énergie incidente.

La nanofibre est étirée à partir d'une fibre standard télécom SMF-28. Il s'agit d'une fibre à saut d'indice dont le diamètre du cœur de silice est de  $10 \mu\text{m}$  et le diamètre de la gaine de silice est de  $125 \mu\text{m}$ . Cette fibre est monomode à  $1,5 \mu\text{m}$  mais fortement multimode à  $532 \text{ nm}$ .

Afin de n'injecter dans la nanofibre que le mode fondamental HE<sub>11</sub> à 532 nm et pouvoir mieux contrôler l'expérience, nous réalisons préalablement un filtre monomode dans la fibre SMF-28 en l'étirant jusqu'à un diamètre de 40  $\mu\text{m}$  sur une longueur de 1 cm et en l'enrobant d'une colle d'indice légèrement supérieur à celui de la silice (singlemode filter). La distance entre ce filtre et le taper d'entrée de la nanofibre est de l'ordre de 20 cm et nous faisons attention à maintenir la fibre droite sur cette distance afin d'éviter le recouplage du mode fondamental vers des modes d'ordre supérieur.

Le faisceau de pompe est injecté dans la fibre SMF-28 par un objectif de microscope, se propage à travers le filtre monomode puis à travers la nanofibre. La nanofibre est immergée dans le liquide remplissant une cuve de téflon fermée par une lame de verre permettant de visualiser la lumière dans la nanofibre. La cuve est longue d'une vingtaine de cm, afin que la nanofibre et ses tapers y baignent entièrement. La lame de verre appuie sur des zones où la fibre est encore "grosse" ce qui permet de ne pas perturber le champ évanescant. En sortie, la lumière est collectée puis envoyée vers différents moyens de mesure (analyseur de spectres optique, CCD, photodiode).

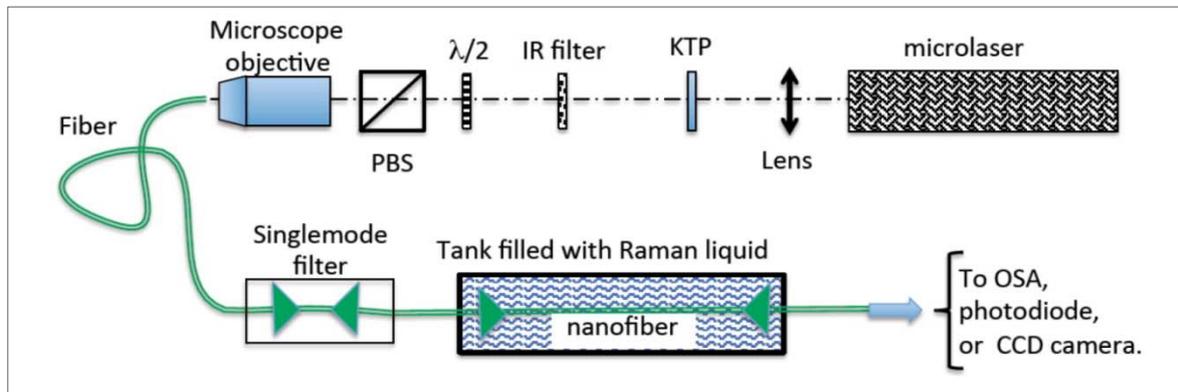
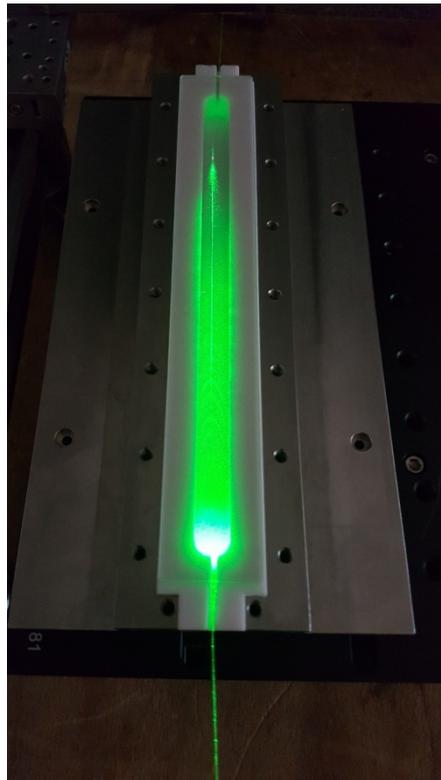


Figure IV-12 – Schéma de l'expérience de diffusion Raman stimulée dans le champ évanescant d'une nanofibre baignant dans un liquide. PBS : cube séparateur de polarisation [SHAN2].



*Figure IV-13 – Photo de la cuve en téflon utilisée pour les expériences de diffusion Raman évanescente. La cuve contient une nanofibre de 7 cm de long et de 350 nm de rayon, immergée dans de l'éthanol. Le laser de pompe à 532 nm est injecté via un objectif de microscope (non présent sur la photo) dans l'extrémité situé vers le haut de la photo.*

La longueur des fibres d'accès est minimisée afin d'éviter les effets non linéaires parasites (elle vaut environ 20 cm de part et d'autre de la cuve et du filtre monomode).

La première démonstration a été réalisée avec une nanofibre baignant dans l'éthanol. Le rayon est de 220 nm (correspondant au maximum de gain Raman modal) et sa longueur est de 6 cm. La transmission de l'ensemble tapers + nanofibre est d'environ 90%. Nous avons observé le premier ordre Stokes de l'éthanol à 630 nm, comme l'atteste le spectre de la Figure IV-14. Le faisceau transmis à 630 nm à travers un filtre rouge en sortie de fibre est bien monomode gaussien. La largeur de la raie à 630 nm a été également mesurée à environ 0,15 nm à la résolution maximale de l'OSA (0,05 nm).

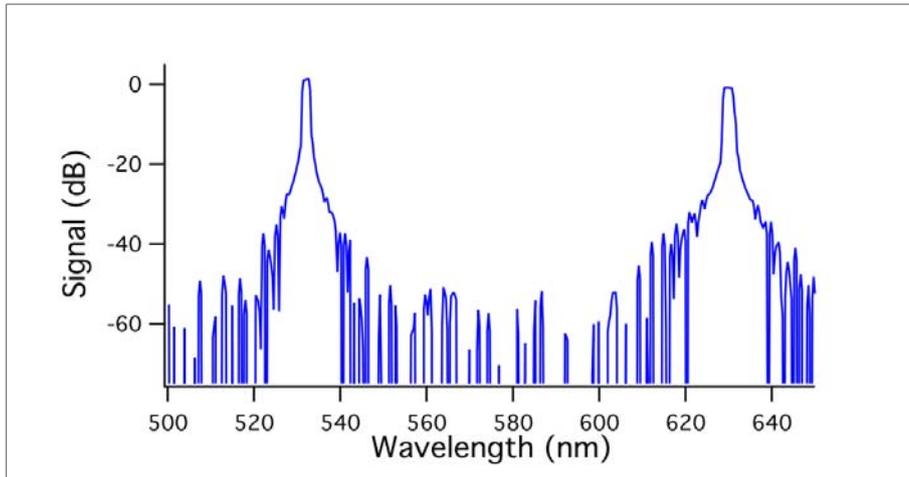


Figure IV-14 – Spectre pris à l'OSA (non résolu) en sortie de nanofibre baignant dans l'éthanol, pour une énergie de pompe incidente de 0,22  $\mu\text{J}$  [SHAN2].

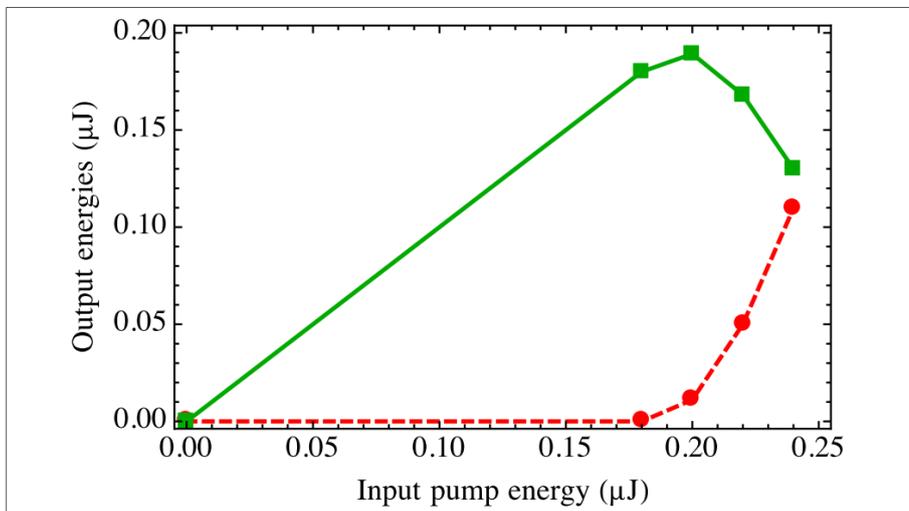


Figure IV-15 – Énergies transmises à 532 nm (carrés verts) et 630 nm (ronds rouges) en fonction de l'énergie de pompe incidente à 532 nm [SHAN2].

Nous avons mesuré les énergies transmises à 532 nm et 630 nm en fonction de l'énergie de pompe incidente (voir Figure IV-15). L'énergie maximale extraite à 630 nm est de 0,11  $\mu\text{J}$  pour une énergie de pompe incidente de 0,24  $\mu\text{J}$ . Le seuil défini par  $\gamma \approx 20$  est presque atteint. La durée de l'impulsion passe de 510 ps à 532 nm à 120 ps à 630 nm, montrant, comme dans le cas de la fibre HC-PCF remplie d'éthanol, que le profil temporel gaussien de la pompe ne permettra jamais un dépeuplement complet de l'impulsion. Une autre limite de ces résultats est le seuil de dommage de la nanofibre, obtenue ici pour une énergie de 0,24  $\mu\text{J}$ . Dans la thèse de Maha Bouhadida, nous avons étudié plus précisément ce seuil de dommage afin d'augmenter le domaine de fonctionnement de nos convertisseurs (voir paragraphe IV.D.6).

La seconde démonstration de principe réalisée lors de la thèse de Liye Shan (2009-2012) a été réalisée avec du toluène comme liquide Raman. Son indice de réfraction étant plus élevé que celui de la silice, nous l'avons dilué dans de l'éthanol afin de guider la lumière par

réflexion totale. La fraction volumique de toluène dans le mélange est de 50%. L'éthanol est ici inactif car son coefficient de gain est très inférieur à celui du toluène : il est donc utilisé dans cette expérience comme solvant.

Nous avons pu observer les deux premiers ordres Stokes du toluène à 562 nm et 596 nm avec une nanofibre de 350 nm de rayon et de 6 cm de longueur, comme le montre le spectre de la Figure IV-16. Les études n'ont pas été poussées plus loin que cette observation, mais ces résultats montrent la très bonne efficacité du mécanisme de conversion puisque le second ordre Stokes du toluène a été mis en évidence.

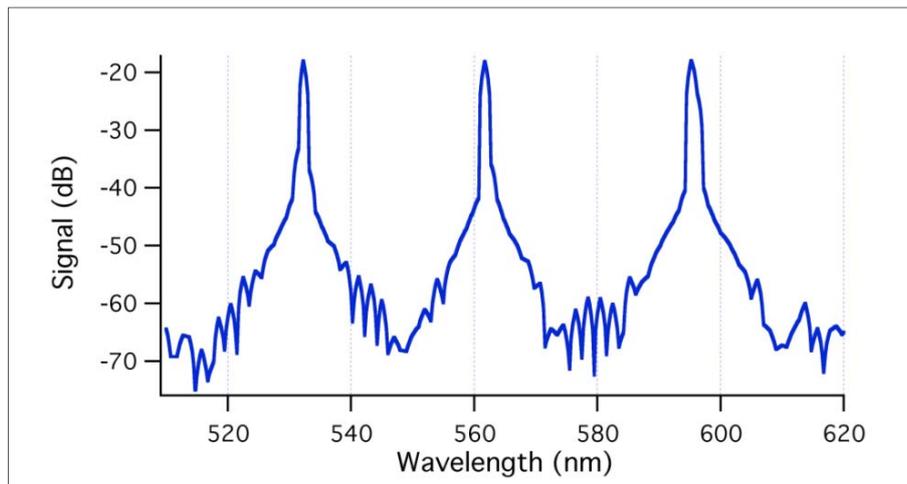


Figure IV-16 – Spectre pris à l'OSA (non résolu) en sortie de nanofibre baignant dans un mélange de toluène et d'éthanol, pour une énergie de pompe incidente de  $0,54 \mu\text{J}$  [SHAN2].

#### IV.D.3. Optimisation des convertisseurs Raman évanescents

Dans nos premières expériences, nous nous sommes placés de façon intuitive au rayon  $r_{\text{max}}$  correspondant au maximum de la courbe de gain. Par exemple, pour l'éthanol, nous avons utilisé une nanofibre de 220 nm de rayon. Comme on l'a vu en Figure IV-15, le seuil Raman n'est pas tout à fait atteint, le seuil de dommage de la nanofibre étant atteint avant. Lors de la thèse de Maha Bouhadida (2017-2020), nous avons cherché à repousser le seuil de dommage au-delà du seuil Raman. Nous avons ainsi défini une zone de fonctionnement des convertisseurs Raman évanescents en fonction du rayon de la nanofibre, c'est-à-dire un intervalle d'énergies borné par le seuil Raman et le seuil de dommage.

Ces études nous ont également permis de tester la reproductibilité de nos nanofibres et la répétabilité des performances [BOUHADIDA1, BOUHADIDA3]. Enfin le seuil de dommage des nanofibres dans l'air et dans un liquide a été mesuré expérimentalement, ce qui constitue l'unique étude de ce type dans la littérature à ce jour.

Des études d'évolution de la transmission des nanofibres au cours du temps ont également été menées afin d'identifier les causes du vieillissement. Toutes ces études systématiques sont très importantes pour caractériser nos convertisseurs en tant que nouvelles sources laser entièrement fibrées.

Bien sûr, la technique actuelle d'immersion des nanofibres dans le liquide n'est pas viable industriellement, mais nous commençons à réfléchir à des manchons hermétiques protégeant la nanofibre et fonctionnalisés grâce à un liquide Raman. La protection de la nanofibre est cruciale si l'on souhaite en faire un produit industriel. Un enrobage de protection avec un polymère est actuellement à l'étude dans le projet FUNFILM dont je parlerai plus loin. L'enrobage de la nanofibre avec un polymère bas indice possédant un gain Raman suffisamment fort est également étudié et permettrait de réaliser à la fois la fonction de protection et celle de convertisseur Raman évanescence tout solide.

Dans la suite, je présente les résultats obtenus lors de la thèse de Maha Bouhadida sur l'optimisation des performances des convertisseurs Raman évanescents. Nous avons étudié deux fibres différentes : une fibre standard SMF-28 de chez Corning, monomode à 1,5  $\mu\text{m}$  et une fibre monomode à 532 nm, la fibre 460HP de chez Thorlabs.

La fibre SMF-28 est celle que nous connaissons le mieux et avec laquelle nous avons nos repères expérimentaux. Étant fortement multimode à 532 nm, on a vu qu'il est nécessaire de faire précéder la nanofibre d'un filtre en longueur d'onde pour être sûr de n'y injecter que le mode fondamental, contrairement à la fibre 460HP, déjà monomode aux longueurs d'onde de travail. Cependant, cette dernière a un cœur de plus petit diamètre et une plus grande fragilité que la SMF-28, rendant sa manipulation plus difficile.

Notons qu'à chaque changement de fibre, il est nécessaire de passer par une étape d'adaptation des paramètres de la flamme, étape pouvant prendre beaucoup de temps et consommer beaucoup de fibre. Pour chaque fibre, nous avons étudié trois nanofibres de rayons différents, correspondant à trois gains Raman modaux (voir Figure IV-17). Ces trois nanofibres seront appelées NF1, NF2 et NF3 dans la suite.

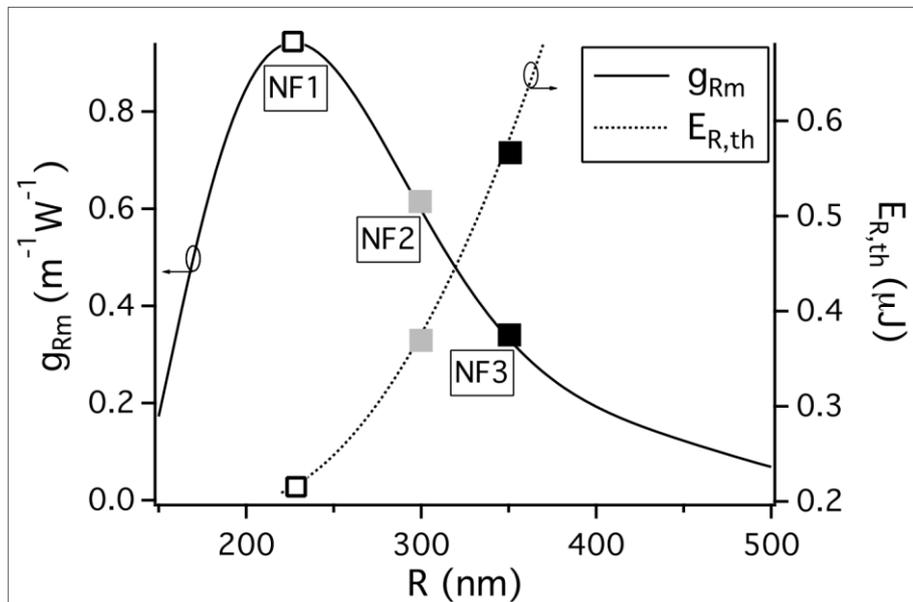


Figure IV-17 – Échelle de gauche : gain Raman modal  $g_{Rm}$  en fonction du rayon de la nanofibre. Échelle de droite : énergie de pompe au seuil Raman. Carrés blancs : NF1 ; carrés gris : NF2 ; carrés noirs : NF3 [BOUHADIDA1].

On rappelle sur la Figure IV-18 les notations utilisées. On appelle “composant” la nanofibre avec ses deux tapers et ses deux fibres d'accès L1 et L2. La transmission du composant est égale à l'énergie en sortie de L2 divisée par l'énergie incidente sur L1.

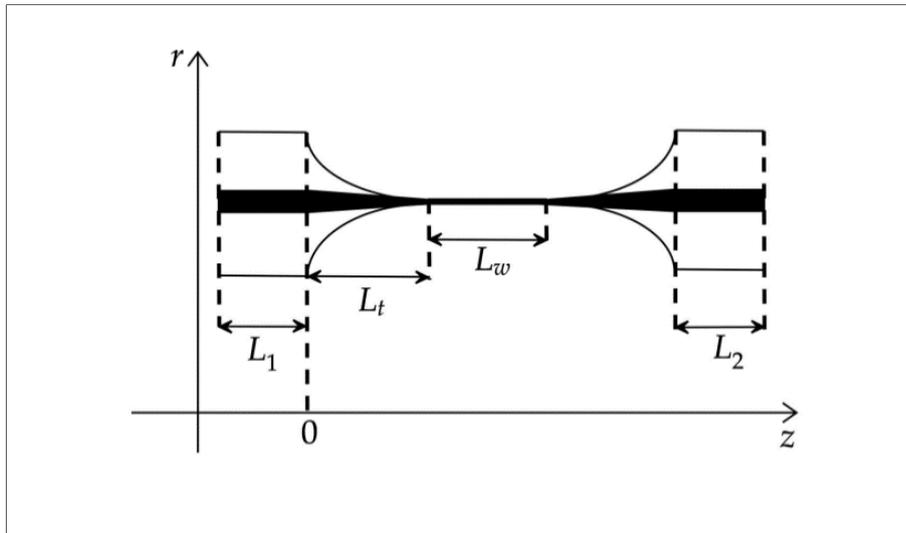


Figure IV-18 – Composant formé par la nanofibre de longueur  $L_w$ , de deux tapers symétriques de longueur  $L_t$  et de deux fibres d'accès :  $L_1$  pour l'entrée,  $L_2$  pour la sortie [BOUHADIDA1].

Je présente les calculs d'adiabacités lorsque les tapers sont immergés dans un liquide, puis les performances des convertisseurs Raman évanescents et enfin les études préliminaires en cours sur le seuil de dommage optique.

#### IV.D.4. Adiabacités des tapers dans un liquide

Pour les trois nanofibres considérées NF1, NF2 et NF3 et les deux fibres utilisées SMF-28 et 460HP, nous avons calculé les courbes d'adiabacités lorsque les tapers sont immergés dans l'air et dans des liquides d'indices différents ( $n=1,36$  pour l'éthanol et  $n=1,38$  pour l'isopropanol). On rappelle que sur ces courbes d'adiabacités deux types de courbes sont représentées en fonction du rayon relatif, égal au rapport du rayon de la nanofibre et du rayon de la gaine de la fibre initiale, à savoir  $62,5 \mu\text{m}$  dans le cas de la SMF-28 : 1) l'inverse de la distance de battement entre le mode considéré et le mode d'ordre supérieur de même symétrie le plus proche (ici, il s'agit du battement entre le mode LP01 et le mode LP02, voir paragraphe IV.B.2), représentant la limite entre zone adiabatique et zone à pertes et 2) la pente du taper expérimental.

Plus la courbe des battements est au-dessus de la courbe du taper, plus le taper expérimental est considéré comme adiabatique. Le profil du taper est choisi en faisant varier le paramètre  $q$  de façon à trouver un compromis entre la longueur du taper et la distance minimale entre sa pente et le battement (voir paragraphe IV.C). Il serait bien sûr intéressant d'imaginer d'autres profils de taper plus complexes réalisés en plusieurs étapes pour obtenir des tapers plus courts et optimiser l'adiabacités aux longueurs d'onde de travail [RAVETS].

On tire de la Figure IV-19 plusieurs enseignements. Un taper peut ne pas être adiabatique dans l'air mais le devenir dans un liquide. Cette propriété est intéressante car elle permet de réaliser des tapers de plus grande pente, donc de plus petite longueur.

Pour un même profil de taper, plus l'indice du liquide augmente, plus le taper sera adiabatique. Pour expliquer ce comportement, partons du résultat que dans l'air, le mode LP02 est plus déconfiné que le mode LP01. Considérons la courbe de la droite vers la gauche, dans le sens de la diminution du rayon relatif. Lorsque le taper est immergé dans un liquide, l'effet du déconfinement apparaît pour un rayon relatif plus grand pour le mode LP02 que pour le mode LP01. La constante de propagation du mode LP02 est plus rapidement influencée par l'effet du liquide que celle du mode LP01, la différence entre ces deux constantes augmente et la courbe de battement s'éloigne donc de celle du profil du taper.

Nous avons vérifié expérimentalement que la transmission des composants augmente systématiquement d'environ 8% lorsqu'ils sont immergés dans l'éthanol ( $n=1,36$ ), et d'environ 10% lorsqu'ils sont immergés dans l'isopropanol ( $n=1,38$ ) : en d'autres termes, la transmission passe d'environ 80% dans l'air à environ 90% dans le liquide.

On remarque que les courbes d'adiabacités des deux fibres ont une allure générale différente : les courbes calculées pour la fibre 460HP sont relativement plates à partir d'un rayon relatif de 0,2, tandis que celles calculées pour la fibre SMF-28 présentent un minimum très marqué pour un rayon relatif voisin de 0,15.

Les tapers réalisés avec la fibre 460HP seront donc plus sensibles à un défaut expérimental de la pente du taper que les tapers réalisés avec la fibre SMF-28. Enfin, nous vérifions que les courbes de battement se décalent vers la droite lorsque la longueur d'onde augmente, passant de 532 nm à 630 nm : lorsqu'un taper est adiabatique à 532 nm, il le reste à 630 nm.

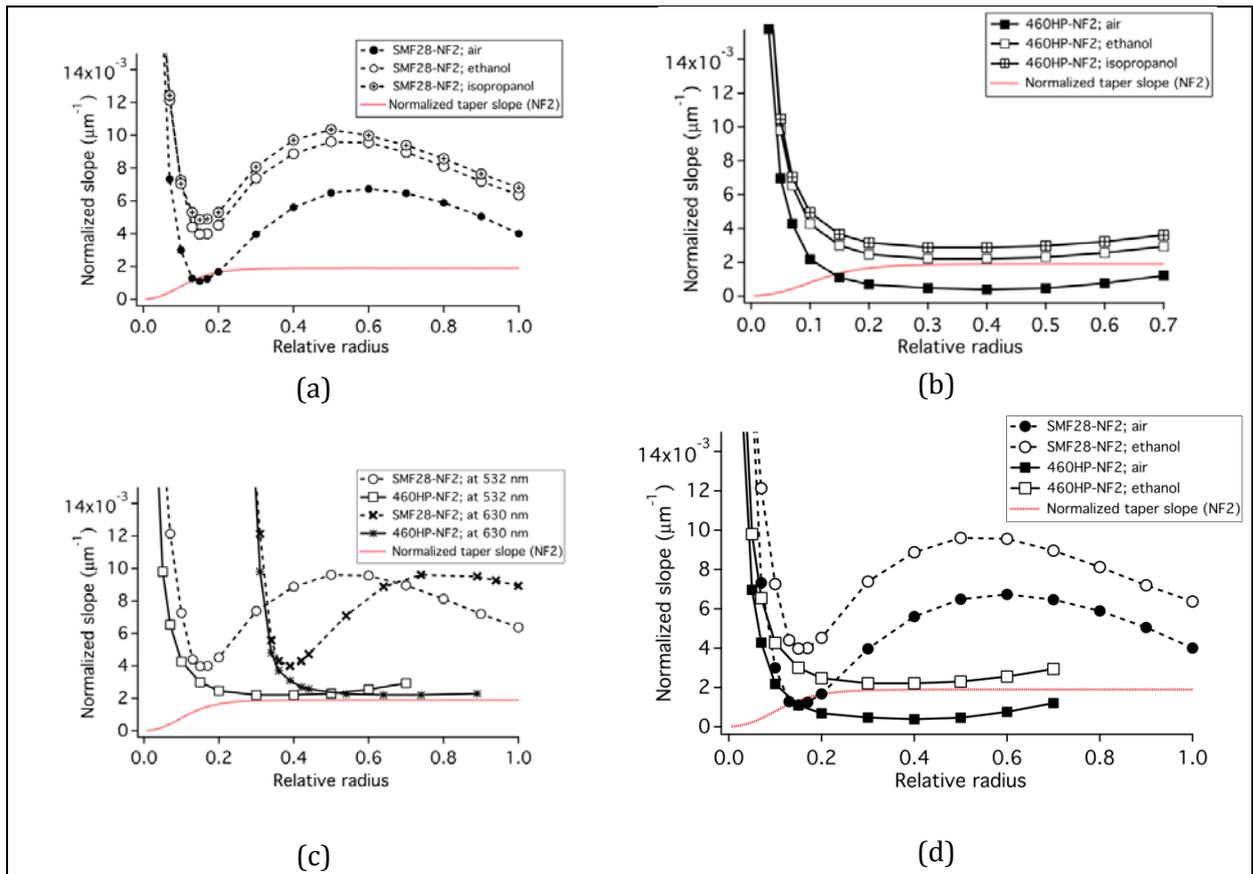


Figure IV-19 – Courbe rouge en trait pointillé : profil du taper de la nanofibre NF2. (a) courbes d'adiabacit  de la SMF-28 dans l'air, l' thanol et l'isopropanol (b) idem pour la 460HP (c) courbes d'adiabacit    532 nm et 630 nm dans l' thanol pour la SMF-28 et la 460HP (d) courbes d'adiabacit  dans l'air et l' thanol pour la SMF-28 et la 460HP [BOUHADIDA1].

#### IV.D.5. Performances des convertisseurs Raman  vanescents

Le dispositif exp rimental est sch matis  sur la Figure IV-20. Le laser de pompe (Horus HLX-G-F004)  met des impulsions de 900 ps (FWHH)   532 nm pouvant d livrer une  nergie d'une dizaine de  $\mu\text{J}$  par impulsion   une fr quence de r p tition de 4,5 kHz. Nous pr sentons les r sultats obtenus avec l' thanol. Nous avons v rifi  l'absence d'effets non lin aires parasites, co- ou contrepropageants, pouvant  tre en comp tition avec la diffusion Raman dans le liquide.

La Figure IV-21 montre un exemple de l' volution de l' nergie en sortie du composant   532 nm et 630 nm en fonction de l' nergie de pompe incidente, pour les trois nanofibres r alis es avec la SMF-28. L' nergie de pompe est augment e progressivement, jusqu'  atteindre le seuil de dommage de la nanofibre.

On constate que le seuil Raman est atteint pour NF1, largement d pass  pour NF2 mais qu'il n'est pas atteint pour NF3. Les performances ont donc  t  am lior es par rapport   la premi re d monstration de principe, o  le seuil Raman n' tait pas atteint.

Les meilleurs résultats en termes d'énergie extraite à 630 nm sur le premier ordre Stokes de l'éthanol ont été obtenus avec la nanofibre NF2. Nous avons obtenu une énergie de 0,29  $\mu\text{J}$  à 630 nm  $E_S^{out}$  pour une énergie de pompe incidente  $E_p^{in}$  de 0,41  $\mu\text{J}$ .

On définit l'efficacité externe de conversion  $\eta_{ext} = \frac{E_S^{out}}{E_p^{in}}$ . Pour NF2, on atteint donc  $\eta_{ext} = 60\%$ . De façon un peu contre-intuitive, le rayon de NF2 ne correspond pas au maximum de la courbe de gain, maximum obtenu pour le rayon de NF1. Le seuil de dommage est en effet plus grand pour NF2 que pour NF1, permettant de coupler davantage d'énergie dans le composant avant sa destruction.

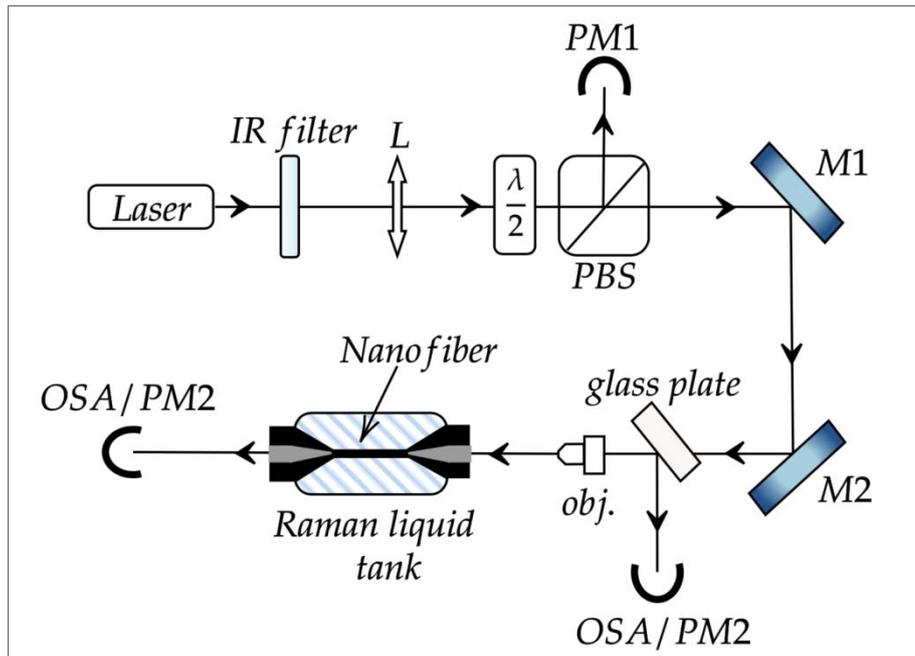


Figure IV-20 – Dispositif expérimental de caractérisation des convertisseurs Raman évanescents. Les deux fibres d'accès ainsi que le filtre monomode utilisé pour la SMF-28 ne sont pas représentés ici. La lame de verre sert à envoyer vers l'OSA ou un puissancemètre PM2 le faisceau rétrodiffusé par la nanofibre [BOUHADIDA1].

Il est donc possible de définir une plage de fonctionnement de nos convertisseurs en fonction du rayon de la nanofibre, comme illustré sur la Figure IV-22. Sur cette figure, nous avons reporté les énergies de seuil Raman expérimentales et théoriques (calculée à partir du facteur  $\gamma \approx 20$ ) et les énergies de seuil de dommage. D'une part, les seuils Raman expérimentaux et théoriques sont en bon accord. D'autre part, on voit qu'il existe une plage de fonctionnement optimale du convertisseur, obtenue pour un rayon d'environ 300 nm, plus grand que celui du maximum de gain (220 nm). Il serait intéressant de réaliser une mesure plus précise du facteur  $\gamma$ . En effet la mesure de l'énergie de seuil Raman est une mesure indirecte mais non destructive du rayon de la nanofibre.

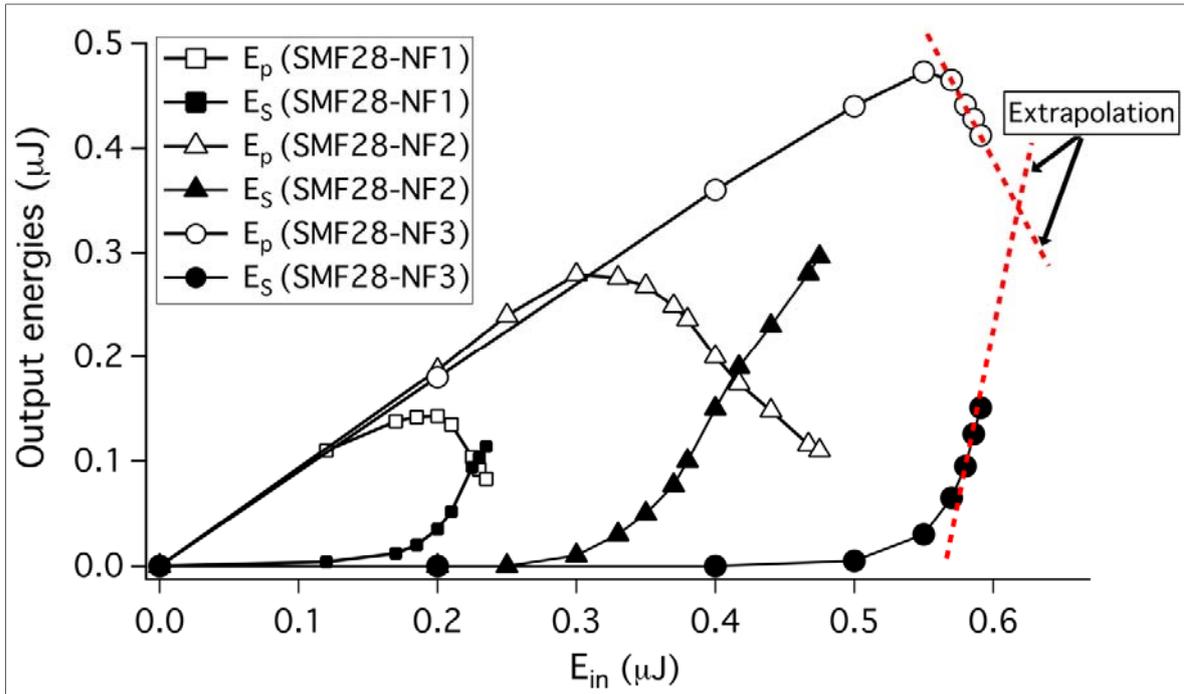


Figure IV-21 – Énergies de sortie du composant à 532 nm et 630 nm en fonction de l'énergie de pompe incidente [BOUHADIDA1].

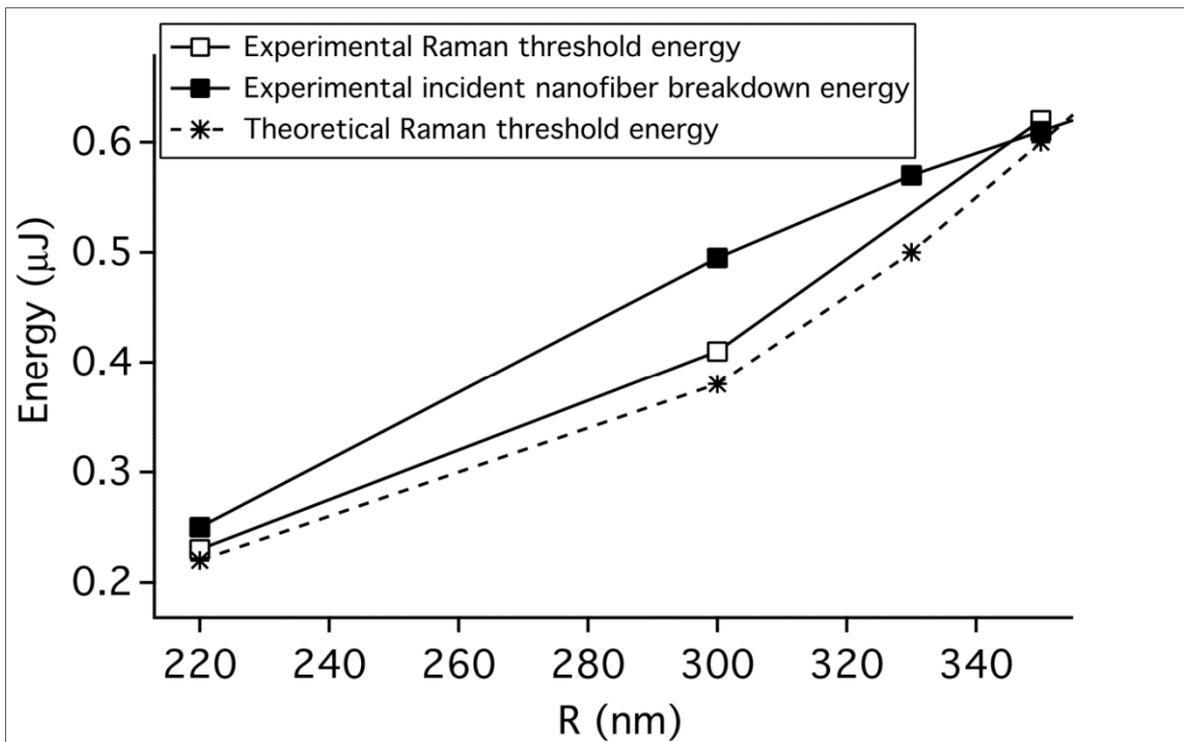


Figure IV-22 – Plage de fonctionnement des convertisseurs Raman évanescentes dans l'éthanol en fonction du rayon de la nanofibre. Carrés blancs : seuil Raman expérimental. Carrés noirs : seuil de dommage. Etoiles : seuil Raman théorique [BOUHADIDA1].

Maha Bouhadida a également testé la répétabilité de ses résultats sur 20 nanofibres NF2 tirées à partir de SMF-28 (voir Figure IV-23), chacune des nanofibres présentant une transmission voisine de 90%. On peut noter la très bonne uniformité des performances.

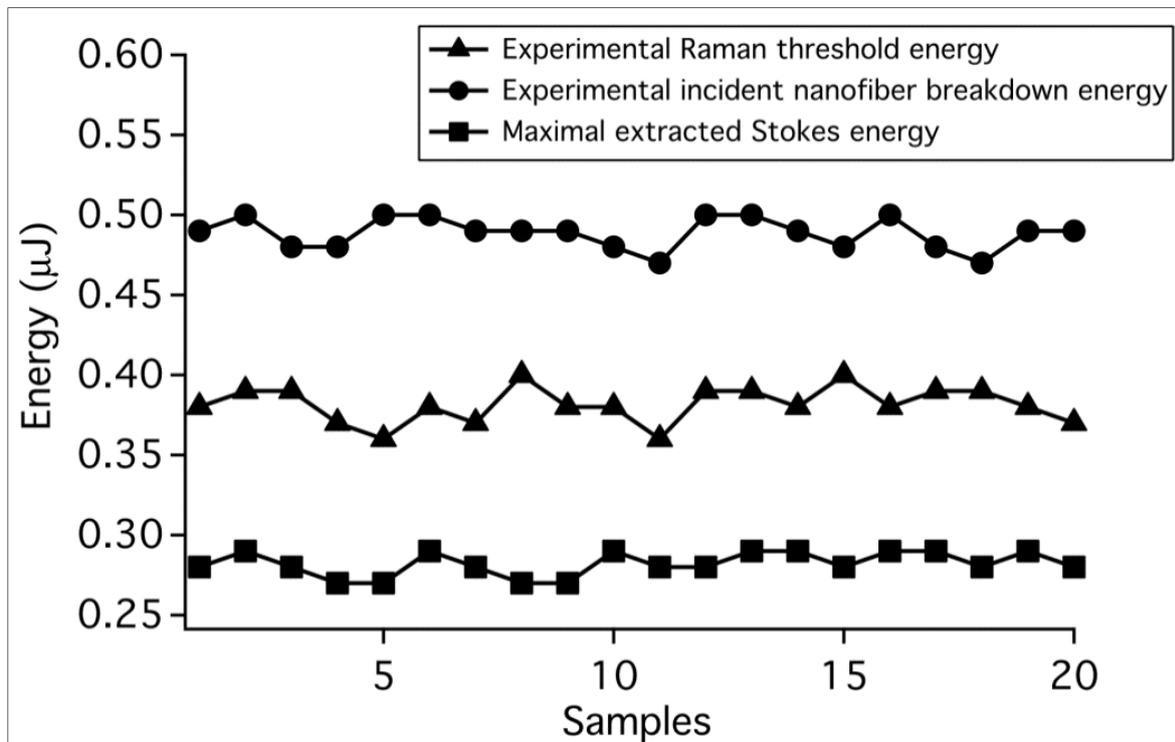


Figure IV-23 – Énergies de seuil Raman (triangles) et de dommage (ronds) à 532 nm et énergie maximale extraite à 630 nm (carrés) pour 20 nanofibres NF2 tirées à partir de fibre SMF-28 [BOUHADIDA1].

#### IV.D.6. Seuil de dommage optique

Nous venons de voir que le facteur limitant les performances des convertisseurs est le seuil de dommage de la nanofibre. Les seuils de dommage optique dans la silice ont été largement étudiés dans la littérature, l'influence de la durée d'impulsion et de la longueur d'onde ont notamment été prises en compte [SMITH2, SMITH3, KUZUU]. Dans [SMITH2] les auteurs soulignent toutefois la grande disparité des valeurs obtenues dans la littérature, notamment en régime nanoseconde, pour lequel ils obtiennent par exemple un facteur 50 entre la valeur qu'ils mesurent et celles obtenues dans d'autres études. Dans le régime temporel nanoseconde, le mécanisme physiquement usuellement admis causant ce dommage optique est une avalanche d'électrons générée par le champ électrique incident, suivie d'un transfert d'électrons chauds vers la matrice, provoquant la fusion ou la fracture de la silice [SMITH2, SMITH3].

À notre connaissance, les données sur les seuils de dommage dans les nanofibres ne sont pas documentées, que les nanofibres soient dans l'air ou enrobées d'un matériau. Il s'agit d'un problème pluridisciplinaire, faisant appel à des notions de mécanique, thermique et optique. Lorsque la nanofibre est immergée dans un liquide il faut de plus prendre en compte les

échanges convectifs. La modélisation est rendue encore plus complexe par le ratio très important entre la dimension transverse et la dimension longitudinale du problème.

Dans un premier temps, nous avons décidé de mesurer plus précisément ces seuils de dommage puisque c'est un paramètre-clé pour nos convertisseurs.

Pour une nanofibre de silice dans l'air, il est possible de définir une fluence  $J_{th}$  (en  $J/cm^2$ ) pour le seuil de dommage. Connaissant l'énergie de pompe transmise au seuil de dommage  $E_{th}$ , la fraction d'énergie présente dans la nanofibre  $f_p$  et le rayon de la nanofibre  $r$ , on a :

$$J_{th} = \frac{f_p E_{th}}{\pi r^2} \quad (\text{Eq. 9})$$

$f_p = \frac{\iint_{nanofibre} (e_p \times h_p) \cdot \hat{z} \, dA}{\iint_{\infty} (e_p \times h_p) \cdot \hat{z} \, dA}$  étant le rapport entre le flux d'énergie dans la direction de propagation dans la nanofibre et le flux d'énergie total.

Les trois nanofibres NF1, NF2 et NF3 ont été testées. Pour chaque nanofibre, 10 échantillons ont été réalisés. Nous avons tout d'abord mesuré le seuil de dommage de nanofibres de 2 cm de long dans l'air (voir Tableau IV-2). Nous avons constaté que ce seuil reste égal à  $75 J/cm^2$  pour la fibre SMF-28 quel que soit le rayon de la nanofibre. Il est légèrement supérieur pour la 460HP ( $76 J/cm^2$ ). Cette valeur est dans la fourchette des valeurs que l'on peut trouver dans la littérature, qui s'étend de  $40 J/cm^2$  à  $300 J/cm^2$ .

Nanofibre	$f_p$	$E_{th}$ ( $\mu J$ )	$J_{th}$ ( $J/cm^2$ )
NF1	0,87	0,13	74
NF2	0,94	0,22	74
NF3	0,96	0,30	74

Tableau IV-2 – Seuil de dommage de nanofibres dans l'air [BOUHADIDA1].

Pour une nanofibre immergée dans un liquide, le problème est encore plus complexe car des facteurs additionnels sont à prendre en compte. Au-dessus du seuil Raman, le premier ordre Stokes participe également au seuil de dommage car son énergie devient égale voire supérieure à celle de la pompe. Les effets thermiques sont différents : le liquide permet une meilleure évacuation de la chaleur que l'air car sa conductivité thermique est plus élevée (du moins pour les liquides utilisés), sa présence devrait donc être favorable à une augmentation du seuil de dommage. Cependant, les densités d'énergie atteintes dans le liquide sont du même ordre de grandeur que celles que l'on peut obtenir dans les fibres à cœur liquide et on peut donc s'attendre soit à une difficulté d'évacuation de la chaleur par le liquide soit à la formation de bulles au voisinage de l'interface, susceptibles de provoquer la destruction de la nanofibre. Ces bulles ont en effet été observées sur nos expériences.

Dans un premier temps, nous avons mesuré le seuil de dommage avec des nanofibres courtes de 2 cm de long immergées dans des liquides (la diffusion Raman n'ayant donc pas lieu).

Les résultats résumés dans le Tableau IV-3 montrent des valeurs très différentes lorsque les nanofibres sont immergées dans un liquide. Les seuils de dommage augmentent avec le rayon de la nanofibre et avec l'indice du liquide. Le liquide permet une bonne évacuation de la

chaleur, à condition qu'il ne soit lui-même pas trop chauffé par le champ optique évanescent. Des études plus poussées sont en cours pour quantifier ces mécanismes.

Enfin, nous avons mesuré les seuils de dommage en présence de diffusion Raman, avec des nanofibres de 8 cm de long. Les valeurs d'énergie de la pompe incidente pour atteindre de seuil de dommage sont identiques qu'avec des nanofibres de 2 cm de long, confirmant qu'il n'y a pas d'influence de la longueur de la nanofibre, la durée de l'impulsion couvrant toute la longueur. En présence de diffusion Raman, l'onde Stokes participe également au seuil de dommage et on peut redéfinir la fluence de dommage au seuil en ajoutant cette contribution :

$$J_{th} = \frac{f_p E_{th} + f_s E_{smax}}{\pi r^2} \quad (\text{Eq. 10})$$

où  $f_s$  est la fraction de l'onde Stokes présente dans la nanofibre et  $E_{smax}$  est l'énergie de l'onde Stokes au seuil de dommage.

Nanofibre	$f_p$		$E_{th} (\mu\text{J})$		$J_{th} (\text{J}/\text{cm}^2)$	
	Éthanol	Isopropanol	Éthanol	Isopropanol	Éthanol	Isopropanol
<b>NF1</b>	0,45	0,37	0,27	0,32	80	79
<b>NF2</b>	0,7	0,56	0,41	0,43	102	85
<b>NF3</b>	0,75	0,68	0,58	0,59	113	100

Tableau IV-3 – Seuil de dommage de nanofibres immergées dans des liquides [BOUHADIDA1].

Nous avons tout récemment débuté une collaboration avec Mondher Besbès, ingénieur de recherche en modélisation au LCF afin de confirmer (ou d'infirmer) certaines de nos interprétations. Un article est actuellement en cours de préparation.

### IV.E. Comparaison avec les fibres microstructurées

Nous avons vu deux méthodes originales pour réaliser de façon contrôlée des effets de diffusion Raman stimulée efficaces dans un liquide non linéaire, soit en remplissant le cœur d'une fibre optique microstructurée, soit en immergeant une nanofibre optique dans ce liquide. Ces deux types de composant fonctionnent dans le visible en régime impulsif sub-nanoseconde avec des énergies de l'ordre du  $\mu\text{J}$ .

Les efficacités de conversion des photons de pompe vers les photons Stokes peuvent atteindre 70% pour les fibres microstructurées et 60% pour les nanofibres.

Les fibres microstructurées possèdent l'avantage d'avoir une bande de transmission pouvant jouer le rôle de filtre spectral, qu'il est possible d'ajuster avec l'indice du liquide. Nous pouvons ainsi privilégier certaines raies Raman et donc certaines longueurs d'onde par rapport à d'autres. Cet ajustement nous a permis de générer une petite dizaine de longueurs d'onde à partir d'une seule et même pompe émettant à 532 nm. Nous sommes parvenus à stopper la cascade Stokes au premier ordre et au second ordre Stokes d'un liquide. Nous avons également pu exciter des raies Raman secondaires de façon efficace.

Dans ce régime temporel sub-nanoseconde, nous avons montré que la diffusion Brillouin peut être limitée en optimisant la longueur de la fibre.

Peu de fibres sont disponibles commercialement et elles restent de plus très onéreuses. Pour des fibres “sur-mesure” nous dépendons des laboratoires, peu nombreux également, et il n’est donc pas immédiat de jouer par exemple sur la dispersion ou l’optimisation de la microstructure.

Même si les faisceaux issus de ces convertisseurs sont de très bonne qualité spatiale et même si nous avons trouvé un moyen de fermer hermétiquement les convertisseurs, le couplage de ces composants dans les réseaux fibrés se fait encore en espace libre. Le câblage, le remplissage et la vidange de ces fibres sont des procédés certes maîtrisés mais longs et très techniques. Enfin, la formation de bulles potentiellement destructrices reste un problème critique. Mais si le seuil de formation des bulles n’est pas atteint, les convertisseurs peuvent fonctionner sans dégradation de leurs performances sur de longues durées.

Les nanofibres sont des composants fragiles. Cependant, protégées dans une boîte de verre telle que celle de la Figure IV-1, leur transmission ne diminue que très lentement (quelques pourcents par mois). Des études sont actuellement en cours pour identifier les causes de cette diminution. Dans le cadre du projet ANR FUNFILM nous étudions aussi la possibilité de revêtir les nanofibres d’un polymère de protection afin de les rendre plus robustes.

Les nanofibres ne possèdent pas de bande de transmission (au sens des HC-PCF) et il n’est donc pas possible de filtrer les longueurs d’onde. Les efficacités de conversion vers le premier ordre Stokes sont un peu moins élevées qu’avec les fibres microstructurées et les énergies extraites sont légèrement plus faibles. Mais de par leur construction (fibre standard et tapers adiabatiques), les nanofibres que nous fabriquons sont directement insérables dans les réseaux fibrés avec des connecteurs standard introduisant un minimum de perte.

Nous utilisons actuellement une cuve assez encombrante pour immerger les liquides. Il serait intéressant de réfléchir à un système hermétique plus compact (type gaine remplie de liquide). Nous n’avons pas observé d’effet Brillouin dans les liquides, probablement car le maximum de champ électrique se situe à l’intérieur de la nanofibre de silice et pas dans le liquide. La “matière première”, à savoir une fibre optique standard type SMF-28, n’est pas onéreuse et facile à se procurer. Comme nous maîtrisons la fabrication des nanofibres (dans le sens où nous ne dépendons pas d’autres laboratoires), il est plus facile de faire varier les paramètres et d’optimiser les composants, ce qui ouvre davantage de perspectives sur les court et moyen termes. En particulier, il est possible d’exciter des non-linéarités du second ordre avec des nanofibres, comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant.

#### ***IV.F. Source de paires de photons corrélés***

Après les démonstrations de principe des non-linéarités Raman évanescentes nous nous sommes intéressés à la réalisation d’effets optiques non linéaires du second ordre et plus particulièrement à la réalisation de sources de paires de photons corrélés par fluorescence

paramétrique pour les communications quantiques. Ces études sont réalisées dans le cadre du projet ANR FUNFILM.

Les sources de paires de photons corrélés reposent sur des mécanismes d'optique non linéaire du second (ou du troisième) ordre, qui permettent à partir d'un photon (ou de deux photons) de pompe de créer deux photons signal et complémentaire dont les longueurs d'onde sont régies par les conditions de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement (voir schéma de principe Figure IV-24). Le mécanisme d'ordre 2 est celui de fluorescence paramétrique (ou SPDC pour Spontaneous Parametric Down Conversion, voir Figure IV-24, Ordre 2). Le mécanisme d'ordre 3 est le mélange à quatre ondes spontané (SFWM pour Spontaneous Four Wave Mixing, voir Figure IV-24, Ordre 3),

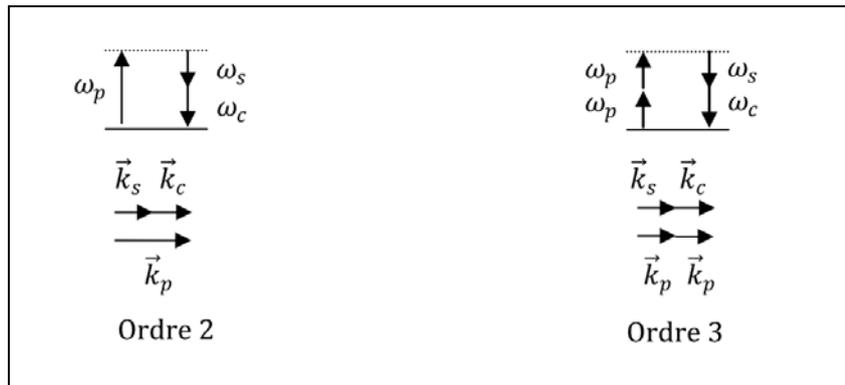


Figure IV-24 – Conservation de l'énergie et accord de phase colinéaire pour la création de photons corrélés  
Ordre 2 : fluorescence paramétrique ou SPDC. Ordre 3 : mélange à quatre ondes spontané ou SFWM.

De nombreux matériaux ont été étudiés et développés pour créer ces photons par ces deux mécanismes dans des matériaux massifs mais aussi dans différentes structures intégrées et fibrées.

Toutefois, l'utilisation des fibres optiques de silice pour réaliser l'émission de paires de photons corrélés par fluorescence paramétrique (ou SPDC) reste limitée. La silice étant en effet un matériau vitreux amorphe, elle ne présente pas, par symétrie, de non-linéarité du second ordre. Quelques tentatives utilisant une polarisation thermique (thermal poling) de la silice des fibres ont été réalisées mais sans réel succès [DE LUCIA]. Malgré tout, du fait des petites dimensions transverses de la nanofibre, il est possible de mettre en évidence des non-linéarités de surface de la silice rendues possibles par la brisure de symétrie à l'interface silice/air. Ces non-linéarités de surface permettent de réaliser des effets optiques non linéaires du second ordre inédits tels que la génération de seconde harmonique [GRUBSKY2, LAEGSGAARD]. Nous souhaitons utiliser ces non-linéarités pour réaliser des effets paramétriques (fluorescence, amplification paramétrique). L'efficacité du mécanisme, relativement modeste, sera compensée par les très faibles pertes d'insertion dans les réseaux fibrés.

Dans la thèse de Maha Bouhadida (2017-2020), nous nous intéressons au dimensionnement et à la réalisation expérimentale d'une nanofibre optique permettant de mettre en évidence

une source de paires de photons corrélés par fluorescence paramétrique utilisant une non-linéarité de surface dans une nanofibre de silice.

#### IV.F.1. Accord de phase modal

Afin d'exploiter pleinement ces non-linéarités de surface de second ordre, il est indispensable de se placer dans une condition d'accord de phase.

La silice étant un matériau isotrope, les accords de phase par biréfringence ne sont pas possibles dans une nanofibre à symétrie cylindrique. Une solution est de réaliser un accord de phase modal entre différents modes vectoriels de la nanofibre.

Dans la suite, la longueur d'onde de la pompe est autour de 775 nm. A la dégénérescence les photons signal et complémentaire sont émis à la longueur d'onde de 1550 nm. On peut voir sur la Figure IV-25 (gauche) qu'on a un accord de phase pour un rayon de 343 nm entre un photon de pompe émis sur le mode TM01 et deux photons signal et complémentaires émis sur le mode fondamental HE11. Ces photons émis dans la nanofibre autour de la longueur d'onde dite "télécom" peuvent donc se recoupler sur le mode fondamental de la fibre standard, avec un minimum de perte pourvu que le taper de sortie soit adiabatique à 1550 nm.

Sur la Figure IV-25 (droite), nous avons représenté les longueurs d'onde signal et complémentaire à l'accord de phase en fonction du rayon de la nanofibre. Ces longueurs d'onde sont très éloignées de la longueur d'onde de pompe et de la longueur d'onde du Raman de la silice (voisine de 800 nm), sources de bruit, qui pourront être facilement filtrées spectralement.

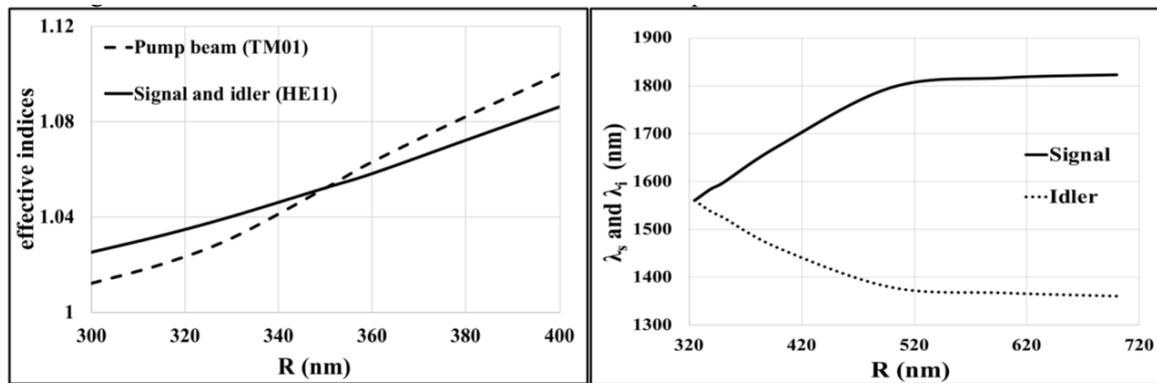


Figure IV-25 – À gauche, accord de phase à la dégénérescence obtenu pour un rayon de 350 nm ( $\lambda_p = 775$  nm,  $\lambda_s = 1550$  nm). À droite, longueurs d'onde signal et complémentaire à l'accord de phase en fonction du rayon ( $\lambda_p = 775$  nm) [BOUHADIDA4].

L'uniformité de la nanofibre est un facteur important. Pour donner quelques ordres de grandeur, plaçons-nous à la dégénérescence. Les équations de propagation non linéaire de la pompe et du signal sont alors identiques à celle du doublage de fréquence qui est le processus non linéaire inverse. On se place dans l'approximation de non dépeuplement de la pompe. Dans ces conditions, on estime que pour une longueur de nanofibre  $L = 100$   $\mu\text{m}$ , un écart d'une vingtaine de nm autour du rayon de l'accord de phase (343 nm) fera chuter l'efficacité

de conversion de 50%. Cet écart devient égal à quelques nm pour  $L = 1$  mm. Des mesures effectuées au MEB<sup>5</sup> sur des nanofibres issues de SMF-28 ont montré, pour des rayons autour de 300 nm, des variations de rayon bien inférieures à 20 nm sur une longueur de l'ordre du cm, nous rendant ainsi confiant.e.s dans notre système d'étirage pour atteindre les performances requises en termes d'uniformité.

Il est important d'avoir la nanofibre la plus longue possible, tout en restant très uniforme. L'efficacité de conversion de la génération paramétrique est en effet modeste. D'après [BONFRATE], le nombre de paires de photons générées par seconde à la dégénérescence est égal à :

$$\frac{P_s}{\hbar\omega_s} = B_w \eta_{SH} P_p \quad (\text{Eq. 11})$$

$P_p$  est la puissance de pompe,  $B_w$  est la largeur spectrale du signal à mi-hauteur et  $\eta_{SH}$  est l'efficacité de conversion normalisée du doublage de fréquence correspondant à l'inverse du mécanisme de fluorescence paramétrique.

D'après [LAEGSGAARD],  $\eta_{SH} = \rho^2 L^2$ , où  $\rho$  est le paramètre non linéaire (en  $m^{-1}W^{-1/2}$ ). Dans cet article, l'auteur a calculé  $\rho$  pour une non-linéarité de surface dans une nanofibre de silice en fonction de la longueur d'onde de la seconde harmonique pour le mode TM01. On peut ainsi estimer qu'à 775 nm on a  $\rho \approx 0,2 m^{-1}W^{-1/2}$ . Afin de compenser cette faible non-linéarité, on voit qu'on a d'autant plus intérêt à avoir la nanofibre la plus longue possible. Toutefois on a vu que plus la nanofibre est longue, moins la tolérance sur l'uniformité est élevée. Il y a donc un compromis à trouver.

On peut calculer  $B_w$  à partir de la constante de propagation de l'onde signal [BONFRATE], on trouve  $B_w \approx 290$  GHz. Pour avoir un ordre de grandeur, pour une puissance de pompe de 1 W et une longueur de 1 mm, on estime qu'on génère environ 12 000 paires de photons par seconde. Ce résultat, qui reste au-delà du bruit de nos détecteurs, est de plusieurs ordres de grandeur inférieur à ce qui est obtenu avec des cristaux massifs [FIORENTINO]. Mais comme nous l'avons déjà évoqué, notre solution, en plus d'être peu onéreuse, a l'avantage de ne pas introduire de pertes d'insertion dans les réseaux fibrés, contrairement aux cristaux massifs.

Injecter 1 W continu de pompe dans une nanofibre n'est certainement pas réaliste car il est très probable qu'on se heurte à un endommagement thermique. Il est possible d'aller jusqu'à environ 200 mW sans problème, mais nous n'avons pas été encore au-delà. Nous avons la possibilité de passer en régime impulsionnel et donc de disposer de puissances crêtes largement suffisantes. Nous envisageons également de déposer à la surface de la nanofibre des matériaux fonctionnalisés permettant de renforcer les non-linéarités.

---

<sup>5</sup> Mesures réalisées par Anne-Lise Coutrot

#### IV.F.2. Dimensionnement de la nanofibre

Le schéma de principe de l'expérience de génération de photons corrélés par fluorescence paramétrique dans une nanofibre est représenté sur la Figure IV-26.

$L_1$  est la fibre d'accès d'entrée de la nanofibre et  $L_2$  celle de sortie. Le laser de pompe émet en espace libre un faisceau monomode gaussien  $TEM_{00}$ . Ce mode est converti dans le mode  $TM_{01}$  de la fibre  $L_1$ . Plusieurs solutions sont possibles pour effectuer cette conversion, comme l'utilisation d'un modulateur spatial de lumière, sans doute la solution la plus souple et offrant le plus de possibilités. Nous avons choisi dans un premier temps une solution moins modulable mais plus simple, qui consiste à utiliser une lame de phase, introduisant un déphasage de  $\pi$  sur une moitié du faisceau de pompe [GROSJEAN].

On injecte ce faisceau dans une fibre bi-modale. Le recouvrement d'un tel faisceau avec le mode fondamental de la fibre étant nul, seul le mode  $LP_{11}$  peut se propager. Or le mode scalaire  $LP_{11}$  est une combinaison de modes vectoriels contenant le mode  $TM_{01}$  qui nous intéresse, à savoir  $TM_{01}$ ,  $HE_{21}$  et  $TE_{01}$  [BURES]. L'application de légères contraintes sur la fibre permet de sélectionner le mode  $TM_{01}$ , qui peut alors se propager dans la nanofibre. Ces travaux sont actuellement en cours.

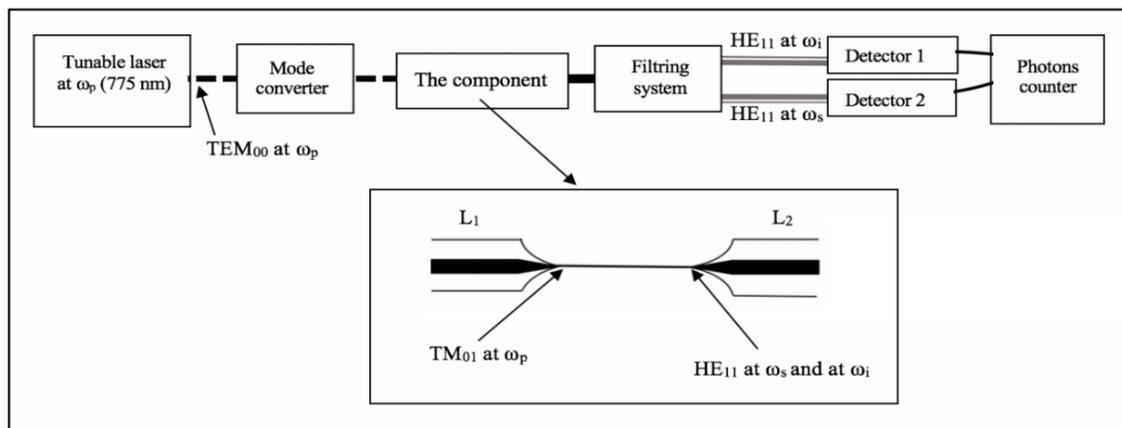


Figure IV-26 – Schéma de principe de l'expérience de génération de photons corrélés par fluorescence paramétrique dans une nanofibre [BOUHADIDA5].

Le choix de la fibre à utiliser pour réaliser la nanofibre est important car elle doit satisfaire plusieurs conditions, décrites dans [BOUHADIDA5]. Notre choix s'est finalement porté sur la fibre SM1550SC (FiberCore). Le composant à réaliser est schématisé sur la Figure IV-27. Une des difficultés est que le taper d'entrée doit être adiabatique pour le mode  $TM_{01}$ . Des calculs d'adiabacités sur ce mode ont été réalisés [BOUHADIDA5], prenant en compte la nature de cette nouvelle fibre, ce qui a nécessité le développement d'un modèle de propagation à quatre couches.

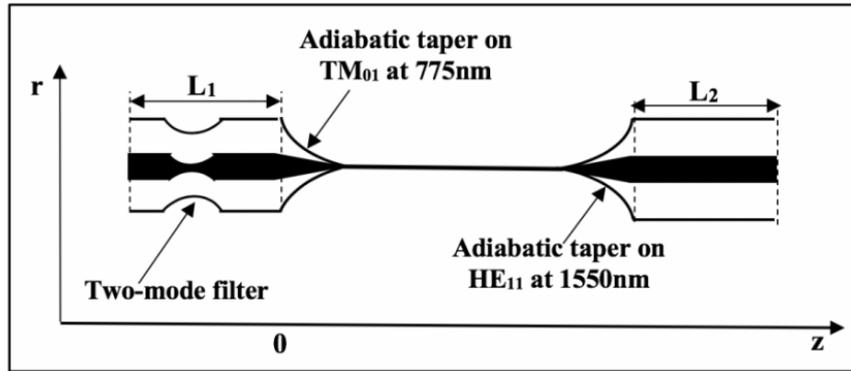


Figure IV-27 – Composant à réaliser. La nanofibre doit avoir un diamètre de 343 nm [BOUHADIDA5].

Ces courbes, représentées sur la Figure IV-28, montrent le profil du taper à réaliser, ce qui est en cours actuellement.

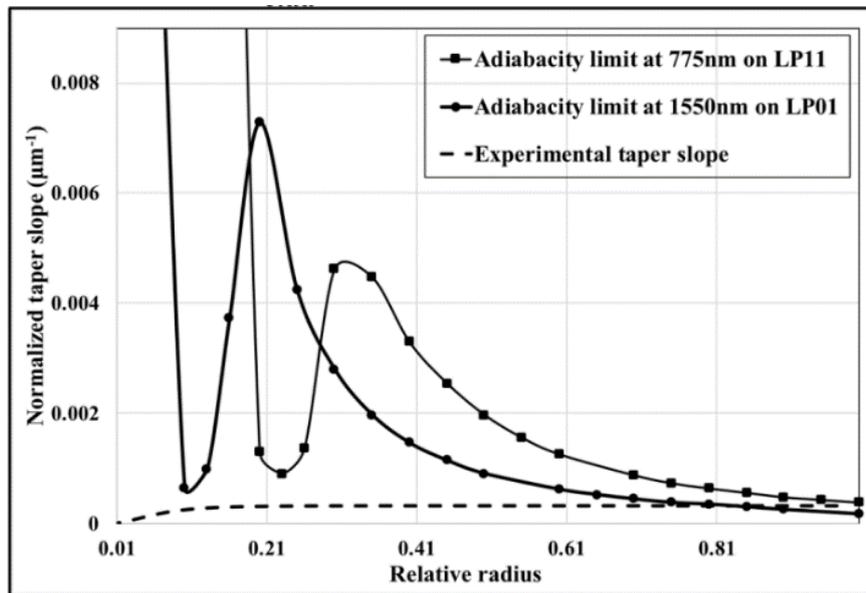


Figure IV-28 – Courbes d'adiabacité à 775 nm pour le mode LP11 et à 1550 nm pour le mode LP01 [BOUHADIDA5].

### IV.F.3. Montage préliminaire

Suggérées par Philippe Delaye, des expériences préliminaires de caractérisation des photons émis utiliseront la technique d'amplification paramétrique (aussi appelée dans la littérature tomographie d'émission stimulée), qui permet d'obtenir l'intensité spectrale jointe de la source (JSI pour Joint Spectral Intensity). Il s'agit d'une expérience fonctionnant en régime stimulé et qui est complémentaire aux expériences en régime spontané utilisant des détecteurs de photons uniques. Elle présente l'avantage d'utiliser des composants classiques (détecteurs et sources accordables) et d'être plus rapide en temps d'acquisition.

Le principe est le suivant : une source d'ensemencement (source *seed* ou signal) fine spectralement et accordable autour de 780 nm est amplifiée par la pompe émettant à 532 nm. De façon simultanée des photons complémentaires sont générés autour de 1,5 μm de façon à

respecter la condition d'accord de phase et la conservation de l'énergie. Ces photons à 1,5  $\mu\text{m}$  seront détectés sur fond noir et un analyseur de spectre optique pourra être utilisé pour la détection. Ces expériences préliminaires permettront de préciser les longueurs d'onde exactes d'émission des paires signal et complémentaire.

#### **IV.G. Projet FUNFILM**

Les premiers résultats obtenus lors de la thèse de Liye Shan nous ont permis dès 2013 de débiter une collaboration avec Jean-Charles Beugnot, chargé de recherches à l'Institut FEMTO-ST (Besançon). Jean-Charles Beugnot et son équipe sont experts des effets non linéaires dans les fibres optiques et développent des composants basés sur les interactions phonon-photon et la diffusion Brillouin.

Du fait de leur diamètre sub-longueur d'onde, il est possible d'exciter dans les nanofibres optiques des ondes acoustiques de surface qui n'existent pas dans les fibres de silice standard. Ces ondes de surface se propagent à la surface de la nanofibre à la vitesse de  $3400 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  et rétrodiffusent la lumière avec un décalage Doppler d'environ 6 GHz.

La démonstration expérimentale a été réalisée à FEMTO-ST en utilisant une nanofibre optique de silice que nous avons fabriquée à l'IQGS [BEUGNOT]. Comme ces ondes acoustiques sont sensibles aux défauts de surface, elles peuvent éventuellement être utilisées dans le domaine des capteurs ou encore dans celui de la plasmonique.

Le spectre Brillouin rétrodiffusé mesuré par une détection cohérente hétérodyne permet également d'avoir accès au diamètre des nanofibres de façon non destructive avec une sensibilité de quelques nm ainsi qu'à l'homogénéité de ce diamètre sur toute la nanofibre, estimée à environ 3% [GODET].

Notre collaboration s'est formalisée grâce à l'obtention d'un projet ANR en 2016, avec comme troisième partenaire du consortium Thales Research and Technology et plus précisément Christian Larat (Laboratoire Ondes et Traitement du Signal) et Laurent Divay (Laboratoire Chimie et Matériaux Multifonctionnels). Le but de ce projet est de réaliser une nouvelle famille de composants optiques "en ligne" à partir d'une plateforme générique, une nanofibre optique (d'où l'acronyme du projet FUNFILM pour FUnctionnalized of NanoFiber for In-line Light Manipulation). La nanofibre peut être fonctionnalisée et/ou encapsulée pour sa protection (voir Figure IV-29). L'encapsulation est faite soit de façon entièrement mécanique en réalisant des boîtiers de protection, soit par un dépôt de polymère. La fonctionnalisation est effectuée par des dépôts de polymères non linéaires ou des métaux.

Afin de démontrer l'intérêt de ces nouveaux composants, une application par partenaire est visée : la réalisation de paires de photons corrélés pour l'IQGS (cf. paragraphe IV.F), de capteurs à ondes acoustiques de surface pour FEMTO-ST et la génération de peignes de fréquences pour TRT.

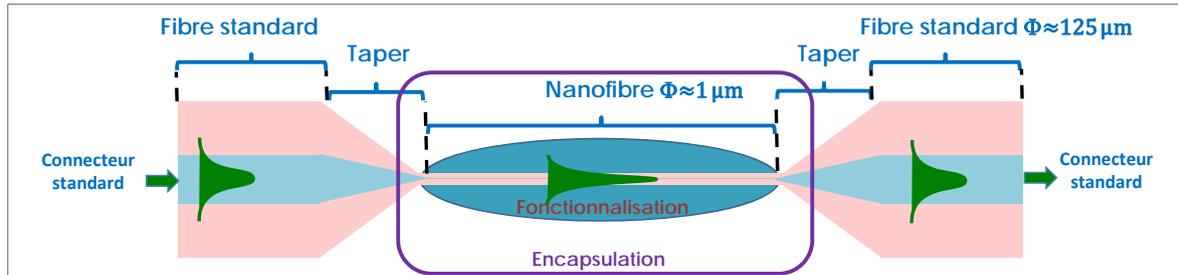


Figure IV-29 – Schéma de principe d'une nanofibre fonctionnalisée et/ou encapsulée.

#### IV.H. Conclusion sur les nanofibres

J'ai débuté ces travaux sur les nanofibres en 2008, suite à une collaboration avec Guillaume Vienne et le professeur Limin Tong de l'Université de Zhejiang, l'un des pionniers dans le domaine.

Une étireuse de nanofibres de silice a été développée au laboratoire en collaboration avec Limin Tong lors de la thèse de Liye Shan que j'ai co-encadrée (2009-2012). Lors de cette thèse nous avons réalisé la première démonstration expérimentale de diffusion Raman dans le champ évanescent d'une nanofibre optique baignée dans différents liquides non linéaires.

Nous avons débuté en 2013 une collaboration avec l'équipe de Jean-Charles Beugnot de l'Institut FEMTO-ST, qui a pu mettre en évidence des ondes Brillouin de surface, inédites jusqu'alors, dans une nanofibre que nous avons réalisée à l'IIOGS. Cette collaboration s'est formalisée par le biais du projet ANR FUNFILM, avec TRT comme partenaire industriel. Dans le cadre de ce projet, nous étudions des nouveaux composants réalisés à partir de nanofibres optiques, directement insérables dans les réseaux fibrés avec un minimum de pertes. Selon l'application visée, ces composants peuvent être protégés par des boîtes ou bien par des dépôts de polymères à la surface de la nanofibre. Ils peuvent être également fonctionnalisés par des dépôts de polymères ou de métaux afin de renforcer les interactions. FEMTO-ST étudie plus spécifiquement des capteurs à ondes de surface ainsi que des plasmons dans ces composants. TRT souhaite réaliser des peignes de fréquences et développe également des procédés chimiques de dépôts de polymères.

À l'IIOGS, dans le cadre de la thèse de Maha Bouhadida, nous nous intéressons à la réalisation de sources de photons corrélés à partir d'une non-linéarité de surface du second ordre dans une nanofibre. Des calculs préliminaires d'accords de phase modaux ont été réalisés ainsi que le choix de la fibre et la conception des tapers. Les prochains défis qui nous attendent avant la mise en place de l'expérience de photons corrélés proprement dite sont l'injection contrôlée d'un mode d'ordre supérieur et la réalisation expérimentale de la nanofibre.

En parallèle de ces études, nous avons consolidé les travaux de diffusion Raman stimulée évanescente dans des nanofibres baignées dans un liquide. Nous avons réalisé des convertisseurs Raman très efficaces et dont les performances sont très répétables. Nous avons également réalisé une étude du seuil de dommage de ces composants. Cette étude est

très importante pour notre projet mais également pour la communauté des nanofibres car pour l'instant il n'existe aucune donnée précise sur le sujet. Les résultats font actuellement l'objet de l'écriture d'un article.

## CHAPITRE V - CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

Une large partie de mes recherches s'est concentrée sur l'étude de deux technologies combinant fibres optiques de silice et optique non linéaire dans un liquide. Le principe commun à ces deux technologies est que le guidage de la lumière est réalisé grâce à la structure de la silice et la non-linéarité mise en évidence est celle du liquide.

J'ai principalement orienté mes recherches vers l'étude de la diffusion Raman stimulée afin de réaliser des convertisseurs de longueur d'onde et proposer des nouvelles sources Raman compactes et efficaces, délivrant des impulsions  $\mu\text{J}$  dans le régime temporel sub-nanoseconde, domaine encore très peu couvert par les sources lasers actuelles.

Depuis environ trois ans, je m'intéresse à un autre effet : la fluorescence paramétrique dans les nanofibres de silice, pour la génération de paires de photons corrélés pour les communications quantiques. Par le biais de ces travaux, plusieurs collaborations avec des partenaires industriels et académiques ont vu le jour et certaines sont encore très actives.

Depuis ma prise de fonctions il y a quinze ans, j'ai pu traiter toute une gamme de problèmes scientifiques liés à l'optique non linéaire, allant jusqu'à la valorisation et pense contrôler une bonne partie des aspects théoriques, expérimentaux et pratiques des questions qui sous-tendent ces travaux.

Mon spectre scientifique inclut également des aspects d'ingénierie très pointus et m'a permis d'encadrer des étudiants de profils variés (physiciens, opticiens, ingénieurs, universitaires). J'ai pu développer un réseau de collaborations nationales et internationales, industrielles et académiques, qui sera profitable à l'avenir scientifique de mes futurs étudiants.

J'expose dans la suite mes perspectives pour les 5 ans à venir.

Concernant les fibres à cœur liquide, je pense qu'il y a encore un vaste champ d'études à explorer. Il y a à mon avis un intérêt à descendre en longueur d'onde, vers le bleu-UV, gamme spectrale où il existe un très grand nombre de fluorophores [THERMOFISHER, BIOTECH] et peu de sources laser discrètes pour les exciter. Les sources laser supercontinuum atteignent également plus difficilement cette gamme spectrale et sont surdimensionnées lorsque seules quelques longueurs d'onde discrètes sont nécessaires.

Il y a deux possibilités pour atteindre ces longueurs d'onde à partir de la diffusion Raman. Dans les deux cas, nous serons confrontés aux problèmes d'absorption des liquides dans l'UV et donc de formation de bulles prématurée par rapport au visible. Une solution est de diminuer la durée de l'impulsion de la pompe à quelques centaines de picosecondes pour se placer dans un régime plus favorable. De telles sources de pompe sont disponibles sur le marché, par exemple, Teem Photonics commercialise une source microlaser à 355 nm qui émet des impulsions jusqu'à 350 ps, une autre source à 532 nm délivrant des impulsions à 100 ps. Les gains Raman dans l'UV sont plus élevés que dans le visible ou l'infrarouge, nous serons donc a priori dans une situation plus favorable qui permettra de contrebalancer l'effet des bulles.

La première possibilité est de partir d'une source dans l'ultraviolet (typiquement 355 nm) et réaliser de la diffusion Raman stimulée Stokes pour couvrir la gamme spectrale allant idéalement jusqu'à 532 nm. Par exemple le premier ordre Stokes de la raie principale de l'éthanol est à 397 nm, celui du propan-2-ol est à 377 nm. Nous disposons déjà d'une source microlaser émettant à 355 nm des impulsions d'environ 1 ns permettant de réaliser des premiers tests. Nous aurons à adapter les optiques et les moyens de caractérisation de nos montages à ces nouvelles longueurs d'onde de travail.

La seconde possibilité est d'utiliser la diffusion Raman stimulée anti-Stokes à partir d'une source de pompe à 532 nm. Par exemple, le premier ordre anti-Stokes de l'éthanol est à 460 nm. Ce premier ordre a déjà été observé mais il s'agira de contrôler et d'optimiser son émission. Pour cela il est nécessaire de se placer au voisinage d'un zéro de dispersion de la fibre et donc de disposer de fibres optimisées, pas nécessairement disponibles à ce jour sur le marché. Une collaboration avec un partenaire académique fabricant ces fibres sera alors indispensable (XLIM ou PERFOS par exemple). Pour des premiers tests, nous pourrions débiter sur une fibre commerciale, par exemple la fibre HC-800B qui possède une bande de transmission centrée autour de 800 nm. Une fois ces convertisseurs réalisés, je souhaite pouvoir aller les tester sur des expériences d'excitation de fluorophores. Il s'agira alors de reprendre contact avec des laboratoires qui se sont montrés intéressés par nos travaux sur les convertisseurs RAMBIO il y a quelques années (laboratoire d'Imagerie et de Modélisation en Neurobiologie et Cancérologie ou le Centre de Recherche en Automatique de Nancy par exemple) ou d'envoyer de nouveau une fiche technique via nos réseaux.

Concernant les nanofibres optiques, j'envisage plusieurs voies d'étude. Tout d'abord, côté technologique, je souhaiterais pousser plus loin l'étude des convertisseurs Raman et proposer une solution pour gagner de façon hermétique la nanofibre entourée de liquide. Nous disposerons ainsi d'une nouvelle famille de convertisseurs entièrement fibrés et facilement insérable dans les réseaux optiques fibrés. Afin d'accompagner ces études, une collaboration avec les ateliers techniques de l'IOGS sera indispensable et des financements dédiés à la valorisation seront demandés.

Dans l'ANR FUNFILM, à l'heure actuelle, des premiers dépôts de polymères sur des fibres de diamètre d'un  $\mu\text{m}$  ont été réalisés avec succès par TRT. Je trouve très intéressant de poursuivre ces études pour aller vers des convertisseurs Raman tout solides formés par une nanofibre de silice enrobée d'un polymère non linéaire jouant à la fois le rôle de protection et dans lequel on peut exciter une non-linéarité évanescence. Il existe par exemple des polymères hautement fluorés dont l'indice de réfraction peut descendre à 1,35 [YAO]. Cette étude pourrait être poursuivie avec TRT.

Comme pour les fibres à cœur liquide, il sera également intéressant d'étudier la diffusion Raman anti-Stokes en adaptant la dispersion chromatique des nanofibres avec le rayon de la nanofibre et l'indice du liquide (voir Figure IV-2). Ces études donneront naissance à de nouveaux convertisseurs Raman vers le bleu/UV mais aussi à la réalisation de micro-capteurs de température, l'intensité des ordres anti-Stokes variant avec la population du niveau excité qui est peuplé thermiquement.

L'étude de la diffusion Raman sur des modes d'ordre supérieur pourra également enrichir les connaissances sur les non-linéarités évanescentes. Comme le montre la Figure IV-11, le gain Raman modal du mode TM<sub>01</sub> d'une nanofibre plongée dans l'éthanol présente un maximum pour un rayon relativement grand d'environ 0,5  $\mu\text{m}$ . À ces rayons, les nanofibres deviennent beaucoup plus aisément manipulables. Pour ce rayon, le gain Raman modal du mode fondamental HE<sub>11</sub> est quasiment nul. L'observation d'un effet de diffusion Raman est donc très discriminant et est un moyen original d'identifier quel mode se propage dans la nanofibre. Ces études modales pourront donc également servir au contrôle des accords de phase modaux lors de la génération des paires de photons corrélés.

À l'issue de l'ANR FUNFILM en 2020, l'étude des sources de photons corrélés par fluorescence paramétrique sera certainement bien avancée, mais aller plus loin vers les phénomènes quantiques nécessiterait pour moi un investissement énorme dans l'acquisition d'une "culture" que je ne possède actuellement pas. Après l'observation des paires de photons corrélés par génération paramétrique, je préférerais me concentrer sur des sujets que je maîtrise mieux tout en laissant la main à des chercheurs (beaucoup) plus experts que moi dans ce domaine.

À plus long terme l'étude de ces composants non linéaires à base de nanofibres droites immergées ou enrobées pourra être étendue à des systèmes plus complexes tels que des résonateurs en boucle afin d'exalter les non-linéarités, le contrôle du diamètre de la boucle permettant d'accorder la boucle au laser en régime impulsif. La collaboration avec Limin Tong pourra être réamorcée, avec pourquoi pas, un séjour dans son université pour y développer des techniques expérimentales et systématiques de réalisation de boucles et d'autres architectures encore plus perfectionnées.

Comme on peut le voir, il reste encore un vaste champ d'études possibles dans le domaine des non-linéarités dans les nanofibres de silice réalisées à partir de fibres standard. On peut imaginer dans un futur plus lointain étendre nos études à d'autres types de matériaux comme des chalcogénures, fortement non linéaires, toujours dans le but de proposer de nouveaux composants miniatures, efficaces et bas coût dans le domaine des sources laser, du traitement du signal et des capteurs.

Pour toutes ces études, que ce soit avec les fibres microstructurées ou les nanofibres, il me sera bien sûr indispensable d'encadrer des étudiant·e·s et de privilégier les échanges avec nos différents partenaires industriels, académiques, nationaux et internationaux.

## CHAPITRE VI - RÉFÉRENCES HDR

- [AGRAWAL] G. P. Agrawal, "Nonlinear Fiber Optics", Academic Press (1989).
- [ALIBART] O. Alibart, J. Fulconis, G.K.L. Wong, S.G. Murdoch, W.J. Wadsworth and J.G. Rarity, "Photon pair generation using four-wave mixing in a microstructured fibre : theory versus experiment", *New J. Phys.* 8, pp. 67 (2006).
- [AMSANPALLY] Abhilash Amsanpally, "Propriétés linéaires des fibres creuses à cristal photonique à couplage inhibé", thèse de doctorat de l'Université de Limoges soutenue le 7/07/17.
- [ANTONOPOULOS] G. Antonopoulos, F. Benabid, T. A. Birks, D. M. Bird, J. C. Knight and P. St. J. Russell, "Experimental demonstration of the frequency shift of bandgaps in photonic crystal fibers due to refractive index scaling", *Opt. Express* 14, pp. 3000 (2006).
- [AOKI] Y. Aoki and K. Tajima, "Stimulated Brillouin scattering in a long single-mode fiber excited with a multimode pump laser", *J. Opt. Soc. Am. B*, 5 (2), pp. 358-363 (1988).
- [BENABID1] F. Benabid, J. C. Knight, and P. S. J. Russell, "Particle levitation and guidance in hollow-core photonic crystal fiber" *Opt. Express*, 10 (21), pp. 1195–1203 (2002).
- [BENABID2] F. Benabid, J. C. Knight, G. Antonopoulos, and P. S. J. Russell, "Stimulated Raman scattering in hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber," *Science*, vol. 298, no. 5592, pp. 399–402 (2002).
- [BENABID3] F. Benabid, F. Couny, J. C. Knight, T. A. Birks and P. St J. Russell "Compact, stable and efficient all-fibre gas cells using hollow-core photonic crystal fibres", *Nature*, 434, 488 (2005).
- [BEUGNOT] J.-C. Beugnot, S. Lebrun, G. Pauliat, H. Maillotte, V. Laude, and T. Sylvestre, "Brillouin light scattering from surface acoustic waves in a subwavelength-diameter optical fibre", *Nature Communications*, 5:5242 (2014).
- [BIOTECH] [www.biotech.iastate.edu/facilities/flow/Fluorochromes.pdf](http://www.biotech.iastate.edu/facilities/flow/Fluorochromes.pdf)
- [BIRKS1] T. A. Birks, J. C. Knight, and P. St. J. Russell, "Endlessly single-mode photonic crystal fiber", *Opt. Lett.*, vol. 22 (13) pp. 961-963 (1997).
- [BIRKS2] T.A. Birks, P.J. Roberts, P. S.J. Russell, D.M. Atkin, T.J. Shepherd, "Full 2-D photonic bandgaps in silica/air structures", *Electronics Letters*, 31, pp. 1941 (1995).
- [BIRKS3] T. A. Birks, D. M. Bird, T. D. Hedley, J. M. Pottage, and P. St. J. Russell, "Scaling laws and vector effects in bandgap-guiding fibres", *Opt. Express*, 12 (1), pp. 69 (2004).
- [BIRKS4] T. Birks and Y. Li, "The shape of fiber tapers", *Journal of Lightwave Technology*, 40 (4), pp. 432-438 (1992).
- [BLOEMBERGEN] N. Bloembergen, "Non linear optics", World Scientific, 4th edition (1996).

- [BONFRATE] G. Bonfrate, V. Pruneri and P. Kazansky, "Parametric fluorescence in periodically poled silica fibers", *Appl. Phys. Lett.*, 75 (16), pp. 2356-2358 (1999).
- [BOUHADIDA1] M. Bouhadida, J. C. Beugnot, P. Delaye, K. Phan Huy and S. Lebrun, "Highly efficient and reproducible evanescent Raman converters based on a silica nanofiber immersed in a liquid", *Accepté pour publication dans Appl. Phys. B* (sept. 2019).
- [BOUHADIDA2] M. Bouhadida, A. Azzoune, P. Delaye, N. Dubreuil, G. Pauliat, and S. Lebrun, "Optical characterization of a nanofiber immersed in a Raman liquid", *Optics and Photonics Algeria – OPAL 2018, Oran, Algérie* (2018).
- [BOUHADIDA3] M. Bouhadida, A. Azzoune, P. Delaye, N. Dubreuil, G. Pauliat, et S. Lebrun, "Contribution to the study of Raman effect in the evanescent field of a nanofiber immersed in a liquid", *European Optical Society Annual Meeting 2018 Delft, Pays-Bas* (oct. 2018).
- [BOUHADIDA4] M. Bouhadida, A. Azzoune, G. Pauliat, P. Delaye, and S. Lebrun, "Vers une source de paires de photons corrélés autour de 1,5  $\mu\text{m}$  utilisant des non-linéarités de surface dans des nanofibres de silice", *Congrès Général de la Société Française de Physique, Nantes* (juillet 2019).
- [BOUHADIDA5] M. Bouhadida, A. Azzoune, G. Pauliat, P. Delaye, and S. Lebrun, "A first step towards an optimized nanofiber design for the generation of correlated photons pairs around 1550nm", *ICO&IUPAP-C17 Topical Meeting on OPTics and Applications to Sustainable Development (OPTISUD) 4-7 sept. 2019, Carthage, Tunisie*.
- [BOYD] R. W. Boyd, "Nonlinear Optics" (3rd edition), Academic Press, Elsevier (2003).
- [BOZOLAN] A. Bozolan, C. de Matos, C. Cordeiro, E. dos Santos, J. Travers, "Supercontinuum generation in a water-core photonic crystal fiber", 16 (13), pp. 9671-9676 (2008).
- [BURES1] J. Bures and R. Ghosh, "Power density in the evanescent field in the vicinity of a tapered fiber", *J. Opt. Soc. Am. A*, 16, pp. 1992-1996 (1999).
- [BURES2] J. Bures, "Optique Guidée", Presses internationales polytechnique (2009).
- [CHEN] Y. Chen, L. Wang, X. Lu, Y. Chen, M. Qiu, "Stimulated Raman scattering and four wave mixing from a mixture of carbon disulfide and phenylethanol in a hollow optical fiber", *Opt. Lett.* 16, pp. 1469 (1991).
- [CHRAPLYVY] A.R. Chraplyvy, T.J. Bridges, "Infrared generation by means of multiple order stimulated Raman scattering in  $\text{CCl}_4$  and  $\text{CBrCl}_3$ -filled hollow silica fibers", *Opt. Lett.* 6, pp. 632 (1981).
- [COLLES] M. J. Colles and J. E. Griffiths, "Relative and absolute Raman scattering cross sections in liquids", *The Journal of Chemical Physics*, 56 (7), 1 april 1972.
- [COLLES] M. J. Colles, J.E. Griffiths "Relative and absolute Raman scattering cross sections in liquids", *J. Chemical Physics* 56, pp. 3384 (1972).
- [COUNY] F. Couny, F. Benabid, P. J. Roberts, P. S. Light, and m. G. Raymer. "Generation and photonic guidance of multi-octave optical-frequency combs", *Science*, vol. 318 no. 5853, pp. 1118-21 (Nov. 2007).

- [CREGAN] R.F. Cregan, B.J. Mangan, J.C. Knight, T.A. Birks, P. St. J. Russell, P.J. Roberts, D.C. Allan, "Single-mode photonic band gap guidance of light in air", *Science* vol. 285, pp. 1537 (1999).
- [CUI] L. Cui, X. Li, C. Guo, Y. Li, Z. Xu, L. Wang et W. Fang, "Generation of correlated photon pairs in micro/nano-fibers", *Opt. Lett.*, 38 (23), pp. 5063-5066 (2013).
- [DEBORD] B. Debord, A. Amsanpally, M. Chafer, A. Baz, M. Maurel, J. M. Blondy, E. Hugonnot, F. Scol, L. Vincetti, F. Gérôme, and F. Benabid, "Ultralow transmission loss in inhibited-coupling guiding hollow fibers", *Optica* 4, 209-217 (2017).
- [DE LUCIA] F. De Lucia, D. W. Keefer, C. Corbari, and P. J. A. Sazio, "Thermal poling of silica optical fibers using liquid electrodes", *Opt. Lett.*, 42 (1), pp. 69-72 (2017).
- [DESURVIRE] E. Desurvire, "Erbium-Doped Fiber Amplifiers, Principle and Applications", Wiley, New York, 1994.
- [DUDLEY] J.M. Dudley, G. Genty, S. Coen, "Supercontinuum Generation in Photonic Crystal Fiber", *Rev. Mod. Phys.* 78, pp. 1135-1184 (2006).
- [FANJOUX1] G. Fanjoux, A. Surdiman, J.-C. Beugnot, L. Furfaro, W. Margulis, T. Sylvestre, "Stimulated Raman-Kerr scattering in an integrated nonlinear optofluidic fiber arrangement", *Opt. Lett.* 39 (18), pp. 5407-5410 (2014).
- [FANJOUX2] G. Fanjoux, J. Chrétien, A. Godet, K. Phan-Huy, J.-C. Beugnot, T. Sylvestre, "Demonstration of the evanescent Kerr effect in optical nanofibers", *Opt. Express* 27 (20), pp. 29460-29470 (2019).
- [FIORENTINO] M. Fiorentino, S. Spillane, R. Beausoleil, T. Roberts, P. Battle and M. Munro, "Spontaneous parametric down-conversion in periodically poled KTP waveguides and bulk crystals", *Opt. Express*, 15 (12), pp. 7479-7487 (2007).
- [FORSTER] M. A. Foster, A.C. Turner, M. Lipson, A.L. Gaeta, "Nonlinear optics in photonic nanowires", *Opt. Express* 16, pp. 1300-1320 (2008).
- [FRAWLEY] M. C. Frawley, A. Petcu-Colan, V. G. Truong, S. Nic Chormaic, "Higher order mode propagation in an optical nanofiber", *Optics Commun.*, 285, pp. 4648-4654 (2012).
- [FREY] R. Frey, F. Pradère, "Powerful tunable infrared generation by stimulated Raman Scattering", *Opt. Commun.*, 12, pp. 98 (1974).
- [GARCIA-FERNANDEZ] R. Garcia-Fernandez, W. Alt, F. Bruse, C. Dan, K. Karapetyan, O. Rehband, A. Stiebeiner, U. Wiedemann, D. Meschede et A. Rauschenbeutel, "Optical nanofibers and spectroscopy", *Appl. Phys. B*, 105, pp. 3-15 (2011).
- [GODET] A. Godet, A. Ndao, T. Sylvestre, V. Pecheur, S. Lebrun, G. Pauliat, J.-C. Beugnot, and K. Phan Huy, "Brillouin spectroscopy of optical microfibers and nanofibers", *Optica*, 4(10), pp. 1232-1238 (2017).
- [GRIFFITHS] J. E. Griffiths, "Raman scattering cross sections in strongly interacting liquid systems : CH<sub>3</sub>OH, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH, i-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>OH, (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CO, H<sub>2</sub>O, and D<sub>2</sub>O", *The Journal of Chemical Physics*, 60 (6), pp. 15 (1974).

- [GROSJEAN] T. Grosjean, A. Sabac and D. Courjon, "A versatile and stable device allowing the efficient generation of beams with radial, azimuthal or hybrid polarization", *Opt. Commun.*, 252, pp. 12-21 (2005).
- [GRUBSKY1] V. Grubsky et A. Savchenko, "Glass micro-fibers for efficient third harmonic generation", *Opt. Exp.*, 13 (18), pp. 6798-6806 (2005).
- [GRUBSKY2] V. Grubsky and J. Feinberg, "Phase-matched third-harmonic UV generation using low-order modes in a glass micro-fiber", *Opt. Commun.* 274, pp. 447-450 (2007).
- [KONOROV] S. O. Konorov, A. B. Fedotov, E. E. Serebryannikov, V. P. Mitrokhin, D. A. Sidorov-Biryukov and A. M. Zheltikov, "Phase-matched coherent anti-Stokes Raman scattering in isolated air-guided modes of hollow photonic-crystal fibers", *J. Raman Spectrosc.* 36, pp. 129 (2005).
- [KRISHNAN] K. Krishnan, "The Raman spectra of organic compounds, Part. I Methyl, Ethyl, n-Propyl and n-Butyl Alcohols", *Proceedings of the Indian Academy of Sciences – Section A*, 53 (3), pp. 151-167 (1961).
- [KUZUU] N. Kuzuu, K. Yochida, K. Ochi, Y. Tsuboi, T. Kamimura, H. Yoshida, Y. Namba, "Laser-Induced Bulk Damage of Various Types of Silica Glasses at 532 and 355 nm", *Japanese Journal of Applied Physics* 43(5A), pp. 2547-2548 (2004).
- [KUZUU] N. Kuzuu, K. Yoshida, H. Yoshida, T. Kamimura, and N. Kamisugi, "Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica at 1064, 532, 355, and 266 nm: evidence of different damage mechanisms between 266-nm and longer wavelengths", *Appl. Opt.* 38, pp. 2510 (1999).
- [LAEGSGAARD] J. Laegsgaard, "Theory of surface second-harmonic generation in silica nanowires", *J. Opt. Soc. Am. B*, 27 (7), pp. 1317-1323 (2010).
- [LAROUCHE] M. Laroche, P. Leproux, V. Couderc, C. Lesvigne, H. Gilles and S. Girard, "Compact sub-nanosecond wide-band laser source for biological applications", *Appl. Physics B: Lasers Opt.* 86(4), pp. 601-604 (2007).
- [LAUTERBORN] W. Lauterborn, "Optic cavitation", *Journal de Physique, Colloque C8*, supplément au n°11, tome 40, pp. c8-273 (1979)
- [LEBRUN1] S. Lebrun, M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat, X. Theillier, "Convertisseurs de longueur d'onde RAMBIO, principe et applications", 36ème Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Optique Bordeaux 16, Bordeaux, France (2016). Conférence invitée.
- [LEBRUN2] S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey, and G. Roosen, "High-efficiency single-mode Raman generation in a liquid-filled photonic bandgap fiber", *Optics Letters*, 32(4), pp. 337-339 (2007).
- [LEBRUN3] S. Lebrun, C. Lesvigne-Buy, P. Delaye, R. Frey, G. Pauliat, and G. Roosen, "Optical characterizations of a Raman generator based on a hollow core photonic crystal fiber filled with a liquid", *Journal of Nonlinear Optical Physics and Materials*, 19(1), pp. 101-109 (2010).

- [LEBRUN4] S. Lebrun, P. Delaye, G. Pauliat, and M. C. Phan Huy, "Wavelength converters for biophotonic applications", 20th Annual Symposium IEEE Benelux Chapter, Brussels, Belgium (2016). Conférence invitée.
- [LEBRUN5] S. Lebrun, C. Buy, P. Delaye, R. Frey, and G. Pauliat, "Efficient Raman converter emitting in the orange range on the second Stokes order of toluene", European Optical Society Annual Meeting Topical, Paris, (2010).
- [LEON-SAVAL] S. Leon-Saval, T. Birks, W. Wadsworth et P. Russell, "Supercontinuum generation in submicron fibre waveguides", *Opt. Express*, 12 (13), pp. 2864-2869 (2004).
- [LOVE] J. D. Love, W. M. Henry, W. J. Stewart, R. J. Black, S. Lacroix et F. Gonthier, "Tapered single-mode fibres and devices. Part 1 : Adiabaticity criteria", *IEE Proceedings -J*, 138 (5), pp. 343-354 (1991).
- [MÄGI] E. Mägi, L. Fu, H. Nguyen, M. Lamont, D. Yeom et B. Eggleton, "Enhanced Kerr nonlinearity in sub-wavelength diameter As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> chalcogenide fiber taper", *Opt. Exp.*, 15 (16), pp. 10324-10329 (2007).
- [MARTIN] M. D. Martin and E. L. Thomas, "Infrared difference frequency generation", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. QE-2, n°8, Aug. 1966.
- [MENG] C. Meng, S. Yu, H. Wang, Y. Cao, L. Tong, W. Liu et Y. Shen, "Graphene-doped polymer nanofibers for low-threshold nonlinear optical waveguiding", *Light : Science & Applications* 4, e348 (2015).
- [NIELSEN] K. Nielsen, D. Noordegraaf, T. Sorensen, A. Bjarklev, and T. P. Hansen, "Selective filling of photonic crystal fibers", *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* 7, L13 (2005).
- [NKT] <https://www.nktphotonics.com/lasers-fibers/product/hollow-core-photonic-crystal-fibers/>
- [OMATSU] T. Omatsu, A. Lee, H. M. Pask, and J. Piper, "Passively Q-switched yellow laser formed by a self-Raman composite Nd:YVO<sub>4</sub>/YVO<sub>4</sub> crystal", *Appl. Phys. B* 97, pp. 799-804 (2009).
- [ONSAGER] L. Onsager, "Electric moments of molecules in liquids", *J. Am. Chem. Soc.* 58 (8), pp. 1486-1493 (1936).
- [OUZOUNOV] D. G. Ouzounov, F. R. Ahmad, D. Müller et al., "Generation of megawatt optical solitons in hollow-core photonic band-gap fibers," *Science*, 301 (5640), pp. 1702-1704 (2003).
- [PHANHUY1] M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat and S. Lebrun, "Efficient Raman converter in the yellow range with high spatial and spectral brightness", *Applied Optics*, 57 (24), pp. 6892-6897 (2018).
- [PHANHUY2] M. C. Phan Huy, P. Delaye, G. Pauliat, N. Dubreuil, F. Gérôme, B. Debord, F. Benabid, and S. Lebrun, "Lowering backward Raman and Brillouin scattering in waveguide Raman wavelength converters", *Journal of the European Optical Society : Rapid publications*, 13:31 (2017).

- [PRYAMIKOV] D. Pryamikov, A. S. Biriukov, A. F. Kosolapov, V. G. Plotnichenko, S. L. Semjonov and E. M. Dianov, "Demonstration of a waveguide regime for a silica hollow-core microstructured optical fiber with a negative curvature of the core boundary in the spectral region  $> 35 \mu\text{m}$ ", *Opt. Express*, 21 (8), pp. 9514 (2013).
- [PYSZ] D. Pysz, I. Kujawa, R. Stępień, M. Klimczak, A. Filipkowski, M. Franczyk, L. Kociszewski, J. Buźniak, K. Haraśny and R. Buczyński, "Stack and draw fabrication of soft glass microstructured fiber optics", *Bulletin of the Polish Academy of Sciences Technical Sciences*, 62 (4), pp. 667-682 (2014).
- [RAVETS] S. Ravets, J. Hoffman, P. Kordell, J. Wong-Campos, S. Rolston and L. Orozco, "Intermodal energy transfer in a tapered optical fiber : optimizing transmission", *J. Opt. Soc. Am. A*, 30 (11), pp. 2361-2371 (2013).
- [ROBERTS] P. J. Roberts, F. Couny, H. Sabert, B. J. Mangan, D. P. Williams, L. Farr, M. W. Mason, A. Tomlinson, T. A. Birks, J. C. Knight, and P. St.J. Russell, "Ultimate low loss of hollow-core photonic crystal fibres", *Opt. Express*, 13 (1), pp. 236 (2005).
- [ROSS] V. Ross, G. Nasee, G. Lin, M. Kelly, N. Michaud, T. Flotte, J. Raythen et R. Anderson, "Comparison of responses of tattoos to picosecond and nanosecond Q-Switched Nd:YAG lasers", *Arch. Dermatol*, 134 (2), pp. 167-171 (1998).
- [SBDS] Spectral Database for Organic Compounds SDBS : [http://sdb.sdb.aist.go.jp/sdb/cgi-bin/direct\\_frame\\_top.cgi](http://sdb.sdb.aist.go.jp/sdb/cgi-bin/direct_frame_top.cgi)
- [SHAN1] L. Shan, "Stimulated Raman scattering in the evanescent field of nanofibers", these de doctorat de l'Université Paris-Sud, soutenue le 19/12/2012 à l'IOGS (Palaiseau).
- [SHAN2] L. Shan, G. Pauliat, G. Vienne, L. Tong, and S. Lebrun, "Stimulated Raman scattering in the evanescent field of liquid immersed tapered nanofibers", *Applied Physics Letters*, 102:201110, May 2013.
- [SHAN3] L. Shan, G. Pauliat, G. Vienne, L. Tong, and S. Lebrun, "Design of nanofibres for efficient stimulated Raman scattering in the evanescent field", *Journal of the European Optical Society : Rapid publications*, 8:13030, April 2013.
- [SHEN] Y. R. Shen and N. Bloembergen, "Theory of Stimulated Brillouin and Raman scattering", *Phys. Rev.*, 137 (6A), pp. 1787-1805 (1965).
- [SIEBERT] R. Siebert, B. Leh, Y. Charon, M. Hilly-Collado, M.-A. Duval, L. Ménard, F. P. Monnet, P. Varlet, "Development of an autofluorescent probe designed to help brain tumor removal: study of an animal model", in *Photonic Therapeutics and Diagnostics VI, Proceedings of SPIE Vol. 7548, 75483Y* (2010).
- [SMITH] R. G. Smith, "Optical Power Handling Capacity of Low Loss Optical Fibers as Determined by Stimulated Raman and Brillouin Scattering", *Appl. Opt.* 11, pp. 2489-2494 (1972).

- [SMITH2] A. V. Smith, B. T. Do, G. R. Hadley, R. K. Farrow, "Optical Damage Limits to Pulse Energy From Fibers", *IEEE Journal of selected topics in quantum electronics*, 15(1), pp. 153 (2009).
- [SMITH3] A. V. Smith and B. T. Do, "Bulk and surface damage of silica by picoseconds and nanosecond pulses at 1064 nm", *App. Opt.*, 47 (26), pp. 4812-4832 (2008).
- [STONE] J. Stone, "CW Raman fiber amplifier" *Appl. Phys. Lett.* 26, pp. 163 (1975).
- [THERMOFISHER] <http://www.thermofisher.com/fr/fr/home/life-science/cell-analysis/labeling-chemistry/fluorescence-spectraviewer.html>
- [TONG1] L. Tong et M. Sumetsky, "Subwavelength and nanometer diameter optical fibers", *Advanced topics in science and technology in China*, Zhejiang University Press, Hangzhou, China, Springer, Berlin, Germany (2009).
- [TONG2] L. Tong, "Micro/Nanofibre optical sensors : Challenges and prospects", *Sensors*, 18, 903 (2018).
- [TONG3] L. Tong, R. Gattass, J. Ashcom, S. He, J. Lou, M. Shen, I. Maxwell et E. Mazur, "Subwavelength-diameter silica wires for low-loss optical wave guiding", *Nature*, 426, pp. 816-819 (2003).
- [TUCHIN] V. V. Tuchin, Y. S. Skibina, V. I. Beloglazov et al., "Sensor properties of hollow-core photonic crystal fibers," *Technical Physics Letters*, 34 (8), pp. 663-665 (2008).
- [TURNER] M. Turner, T. Monro and S. Afshar, "A full vectorial model for pulse propagation in emerging waveguides with subwavelength structures part II : Stimulated Raman Scattering", *Opti. Express*, 17 (14), pp. 11565-11581 (2009).
- [VOGEL] A. Vogel, J. Noak, K. Nahen, D. Theisen, S. Busch, U. Parlitz, D. X. Hammer, G. D. Noojin, B. A. Rockwell et R. Birngruber, "Energy balance of optical breakdown in water at nanosecond to femtosecond time scales", *Applied Physics B*, 68, pp. 271-280 (1999).
- [WANG] C. S. Wang, "Theory of stimulated Raman scattering", *Phys. Rev. Vol.* 182, 2, 1969.
- [WANG] P. Wang, Y. Wang et L. Tong, "Functionalized polymer nanofibers : a versatile platform for manipulating light at the nanoscale", *Light : Science & Applications* 2, e102 (2013).
- [WARD] J. Ward, A. Maimaiti, V. Le et S. Nic Chormaic, "Contributed review : optical micro- and nanofiber pulling rig", *Review of Scientific Instruments* 85111501 (2014).
- [WIGGINS] T. A. Wiggins, R. V. Wick, D. H. Rank, and A. H. Guenther, "Stimulated Brillouin Scattering in Liquids", *Appl. Opt.* 4 (9), pp. 1203-1205 (1965).
- [WOOD] R. W. Wood and G. Collins, "Raman spectra of a Series of Normal Alcohols and Other Compounds", *Phys. Rev.*, Vol. 42, pp 386-392, November 1932.
- [YAO] W. Yao, Y. Li, and X. Huang, "Fluorinated poly(meth)acrylate: Synthesis and properties", *Polymer* 55 pp. 6197-6211 (2014).

[YIJIANG] C. Yijiang, A.W. Snyder "Saturation and depletion effect of Raman scattering in optical fibers" *J. Lightwave Technol.* 7 pp. 1109 (1989).

[YIOU] S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie, J. Chinaud, R. Frey, G. Roosen, P. Viale, S. Février, P. Roy, J.-L. Auguste, and J.-M. Blondy "Stimulated Raman scattering in an ethanol core microstructured optical fiber", *Optics Express*, 13(12), pp. 4786–4791 (2005).

[ZHANG] R. Zhang, J. Teipel, and H. Giessen, "Theoretical design of a liquid-core photonic crystal fiber for supercontinuum generation", *Opt. Express* 14, pp. 6800-6812 (2006).

[ZHANG] T. Zhang, Y. Zheng, C. Wang, Z. Mu, Y. Liu, J. Lin, "A review of photonic crystal fiber sensor applications for different physical quantities", *Appl. Spectroscopy Reviews*, vol. 53 (6), pp. 486-502 (2018).