Université de Bourgogne
Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne
UMR 6303 CNRS - Université de Bourgogne

THESE

Pour obtenir le grade de

Docteur en Physique de l'Université de Bourgogne

par

Charles-Henri HAGE

Sources optiques fibrées pour applications biomédicales

Directeur de thèse : Guy MILLOT
Encadrants : Christophe FINOT, Bertrand KIBLER

Thèse soutenue le 23 janvier 2013 devant le jury composé de

Antoine COURJAUD	Docteur, Business Development Manager, société Amplitude Systèmes	Examinateur
Christophe FINOT	Professeur, Université de Bourgogne	Encadrant
Bertrand KIBLER	Chargé de Recherche, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne	Encadrant
Alexandre KUDLINSKI	Maître de Conférences, Université des Sciences et Technologies de Lille	Rapporteur
Frédéric LOURADOUR	Professeur, Université de Limoges	Rapporteur
Guy MILLOT	Professeur, Université de Bourgogne	Directeur de thèse
Hervé RIGNEAULT	Directeur de Recherche, Institut Fresnel	Examinateur

Thèse bénéficiant du dispositif Jeunes Chercheurs Entrepreneurs (JCE), financé par la Région Bourgogne.

Université de Bourgogne
Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne
UMR 6303 CNRS - Université de Bourgogne

THESE

Pour obtenir le grade de

Docteur en Physique de l'Université de Bourgogne

par

Charles-Henri HAGE

Sources optiques fibrées pour applications biomédicales

Directeur de thèse : Guy MILLOT
Encadrants : Christophe FINOT, Bertrand KIBLER

Thèse soutenue le 23 janvier 2013 devant le jury composé de

Antoine COURJAUD	Docteur, Business Development Manager, société Amplitude Systèmes	Examinateur
Christophe FINOT	Professeur, Université de Bourgogne	Encadrant
Bertrand KIBLER	Chargé de Recherche, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne	Encadrant
Alexandre KUDLINSKI	Maître de Conférences, Université des Sciences et Technologies de Lille	Rapporteur
Frédéric LOURADOUR	Professeur, Université de Limoges	Rapporteur
Guy MILLOT	Professeur, Université de Bourgogne	Directeur de thèse
Hervé RIGNEAULT	Directeur de Recherche, Institut Fresnel	Examinateur

Thèse bénéficiant du dispositif Jeunes Chercheurs Entrepreneurs (JCE), financé par la Région Bourgogne.

Remerciements

Les 1000 jours dont parlait Musashi… effectivement, ils permettent d'avoir un aperçu d'un sujet ! Cela dit, celui-ci parlait également de 10000 autres jours pour parvenir à une certaine maîtrise, un certain recul… l'exercice de la biblio permet de s'en rendre là-aussi bien compte… Bref. Passons à la chose que l'on écrit généralement à la fin, et qui très logiquement se trouve au tout début du manuscrit. Signalons toutefois que l'échantillon proposé ici n'est que représentatif, afin de ne pas offenser les personnes non-citées.

Tout d'abord, ce sont généralement les personnes d'un certain âge (ou d'un âge certain ?) qui peuvent dire cela, mais j'ai tout de même eu l'opportunité de voir se succéder 2 directeurs et 2 numéros d'UMR pour un même laboratoire. Je tiens ainsi à remercier MM. Gilles Bertrand et Alain Dereux, directeurs successifs du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, pour m'avoir accueilli lors de cette thèse. Ce laboratoire étant lié à l'Université de Bourgogne, je remercie également les deux présidents successifs : Mme Sophie Béjean et M. Alain Bonin.

Cette thèse s'est de plus déroulée dans le cadre du dispositif JCE (Jeunes Chercheurs Entrepreneurs) qui vise à stimuler le tissu économique local par la sensibilisation de doctorants au monde de l'entreprise et de l'innovation. Il s'est traduit par le suivi des cours du Master 2 « Administration des Entreprises », répartis sur les 3 ans de thèse, le suivi de la formation à l'entrepreunariat « 12 jours pour Entreprendre » dispensée par l'incubateur PREMICE et par le financement par la Région Bourgogne de la bourse de thèse dont j'ai bénéficié. A ce titre, je remercie les institutions et personnes qui font vivre ce dispositif : la Région Bourgogne, le Master Administration des Entreprises (particulièrment M. Fabrice Hervé et Mme Dominique China, responsable et secrétaire du Master, pour piloter efficacement la mise en place de ce dispositif) et l'incubateur PREMICE.

Une thèse d'origine contrôlée étant soumise à analyse et dissection avant appellation, je remercie MM Frédéric Louradour et Alexandre Kudlinski d'avoir accepté d'être rapporteurs pour ce travail de thèse et notamment pour les échanges enrichissants et extrêmement pertinents que nous avons pu avoir. Je remercie pour les mêmes raisons MM. Hervé Rigneault et Antoine Courjaud pour avoir accepté d'examiner ce travail.

Je n'aurais de plus pu parvenir aux résultats présentés sans un encadrement adéquat. Je tiens ainsi à remercier Guy Millot pour avoir accepté de diriger cette thèse et pour les conversations et points de vue toujours pertinents et tournés vers l'avenir. De même, je remercie Christophe Finot dont l'encadrement m'a permis d'en apprendre tant sur les millieux de la recherche et de l'université… enfin, le médaillé de bronze à la résistance psychologique sans faille (il en a fallu pour m'encadrer dans tous les sens du terme, j'en suis tout à fait conscient) et à la conduite nitroglycériméthanolée de karts Bertrand Kibler, dont les prouesses expérimentales et la rigeur resteront des modèles permanents (mais comment fait-il pour injecter rapidement … ?)

L'entourage du labo est si important qu'il va être difficile de tous les citer… je remercie notamment les membres des équipes Solitons, Lasers et Communications Optiques (SLCO, mon

équipe d'accueil), Processus Femtoseconde et Lasers intenses (PFL) et Optique de Champ Proche (OCP) pour cette ambiance si particulière qu'ils ont su faire régner au labo (et à l'extérieur…). A ce sujet, je tiens tout particulièrement à remercier les membres de l'IBL Bruno, Bernard, Stéphane, Aurélien et Vincent notamment, collègues et amis appréciés. Une pensée toute particulière pour le dernier mais non le moindre de ses membres, Franck, le bourreau du 52/42/32 et couteau Suisse de l'équipe PFL et collègue du bureau D223, dont les connaissances et savoirs faire en CARS ont en grande partie permis l'obtention des résultats présentés, et dont la personnalité, l'humour loin d'être tout lisse (comme Bernard) et l'ouverture (d'esprit) a rendu ces trois années uniques. De même, une pensée particulière pour M. Kamel « the P.A.P. » Hammani (je sais qu'au fond de toi tu apprécies cette juste reconnaissance…) et M. Philippe « the BdV » Morin pour leur accueil et leur support permanent. Une pensée également pour les premiers partis et les derniers arrivés (dans une approche chronomégalocentrée j'entends) : Anne, Coraline, Thomas, Pierre-Yves, Benoît, Jérémy, qui ont contribué ou contribuent à l'ambiance du labo. Egalement M. Benoît "initials BB" Barivau pour nos échanges et tes relectures éclair et pertinentes !

Je remercie également les membres du service Administratif et Financier (SAF) pour leur disponibilité et leur dynamisme, notamment Mmes Sandra Klein et Claire Priou et Mlle Claire Millot, dont je peux attester de l'extrême solidité psychologique au vu de mon don inné pour la chose administrative… De plus, une manip qui fonctionne nécessite parfois la réalisation de pièces de compétition. A ce titre, un grand merci aux membres des ateliers de mécanique et d'électronique. Ces ateliers d'appui sont autant de chances qui se font rares dans un labo de recherche, et j'appelle de tous mes voeux les directeurs actuel et futurs à travaillller à leur conservation.

Je citerai plus ou moins péle-mèle d'autres contributeurs à ce succès. Tout d'abord les membres de l'ATCPB, source d'échanges et de rencontres. Notamment Kamel "the P.A.P." Hammani et Michael Claudon pour ces passages de flambeaux de webmaster réussis ! Mes compagnons doctorants JCE (et également non JCE) avec qui j'ai pu partager tant de cours de master, de rédaction de dossiers et de stress de partiels ! Je remercie une fois encore Hervé Rigneault ainsi que les membres de l'équipe MOSAIC de l'Institut Fresnel de Marseille (Esben, Sophie et Pascal notamment) pour leur accueil et les échanges que l'on a pu avoir sur le CARS. Merci également aux personnes cotoyées durant mes activités physiques extra-thèse, qui ont également contribué à me dé/re-mettre la tête sur les épaules et les idées en place.

De manière plus personnelle, les amis de Baggio, toujours là, et un compagnon de route et de galère particulier, Florent « AsiAnO » qui sait ce que c'est que… beaucoup de choses. Merci également à nombre de membres d'associations, notamment brésiliennes, auxquelles j'ai adhéré et qui m'ont ouvert les portes de cette cultrure riche en ouverture et en enseignements. *Muito obrigado Cam', maravilha de mulher !* Les derniers remerciements mais non les moindres, mes parents et ma sœur. Leur soutien inconditionnel m'a grandement permis de tenir durant ces trois années de thèse et de transformer une candidateure un peu improbable et folle en ce « compuscript » qui atteste du travail effectué.

Merci à tous !

Charles-Henri Hage

Table des matières

Remerciements

Table des matières

Introduction 1

1 Contexte et théorie 7

1.1 Les techniques d'imagerie avancées 8

1.1.1 Les techniques multi-photons 8

1.1.1.1 Origine physique et avantages de ces techniques 8

1.1.1.2 Les sommes de fréquences 11

1.1.1.3 Les techniques de diffusion Raman cohérente (ou DRC) 12

1.1.1.4 Les techniques de fluorescence 13

1.1.2 Autres techniques récentes 14

1.1.2.1 Imagerie par tomographie optique cohérente 14

1.1.2.2 Imagerie photoacoustique 15

1.1.2.3 Imagerie Terahertz 16

1.2 La diffusion Raman cohérente : une imagerie non-linéaire "chapeau" 18

1.2.1 L'alpha et l'oméga de la DRC 18

1.2.1.1 Le mélange à quatre ondes 18

1.2.1.2 La diffusion Raman spontanée 19

1.2.2 La diffusion Raman anti-Stokes cohérente : le CARS 21

1.2.2.1 Généralités 21

1.2.2.2 Historique 23

1.2.2.3 Techniques mises en œuvre pour le CARS 24

1.2.3 Le SRS, ou comment exploiter autrement le $\chi^{(3)}$ 30

1.2.3.1 L'observation d'un autre effet du $\chi^{(3)}$ résonnant 30

1.2.3.2 Le dispositif expérimental SRS 30

1.2.4 La cuisson ? A point, merci ! 32

1.2.4.1 Le brulé, c'est mauvais (ou : photoendommagement des échantillons) 32

1.2.4.2 Temps de cuisson (ou : ordres de grandeur communs en imagerie non-linéaire) 33
1.2.5 Les verrous technologiques 33
1.3 Les sources optiques fibrées pour la microscopie CARS 34
1.3.1 Les solutions existantes 34
1.3.1.1 Principe général et historique des solutions 34
1.3.1.2 Utilisation d'un supercontinuum 36
1.3.1.3 Utilisation du SSFS 36
1.3.1.4 Utilisation du mélange à quatre ondes 37
1.3.1.5 Sources "exotiques" 38
1.3.2 Eléments de théorie sur les fibres 39
1.3.2.1 Principes de guidage 39
1.3.2.2 Différents « types » de fibres à guidage par RTI 41
1.3.2.3 Effets d'atténuation du signal 42
1.3.2.4 La dispersion chromatique 44
1.3.2.5 Les effets non-linéaires 46
1.3.2.6 Importance relative des effets linéaires et non-linéaires 48
Conclusion du chapitre 49

2 L'effet Raman intra-impulsion : la longueur d'onde à la demande 51
2.1 Principe et théorie 51
2.1.1 Equation de propagation 51
2.1.1.1 Equation de Schrödinger non-linéaire "classique" 52
2.1.1.2 Impulsion indéformable 53
2.1.1.3 Equation de Schrödinger non-linéaire généralisée 54
2.1.1.4 Résolution numérique 56
2.1.2 L'effet Raman intra-impulsion 57
2.1.2.1 Introduction de cet effet 57
2.1.3 Démonstrations 60
2.2 Test de différentes fibres 63
2.2.1 Considérations qualitatives préalables 63
2.2.2 Montage expérimental 65
2.2.2.1 Description du montage 65
2.2.2.2 Quelques mots sur la lame de phase 66
2.2.3 Résultats expérimentaux 67
2.2.3.1 Fibres NKT Photonics 67
2.2.3.2 Fibres produites par PERFOS 71

2.2.3.3 Augmentation de la DSE ... 73
2.3 Etude de la stabilité ... 74
2.3.1 Stabilité court-terme ... 74
2.3.1.1 Types de techniques de mesure ... 74
2.3.1.2 Mesure des gigues d'un laser par analyse de son spectre radio-fréquences ... 75
2.3.1.3 Estimations préalables ... 77
2.3.1.4 Mesure de gigues ... 78
2.3.2 Stabilité long-terme ... 81
Conclusion du chapitre ... 82

3 Applications de l'effet Raman intra-impulsion ... 83
3.1 L'amplification de faibles fluctuations relatives d'amplitude ... 83
3.1.1 Mise en œuvre expérimentale ... 84
3.1.1.1 Principe ... 84
3.1.1.2 Dispositif mis en œuvre ... 85
3.1.1.3 Fonctions de transfert du système ... 87
3.1.2 Caractérisation des fluctuations relatives amplifiées ... 88
3.1.2.1 Amplification des fluctuations relatives ... 88
3.1.2.2 Conservation de la distribution statistique des fluctuations ... 89
3.1.2.3 Importance de la puissance de travail ... 90
3.2 Le quasi-supercontinuum ... 92
3.2.1 Introduction, dispositif expérimental ... 92
3.2.2 Démonstration expérimentale ... 94
3.2.3 Amélioration de la qualité du spectre *a priori* et *a posteriori* ... 96
3.2.3.1 Amélioration *a priori* ... 96
3.2.3.2 Amélioration *a posteriori* ... 97
Conclusion du chapitre ... 101

4 Compression spectrale non-linéaire des impulsions pompe ... 103
4.1 Principe et dispositif expérimental ... 103
4.1.1 Principe ... 103
4.1.2 Elément dispersif ... 107
4.1.3 Dispositif expérimental retenu ... 112
4.2 Dimensionnement du montage ... 113
4.2.1 Réglage du chirp initial ... 113
4.2.2 Optimisation du couple puissance-longueur de fibre ... 116

4.3 Expériences ... 117
4.4 Configuration finale ... 118
4.4.1 Fibre choisie ... 118
4.4.2 Mesures et comparaison au design ... 120
4.4.3 Mesures de gigues ... 121
4.5 Améliorations possibles ... 122
4.5.1 Evolution vers un dispositif entièrement fibré ... 122
4.5.2 Augmentation de la puissance de sortie : ... 123
4.5.3 Amélioration de la qualité des impulsions : mise en forme parabolique ... 124
Conclusion du chapitre ... 126

5 Validation du dispositif ... 127
5.1 Dispositif expérimental ... 128
5.1.1 Configuration CARS adoptée ... 128
5.1.2 Choix matériels ... 128
5.1.2.1 Faisceau pompe ... 129
5.1.2.2 Faisceau Stokes ... 129
5.1.2.3 Recombinaison et dispositif de spectroscopie ... 129
5.2 Synchronisation des impulsions ... 134
5.2.1 Présentation des techniques possibles ... 134
5.2.2 Mesures de synchronisation ... 136
5.2.2.1 Mesures préliminaires ... 136
5.2.2.2 Premières mesures de synchronisation ... 138
5.2.2.3 Influence de la longueur d'onde des impulsions Stokes ... 138
5.2.3 Reconstruction temporelle des impulsions pompe ... 140
5.2.4 Stabilité du signal synchronisé ... 143
5.2.4.1 Utilisation d'une photodiode non-linéaire ... 143
5.2.4.2 Utilisation de deux photodiodes linéaires ... 143
5.3 Mesure de spectres CARS ... 145
5.3.1 Considérations théoriques et expérimentales ... 145
5.3.2 Mesure de spectres ... 147
5.3.2.1 Mise en place des mesures et première vérification ... 147
5.3.2.2 Spectres de l'éthanol ... 149
5.3.2.3 Spectres de l'acétone ... 150
5.3.2.4 Spectres du polystyrène ... 151
5.3.2.5 Spectres d'un mélange éthanol/acétone ... 152

5.3.2.6 Possibilités de la source pour l'imagerie en microscopie 153
5.4 Prototypage : une vision utilisateur 154
5.4.1 Problématique et méthode de traitement 154
5.4.2 Mise en place du cahier des charges fonctionnel 154
5.4.3 Mise en œuvre des fonctions : architecture logicielle 156
5.5 Améliorations et extensions 157
5.5.1 Améliorations possibles 157
5.5.2 Vers une imagerie multimodale 158
5.5.2.1 Autres configurations d'imagerie CARS 159
5.5.2.2 Imagerie par SRS 160
5.5.2.3 Autres types d'imageries 161
5.6 Extension du système général : une source entièrement fibrée 162
Conclusion du chapitre 164

Conclusion 165

Liste des abréviations 169

Annexes 173
A1. Tableau de correspondance entre les grandeurs Stokes et CARS 174
A2. Caractéristiques du spectromètre d'analyse du signal CARS 175
A3. Calcul du courant généré par absorption à deux photons 176
A4. Caractéristiques de la photodiode de synchronisation "fine" 178
A5. Spectres Raman spontané des échantillons analysés 180

Bibliographie 183

Communications 199

Résumé 202

Summary 202

Introduction

Au sein de la recherche scientifique, une activité importante repose dans la compréhension du fonctionnement du vivant. Cette compréhension peut par exemple permettre d'étudier la réaction d'une cellule vivante à la présence d'un produit étranger. Cette thématique est d'actualité pour les entreprises productrices de produits cosmétiques ou sanitaires, pour lesquelles l'efficacité et la non-toxicité de leur production constitue un enjeu médiatique et donc économique fort. Elle a également, par le passé et encore aujourd'hui, abouti à la mise au point d'un nombre important de traitements médicaux. Dans ce cadre, le premier outil d'observation a été l'œil, suivi de la loupe et du microscope en lumière diffuse. Puis il a été possible de décrire la structure des cellules par le spectre d'absorption de certaines molécules. Ainsi, on constate que l'emploi d'ondes en tant que "véhicule de l'information cellulaire" constitue un outil de choix car ces ondes permettent une imagerie sans contact, à l'image du schéma décrit par la figure ci-dessous

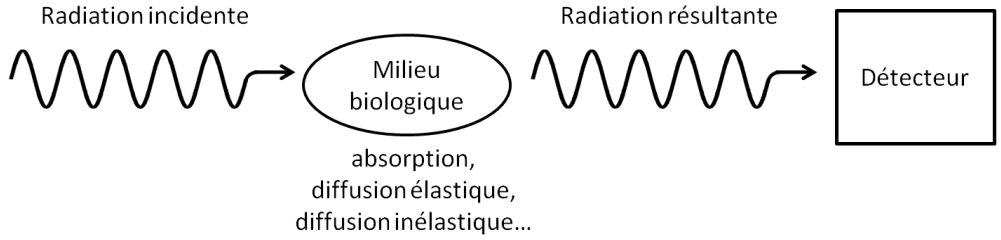


Figure 0-1 : Principe d'un système d'imagerie

Le Tableau 0-1 résume les différents types de "médias" d'imagerie (ondes acoustiques, ondes électromagnétiques, électrons...), avec leur précision, forces, faiblesses et applications. Il permet de remarquer que toutes ces techniques sont complémentaires et qu'il n'existe pas de technique idéale, chacune présentant des avantages et limites. On peut constater qu'une grande partie de ces « médias » est constituée par le spectre électromagnétique.

Dans ce spectre, la gamme visible-moyen infrarouge est intéressante car elle permet d'obtenir des informations sur les liaisons moléculaires qui composent les cellules biologiques. C'est ainsi que les techniques utilisant les processus d'émission de fluorescence, d'absorption infrarouge et de diffusion inélastique Raman sont d'une importance primordiale. Cependant, l'utilisation du visible et du processus de fluorescence aboutit à une absorption linéaire et donc à un échauffement important et à l'emploi forcé de molécules spéciales, appelées fluorophores, qui posent des problèmes de temps de vie et de compatibilité biologique. D'un autre côté, la diffusion Raman souffre d'une probabilité très faible et requiert des puissances lumineuses incompatibles avec les cellules vivantes. L'emploi de faisceaux dans le moyen infrarouge pour la spectroscopie d'absorption infrarouge résout ce problème, mais souffre d'une résolution limitée (≈ 15 µm) qui empêche une imagerie cellulaire précise. Il existe cependant un socle de techniques qui permet d'exploiter efficacement le domaine du proche infrarouge, avec une bonne résolution spatiale (300-500 nm) et des puissances requises compatibles avec l'étude du vivant. Il s'agit des techniques exploitant l'optique non-linéaire, dont le développement important est conséquent à l'invention du laser en 1960 et à la mise au point

Support	*Origine*	*Précision*	*Avantages*	*Inconvénients*	*Applications*
Ondes acoustiques	Mécanique, compression / détente d'un volume	≈ mm	✓ Non-ionisant ✓ Bonne pénétration	× Faible résolution × Pas d'information de nature chimique	✓ Echographie de divers organes
IR	Vibrations moléculaires ***0,05-0,5 eV***[1]	≈ 15 µm	✓ Profondeur de pénétration ✓ Signal caractéristique des liaisons moléculaires	× Faible résolution (15 µm) × Sources actuelles peu puissantes	✓ Spectroscopie des composés organiques : identification de composés en médecine légale
Visible	Orbitales électroniques moléculaires (absorption, diffusion inélastique) ***1,55-3 eV***	0.3-1 µm	✓ Bonne résolution spatiale ✓ Signal caractéristique de liaisons moléculaires	× Peut être toxique pour les milieux biologiques	✓ Observation de cellules en mouvement ✓ Analyse de médicaments ou de substances naturelles en milieux biologiques ✓ Observation de processus biologiques par effet Raman
UV	Orbitales moléculaires moléculaires ***3-6 eV***	≈ 150 nm	✓ Précision ✓ Suivi de processus biologiques	× Peut être toxique pour les milieux biologiques	✓ Techniques de fluorescence (ex: auto-fluorescence de la coenzyme NADH)
X	Orbitales électroniques atomiques ***124-124000 eV***	≈ nm	✓ Faible absorption de certains tissus	× Rayonnement ionisant	✓ Radiographies (os, organes ayant fixé des produits absorbants)
Rayons Y	Noyaux atomiques ≈ ***150 keV***[2]	mm-cm	✓ Imagerie "fonctionnelle" (ex. : sur-représentation de glucides)	× Faible résolution spatiale × Coût élevé (> million d'euros) × Manipulation d'éléments radioactifs	✓ Imagerie fonctionnelle : analyse du métabolisme glucidique de sites tumoraux
Electrons	Electrons/noyaux	≈ nm	✓ Grande précision	× Non adapté aux échantillons biologiques	✓ Imagerie d'échantillons déshydratés et métallisés
Ondes magnétiques	Moment magnétique du proton de l'atome d'hydrogène	≈ mm	✓ Précision acceptable ✓ Tout plan de coupe possible	× Cher (≈ 1.5 million d'euros) × Encombrant (1 pièce, 10 à 30 tonnes)	✓ Etude de l'oxygénation du cerveau.

Tableau 0-1 : Récapitulatif des médias employés en imagerie biologique et médicale

[1] 1 eV = 1 électron-Volt = $1{,}6.10^{-19}$ C

[2] Ordre de grandeur couramment employé en imagerie médicale. En effet l'intervalle énergétique s'étend de quelques keV (10^3 eV) à plusieurs centaines GeV (10^9 eV).

de lasers délivrant des impulsions ultracourtes (10^{-11} - 10^{-15} seconde) qui fournissent ainsi une puissance crête importante pour une puissance moyenne faible. Ces techniques reposent sur le fait que lorsqu'un matériau est soumis à un champ électrique fort, la réponse des électrons de ce matériau, qui conditionne par exemple ses propriétés optiques, n'est plus constante et dépend de l'intensité de ce champ. Ainsi, ce comportement particulier aboutit par exemple à la dépendance en intensité de l'indice de réfraction ou encore à la composition de fréquences (sommes, différences…).

Parmi celles-ci, on peut imaginer une composition employant trois champs, dont deux présentent une différence de fréquence optique égale à la fréquence de résonance d'une liaison moléculaire. Ce type de composition permet de provoquer le processus de diffusion Raman avec une probabilité environ 10^5 fois plus élevée que celle des techniques de diffusion Raman spontanée. Elle a donné naissance aux techniques de diffusion Raman cohérente et notamment à la technique diffusion cohérente Raman anti-Stokes (appelée CARS en anglais), dont l'application à l'imagerie vibrationnelle des milieux biologiques connaît, depuis 1999, un développement important. En effet, cette technique intéresse pour les raisons suivantes :

- puissance moyenne faible et compatible avec les cellules vivantes
- signal émis fortement exalté par les vibrations moléculaires, donc pertinente pour une imagerie cellulaire
- longueurs d'onde pertinentes appartenant au proche infrarouge, qui correspond à la gamme spectrale d'absorption minimale des tissus.
- longueur d'onde du signal émis inférieure aux longueurs d'onde des faisceaux excitateurs, donc simplement isolable de ces derniers et des signaux annexes (génération de seconde harmonique, fluorescence émise par excitation non-linéaire…)
- signal pertinent émis uniquement au point de focalisation : résolution intrinsèque.

Ainsi, le suivi des mitose[3] ou apoptose[4] cellulaires ou encore le suivi du développement intra-cellulaire du virus de l'hépatite C ont pu être démontrées par une imagerie de la liaison C-H.

Cependant, le principe même de cette technique constitue sa plus grande faiblesse et empêche actuellement sa diffusion aux utilisateurs cible, c'est à dire aux biologistes et aux médecins. En effet, sa mise en œuvre nécessite deux lasers impulsionnels, synchronisés, et dont la différence de fréquence optique peut être ajustée sur plusieurs centaines de nanomètres. Les dispositifs les plus répandus répondant à ce cahier des charges sont composés de deux lasers ou d'un couple laser-OPO (Oscillateur Paramétrique Optique), d'un dispositif de synchronisation et d'une partie optique d'acheminement vers le microscope. Ce type de dispositif est généralement encombrant (table optique de 3 m² et dispositif de synchronisation), cher (environ 300 000 €) et nécessite des compétences spécifiques pour son fonctionnement et sa maintenance. Il n'est ainsi clairement pas adapté aux utilisateurs finaux de ces techniques que seraient les biologistes ou les médecins.

Ce verrou technologique important semble néanmoins pouvoir être surmonté par le développement important de l'optique fibrée en général, et depuis la fin des années 90, par le développement des fibres optiques microstruturées en particulier. En effet, de nombreuses démonstrations ont remplacé un des deux lasers par une fibre optique, menant à un dispositif plus simple, meilleur marché et moins encombrant.

[3] Division d'une cellule mère en deux cellules filles.
[4] Mort programmée d'une cellule en réponse à un signal.

Dans le même temps, d'autres techniques utilisant l'optique non-linéaire ont été appliquées à l'imagerie cellulaire, comme les techniques de fluorescence par absorption à deux photons ou encore la génération de seconde harmonique (ou SHG). Ces techniques, complémentaires de la microscopie CARS, ne nécessitent qu'un seul laser, qui peut par exemple correspondre à un des deux lasers employés pour cette dernière. Ainsi, un dispositif de microscopie CARS devient non seulement la base d'une technique prometteuse, mais également celle d'autres techniques. Cette démarche intellectuelle a abouti aux sources dites "multimodales", promises à un grand avenir. Leur importance scientifique et économique a par ailleurs été illustrée par un dépôt de brevet [J.-X. Cheng, 2010].

De plus, ces techniques non-linéaires ne sont pas les seules à s'être développées au cours des vingt dernières années. D'autres techniques, longtemps limitées par la complexité de leur mise en œuvre, ont également pu bénéficier des avancées des sources laser ultrabrèves et des semi-conducteurs. On peut citer l'imagerie photoacoustique ou encore l'imagerie aux fréquences térahertz. Ces techniques sont également complémentaires de la microscopie CARS car elles peuvent apporter des informations morphologiques.

On peut ainsi se servir de cette réflexion pour mettre en place une boucle de rétroaction qui part d'une veille technologique des différents systèmes d'imagerie pour arriver, si cela s'avère possible, à une évolution de la source multimodale développée. Cette progression est illustrée en Figure 0-2, qui la représente sous une forme inspirée, à dessein, de la fameuse roue de Deming illustrant la célèbre formule "Plan, Do, Check, Act" chère aux stratégies de développement continu.

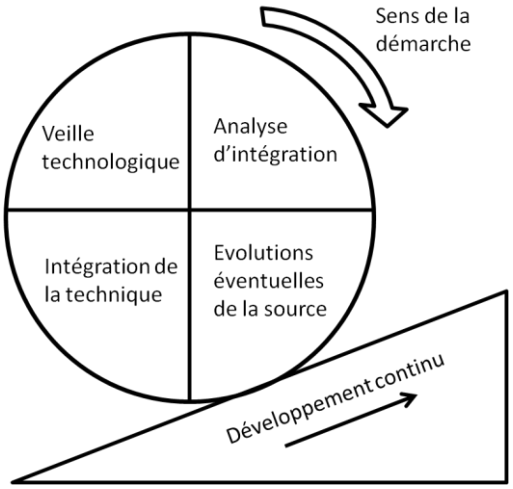


Figure 0-2 : Principe de la "boucle de rétroaction de veille technologique".

Au vu de tout cela, le développement d'une source optique fibrée pour la microscopie CARS, constituant une plateforme de base pour d'autres méthodes d'imagerie, prend une importance particulière. C'est ainsi que le projet ANR SOFICARS (***S***ources **O**ptiques ***FI***brées pour la microscopie ***CARS***, code ANR-07-RIB-013-03) a vu le jour au cours de l'année 2007, fruit d'une réflexion entre les laboratoires Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne (LICB) de Dijon, Fresnel de Marseille, FEMTO-ST de Besançon, la société Amplitude Systèmes de Bordeaux et la division Recherche de l'Oréal. Cette thèse, débutée au mois de décembre 2009, s'inscrit donc dans la continuité de ce projet qui proposait à l'origine deux approches pour la génération des faisceaux nécessaires : l'auto-décalage en fréquence optique d'une impulsion, approche suivie à Dijon, et le contrôle de la phase spectrale

d'un signal spectralement large appelé supercontinuum. De plus, le cadre très appliqué de ce projet, ainsi que son important potentiel économique et innovant, concorde avec l'orientation du Plan d'Action Régional pour l'Innovation (PARI) mis en place en Région Bourgogne. Ce PARI prévoit notamment, dans le cadre du dispositif JCE (Jeunes Chercheurs Entrepreneurs) la sensibilisation à l'entreprise et à l'innovation de doctorants afin de stimuler le tissu économique local. Cette sensibilisation est effectuée par le suivi du Master Administration des Entreprises et d'une formation courte par l'incubateur d'entreprises PREMICE. Cette thèse a pu se dérouler grâce à ce dispositif et a été pleinement influencés par les méthodes de gestion et de veille technologique abordées au cours de ces formations.

En accord avec l'approche décrite par la boucle de rétroaction, le premier chapitre de cette thèse effectue une veille technologique des techniques existantes, puis pose les bases théoriques et pratiques de la microscopie CARS, qui permettent d'aboutir à un cahier des charges des impulsions requises. Il présente ensuite les dispositifs fibrés existants qui répondent pour tout ou partie à ce cahier des charges, et des éléments de théorie des fibres optiques utilisées au cours de ce travail de thèse.

Le deuxième chapitre présente les travaux effectués sur l'auto-décalage en fréquence optique d'un soliton, qui permettra, au sein du dispositif entier, de créer les impulsions Stokes nécessaires à l'imagerie CARS. Ces travaux aboutiront à des règles simples à respecter pour concevoir une fibre optique adéquate. Ces règles seront confirmées par des mesures de spectres de solitons décalés.

Cet effet de décalage en fréquence optique permettant donc de produire "de la longueur d'onde à la demande", deux applications annexes de cet effet sont présentées dans le chapitre 3. Il s'agit pour la première de l'amplification de faibles fluctuations relatives d'énergie d'un train d'impulsions qui a permis notamment d'appuyer des mesures de stabilité de ces impulsions décalées. La seconde application est tournée vers la tomographie en cohérence optique (ou OCT : Optical Coherence Tomography) avec la production, par balayage rapide de la longueur d'onde centrale des impulsions, de signaux spectralement larges qui sont une voie d'amélioration de la résolution spatiale de ce type d'imagerie.

Le quatrième chapitre traite de l'obtention d'une bonne résolution spectrale en imagerie CARS par le processus de compression spectrale des impulsions de l'oscillateur utilisé. Ce processus de "regroupement spectral sans pertes" permettra d'aboutir à des impulsions de largeur spectrale d'environ 10 cm^{-1}, pour des impulsions initiales d'environ 70 cm^{-1}.

Enfin, le cinquième chapitre présentera l'aboutissement du travail effectué dans les chapitres précédents avec l'utilisation des impulsions produites pour la génération de signaux CARS d'échantillons de référence. Cette génération nécessitant la synchronisation des impulsions pompe et Stokes, ce chapitre présentera également le contrôle de cette synchronisation par processus d'absorption à deux photons dans une photodiode, qui mènera à d'intéressants résultats annexes sur les caractéristiques des fibres et des impulsions employées. Ce chapitre présentera également, en accord avec la réflexion générale de ce travail de thèse, les possibilités d'évolution du dispositif existant vers une source d'imagerie multimodale. Enfin, les thématiques développées au cours de cette thèse, associées aux savoirs faire du laboratoire, permettront de proposer une source alternative à partir des longueurs d'onde des télécommunications optiques, soit 1550 nm.

1 Contexte et théorie

L'introduction a présenté une technique d'imagerie non-linéaire, le CARS, comme technique pouvant palier aux limitations des techniques conventionnelles. Elle a également introduit d'autres techniques pouvant s'avérer complémentaires. Ainsi, avant d'aborder la microscopie CARS dans ses aspects physiques et technologiques, ce chapitre présente les techniques d'imagerie non-linéaires et d'autres techniques émergentes ou en plein essor. Cette bibliographie permet non-seulement d'identifier des techniques complémentaires, mais également de placer cette technique dans son "environnement concurrentiel".

La première partie s'intéresse aux phénomènes physiques sous-tendant les différentes techniques d'imagerie. Ainsi, elle n'aborde pas les techniques comme :

- les techniques et dispositifs d'endoscopie [M. Merman, 2011]
- les techniques de microscopie de polarisation, qui reposent sur l'analyse de la polarisation d'un signal issu d'une technique mono ou multi-photon [Brasselet, 2011]
- les techniques de mise en forme de front d'onde [I.M. Vellekoop, 2007]

Ensuite, la deuxième partie présente la microscopie CARS sur le plan théorique et des configurations expérimentales courantes. La troisième partie présente les sources optiques fibrés susceptibles de lever le verrou technologique limitant actuellement sa diffusion aux milieux de la biologie et de la médecine et présente également des éléments de théorie d'optique fibrée nécessaires à la compréhension du fonctionnement de ces systèmes et aux chapitres suivants.

1.1 Les techniques d'imagerie avancées

1.1.1 Les techniques multi-photons

1.1.1.1 Origine physique et avantages de ces techniques

De manière simplifiée, on peut considérer le milieu de propagation des ondes comme un ensemble de particules chargées (ions et électrons). Lors de la propagation d'un champ électrique dans ce milieu, les ions se déplacent dans le sens du champ et les électrons dans le sens opposé. Il se créé donc un moment dipolaire, défini au niveau atomique par $\vec{p} = \alpha\vec{E}$ avec α la polarisabilité et au niveau macroscopique par $\vec{P} = \epsilon_0\chi\vec{E}$, avec $\chi = N\alpha$ la susceptibilité du milieu, N le nombre d'éléments et ε_0 la permittivité diélectrique.

L'approximation de Born-Oppenheimer permet de découpler le mouvement des électrons de celui des atomes, et de ne considérer que le mouvement des électrons dans un réseau fixe de noyaux atomiques. Le champ électrique appliqué étant un champ oscillant, les électrons vont également osciller. Leur mouvement peut être décrit, en mécanique classique, par un modèle d'oscillateur amorti de Lorentz :

$$\ddot{x} + 2\Gamma\dot{x} + \Omega_R^2 x \ + \left[a^{(2)}x^2 + a^{(3)}x^3\right] = \frac{qE}{m} \tag{1.1}$$

avec x la position d'un électron, Γ un coefficient d'amortissement et $\Omega_R = \sqrt{\frac{k}{m}}$ la fréquence de résonance de l'oscillateur (k étant une constante de rappel et m la masse de l'électron). Sans les termes entre crochets, les électrons ont un mouvement d'oscillateur harmonique amorti classique. Pour des intensités inférieures au seuil d'endommagement, on peut résoudre cette équation par la méthode des perturbations, en développant la solution x(t) en puissances du champ électrique. Ceci amène à développer la polarisation de la même manière et de calculer les susceptibilités des différents ordres :

$$P \ = \epsilon_0\left[\chi^{(1)}E_1 + \chi^{(2)}E_1E_2 + \chi^{(3)}E_1E_2E_3 + \cdots\right] = P_L + P_{NL} \tag{1.2}$$

On voit ainsi apparaître des susceptibilités d'ordres supérieurs qui sont à l'origine des effets non-linéaires étudiés, à savoir les effets de composition de fréquences. Les compositions de fréquences classiques sont représentées en Figure 1-1 et seront détaillées par la suite. Cette expression de la polarisation suppose des susceptibilités

- indépendantes de la fréquence (approximation valable loin des résonances électroniques),
- instantanées (approximation valable en comparant le temps de réponse du nuage électronique, inférieur à la femtoseconde, aux durées des impulsions employées, supérieures à la dizaine de femtosecondes),
- localisées dans l'espace.

Elle est alors prise en compte à l'aide des équations de Maxwell pour aboutir à l'équation d'onde, base de tout problème d'optique non-linéaire :

$$-\nabla^2\vec{E} + \frac{\widetilde{\epsilon^1}(\omega)}{c^2}.\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = -\mu_0\frac{\partial^2\vec{P}^{NL}}{\partial t^2}, \qquad \text{avec } \widetilde{\epsilon^1}(\omega) = \epsilon_0\left(1+\widetilde{\chi}^{(1)}(\omega)\right) \tag{1.3}$$

Ainsi, la résolution de tout problème d'optique non-linéaire revient, en premier lieu, à déterminer P_{NL}. On rappelle également que les effets non-linéaires d'ordre pair ne peuvent se produire qu'au sein de milieux non-centrosymétriques. Ils apparaissent ainsi au sein de certains cristaux inorganiques ou à l'interface entre une cellule biologique et son milieu, mais pas par exemple au sein de la silice amorphe qui constitue le verre des fibres optiques courantes. En revanche, les effets non-linéaires d'ordre impair peuvent avoir lieu dans tout milieu.

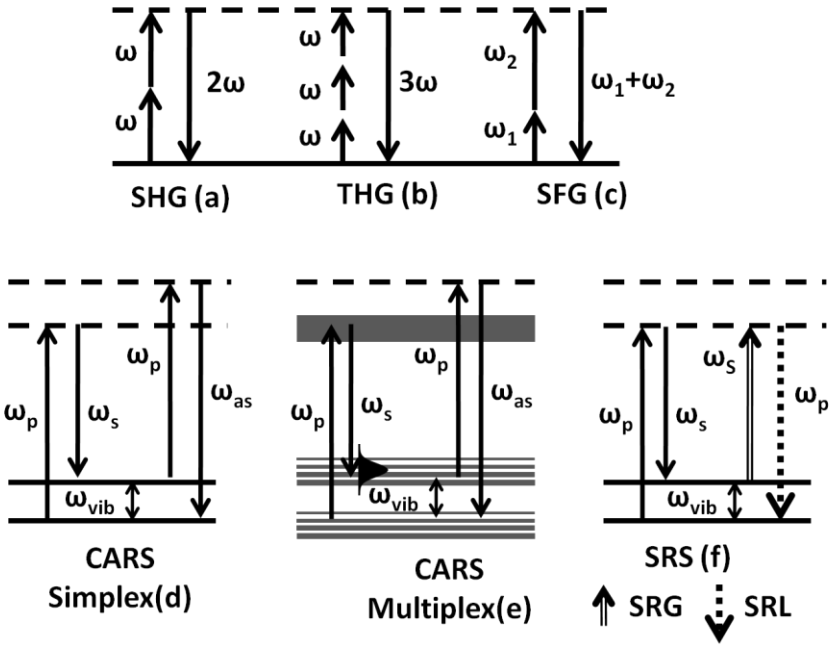


Figure 1-1 : Diagrammes d'énergie de différents processus non-linéaires, résonnants ou non. (a) SHG : Génération de seconde harmonique. (b) THG : Génération de troisième harmonique. (c) SFG : Génération de fréquence somme. (d) S-CARS : Diffusion Cohérente Raman anti-Stokes "Simplex". (e) M-CARS : Diffusion Cohérente Raman anti-Stokes "Multiplex". (f) SRS : Diffusion Raman Stimulée. On distingue les modes de fonctionnement en SRG (Stimulated Raman Gain) et SRL : Stimulated Raman Loss).

Enfin, l'équation 1.3 permet de faire apparaître assez simplement, au travers de l'exemple de la somme de fréquence (Figure 1-1 (c)) dans un milieu non-linéaire d'ordre 2 de longueur L, la notion d'accord de phase. En effet, dans ce milieu, la polarisation non-linéaire s'exprime comme $2\epsilon_0\chi^{(2)}A_1A_2e^{i(k_1+k_2)z}e^{i(\omega_1+\omega_2)z} = 2\epsilon_0\chi^{(2)}A_1A_2e^{ik_3z}e^{i\omega_3z}$ avec A_i, k_i et ω_i les amplitude, vecteur d'onde et fréquence des différentes ondes. L'injection dans l'équation 1.3 amène

$$\frac{\delta A_3}{\delta z} = \frac{i\chi^{(2)}\omega_3^2}{k_3c^2}A_1A_2\exp(i\Delta kz) \rightarrow I_3 = \frac{\sqrt{\mu_0}\left|\chi^{(2)}\right|^2\omega_3^2I_1I_2}{2\sqrt{\epsilon_0}n_1n_2n_3c^2}L^2\,\mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right) \tag{1.4}$$

avec $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$. Une méthode répandue, pour maximiser l'intensité de la composante de fréquence somme, est de maximiser le sinus cardinal, en "faisant correspondre" les vecteurs d'onde (satisfaction de l'accord de phase) ou en rapprochant le plus possible la longueur d'interaction de la longueur de cohérence du processus, définie comme $|\pi/\Delta k|$. La première stratégie a donné naissance aux configurations spatiales de faisceaux de type "BOXCARS" (partie 1.2.2). La seconde correspond à la configuration "tight focusing" employée en microscopie CARS.

En termes d'ordres de grandeur, $\chi^{(1)} \approx 1$, $\chi^{(2)} \approx 10^{-12}$ m/V, et $\chi^{(3)} \approx 10^{-24}$ m²/V², pour les ordres les plus fréquemment abordés. Ainsi, les termes d'ordres supérieurs ne deviennent importants que pour des champs électriques importants, typiquement fournis par les lasers. Cet état de fait est intéressant car le signal non-linéaire peut ainsi être uniquement généré au point de focalisation du laser utilisé, aboutissant à une résolution spatiale intrinsèque. Cet avantage est clairement illustré par la Figure 1-2, qui représente la comparaison entre un signal de fluorescence linéaire (trainée en haut de la cuve) et non-linéaire (point en bas de la cuve).

Le second avantage, également parfaitement illustré par les techniques de fluorescence, réside dans les longueurs d'onde utilisées. En effet, au lieu d'éclairer l'échantillon biologique avec des longueurs d'ondes visibles et donc sujettes à absorption linéaire et produisant un échauffement, des longueurs d'onde du proche infrarouge (≈ 700-1000 nm) sont utilisées et résultent en un échauffement limité et une profondeur de pénétration accrue.

Enfin, l'utilisation d'impulsions ultra-courtes (picoseconde à femtoseconde) permet de bénéficier de puissances crête importantes, nécessaires à la génération d'un signal analysable, pour des puissances moyennes faibles et donc une fois encore compatibles avec les milieux biologiques.

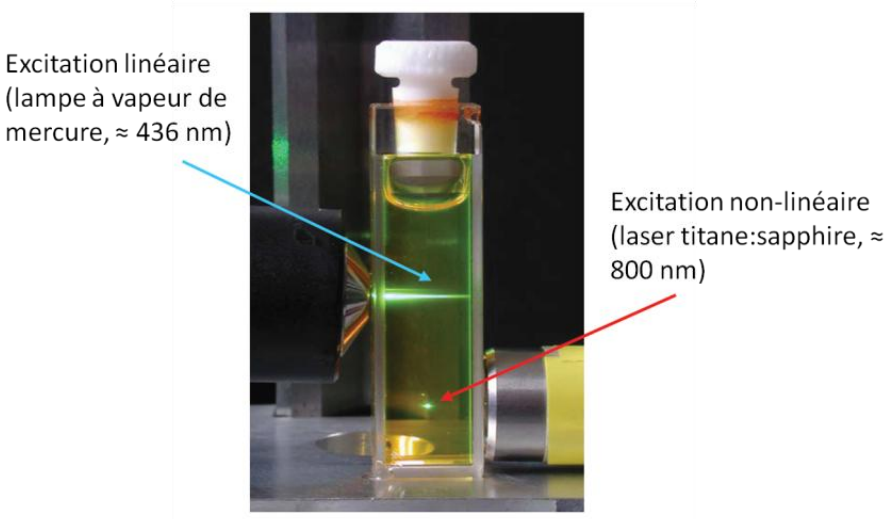


Figure 1-2 : Illustration de la résolution spatiale intrinsèque aux techniques d'analyse non-linéaires. L'échantillon est une solution de fluorescéine excitée linéairement par une lampe à vapeur de mercure (≈ 436 nm) et non-linéairement par un laser titane:saphir (≈ 800 nm). Illustration adaptée de [Guiot, 2001].

Les notions générales d'optique non-linéaire étant posées, il est maintenant possible de s'intéresser aux techniques utilisant cette optique, comme les techniques de sommes de fréquences.

1.1.1.2 Les sommes de fréquences

Ce terme rassemble les générations de seconde (SHG) et de troisième (THG) harmoniques (Figure 1-1 (a) et (b)) et la génération de fréquence somme (SFG, Figure 1-1 (c)). La Figure 1-3 ci-dessous donne deux exemples d'imagerie par somme de fréquences avec des images de fibres de collagène présentes sous la surface du foie par SHG (figure (a)) et de lipides (repérés par les points blancs) dans des cellules vivantes de KB (cellules cancéreuses) par THG (figure (b)).

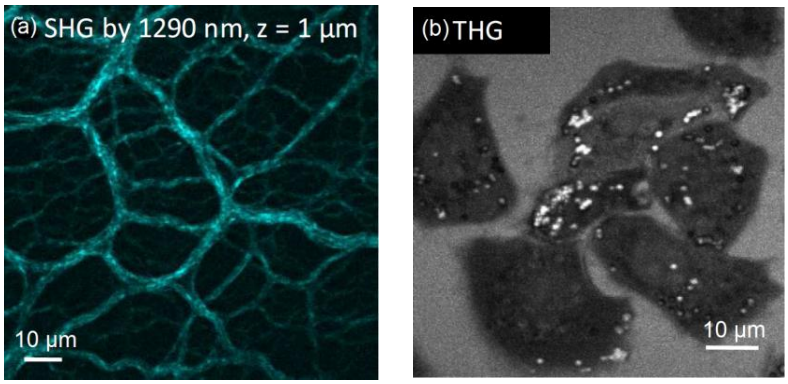


Figure 1-3 : Exemples d'imagerie non-linéaire par somme de fréquences employant une longueur d'onde de 1290 nm (d'après [H. Chen, 2009]. (a) image de tissu de foie par SHG. (b) Image de lipides dans une cellule vivante de KB, par THG.

Comme évoqué précédemment, ces techniques nécessitent un accord de phase pour la génération d'un signal exploitable, qui est généralement respecté autour de particularités morphologiques des tissus étudiés. Par exemple, la THG nécessite une interface entre deux milieux d'indices différents et est pertinente pour l'analyse de membranes cellulaires. Comme tout effet non-linéaire d'ordre deux, la SHG nécessite un milieu non centro-symétrique, à l'image des longilignes lipides, des fibres de collagène[5] ou encore des filaments de myosine[6]. Les données morphologiques fournies par ces techniques sont complémentaires de techniques non-linéaires vibrationnelles comme l'imagerie CARS ou SRS ou comme les techniques de fluorescence. De plus, l'accord de phase nécessaire à ces techniques fait que les radiations générées s'additionnent de manière cohérente, et résultent donc en un signal fort.

Pour générer un signal exploitable, elles nécessitent l'emploi d'impulsions ultra-courtes (picoseconde à femtoseconde), de quelques centaines de picoJoules, pour un temps d'exposition de l'ordre de la centaine de microsecondes [J. Sun, 2004].

Dès le début des années 2000, des dispositifs d'imagerie combinant l'observation de plusieurs effets (SHG et THG, SHG et TPEF, TPEF et CARS...) sont apparus. Ce type d'imagerie est appelée imagerie multimodale et présente une piste d'évolution évidente pour la source développée. Le chapitre 5 traite de ces évolutions.

[5] Famille de protéines dites structurantes, le plus souvent de forme fibrillaire et peu élastique, qui confèrent une rigidité et une forme aux organismes.
[6] Constituant des fibres musculaires, responsables de la contraction de ces derniers.

1.1.1.3 Les techniques de diffusion Raman cohérente (ou DRC)

Deux techniques, mises au point dans les années 60, ont connu un développement important en biophotonique dans les années 2000. Ce sont des techniques de Diffusion Raman Cohérente (DRC, ou CRS, pour Coherent Raman Scattering), respectivement nommées

- ***CARS*** : Coherent Anti-Stokes Raman Scattering, ou Diffusion Raman Anti-Stokes Cohérente (DRASC, en français), dont le principe est représenté en Figure 1-1 (d) et (e).
- ***SRS*** : Stimulated Raman Scattering, ou diffusion Raman stimulée, dont le principe est représenté en Figure 1-1 (f).

Ces techniques sont présentées en partie 1.2. Elles présentent l'avantage d'exploiter les vibrations moléculaires au travers du processus de diffusion inélastique Raman. Elles fournissent ainsi une information liée à la nature chimique de l'échantillon et ce sans marqueur ou modification spécifique de ce dernier. Elles ont ainsi permis, notamment, le suivi des mitose ou apoptose cellulaires [J.-X. Cheng, 2002a] ou encore le suivi du développement intra-cellulaire du virus de l'hépatite C [X. Nan, 2006a].

Cet aspect est un avantage de taille par rapport aux techniques, répandues, utilisant le processus de fluorescence. Un autre avantage, cette fois sur les techniques de sommes de fréquences, est qu'elles ne requièrent pas de spécificités morphologiques et permettent donc l'imagerie de tout type et de toute partie d'un tissu biologique. Enfin, ces techniques excitant de manière cohérente les liaisons moléculaires sondées, elles procurent un gain significatif en intensité par rapport à la microscopie Raman spontanée (10^5 environ). Une illustration de ces techniques est donnée en Figure 1-4 ci-dessous, qui compare des images de la liaison CH_2 de cellules de *stratum corneum* (surface de la peau) à la fréquence de résonance de cette liaison (2845 cm^{-1}) et en dehors (2780 cm^{-1}), acquises en utilisant les processus CARS et SRS.

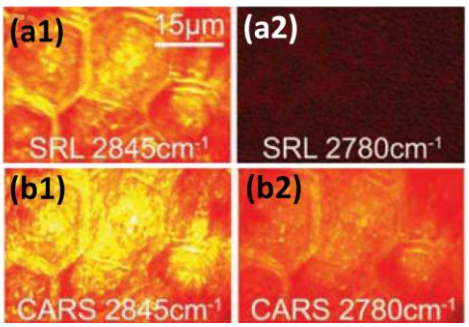


Figure 1-4 : Comparaison d'images de cellules de *stratum corneum* (surface de la peau) acquises par microscopies SRS (a1, a2) et CARS (b1,b2), d'après [C.W. Freudiger, 2008]. SRL : Stimulated Raman Loss, qui correspond à un "mode de fonctionnement" de l'imagerie SRS.

Deux remarques générales sont à apporter à cette figure. En premier lieu, les cellules polygonales typiques de la surface de la peau sont clairement visibles par les deux techniques ce qui montre leur pertinence pour l'imagerie cellulaire.

La seconde remarque constitue une sorte de comparaison entre les processus CARS et SRS. En effet, l'image acquise par SRS hors résonance (figure (a2)) ne contient aucun signal alors que l'image acquise par CARS en contient. De plus, un spectre acquis par SRS correspond directement au spectre Raman spontané, ce qui n'est pas le cas en CARS. Cette différence est due à la présence systématique, en imagerie CARS, d'un signal non-résonnant qui peut masquer le signal résonnant

contenant généralement l'information recherchée. Cet aspect est responsable de l'ascendant actuel, en recherche, de la technique de SRS sur celles exploitant l'effet CARS. Cependant, on verra plus loin que la mise en œuvre d'une imagerie par SRS est plus complexe technologiquement que la mise en œuvre d'une imagerie par CARS.

Pour acquérir des images de 256*256 pixels en un temps raisonnable (seconde), ces techniques nécessitent deux impulsions de caractéristiques similaires que celles employées dans les techniques de somme de fréquences et dont le décalage en fréquence correspond à une fréquence de vibration moléculaire. Le fait que ces deux impulsions doivent être décalées en longueur d'onde et synchronisées aboutit à des sources lumineuses complexes de mise en œuvre et d'utilisation. Ces sources constituent ainsi, actuellement, un verrou technologique important qui freine la diffusion de ces techniques, pourtant prometteuses, dans les communautés de la biologie ou de la médecine.

1.1.1.4 Les techniques de fluorescence

Les techniques de fluorescence exploitent les résonances électroniques des molécules [Guiot, **2001**], au lieu, par exemple, des résonances vibrationnelles dans le cas des techniques de diffusion Raman. Le principe est représenté en Figure 1-5 (a), au travers d'un diagramme d'énergie qui détaille quelques niveaux électroniques (S_0 à S_2 et T_1) et leurs sous-niveaux vibrationnels. Dans le cadre d'une absorption non-linéaire, on constate que plusieurs photons, dont la somme des énergies correspond à une énergie d'un état électronique excité, sont absorbés. Par la suite, des relaxations par thermalisation s'effectuent et un signal, soit de fluorescence, soit de phosphorescence, est émis. Ce phénomène de thermalisation avant l'émission du photon final est à l'origine de la perte de cohérence entre le photon émis avec les photons incidents, et d'une énergie du photon émis plus faible que l'énergie d'excitation. Cette différence d'énergie résulte en un décalage, dit de « Stokes », vers les basses fréquences du spectre d'émission par rapport au spectre d'absorption.

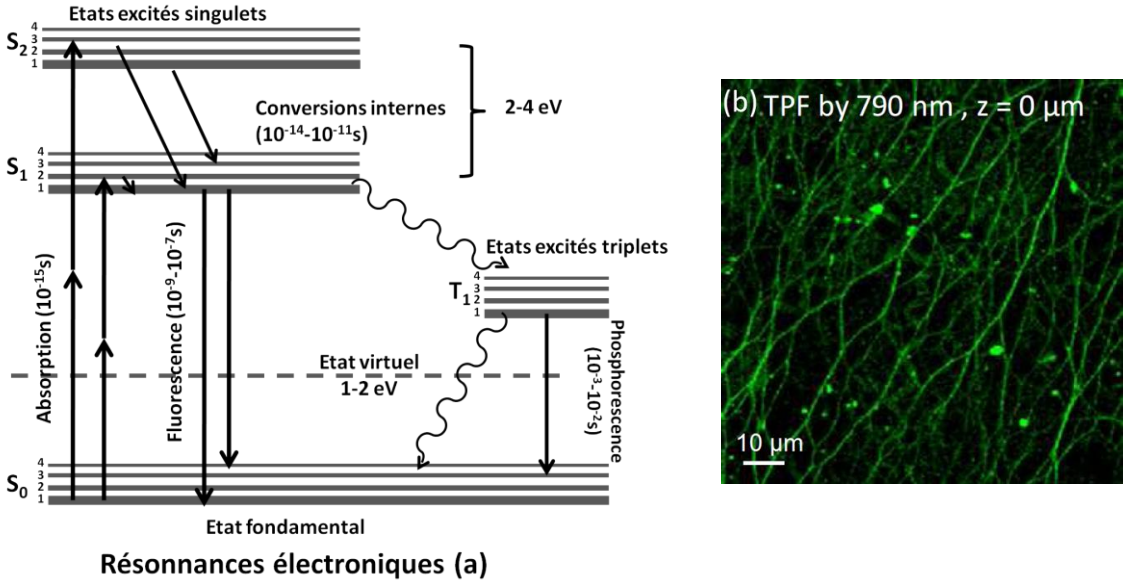


Figure 1-5 : Principe des techniques de fluorescence. (a) TPF : Génération de fluorescence par absorption à deux photons (aussi appelée TPFE : Two Photon Fluorescnece Emission). (b) Imagerie par fluorescence bi-photonique de tissus de foie d'une souris engraissée (d'après [H. Chen, 2009]).

Enfin, il peut être nécessaire de greffer des molécules fluorescentes, appelées fluorophores, sur les entités biologiques à imager, ou de "fusionner" une protéine d'intérêt avec une protéine fluorescente particulière [H. Rigneault, 2005]. Les processus induits étant électroniques et donc énergétiques, le fluorophore peut subir des modifications chimiques (généralement, une oxydation) et perdre sa propriété de fluorescence. Ce phénomène est appelé photoblanchiement et constitue la principale faiblesse de ces techniques.

Outre cette faiblesse, les techniques utilisant le phénomène de fluorescence constitue un champ d'analyse extrêmement riche qui a conduit au développement de nombreuses méthodes. La mesure du temps de vie de la fluorescence (FLIM), la mesure du transfert d'énergie entre fluorophores (FRET), l'autocorrélation du signal de fluorescence (FCS), ou encore la mesure de fluorescence après photoblanchiement (FRAP), sont autant de techniques performantes pour étudier les dynamiques moléculaires et cellulaires.

L'émission de fluorescence par absorption multi-photon, abusivement appelée "fluorescence multi-photon", ou "fluorescence à deux photons" ou "à trois photons" selon le nombre de photons absorbés, présente les avantages habituels des techniques multiphotons classiques, à savoir la localisation spatiale et l'emploi d'impulsions ultracourtes qui diminuent la puissance moyenne nécessaire. Un autre avantage, inhérent au processus de fluorescence, est que le risque de photoblanchiement n'a ainsi lieu qu'au point de focalisation, ce qui permet, en association avec la localisation spatiale, une imagerie en trois dimensions.

Les impulsions requises sont, une fois encore, des impulsions picoseconde à femtoseconde d'une centaine de picoJoules. Leur longueur d'onde se situe idéalement entre 700 et 1000 nm (absorption biphotonique) ou entre 1000 et 1500 nm (absorption triphotonique). Cette technique permet des images du type de celles de la Figure 1-5 (b), qui représente l'imagerie de tissus de foie de souris.

Les techniques multi-photons permettent une grande richesse d'imagerie et ont des avantages indéniables. Un grand avantage est qu'elles requièrent toutes les mêmes caractéristiques d'impulsions.

1.1.2 Autres techniques récentes

La décennie 2001-2010 a vu le développement important d'autres techniques. On peut citer par exemple les techniques « d'échographie optique », ou OCT, ou encore les techniques employant les rayonnements térahertz. Il est intéressant d'étudier ces techniques afin de vérifier si elles sont d'une part redondantes ou supplémentaires à l'imagerie CARS, et d'autre part si la source développée peut permettre ces imageries.

1.1.2.1 Imagerie par tomographie optique cohérente

La Tomographie de Cohérence Optique (ou OCT, pour Optical Coherence Tomography) est l'équivalent optique de l'échographie qui permet d'effectuer des images de haute résolution (≈ 1-15 µm), en trois dimensions et à cadence vidéo, en mesurant des « échos optiques » [D. Huang, 1991, W. Drexler, 2008, Sacchet, 2010]. De fait, ses propriétés la situent à mi-chemin entre les techniques optiques (microscopie) et ultra-sonores (échographie) en termes de profondeur de

pénétration (quelques mm) et de précision. Elle permet un grand nombre d'applications cliniques où les biopsies sont dangereuses ou sujettes à erreurs.

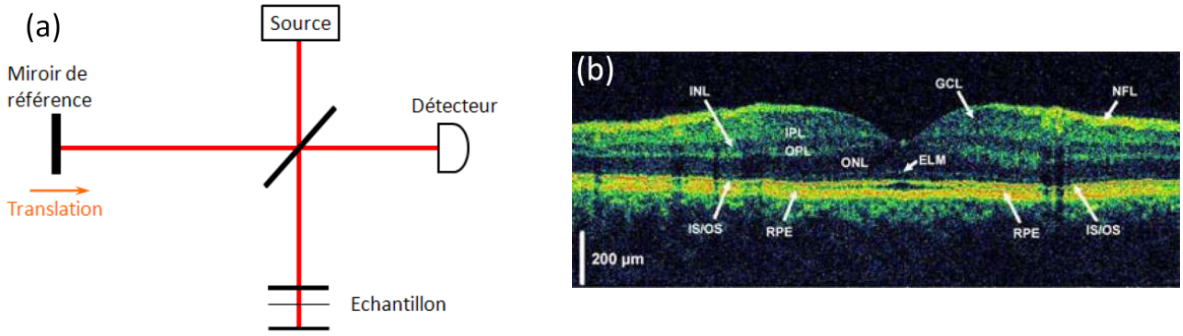


Figure 1-6 : Caractéristiques générales d'un système d'OCT (tirées de [Sacchet, 2010]). (a) Schéma de principe du dispositif. (b) Exemple d'imagerie de rétine par OCT, d'après [W. Drexler, 2001].

Un dispositif de tomographie classique est représenté en Figure 1-6 (a) et repose sur la structure d'un interféromètre de Michelson. La lumière incidente est divisée en un faisceau référence qui est simplement réfléchi par un miroir et un faisceau signal qui est focalisé sur l'échantillon. Ce dernier est rétrodiffusé/rétro-réfléchi aux changements de propriétés optiques de l'échantillon (par exemple à l'interface de la rétine avec le reste de l'œil) ce qui se traduit par une différence de marche variable qui est mesurée.

Deux méthodes de traitement du signal se détachent : une méthode « temporelle » et une méthode « spectrale ». La méthode temporelle (TD-OCT : Time Domain Optical Coherence Tomography) utilise un délai réglable introduit dans le faisceau de référence. L'enregistrement du signal d'interférence en fonction de ce délai permet de remonter à la profondeur de réflexion et ainsi à la composition structurelle de l'échantillon. Cette méthode nécessite une source large-bande, dont la longueur de cohérence détermine la résolution spatiale. La méthode spectrale se divise en deux « sous-méthodes » : la tomographie dans le domaine spectral (SD-OCT : Spectral Domain Optical Coherence Tomography), qui utilise également une source large bande, et la tomographie avec source à balayage spectral (SS-OCT : Swept Source Optical Coherence Tomography), qui utilise une source balayable en fréquence. Elle possède l'avantage de ne pas employer de parties mobiles ce qui permet un gain en sensibilité de 50 à 100 qui est nécessaire pour des mesures in-vivo dans lesquelles le patient bouge et donc détériore le signal d'interférométrie. Figure 1-6 (b) donne un exemple des performances des systèmes d'OCT via une image de rétine.

Une importante source de recherche se situe dans la mise au point de sources lumineuses adéquates. Dans ce cadre, le chapitre 3 consacre une partie à la production d'une telle source.

1.1.2.2 Imagerie photoacoustique

Cette technique repose sur la création d'ondes acoustiques par échauffement thermique soudain, l'effet thermo acoustique [M. Xu, 2006]. Quand une onde électromagnétique, de préférence radiofréquence ou visible-proche infrarouge (400-900 nm) vient frapper l'échantillon, elle est partiellement absorbée et créé un échauffement local qui résulte en une onde acoustique. Cette dernière atteint la surface avec différents délais. Des détecteurs enregistrent les délais et les amplitudes et *via* un algorithme inverse retrouvent les positions d'échauffement et les propriétés des tissus. Placés tout autour de l'échantillon, ils permettent une imagerie en trois dimensions. Cette technique est appelée Tomographie photoaoustique, optoacoustique ou thermoacoustique.

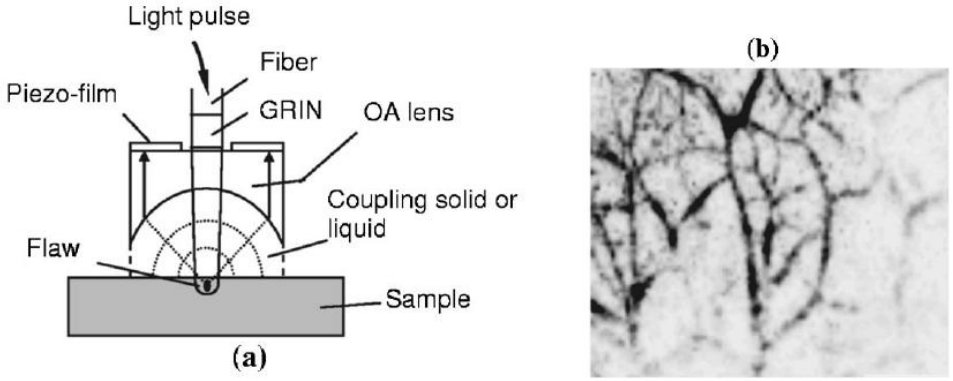


Figure 1-7 : Schéma de principe et exemple d'enregistrement effectué par imagerie photoacoustique (tirée de [M. Xu, 2006]). (a) Dispositif expérimental simplifié, avec détection du signal retour. (b) Image de la vascularisation de peau de rat.

La Figure 1-7 (a) représente un dispositif d'imagerie photoacoustique "classique". On remarque l'injection de l'impulsion lumineuse sur l'échantillon et le détecteur acoustique composé d'un piézoéletrique qui détecte l'onde acoustique transmise via une "lentille acoustique". Un liquide ou un solide sert de transducteur pour la bonne transmission des ondes.

La figure (b) démontre l'imagerie de la vascularisation de la peau de rat. La résolution axiale est de 45 µm et la profondeur de pénétration est de 3 mm. La bande passante des détecteurs détermine, *via* la vitesse des ondes acoustiques dans un milieu biologique (environ 1.5 mm/µs), la résolution spatiale, qui peut approcher les 30 µm.

En termes d'impulsion lumineuse, l'effet est optimal pour des impulsions inférieures à 100 ns. Elles possèdent typiquement une énergie de l'ordre du milliJoule pour induire un échauffement de l'ordre du milliKelvin.

Cette méthode présente l'avantage d'être non-destructive et non-ionisante. De plus, les relations entre les ondes acoustiques reçues et les propriétés des tissus biologiques sont bien définies. Il est ainsi possible de quantifier certains paramètres comme l'oxygénation de l'hémoglobine[7], menant à la détection précoce des angiogenèse[8] et hypermétabolisme caractéristiques du développement d'une cellule cancéreuse.

1.1.2.3 Imagerie Terahertz

Les ondes térahertz (THz) [B. Ferguson, 2002, Mounaix, 2010, Wojdyla, 2011] sont des ondes électromagnétiques comprises entre 300 GHz et 30 THz, qui les situent entre les domaines radiofréquence et infrarouge.

L'intérêt de cet intervalle de fréquences est de bénéficier d'une meilleure résolution spatiale que le domaine radiofréquence et d'une plus grande profondeur de pénétration que le domaine optique pour les matériaux "secs", c'est à dire dépourvus d'eau qui absorbe très fortement dans cet intervalle THz. De plus, ce domaine spectral correspond aux fréquences de rotation de bon nombre de molécules, ce qui permet la mise en œuvre de dispositifs de spectroscopie.

[7] Protéine présente au sein des globules rouges dont la fonction est de transporter le dioxygène dans l'organisme.
[8] Processus de croissance de nouveaux vaisseaux sanguins à partir de vaisseaux préexistants.

Le fait que l'eau absorbe fortement dans cette gamme spectrale a jusqu'à présent restreint l'imagerie térahertz aux échantillons "secs", comme les os, les cartilages [W.-C. Kan, 2010] ou encore au suivi de la déshydratation des plantes. L'emploi de techniques d'imagerie par réflexion a cependant permis l'étude de certains tissus hydratés menant à la différenciation entre des tissus sains et cancéreux [M.-A. Brun, 2010]. La Figure 1-8 illustre cette technique par comparaison d'images d'un échantillon observé par microscopie optique classique (figure (a)) et par imagerie térahertz (figure (b)). Cette dernière représente en fausses couleurs la variation de l'indice de réfraction complexe de l'échantillon. Les cellules supposées cancéreuses sont en rouge.

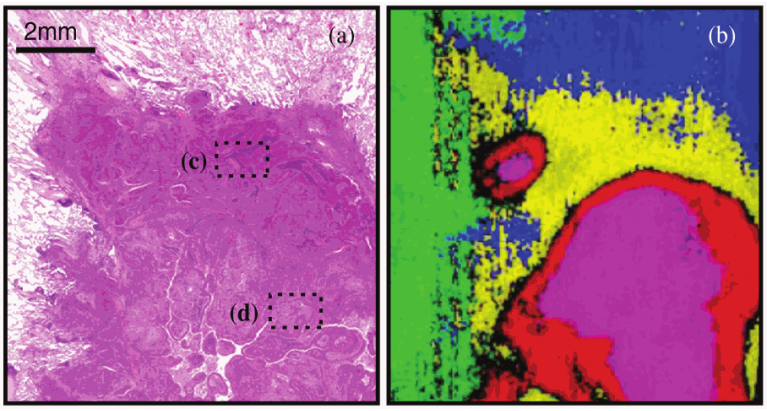


Figure 1-8 : Imagerie térahertz de tissus cancéreux (extrait de [M.-A. Brun, 2010]). (a) image du tissu étudié au microscope optique classique. (b) Imagerie térahertz en réflexion des mêmes tissus. Les fausses couleurs représentent la variation de l'indice de réfraction complexe.

Le domaine térahertz a longtemps été ignoré en raison des difficultés techniques de production et de détection de ces rayonnements. Cependant les avancées technologiques récentes ont permis le développement de ce champ de recherche, qui reste pour le moment très exploratoire. Parmi les différentes techniques actuelles de production de rayonnements, l'effet de redressement optique d'impulsions ultrabrèves (typiquement inférieures à 100 fs et de 1 W moyen, produites par un oscillateur titane:sapphire) dans un cristal non-linéaire d'ordre 2 ou la génération de battements de fréquences entre deux champs de longueurs d'onde proches ($\Delta\lambda \approx 2$nm) mettent en valeur le potentiel du domaine optique pour ce champ d'investigations.

Cette étude est intéressante car en plus des techniques d'imagerie non-linéaire, la source développée semble pouvoir permettre l'imagerie par OCT, au minimum. La richesse des caractéristiques des impulsions requises pour l'imagerie CARS rend pertinente ce type d'étude pour toute nouvelle technique. Il est maintenant nécessaire d'étudier l'imagerie CARS plus en détail.

1.2 La diffusion Raman cohérente : une imagerie non-linéaire "chapeau"

L'imagerie CARS a vu le jour en 1965 [P.D. Maker, 1965]. Cette technique d'optique non-linéaire a connu un développement considérable, tant au niveau théorique qu'expérimental, et tant au sujet des dispositifs de spectroscopie « classiques » durant les années 70-90 [S. Roy, 2010] que des dispositifs de microscopie pour le vivant à partir des années 2000 [A. Zumbusch, 1999, J.-X. Cheng, 2003].

De fait, de nombreux travaux de thèse et articles fondateurs ou de revue existent sur le sujet. Cette partie a pour but de présenter les notions essentielles à la compréhension du travail développé. Elle repose ainsi fortement sur le travail de l'Institut Fresnel de Marseille au travers des thèses de Nadia Djaker [Djaker-Oudjhara, 2006] et de David Gachet [Gachet, 2007], sur un livre consacré à l'effet Raman pour le biomédical [Matousek, 2010] et sur plusieurs articles de revue [J.-X. Cheng, 2003, El-Diasty, 2010, Volkmer, 2005, S. Roy, 2010, C. Krafft, 2012].

Le processus CARS est un effet non-linéaire, le mélange à quatre ondes, qui induit une diffusion Raman. Ces deux aspects sont donc présentés en préambule.

1.2.1 L'alpha et l'oméga de la DRC

1.2.1.1 Le mélange à quatre ondes

Le mélange à quatre ondes est un effet non-linéaire d'ordre 3, se décrivant donc à partir de la polarisation du même ordre

$$P_{NL}^{3}(r,t) = \epsilon_0 \chi^3 \vdots E(r,t)E(r,t)E(r,t) \approx \frac{3}{4}\epsilon_0 \chi^3 |E(r,t)|^2 E(r,t) \qquad (1.5)$$

dans laquelle les composantes à 3ω sont considérées comme nulles car très difficiles à générer. L'effet du mélange à quatre ondes peut être décrit en considérant un champ initial $E = E_1 \cos(\omega_1 t) + E_2 \cos(\omega_2 t)$, somme de deux champs E_1 et E_2. Cette expression est injectée dans l'expression de la polarisation non-linéaire et aboutit à l'expression de la polarisation non-linéaire suivante :

$$P_{NL}^{3}(r,t) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \chi^3 \left[\begin{cases} |A_1|^2 A_1 e^{i(\overrightarrow{k_1}.\vec{r}-\omega_1 t)} \\ \mathbf{+2|A_2|^2 A_1 e^{i(\overrightarrow{k_1}.\vec{r}-\omega_1 t)}} \end{cases} \begin{cases} +|A_2|^2 A_2 e^{i(\overrightarrow{k_2}.\vec{r}-\omega_2 t)} \\ \mathbf{+2|A_1|^2 A_2 e^{i(\overrightarrow{k_2}.\vec{r}-\omega_2 t)}} \end{cases} \begin{cases} \mathbf{+A_1{}^2 A_2^* e^{i\left((2\overrightarrow{k_1}-\overrightarrow{k_2}).\vec{r}-(2\omega_1-\omega_2)t\right)}} \\ +A_2{}^2 A_1^* e^{i\left((2\overrightarrow{k_2}-\overrightarrow{k_1}).\vec{r}-(2\omega_2-\omega_1)t\right)} \end{cases} \right] \qquad (1.6)$$

où on distingue les composantes oscillant à ω_1 (première accolade), ω_2 (deuxième accolade) et ($2\omega_1$-ω_2) et ($2\omega_1$-ω_2) (troisième accolade).

Si on considère $\omega_1 = \omega_p$ (fréquence pompe) > $\omega_2 = \omega_S$ (fréquence Stokes), les termes en gras correspondent respectivement

- au ***SRL*** (Stimulated Raman Loss, Figure 1-1 (f), flèche pointillés), composante du SRS
- au ***SRG*** (Stimulated Raman Gain, Figure 1-1 (f), double flèche), autre composante du SRS
- au ***CARS*** (Coherent anti-Stokes Raman Scattering, Figure 1-1 (d))

Généralement, la différence des fréquences "pompe" et "Stokes" correspond à une fréquence de résonance d'une vibration moléculaire, dénommée ω_{vib}. Cette différence des fréquences initiales permet d'exalter fortement le signal émis grâce au processus de diffusion Raman, présenté ci-après.

1.2.1.2 La diffusion Raman spontanée

Description en termes d'énergie : La diffusion Raman spontanée est souvent définie comme la diffusion inélastique d'une onde par un milieu, l'énergie échangée durant ce processus correspondant à une énergie de vibration moléculaire[9],[10]. La Figure 1-9 fournit une vision quantique des différents « types » d'échanges par un diagramme d'énergie.

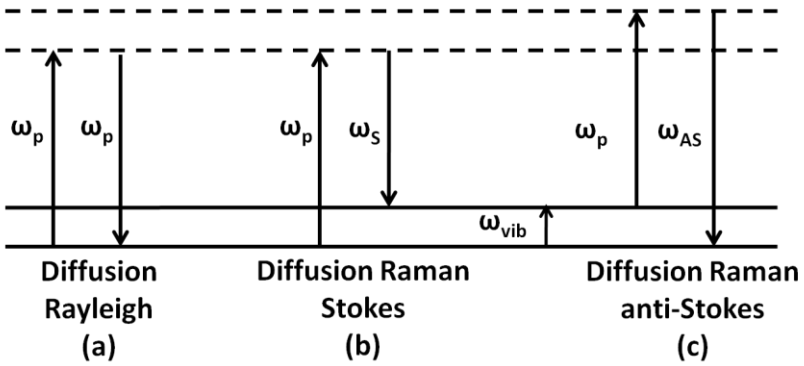


Figure 1-9: Diagrammes d'énergie de principe pour les diffusions Rayleigh (a), Raman Stokes (b) et Raman anti-Stokes (c). ω_p : fréquence de l'onde incidente dite « pompe », ω_S : fréquence de l'onde Raman Stokes diffusée, ω_{AS} : fréquence de l'onde Raman anti-Stokes et ω_{vib} : fréquence de la vibration moléculaire excitée.

On note ω_p la fréquence de l'onde incidente et ω_{vib} la fréquence de résonance de la vibration moléculaire. Du point de vue de l'onde incidente, cet échange peut être soit

- *une perte d'énergie* (diagramme b), servant à exciter la vibration moléculaire. L'onde ainsi diffusée possède une fréquence plus basse $\omega_S = \omega_p - \omega_{vib}$, dite fréquence Stokes.
- *un gain d'énergie* (diagramme c), au cours duquel la molécule se désexcite en transférant son énergie de vibration à l'onde incidente. Celle-ci est alors diffusée avec une fréquence $\omega_{aS} = \omega_p + \omega_{vib}$, dite fréquence anti-Stokes.

La différence de fréquence entre le photon incident et le photon diffusé est donc caractéristique des vibrations moléculaires et peut servir comme outil spectroscopique. Le Tableau 1-1 ci-dessous fournit quelques fréquences de vibration de liaisons atomiques d'intérêt en biologie. Les fréquences sont indiquées en cm^{-1}, l'unité « officielle » des spectroscopistes, définie comme $\sigma = 1/\lambda$, avec λ la longueur d'onde en centimètres.

[9] Pour plus de précisions sur l'effet Raman, aller au Saint-Jaques du de Compostelle du spectroscopiste : http://dspace.rri.res.in/.

[10] Pour tout moteur de recherche web, bien suivre le lien précédent ou entrer « diffusion » ou « scattering » avant le nom Raman, sous peine de se voir proposer l'écoute d'une musique qui certes permet l'élévation de conscience nécessaire à la compréhension de l'effet, mais qui peut avoir la même contre-indication que la guimbarde Peul pour tout jeune berger de cette ethnie.

Liaison	*Présence*	*Fréquence (cm^{-1})*	*Référence*
Etir. CH2	Lipides	2845	[**Saar et al., 2011**]
Etir. C-H aromatique	Ketoprofen[11]	1599	[**Saar et al., 2011**]
Etir. C-C	Pollen[12]	1150	[**Kano, 2010**]
Etir. C=C	Pollen	1520	[**Kano, 2010**]

Tableau 1-1 : Quelques liaisons atomiques d'intérêt en imagerie biologique. Etir. : étirement de la liaison

Le cas du diagramme (a) n'a pas été évoqué. Il correspond à la diffusion Rayleigh, dans laquelle l'onde est diffusée de manière élastique sans changement de fréquence. Cette diffusion est présentée car elle est également considérée comme étant issue d'un rayonnement dipolaire.

Comme évoqué précédemment, la grande faiblesse des techniques employant la diffusion Raman spontanée est la très faible probabilité pour que cet effet se produise. En effet, les « photons Raman » sont environ 10^6 fois moins importants que les « photons Rayleigh ». Cette probabilité est définie, en spectroscopie, par la section efficace de diffusion, qui correspond au rapport des énergies des ondes incidente et diffusée selon le processus en question. Cette section efficace est souvent bien plus élevée pour les phénomènes de fluorescence, ce qui fait que les techniques de spectroscopie Raman ont été difficiles à développer. On note également qu'à température ambiante, bien souvent, la population des molécules constituant les liaisons sondées est en très grande partie, située sur un niveau d'énergie fondamental. Ainsi, la section efficace de diffusion Raman Stokes est nettement supérieure à son homologue anti-Stokes.

Description en termes d'ondes : Cette description plus phénoménologique est souvent reprise en optique fibrée. Elle permet notamment de comprendre simplement le concept de "réponse retardée" évoquée au chapitre 2.

En effet comme évoqué précédemment, un champ électrique agit sur un matériau en le polarisant, c'est-à-dire en créant un moment dipolaire induit $p_{ind.} = \alpha E$, avec α le tenseur de polarisabilité du matériau. Si on considère la nature oscillante du champ, on a

$$E = E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) \quad \rightarrow \quad p_{ind} = \alpha E_0 \cos(2\pi\nu_0 t)$$

Ces oscillations des électrons modifient le champ vu par les noyaux, qui peuvent se mettre à osciller également et faire entrer la molécule dans une de ses résonances caractéristiques, de fréquence ν_R. Cette résonance a pour effet de moduler en retour la polarisabilité de la molécule par sa fréquence. On peut ainsi l'écrire

$$\alpha = \alpha_0 + \left(\frac{\delta\alpha}{\delta d}\right)\cos(2\pi\nu_R t) + \cdots \qquad (1.7)$$

avec d la distance interatomique.

La « mise en mouvement » des noyaux de la molécule, nettement plus lourds que les électrons, à la fréquence de résonance, et l'effet de cette résonance sur la polarisabilité, nécessitent un certain temps pour se produire. Ce temps, pour la silice amorphe (de même que pour de nombreux matériaux) est de l'ordre de 70 fs, et est nettement plus long que le temps de réponse des

[11] Acide utilisé en tant qu'anti-inflammatoire.
[12] Elément fécondant mâle de la fleur. Il s'agit dans le cas présent du pollen d'une fleur de cerise.

électrons (inférieur à la femtoseconde). Il est à l'origine de la dénomination « réponse retardée » employée pour l'effet Raman en optique fibrée.

En insérant l'expression de la polarisation du champ dans l'expression 1.7 du moment dipolaire, on voit apparaître l'effet de cette modulation :

$$p_{ind} = E_0 \left[\alpha_0 \cos(2\pi \nu_0 t) + \frac{1}{2} \left\{ \frac{\delta \alpha}{\delta d} \cos[2\pi(\nu_0 + \nu_R)t] + \frac{\delta \alpha}{\delta d} \cos[2\pi(\nu_0 - \nu_R)t] \right\} \right] \quad (1.8)$$

On retrouve ainsi les trois phénomènes décrits par l'approche énergétique :

$\alpha_0 \cos(2\pi \nu_0 t)$	Diffusion Rayleigh, pas de changement de fréquence
$\frac{\delta \alpha}{\delta d} \cos[2\pi(\nu_0 + \nu_R)t]$	Diffusion Raman anti-Stokes, augmentation de la fréquence
$\frac{\delta \alpha}{\delta d} \cos[2\pi(\nu_0 - \nu_R)t]$	Diffusion Raman Stokes, diminution de la fréquence

On constate que la diffusion Rayleigh peut s'effectuer dans tous les cas. Ceci n'est pas le cas pour les diffusions Raman Stokes et anti-Stokes, ***qui se produisent lors d'une modification de la polarisabilité de la molécule***. Cette condition induit le fait que certaines molécules sont dites « actives » en Raman et d'autres non.

1.2.2 La diffusion Raman anti-Stokes cohérente : le CARS

1.2.2.1 Généralités

L'effet Raman est un outil d'analyse vibrationnel. Le mélange à quatre ondes est un effet non-linéaire électronique, mais surtout cohérent, c'est-à-dire qu'il existe une relation de phase déterminée entre les différents champs. Le processus CARS est l'association de ces deux phénomènes, à savoir un mélange à quatre ondes cohérent fortement exalté par la présence d'une vibration moléculaire. Ce processus permet un gain en section efficace d'environ 10^6 par rapport à la diffusion Raman spontanée. En reprenant une vision ondulatoire, on peut voir le CARS comme suit :

1. Les champs pompe et Stokes, synchronisés et superposés spatialement, induisent une modulation temporelle du champ total caractérisée par une porteuse et son enveloppe. La fréquence de cette dernière correspond à la fréquence de résonance d'une vibration moléculaire d'intérêt. La molécule est excitée.
2. Le champ sonde vient, justement, « sonder » la molécule, et est diffusé inélastiquement en une onde anti-Stokes par la relaxation de la molécule qui vibrait.

Le processus CARS est donc, entre autres, un effet non-linéaire de mélange à quatre ondes, faisant intervenir deux ondes pompe et une onde Stokes. L'intensité CARS fera donc intervenir la susceptibilité d'ordre 3, que l'on nommera « susceptibilité CARS », selon :

$$I_{CARS}(\omega_{AS}) \propto \left|\chi^{(3)}(-\omega_{AS};\omega_p,\omega_p,-\omega_S)\right|^2 I_p^2(\omega_p) I_S(\omega_S) L sinc^2\left(\frac{|\Delta k|L}{2}\right) \quad (1.9)$$

On constate que l'intensité est soumise à la condition d'accord de phase évoquée précédemment, représentée par le sinus cardinal $sinc^2(\frac{|\Delta k|L}{2})$. La satisfaction de cet accord de phase a donné naissance aux configurations expérimentales de type « BOXCARS » ou « tight focusing », exposées plus loin. Il est maintenant nécessaire de décrire la forme de la susceptibilité CARS, ce qui peut être effectué par une approche classique, qui va faire apparaître une composante dite « résonnante » et une composante dite « non-résonnante ». On aboutit donc à

$$\chi^{(3)} = \chi_r^{(3)} + \chi_{nr}^{(3)} \rightarrow I_{CARS} \propto \left|\chi_r^{(3)} + \chi_{nr}^{(3)}\right|^2 = \left|\chi_r^{(3)}\right|^2 + 2\chi_{nr}^{(3)} Re(\chi_r^{(3)}) + \left(\chi_{nr}^{(3)}\right)^2 \quad (1.10)$$

Les différentes composantes de cette susceptibilité sont représentées dans la Figure 1-10 ci-dessous :

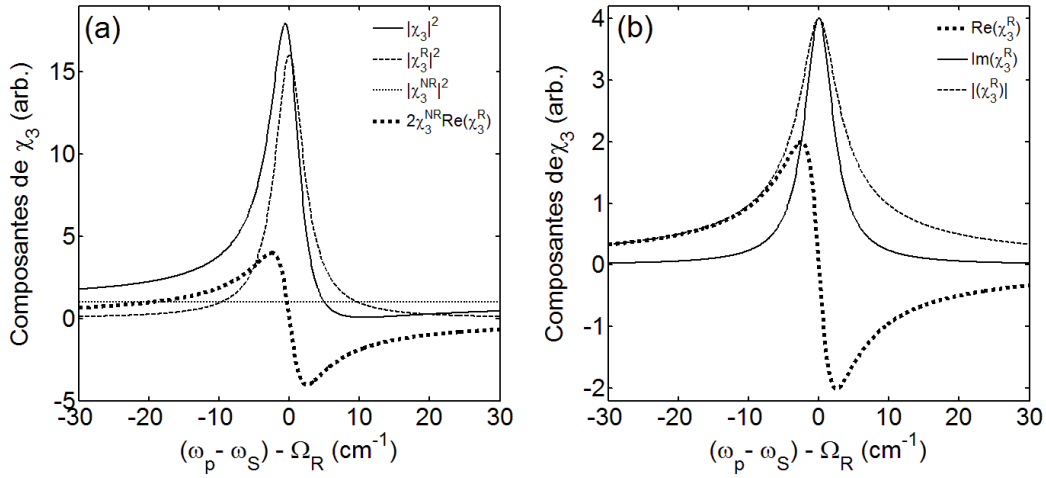


Figure 1-10 : Représentation des différentes composantes de la susceptibilité d'ordre 3 impliquée dans le processus CARS. (a) Composantes générales (d'après [Matousek, 2010]). On distingue la composante résonnante (tirets), le terme de mixage entre les composantes résonnante et non-résonnante (pointillés épais), la composante non-résonnante (pointillés fins) et la susceptibilité totale (ligne continue). (b) Composantes de la composante résonnante (tirets) : partie imaginaire correspondant à la diffusion Raman (ligne continue) et partie réelle issue de la dispersion par l'absorption (pointillés épais).

Selon la relation 1.10 et la Figure 1-10 (a), on distingue la susceptibilité CARS (ligne continue), la composante non-résonnante (pointillés fins), le terme de "mixage" entre les composantes résonnante et non-résonnante (pointillés épais) et la composante résonnante (tirets). Cette dernière correspond à l'effet Raman spontané classique. Elle peut elle-même être décomposée en deux sous-composantes, représentées en Figure 1-10 (b) :

- La partie imaginaire, correspondant à la diffusion Raman « classique » (ligne continue)
- La partie réelle, qui correspond à une dispersion du pic d'absorption (pointillés épais).

La composante de « mixage » entre le signal résonnant et le signal non-résonnant constitue une difficulté pour l'exploitation de cette spectroscopie car elle est responsable du déplacement et de la déformation du pic d'intensité CARS vers les basses fréquences, visible sur la Figure 1-10 (a), par rapport au pic d'intensité Raman spontané. Ce déplacement est d'autant plus important que le signal

non-résonnant est fort. La composante non-résonnante pure induit une « ligne de base », qui peut être plus importante que la composante résonnante et ainsi cacher cette information qui est généralement recherchée.

Enfin, selon [El-Diasty, 2010], la résolution spectrale du signal CARS sera donnée, hors résolution du dispositif de détection, par la largeur spectrale du champ sonde. Celui-ci étant généralement fourni par l'impulsion pompe (qui contiendra donc simultanément les champs pompe et sonde), la résolution sera donc donnée par la largeur spectrale de cette dernière. Cette propriété permet d'expliquer l'emploi d'impulsions pompe de quelques picosecondes, dont la largeur spectrale (quelques cm^{-1}) permet de résoudre correctement les résonnances Raman de millieux biologiques.

Cette description, extrêmement condensée mais néanmoins suffisante pour ce travail de thèse, ne rend pas compte du travail très important en termes de modélisation du volume focal, de comportement du signal non-résonnant pour les objets de différentes tailles, pour les interfaces…

1.2.2.2 Historique

L'historique suivant ne fournit que quelques repères temporels, afin de comprendre les choix effectués de nos jours en dimensionnement de dispositifs d'imagerie CARS pour la biologie.

Le premier dispositif CARS remonte donc à 1965 [P.D. Maker, 1965]. Cette publication décrit théoriquement le processus CARS et le met en valeur expérimentalement. Par la suite, cette technique a été fortement appliquée aux mesures de températures et de concentrations d'espèces dans des flammes, avec des lasers très énergétiques (micro à milliJoule) et fins spectralement (nanoseconde-picoseconde). Le lecteur intéressé pourra se reporter à l'article de revue de Roy *et al.* [S. Roy, 2010].

La première application de la spectroscopie CARS à un échantillon biologique a été effectuée par Duncan *et al.* en 1982. Le dispositif employait deux lasers visible à colorant (550 et 700 nm), de 7 ps, en configuration BOXCARS. Les images réalisées étaient dominées par le fond non-résonnant et la résolution spatiale était limitée par la configuration BOXCARS, utilisée car elle maximise le signal CARS généré. Ainsi, le départ réel de la microscopie CARS pour l'imagerie cellulaire est donné par Zumbusch *et al.* en 1999 [A. Zumbusch, 1999]. L'emploi de lasers dans le proche infra-rouge limite fortement l'absorption, le fond non-résonnant et l'auto-fluorescence des échantillons. En outre, l'utilisation d'une configuration en faisceaux excitateurs colinéaires fortement focalisés permet une amélioration de la résolution spatiale.

Les trois années suivantes voient la mise au point de nombreuses "configurations de base" et techniques différentes pour la microscopie CARS. Ces techniques ont pour buts principaux l'amélioration du contraste, menant à une imagerie plus rapide, et la réduction ou l'élimination du fond non-résonnant. Elles sont souvent des adaptations des techniques utilisées en spectroscopie CARS. Ainsi, en 2001, Cheng *et al.* [J.-X. Cheng, 2001a] améliorent ces deux points par l'emploi de lasers picoseconde. Volkmer *et al.* [A. Volkmer, 2001] démontrent l'efficacité de la détection du signal CARS émis vers l'arrière pour la diminution du fond non-résonnant sur des objets de taille inférieure à la longueur d'onde et également pour des interfaces entre deux milieux. L'année 2001 voit également le développement de l'imagerie CARS dite "multiplex" [M. Müller, 2002] dans laquelle l'impulsion pompe, picoseconde, détermine la résolution spectrale, tandis que l'impulsion Stokes, femtoseconde, détermine la gamme spectrale sondée. Il est intéressant de remarquer que cette dénomination avait été employée en spectroscopie [W.D. Gillespie, 1999]... de rotation des liaisons et non de vibration.

Enfin, l'année 2003 a marqué le début de presque une décennie d'efforts pour simplifier et fiabiliser les sources lumineuses nécessaires à l'imagerie CARS, par l'emploi de fibres optiques pour la génération des deux impulsions décalées spectralement. La partie 1.3 est réservée à ces développements. Ces sources ont notamment permis la démonstration d'une imagerie cellulaire rapide (image de 512*512 pixels en moins d'une seconde).

1.2.2.3 Techniques mises en œuvre pour le CARS

On n'effectue ici qu'une présentation sommaire des différentes techniques, avec leurs caractéristiques principales. Ces techniques sont reprises au chapitre 5 pour discuter les évolutions possibles du dispositif mis en œuvre au cours de cette thèse.

On divise les configurations en deux catégories : les configurations "socle", qui sont les configurations de départ, et les configurations "avancées", qui nécessitent des dispositifs ou un traitement des données plus élaboré et qui reposent sur les configurations socle. Ce classement n'a rien d'officiel et permet simplement une meilleure visibilité du nombre important des configurations possibles.

Les configurations "socle" : On peut encore subdiviser ces configurations en deux. La première partie traite de la stratégie de focalisation, et la seconde de l'organisation des faisceaux.

Les stratégies de focalisation comprennent les stratégies dites "BOXCARS" et "colinéaire". La ***configuration dite "BOXCARS"***, représentée en Figure 1-11, est souvent utilisée en spectroscopie, car elle permet de maximiser le signal CARS généré en minimisant le désaccord de phase pour pouvoir maximiser la longueur d'interaction.

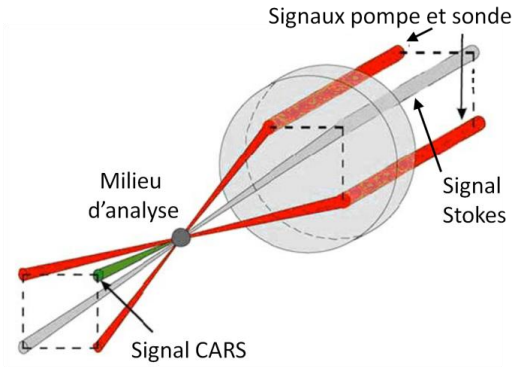


Figure 1-11 : Configuration « folded BOXCARS » (illustration adaptée de [El-Diasty, 2010]).

Cette configuration ne nécessite souvent pas de filtrage spectral, et les faisceaux incidents sont simplement arrêtés par des stoppeurs de faisceaux. On distingue également la configuration "BOXCARS" originelle (faisceaux dans un plan) de la configuration "folded BOXCARS" [J.A. Shirley, 1980] (faisceaux dans deux plans perpendiculaires). Cette configuration, amenant à un volume focal plus parallélépipédique que le "haricot focal" typique de la configuration colinéaire, est cependant plus complexe de mise en œuvre et présente une résolution spatiale limitée liée à l'utilisation d'ouvertures numériques faibles. A titre d'exemple, la première démonstration de microscopie [M.D. Duncan, 1982] utilisait une configuration BOXCARS et résultait en un diamètre de focalisation d'environ 10 µm et une longueur d'interaction supérieure à 30 µm, donc loin des ordres de grandeur (≈ µm) de la configuration colinéaire désormais adoptée.

La seconde configuration est donc la ***configuration colinéaire***. Elle a été démontrée comme très efficace en imagerie biologique, où les faisceaux sont fortement focalisés (O.N. ≈ 1.2). Cette configuration, associée à une focalisation forte qui maximise systématiquement les processus d'ordre 3 de type CARS ($\omega_1 + \omega_2 - \omega_3$) [Bjorklund, 1975], permet de satisfaire automatiquement l'accord de phase et de proposer un volume d'excitation compatible avec l'imagerie biologique. Ceci est compréhensible car dans cette configuration, les cônes de focalisation offrent, dans le même temps, une grande richesse de directions de vecteurs d'onde, et une longueur de focalisation comparable à la longueur de cohérence du processus CARS. A titre d'illustration, cette configuration a été adoptée par Zumbusch *et al.* en 1999 [A. Zumbusch, 1999], pour l'imagerie de billes de polystyrène et de bactéries au moyen d'un faisceau pompe de 855 nm et d'un faisceau Stokes de 1120 nm, focalisés par un objectif apochromatique à immersion d'huile d'ouverture numérique 1.4. Cette configuration a permis d'atteindre un volume focal de 307 nm de diamètre et de 1.61 µm de profondeur suivant la direction de propagation.

Le dispositif expérimental total peut, lui, être divisé en trois configurations, représentées de manière simplifiée en Figure 1-12. On précise que ces configurations utilisent des faisceaux colinéaires et fortement focalisés, donc la configuration "tight focusing".

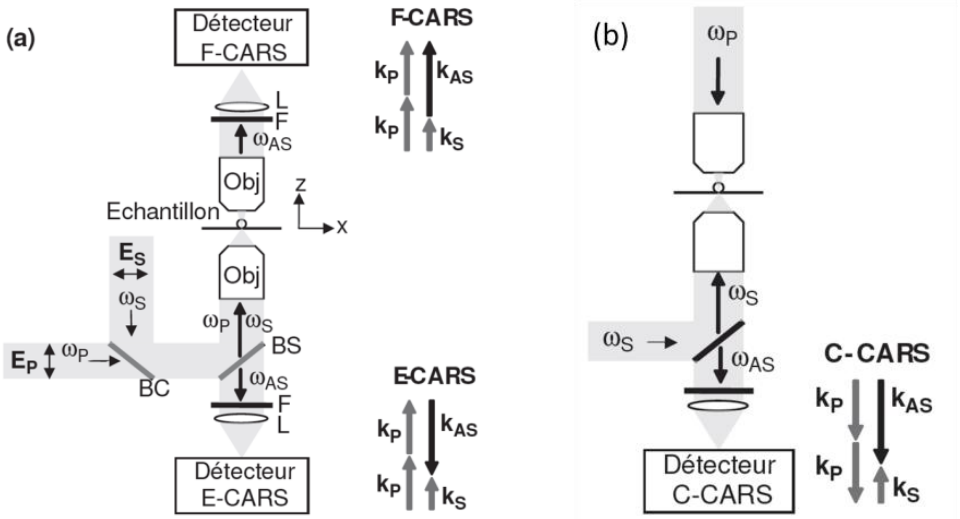


Figure 1-12 : Configurations spatiales rencontrées en imagerie CARS (d'après [Djaker-Oudjhara, 2006]). BS : lame séparatrice, B : lame combinatrice. (a) Détection vers l'avant (F-CARS) et vers l'arrière (E-CARS). (c) faisceaux contra-propagatifs (C-CARS).

La Figure 1-12 (a) différencie deux méthodes de récupération du signal CARS généré, qui sont :

- récupération du signal émis "vers l'avant", c'est à dire dans le sens de propagation des faisceaux. Cette méthode est appelée ***F-CARS*** (pour Forward CARS) et est pertinente pour l'imagerie d'objets de grande taille.
- récupération du signal émis "vers l'arrière", c'est à dire dans le sens opposé au sens de propagation des faisceaux excitateurs. Cette méthode est appelée ***E-CARS*** (pour Epi CARS) et est pertinente pour l'imagerie d'objets de petite taille dans un solvant [J.-X. Cheng, 2002b]. En effet, dans ce cas, le signal non-résonnant du solvant est uniquement émis vers l'avant tandis que le signal CARS de l'échantillon est émis dans les deux sens.

La Figure 1-12 (b) représente la configuration "***C-CARS***" (pour counter-propagating CARS). Dans cette configuration, les deux faisceaux sont contra-propagatifs et le signal CARS est détecté dans le sens de propagation du faisceau pompe. A l'instar de la configuration E-CARS (Epi CARS), cette configuration est pertinente pour l'imagerie de petits objets dans un solvant, car dans ce cas, le fond non-résonnant du solvant est supprimé par interférences destructives alors que le signal CARS est émis dans le sens de propagation du faisceau pompe.

Les configurations "avancées" : Ces configurations sont des évolutions des configurations socle précédentes, et utilisent les propriétés particulières des susceptibilités résonnante et non-résonnante, afin de s'affranchir le plus possible de cette dernière.

La première configuration, appelée « P-CARS » (polarization CARS) tire parti de ***l'influence de l'échantillon sur la polarisation du faisceau CARS [J.-X. Cheng, 2001b]***. La Figure 1-13 représente le principe de la configuration (figure (a)) et un dispositif expérimental classique (figure (b)). Les faisceaux pompe et Stokes sont polarisés selon un angle défini. Un analyseur est placé après l'échantillon, orthogonalement au signal non-résonnant.

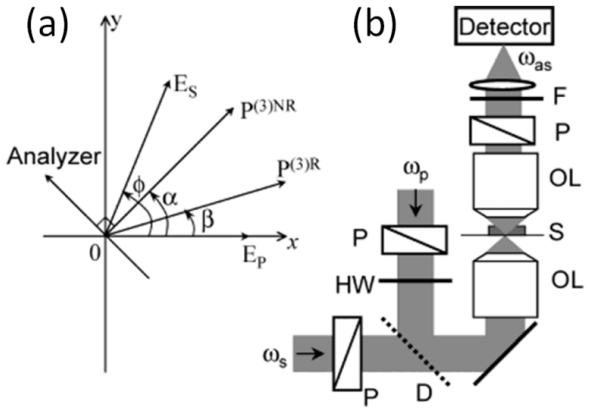


Figure 1-13 : Principe de l'imagerie P-CARS (d'après [J.-X. Cheng, 2003]). (a) Polarisations impliquée dans le processus. (b) Dispositif de principe. P : polariseur, D : miroir dichroïque, OL : objectif, S : échantillon, F : filtre.

La figure (a) représente les polarisations des différents champs mis en jeu, ainsi que la direction de l'analyseur. Elle permet de visualiser l'inconvénient majeur de cette technique, qui est que l'analyseur atténue également fortement le signal résonnant. La figure (b) en revanche montre un avantage de cette technique, qui est sa grande similarité avec une configuration F-CARS classique. En effet, l'évolution majeure est l'ajout d'un polariseur après l'optique de récupération des signaux. Les polarisations des ondes incidentes doivent être contrôlées, mais ce contrôle est effectué systématiquement quelque soit la configuration adoptée.

La deuxième méthode tire parti du ***temps de réponse du signal résonnant, d'origine vibrationnel***, nettement plus long que celui du signal non-résonnant, d'origine électronique [A. Volkmer, 2002]. Cette méthode est largement employée en spectroscopie CARS classique. Elle nécessite une évolution du montage classique à deux faisceaux par le besoin d'un faisceau sonde retardé temporellement par rapport aux faisceaux pompe et Stokes. Un exemple de résultats issus de cette technique est présenté en Figure 1-14.

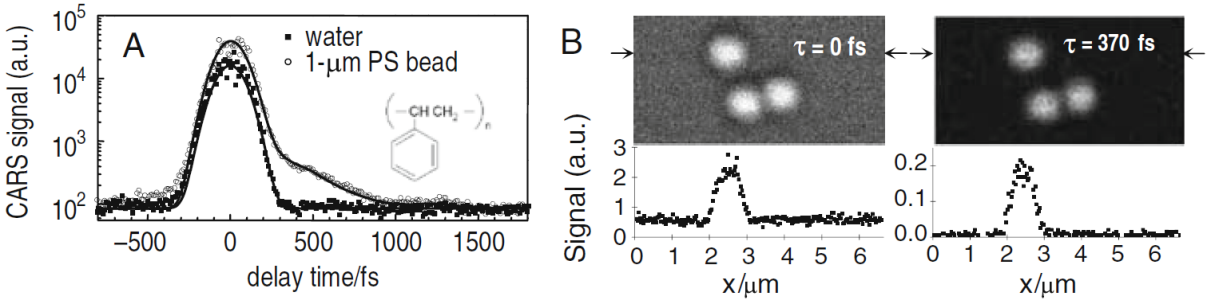


Figure 1-14 : Exemple de résultats obtenus par dispositif T-CARS (d'après [Matousek, 2010]). (a) Pour l'eau (points noirs) et le toluène (points gris), enregistrement de l'intensité CARS en fonction du délai entre les impulsions pompe et Stokes et l'impulsion sonde. (b) Comparaison des images obtenues pour un délai nul (gauche) et de 390 fs (droite).

Cette figure représente les différentes « étapes » d'une imagerie T-CARS. Tout d'abord, la figure (a) représente l'intensité CARS enregistrée, pour le solvant (l'eau) et le produit (toluène) pour différents délais introduits entre les impulsions pompe et Stokes et l'impulsion sonde. Un délai « optimal » de 390 fs est obtenu, à partir duquel les contributions non-résonnantes sont nulles. La figure (b) compare ainsi les images CARS enregistrées pour ce délai (droite) et pour un délai nul (gauche). Le fond non-résonnant présent pour le délai nul est clairement supprimé pour le délai optimal.

La troisième technique habituellement rencontrée est une technique ***mettant en œuvre une détection hétérodyne sur le signal CARS généré*** [C.L. Evans, 2004, E.O. Potma, 2006, E.R. Andresen, 2006a]. Cette technique est nommée I-CARS, pour Interferometric CARS, ou heterodyne CARS, et consiste à faire interférer le signal CARS avec un signal extérieur à la fréquence optique ω_{AS}. En effet, si on considère le signal CARS $E_{AS} = E_p^2 E_S \left|\chi_3^R + \chi_3^{NR}\right| = E_{EX}\left|\chi_3^R + \chi_3^{NR}\right|$, l'interférence avec le signal de mixage E_{LO} donne :

$$S = |E_{LO}|^2 + |E_{EX}|^2 + 2E_{LO}E_{EX}\{[\chi_3^{NR} + 2Re(\chi_3^R)]\cos(\Phi) + Im(\chi_3^R)\sin(\Phi)\} \qquad (1.10)$$

avec ϕ la différence de phase entre le signal CARS et le signal de l'oscillateur local. Si cette différence de phase est fixée à 0 ou π/2, il est ainsi possible de n'enregistrer que la partie réelle ou surtout imaginaire du signal CARS. Comme le signal non-résonnant est purement réel, cette dernière correspond au spectre Raman spontané. Il devient donc possible, en CARS, de s'affranchir non seulement complètement de la partie non-résonnante, mais également de la composante réelle du signal résonnant.

Une configuration expérimentale classique est représentée sur la Figure 1-15 (a). Une lame séparatrice (LS) dirige une partie des faisceaux pompe et Stokes vers un élément non-linéaire qui génère, par mélange à quatre ondes, le signal d'interférence. Un modulateur de phase, à une fréquence de l'ordre du MHz, permet de détecter le signal I-CARS généré par détection hétérodyne. L'autre partie des faisceaux pompe et Stokes, non déviée, est envoyée sur une boucle de synchronisation dont le chemin optique est contrôlé par un matériau piézoélectrique, pour la stabilisation du signal d'interférométrie. La Figure 1-15 (b) et (c) montrent l'apport de cette technique par la comparaison d'une image de la liaison CH_2 de la même cellule, acquise par un dispositif CARS classique (figure (b)) et par la configuration I-CARS (figure (c)). Le fond non-résonnant est clairement supprimé.

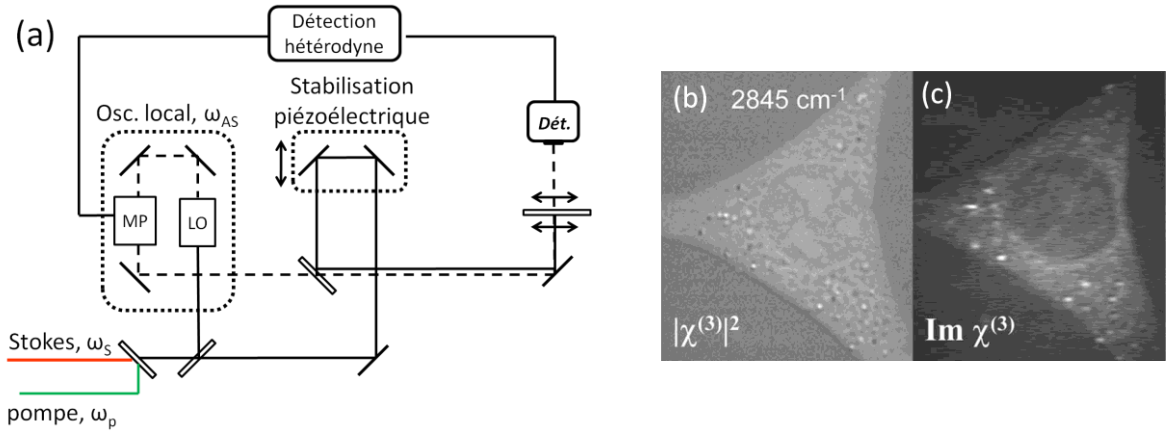


Figure 1-15 : Principe de la configuration I-CARS. (a) Dispositif typique I-CARS. LS : lame séparatrice, LO : oscillateur local, MP : modulateur de phase. (b,c) Imagerie de la liaison CH_2 (2845 cm^{-1}) d'une cellule vivante de NIH3T3 Comparaison entre une image CARS « classique » (b) et une image d'intensité proportionnelle à $Im(\chi_3^R)$ obtenue par configuration I-CARS (d'après [E.O. Potma, 2006]).

La quatrième technique est une technique de ***spectroscopie de corrélation***, largement mise en œuvre au travers de dispositifs de fluorescence et de diffusion Raman spontanée, qui permet de suivre des processus biologiques rapides (≈ milliseconde). Cette technique consiste à effectuer une autocorrélation en temps réel du signal acquis dans un volume focal faible, qui permet de remonter aux mouvements de molécules à l'intérieur de ce volume. Dans le cas de l'imagerie CARS, elle reste cependant soumise à la composante non-résonnante et l'une des premières démonstrations a utilisé une configuration P-CARS pour diminuer son influence [J.-X. Cheng, 2002].

Les buts recherchés : On peut enfin différencier les techniques de microscopie dites « simplex CARS » (S-CARS) des techniques dites « multiplex CARS » (M-CARS). Ces deux techniques sont respectivement représentées en Figure 1-1 (d) et (e).

La technique simplex (figure (d)) utilise des impulsions présentant la largeur spectrale des vibrations Raman, soit environ 5 à 10 cm^{-1}, qui correspond à la largeur spectrale d'impulsions en limite de Fourier (partie 2.1) d'environ 3 ps aux longueurs d'onde de travail. Ces faibles largeurs spectrales permettent de considérer, du point de vue fréquentiel, ces impulsions comme des fonctions de Dirac. La relation 1.9 devient donc :

$$I_{CARS} \propto \left|\chi^{(3)}(-\omega_{AS};\omega_p,\omega_p,-\omega_S)\right|^2 I_p^2 I_S L sinc^2\left(\frac{|\Delta k|L}{2}\right)$$

La forme du spectre CARS obtenu est donc la forme "intrinsèque" représentée à la Figure 1-10 (a). Un inconvénient de cette technique l'enregistrement de spectres CARS sur plusieurs centaines de cm^{-1} devient, en termes de temps d'acquisition, prohibitif. Elle est ainsi plutôt réservée à l'imagerie de liaisons identifiées et fixes. Cette technique a d'ailleurs été à l'origine des démonstrations d'imagerie CARS à cadence vidéo [C.L. Evans, 2005].

A l'inverse, la méthode multiplex (figure (e)), nommée encore microspectroscopie ou microspectrométrie, emploie également des impulsions pompe fines spectralement, mais emploie des impulsions Stokes larges spectralement, initialement fournies par des impulsions femtosecondes. La relation 1.9 devient :

$$I_{CARS}(\omega_{AS}) \propto \left|\chi^{(3)}(-\omega_{AS};\omega_p,\omega_p,-\omega_S)\right|^2 I_p^2 I_S(\omega_S) L sinc^2(\frac{|\Delta k|L}{2})$$

dans laquelle on constate que le spectre CARS obtenu correspond au spectre CARS "intrinsèque" multiplié par le spectre des impulsions Stokes. Cette méthode nécessite donc un traitement des spectres acquis pour s'affranchir de la forme spectrale de ces impulsions. Ces impulsions présentent généralement une largeur de l'ordre 100 cm^{-1}, et permettent en un temps raisonnable l'acquisition de spectres entiers. Cette méthode est donc plutôt réservée à des activités de spectroscopie.

Une remarque importante est à effectuer, bien qu'elle apparaisse à la lecture de ces techniques : ces techniques peuvent être tout à fait combinées ! Par exemple, le dispositif développé dans cette thèse est un dispositif en configuration colinéaire, M-CARS, qui pourrait tout à fait servir de base à une configuration P-CARS.

Quelques mots sur le "spectral focusing" : Il ne s'agit pas d'une technique de CARS en elle-même mais présente un grand intérêt car elle permet d'atteindre, en employant deux impulsions femtoseconde, une résolution de quelques cm^{-1}, qui leur est normalement inaccessible. Elle a déjà prouvé son efficacité dans plusieurs montages de spectroscopie par diffusion Raman cohérente [T. Hellerer, 2004, A.F. Pegoraro, 2009b, E.R. Andresen, 2011b]. Le principe de cette méthode est exposé en Figure 1-16 en comparant les spectrogrammes (représentation temps-fréquence d'un signal) de deux impulsions femtoseconde « quelconques » (figure (a)) et présentant un chirp identique (figure (b)). La figure (a) montre que l'utilisation de deux impulsions larges spectralement aux chirps quelconques résulte en une résolution spectrale médiocre. Au contraire, l'application sur ces impulsions d'un chirp identique, représentée en Figure 1-16 (b), l'améliore significativement. La fréquence de résonance sondée est déterminée en variant le délai introduit sur l'impulsion pompe.

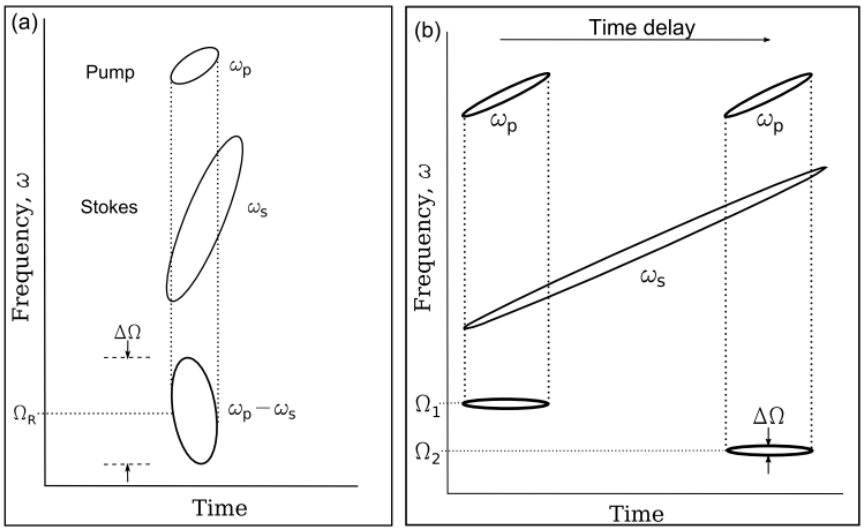


Figure 1-16 : Principe du spectral focusing (d'après [A.F. Pegoraro, 2009b]), présenté au travers de spectrogrammes (représentations temps-fréquence). (a) Spectrogramme caractéristique de l'utilisation d'impulsions présentant des chirps aléatoires, résultant en une résolution spectrale médiocre. (b) Spectrogramme typique de la mise en œuvre de la méthode de spectral focusing, résultant en une résolution spectrale meilleure.

On a pu constater à la fois les avantages incontestables de la microscopie CARS et les contraintes que le fond non-résonnant impose. Ces contraintes sont surmontées par l'emploi de méthodes courantes en spectroscopie (détection hétérodyne, polarisation, spectral focusing…).

Ces contraintes peuvent également être surmontées en sondant la variation des champs pompe ou Stokes, qui permettent d'obtenir directement le spectre Raman spontané. Cette technique correspond au SRS et est décrite ci-après.

1.2.3 Le SRS, ou comment exploiter autrement le $\chi^{(3)}$

1.2.3.1 L'observation d'un autre effet du $\chi^{(3)}$ résonnant

Le SRS tire donc parti des termes n°2 et 4 de la relation 1.6, respectivement nommés SRL (Stimulated Raman Loss) et SRG (Stimulated Raman Gain). Le signal détecté étant une variation de puissance, les variations sont données par les relations suivantes :

$$\Delta I_p^{SRL}(\omega_p) \propto -Im\left[\chi^{(3)}(-\omega_p;\omega_S,\omega_p,-\omega_S)\right] I_p(\omega_p) I_S(\omega_S) L \tag{1.11}$$

$$\Delta I_S^{SRG}(\omega_S) \propto Im\left[\chi^{(3)}(-\omega_S;\omega_p,-\omega_p,\omega_S)\right] I_p(\omega_p) I_S(\omega_S) L \tag{1.12}$$

où L représente la longueur de l'échantillon analysé. Le rendement étant très faible ($\Delta I/I \approx 10^{-4}$), ces relations ne prennent pas en compte les déplétions des faisceaux incidents. Elles permettent de constater que le signal observé présente les avantages suivants, par rapport à la microscopie CARS :

- Il est directement proportionnel à la partie imaginaire de la susceptibilité d'ordre 3, donc à la diffusion Raman. Il est donc immun à toute interaction avec un signal non-résonnant.
- La condition d'accord de phase étant automatiquement satisfaite, ce signal n'est pas sensible à la géométrie d'excitation ou à la taille de l'échantillon.

Cet effet a été appliqué à l'imagerie biologique en 2005 [C.W. Freudiger, 2008], avant de connaître un essor important à partir de 2010. Il nécessite cependant un dispositif plus évolué, évoqué ci-après, que celui nécessaire à la microscopie CARS. Ce dernier reste ainsi le « dispositif de choix » pour la mise en place d'une plateforme d'imagerie multimodale.

1.2.3.2 Le dispositif expérimental SRS

La faible efficacité du processus de SRS est à l'origine de différentes approches. Ainsi, une des premières démonstrations en imagerie a utilisé deux faisceaux femtoseconde, donc larges spectralement, avec une détection par spectromètre et l'emploi de fortes puissances, incompatibles avec l'imagerie cellulaire [E. Ploetz, 2007].

La configuration la plus courante est représentée en Figure 1-17 (a). La démonstration en imagerie cellulaire par Freudiger *et al.* en 2008 a posé les bases de cette configuration, à savoir l'emploi de deux faisceaux picoseconde (7 ps, donc fins spectralement) et d'une détection hétérodyne (élément "lock-in" sur la figure). Cette détection consiste à induire sur un des deux

faisceaux une modulation d'amplitude (imposée par le modulateur "MOD", et représentée en Figure 1-17 (b)) à une fréquence de l'ordre du MHz (zone de bruit minimale des oscillateurs) et de détecter les fluctuations résultantes, synchrones, sur l'autre faisceau. Une alternative intéressante consiste en l'emploi de deux oscillateurs dont le taux de répétition de l'un est un multiple de celui de l'autre [Y. Ozeki, 2010].

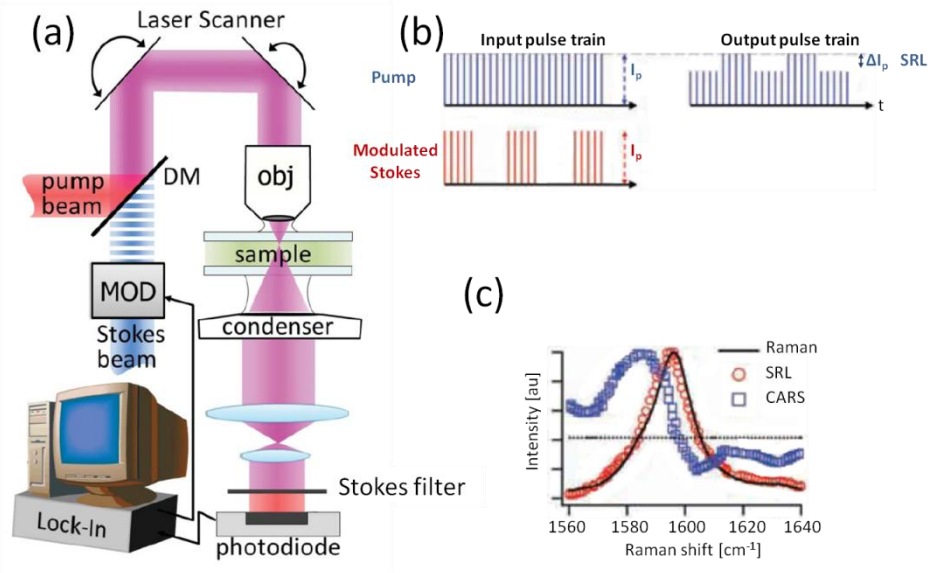


Figure 1-17 : Dispositif typique de l'imagerie SRS. (a) Dispositif de principe, ici de SRL (d'après [M.B.J. Roeffaers, 2011]). DM : miroir dichroïque, MOD : modulation du faisceau, obj. : objectif de focalisation. (b) Modulations des intensités pompe et Stokes s'effectuant au cours du processus de SRS (d'après [C.W. Freudiger, 2008]). (c) Comparaison des spectres CARS et SRS au spectre Raman spontané (d'après [C.W. Freudiger, 2008]).

Le Tableau 1-2 résume les modalités d'observation des signaux SRL et SG :

Configuration	SRL	SRG
Excitation modulée	Stokes	Pompe
Excitation détectée	Pompe	Stokes

Tableau 1-2 : Récapitulatif des configurations expérimentales nécessaires à la mise en œuvre d'une technique de SRS

Conformément aux relations 1.11 et 1.12, la Figure 1-17 (c) montre que le spectre acquis correspond directement au spectre Raman spontané. Ce type de configuration a permis des détections de l'ordre de $\Delta I/I \approx 10^{-7}$ [C.W. Freudiger, 2008], soit une sensibilité de 10^3 par rapport au niveau de signal généré, ce qui permet d'acquérir des images par des temps d'exposition de 170 µs. Freudiger *et al.* ont également proposé une excitation simultanée des vibrations d'une espèce par parties multiples d'un spectre large modelé par SLM (Spatial Light Modulator, pour masque de phase) [C.W. Freudiger, 2011]. La technique de spectral focusing a également été appliquée avec succès par Andresen *et al.* [E.R. Andresen, 2011b].

Le signal SRS est linéaire avec les puissances pompe et Stokes et la concentration de l'espèce analysée et de ce fait des analyses quantitatives directes sont possibles. Des concentrations minimales de 50 µM en rétinol et de 5 mM en méthanol ont ainsi pu être détectées pour des puissances pompe et Stokes inférieurs à 40 mW chacune.

1.2.4 La cuisson ? A point, merci !

1.2.4.1 Le brulé, c'est mauvais (ou : photoendommagement des échantillons)

La problématique d'endommagement des milieux biologiques a en quelque sorte ouvert la voie au CARS, qui constitue une alternative "non-destructive" à la spectroscopie Raman spontanée. Cependant, l'emploi d'impulsions brèves concentre l'énergie délivrée en un temps très court (nanoseconde, ou moins) et peut induire d'autres effets, comme la création de plasma. Si cette création est recherchée en analyse LIBS (Laser Induced Breakdown Spectsocopy [D.W. Hahn, 2010]), elle ne l'est pas en imagerie biologique.

Le photo-endommagement des échantillons est une problématique complexe car multi-critères. En effet, le "seuil d'endommagement" (exprimé, par exemple, en énergie délivrée par impulsion) dépend de tous les paramètres présents : durée, puissance pic et longueur d'onde de l'impulsion, taux de répétition du laser, nature de l'échantillon [Y. Fu, 2006]... Ainsi, les seuils d'endommagement étudiés sont regroupés dans le Tableau 1-3 ci-dessous. On distingue le temps de pose (« t_{pose} »), qui représente le temps d'illumination d'un pixel, du temps d'exposition (« $t_{exposition}$ »), qui représente le temps total d'illumination de l'échantillon.

T_{LMH} (ps)	Technique	λ_{laser} (nm)	$f_{rep.}$ (MHz)	$E_{impulsion}$ (pJ)	t_{pose} (µs)	$t_{exposition}$ (s)	Réf.
2.5	CARS	700/900	39	≈ 180	H:150	22-25	[Y. Fu, 2006]
2.5	CARS	700/840-890	1.3	800-500	-	0.5	[Y. Fu, 2006]
2	CARS	711/892	1	3000	3.3	300	[X. Nan, 2006b]
2	CARS	711/892	80	150/40	3.3	300	[X. Nan, 2006b]
0.6	TPFE	780	80	70	60	4	[K. Konig, 1999]
2.2	TPFE	780	80	200	60	4	[K. Konig, 1999]

Tableau 1-3 : Récapitulatif des seuils de photo-endommagement. H : hypothèse.

Ces seuils permettent de fixer des ordres de grandeurs en termes d'énergie totale délivrée et en énergie délivrée par unité de temps. On constate donc que pour des temps de pose "communs" (≈ 10 µs), le seuil de dommage se situe vers 0.5 - 2 nJ/impulsion pour des taux de répétition de 1 à quelques mégaHertz et vers 100 - 150 pJ/impulsion pour des taux de répétition de plusieurs dizaines de MHz. On choisit ces ordres de grandeur en référence d'***énergies minimales*** à fournir, car ces seuils peuvent être réévalués dans le domaine spectral de travail (≈ 1 - 1.5 µm). De plus, les démonstrations récentes d'imagerie CARS/SRS en « temps réel » emploient, pour des taux de répétition de plusieurs dizaines de MHz, des impulsions de plusieurs centaines de picoJoules et des temps de pose de l'ordre de la microseconde, sans faire référence à une quelconque destruction de l'échantillon [C.L. Evans, 2005].

Concernant la gamme spectrale de travail, celle-ci est fixée à l'intervalle [700-1350] nm, qui induit une absorption linéaire minimale et donc une profondeur de pénétration maximale. De plus, un avantage par rapport au domaine du visible est de présenter un signal CARS non-résonnant nettement plus faible. Il faut enfin souligner que la force des techniques d'imagerie vibrationnelle fait également leur grande faiblesse, car il a été démontré que le temps d'endommagement est plus

faible pour ces techniques que pour celles exploitant des effets non-linéaires non-résonnants, comme la SHG.

1.2.4.2 Temps de cuisson (ou : ordres de grandeur communs en imagerie non-linéaire)

L'ordre de grandeur des énergies maximales admissibles est connu. On présente ici les caractéristiques principales des impulsions pour quelques démonstrations d'imagerie afin de posséder des références de caractéristiques pour une imagerie "confortable".

Au vu des différentes démonstrations d'imagerie CARS et SRS, la vitesse d'imagerie est fonction de la densité spectrale d'énergie (DSE) des impulsions et de leur énergie. Le tableau ci-dessous résume les énergies et densités spectrales utilisées dans quelques publications :

Méthode	E_p (pJ)	DSE_p (pJ/nm)	E_S (pJ)	DSE_S (pJ/nm)	t_{pose} (µs)	Référence
M-CARS	100	1420	200	18	20000	[M. Müller, 2002]
M-CARS	220	22	170	17.5	20000	[P. Groß, 2010]
S-CARS	1	3.8	1	2.4	10000	[N. Djaker, 2007]
S-CARS	1400	4820	571	1270	4.2	[H. Wang, 2005]
S-CARS	658	3290	658	2740	0.16	[C.L. Evans, 2005]
SRS	26	3.25	34	2.2	200	[Y. Ozeki, 2010]

Tableau 1-4 : Caractéristique des impulsions Stokes utilisées dans quelques démonstrations. M-CARS : multiplex CARS, S-CARS : simplex CARS

On peut dégager du Tableau 1-4 et du paragraphe précédent les caractéristiques cibles suivantes pour impulsions pompe et Stokes :

- un ***domaine de travail de 700 à 1350 nm*** environ, afin de minimiser l'absorption par l'eau et les échantillons.
- un ***décalage spectral de 3000 cm^{-1}***, soit 260 nm à partir de 800 nm (laser titane:Saphir) ou 480 nm à partir de 1034 nm (laser Ytterbium). Ce décalage permet d'atteindre la zone 2700-3000 cm^{-1}, caractéristique des liaisons C-H présentes dans les bi-couches lipidiques des membranes cellulaires. Une extension à 3600 cm^{-1} serait intéressante afin d'atteindre les liaisons de l'eau.
- une ***énergie par impulsion de 100 à 150 pJ*** pour les taux de répétition importants.
- une ***DSE supérieure à 2.5 pJ/nm***.

1.2.5 Les verrous technologiques

L'introduction a clairement présenté le verrou technologique important de ces techniques de diffusion Raman cohérente, qui est l'emploi de deux impulsions ultracourtes synchronisées présentant un décalage en longueur d'onde accordable sur un intervalle important (300 à 500 nm environ).

Les systèmes actuels nécessitent ainsi, au minimum, un laser et un oscillateur paramétrique optique (ou OPO). Si de tels systèmes permettent une imagerie de qualité [S. Brustlein, 2011], les OPO entièrement contrôlables par ordinateur ayant été mis au point, ce type de système reste lourd d'utilisation, encombrant et présente un coût élevé pour son acquisition et son maintien en

fonctionnement. A titre d'exemple, l'acquisition d'un laser et d'un OPO, avec un système de synchronisation adéquat, peut représenter typiquement un encombrement d'environ 3 m² pour un coût d'acquisition d'environ 300 000 €. Dans ce cadre, la partie suivante présente certaines solutions, employant l'optique fibrée, qui semble apporter des éléments de réponse à ce verrou majeur.

1.3 Les sources optiques fibrées pour la microscopie CARS

Des solutions aux contraintes évoquées précédemment ont ainsi été apportées, au début des années 2000, par une très heureuse convergence technologique. En effet, la démocratisation des lasers ultrabrefs (picoseconde à femtoseconde) et des OPO (Oscillateurs Paramétriques Optiques) a bénéficié, dans la même période, du développement des fibres microstructurées (partie 1.3.2). La partie 1.3.1 présente les solutions mises au point, parmi lesquelles la solution choisie pour ce travail de thèse.

1.3.1 Les solutions existantes

1.3.1.1 Principe général et historique des solutions

L'imagerie biologique CARS nécessite deux impulsions lumineuses dont l'écart en fréquence optique est conséquent (> 1000 cm^{-1}, soit 30 THz, ou encore 70 nm à partir de 800 nm ou 284 nm à partir de 1550 nm), et ajustable. Cet ajustement peut s'effectuer de trois manières différentes :

- fréquence pompe fixe, ajustement de la fréquence Stokes
- fréquence Stokes fixe, ajustement de la fréquence pompe
- ajustement simultané des deux fréquences optiques.

L'apport des fibres microstructurées (ou PCF : Photonic Crystal Fiber) pour la génération de nouvelles fréquences a mené, de manière générale et dans le domaine spectral d'intérêt (700-1350 nm), soit à la génération d'un signal spectralement large autour d'une fréquence centrale, appelé supercontinuum (ou SC) [J.M. Dudley, 2006], soit à la génération d'impulsions simples et décalées vers les basses fréquences (SSFS, ou Soliton Self-Frequency Shift [F. M. Mitschke, 1986], chapitre 2). Cette génération de nouvelles fréquences fournit l'écart en fréquence nécessaire. La Figure 1-18 représente un schéma classique de dispositif reposant sur l'utilisation de ces fibres.

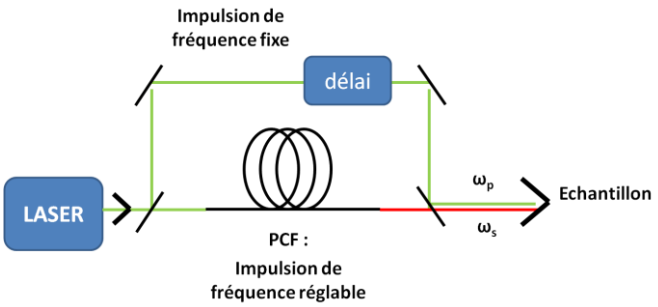


Figure 1-18 : Principe des dispositifs fibrés les plus fréquemment rencontrés.

Cette configuration est la plus rencontrée. Une ligne à retard permet la synchronisation des impulsions pompe et Stokes. On constate immédiatement qu'une fibre microstructurée remplace un second laser ou un OPO. Le gain en termes de simplicité, de coût et d'encombrement est sans appel.

La première démonstration de ce type de dispositif a été publiée en 2003, avec l'emploi d'un laser titane:saphir et d'ondes dispersives générées par une fibre microstructurée [H.N. Paulsen, 2003] (voir la partie suivante). Cette démonstration a été rapidement suivie entre 2005 et 2007 par d'autres démonstrations reposant toutes sur le SSFS ou le SC [S. Murugkar, 2007, E.R. Andresen, 2006]. Il est intéressant de remarquer que peu de brevets ont été déposés pour ce type de dispositif, et de manière relativement récente [V. Couderc, 2012]. En effet, ces derniers portent plutôt sur les fibres mirostructurées permettant la géneration de SSFS ou de SC.

Par la suite, entre 2009 et 2011, les démonstrations utilisant le SSFS se sont rapidement développées [A.F. Pegoraro, 2009a], ainsi que d'autres démonstrations plus originales associant supercontinuum et doublage de fréquence pour atteindre le domaine spectral d'intérêt [M. Marangoni, 2009a]. L'année 2012 a vu un tournant avec le développement de sources entièrement fibrées dont le décalage spectral nécessaire est généré par mélange à quatre ondes (ou FWM : Four Wave Mixing, voir la partie 1.2) [M. Baumgartl, 2012a, S. Lefrancois, 2012].

De plus, depuis 2008 environ, ces sources sont intégrées, sans modification, dans des systèmes d'imagerie multimodale. Cette intégration est simplement effectuée en multipliant les gammes spectrales de détection correspondant à des processus physiques différents (SHG, THG, TPFE...).

Toutes ces démonstrations témoignent du potentiel extrêmement important des fibres microstructurées pour l'imagerie biologique. En effet, l'optique non-linéaire accessible par ces fibres permet de multiples possibilités. On constate que ces démonstrations peuvent être également divisées selon le principe de génération des faisceaux pompe et Stokes. Les trois "types des sources" emploient les techniques suivantes pour la génération des longueurs d'onde souhaitées :

- ***impulsion pompe fixe, impulsion Stokes générée par supercontinuum*** [H.N. Paulsen, 2003, T.W. Kee, 2004, H. Kano, 2005, G.I. Petrov, 2005, B. von Vacano, 2006, S. Murugkar, 2007, K. Shi, 2007, M. Okuno, 2007, M. Okuno, 2008, A.F. Pegoraro, 2009a, J. Rehbinder, 2010, G. Bergner, 2011, S. Michel, 2011, H. Segawa, 2012, M. Okuno, 2012]
- ***impulsion pompe fixe, impulsion Stokes générée par auto-décalage en fréquence d'un soliton, ou SSFS*** (Soliton Self Frequency Shift, chapitre 2) [E.R. Andresen, 2005b, E.R. Andresen, 2006, A. A. Ivanov, 2006, E.R. Andresen, 2007, A.F. Pegoraro, 2009a, K. Tada, 2009, P. Groß, 2010, P. Adany, 2011]
- ***Impulsions pompe et Stokes générées par mélange à quatre ondes*** [M. Baumgartl, 2012a, M. Baumgartl, 2012b, T. Gottschall, 2012, S. Lefrancois, 2012, M. Chemnitz, 2012].

Les parties suivantes passent en revue ces méthodes. Une quatrième partie est consacrée aux systèmes plus originaux utilisant le doublage de fréquences. De plus, on ne se concentrera que sur les dispositifs de génération d'impulsions. On n'aborde donc pas les démonstrations de principe d'imagerie CARS par endoscopie apparues récemment [Z. Wang, 2011, K. Wang, 2011a, S. Murugkar, 2010, B.G. Saar, 2011].

1.3.1.2 Utilisation d'un supercontinuum

La première démonstration [H.N. Paulsen, 2003] a donc employé un supercontinuum généré par injection d'un laser titane:saphir à 790 nm dans une PCF. Cette fibre présentait une longueur d'onde de dispersion nulle proche de la longueur d'onde de pompage, si bien que la majeure partie de l'énergie injectée était transférée à des longueurs d'onde plus courtes par le phénomène d'ondes dispersives (chapitre 2) vers 643 nm, qui étaient utilisées en tant qu'impulsion pompe. Cette dernière présente, avec le faisceau laser non injecté, un décalage de 3000 cm^{-1} qui est utilisé pour l'imagerie de billes de polystyrène. Tout le domaine vibrationnel d'intérêt peut être atteint faisant varier la longueur d'onde du laser initial. Un spectre caractéristique est représenté en Figure 1-19 (a).

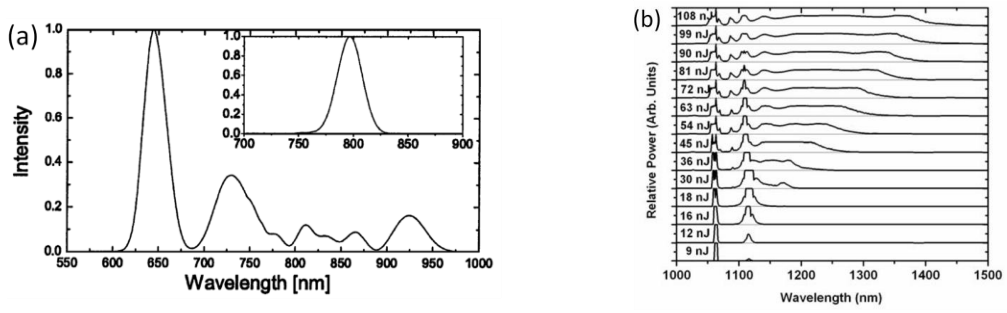


Figure 1-19 : Supertontinua utilisés dans les diverses démonstrations. (a) Evolution du spectre généré par la fibre utilisée par [H.N. Paulsen, 2003]. (b) supercontinuum typique des autres démonstrations (d'après [G.I. Petrov, 2005]).

Une configuration plus « classique » de source par supercontinuum est proposée par Petrov *et al.* en 2005 [G.I. Petrov, 2005]. Cette solution emploie un supercontinuum qui est ensuite filtré pour ne conserver que la longueur d'onde Stokes d'intérêt. La résolution spectrale est assurée par l'impulsion pompe, en limite de Fourier (chapitre 2), de 4 ps. Ensuite, l'étendue spectrale est assurée soit par l'ajustement de la synchronisation (le supercontinuum s'étale sur environ 30 ps), soit par compression temporelle de celui-ci.

Une autre « voie » des dispositifs CARS par SC est d'employer des impulsions laser beaucoup plus longues [M. Okuno, 2007, M. Okuno, 2008, H. Segawa, 2012, M. Okuno, 2012]. En effet, Okuno *et al.* [M. Okuno, 2008] emploient une source laser Ytterbium de quelques centaines de picosecondes délivrant des impulsions de 6 µJ à un taux de répétition de 6.6 kHz. Le supercontinuum généré [V. Tombelaine, 2005] couvre toute la bande spectrale d'intérêt. Les impulsions sont donc plus espacées dans le temps, mais nettement plus énergétiques que tous les autres dispositifs employés. Des images ont été enregistrées en quelque dizaines de secondes.

Enfin, on peut noter la démonstration de von Vacano et al. [B. von Vacano, 2006] qui utilise le contrôle de la phase d'un supercontinuum par masque de phase (ou SLM : Spatial Light Modulator). Ce contrôle permet une des rares démonstrations d'imagerie CARS en n'utilisant qu'un seul faisceau.

1.3.1.3 Utilisation du SSFS

L'utilisation du SSFS a constitué la deuxième principale source de démonstration de principe [E.R. Andresen, 2005b]. Dans ce type de montage, l'énergie du faisceau Stokes n'est pas filtrée au sein d'un supercontinuum, mais concentrée en une impulsion qui est réglable en longueur d'onde. L'intérêt immédiat est de bénéficier d'une densité d'énergie généralement plus importante afin de pouvoir augmenter la vitesse d'acquisition du signal CARS.

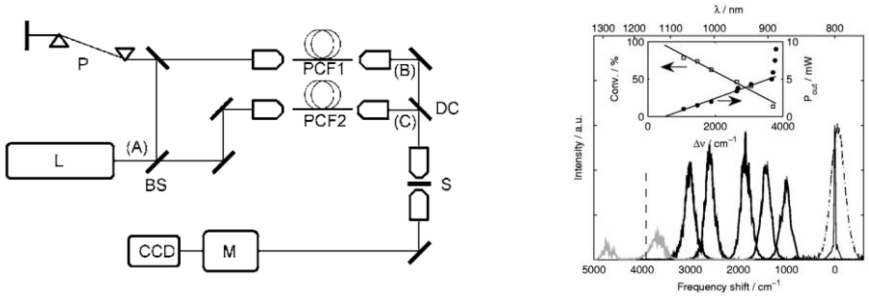


Figure 1-20 : Caractéristiques des dispositifs utilisant le SSFS (d'après [E.R. Andresen, 2006]). (a) Montage appliqué à l'imagerie CARS mettant en œuvre la compression spectrale. L : Laser, BS : lame séparatrice, P : prisme, PCF : fibre microstructurée, DC : lame combinatrice, S : échantillon et D : détecteur. (b) Caractéristiques des solitons décalés utilisés dans cette démonstration.

Ces impulsions sont généralement des impulsions d'environ 100 fs issues de lasers à modes bloqués, émettant des trains d'impulsions à un taux de répétition de plusieurs MHz. Ainsi, à l'aide d'un dispositif de microscopie performant, des vitesses d'imagerie acceptables peuvent être atteintes. Par exemple, Pegoraro et al. [A.F. Pegoraro, 2009a] réalisent des images de 256*256 pixels en 0.3 secondes, avec un temps de pose de 4 µs par pixel.

Ces impulsions étant larges spectralement, plusieurs techniques sont mises en œuvre afin d'améliorer la résolution spectrale : la compression spectrale ([E.R. Andresen, 2006], voir aussi le chapitre 4 de cette thèse) ou le spectral focusing [E.R. Andresen, 2011b].

1.3.1.4 Utilisation du mélange à quatre ondes

L'utilisation du mélange à 4 ondes est très récente, et bénéficie du développement de toute l'optique fibrée à partir de sources et d'amplificateurs ytterbium.

La première démonstration a été effectuée par Baumgartl et al. [M. Baumgartl, 2012a]. Le principe est en premier lieu de créer un train d'impulsions de plusieurs dizaines de picosecondes, énergétiques et immunes à la SPM (auto-modulation de phase, voir plus loin) et au SSFS, qui sont ainsi pleinement soumises au mélange à quatre ondes. Au sein de ce mélange, deux photons de pompe sont annihilés et un photon dit Stokes et un photon dit idler sont créés. Les longueurs d'onde de ces deux photons dépendent des conditions d'accord de phase de la fibre dans laquelle ce processus est généré. Ainsi, il est possible de modifier ces longueurs d'onde en modifiant soit la fibre, soit la longueur d'onde d'excitation, comme le montre la Figure 1-21 (a).

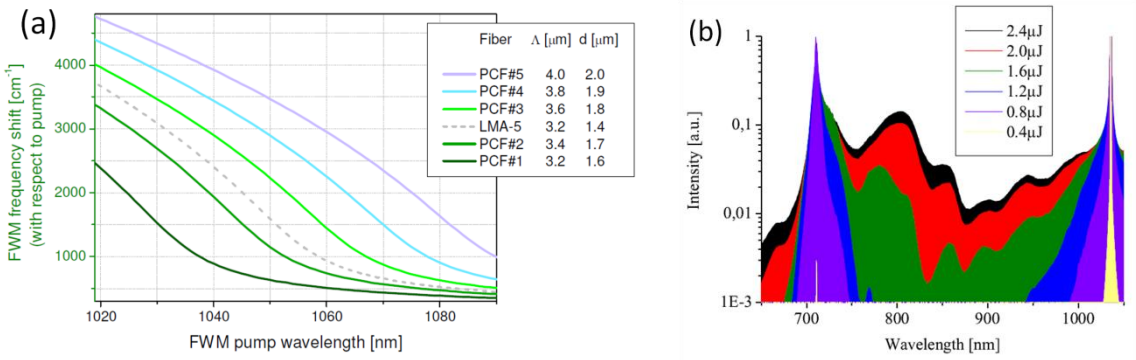


Figure 1-21 : Génération de mélange à quatre ondes dans différentes fibres pour la conception d'une source fibrée. (a) décalage en fréquence du signal, pour différentes fibres, en fonction de la longueur d'onde de pompe (d'après [M. Baumgartl, 2012a]). (b) Spectre généré pour différentes énergies injectées (d'après [T. Gottschall, 2012]).

Le montage proposé ici génère tout d'abord des impulsions de 118 ps à 1033 nm et de quelques microjoules. Ces impulsions sont ensuite injectées dans une fibre, et une impulsion signal de 43 ps et de 15 nJ/nm de DSE (pour une puissance moyenne de 48 mW) est générée et est utilisée en tant qu'impulsion pompe. L'impulsion initiale (1033 nm) restante est utilisée en tant qu'impulsion Stokes. Il est aussi possible d'utiliser tout couple d'impulsions parmi l'ensemble des trois impulsions disponibles.

Ce système peut cependant souffrir d'une accordabilité en longueur d'onde limitée par l'accordabilité de la source de départ. La démonstration suivante de ce groupe élimine cet inconvénient par le choix d'autres PCFs, qui bénéficient d'une bande passante pour le mélange à 4 ondes plus important [T. Gottschall, 2012]. Cette bande passante permet de générer un continuum couvrant toute la gamme spectrale d'intérêt, comme le montre la Figure 1-21 (b), qui représente le spectre généré pour différentes énergies injectées.

Enfin, il a été montré qu'une stimulation du mélange à quatre ondes permet de réduire significativement les effets parasites non issus de l'accord de phase [S. Lefrancois, 2012].

1.3.1.5 Sources "exotiques"

Ces sources sont intéressantes car en grande partie [M. Marangoni, 2009a, R. Selm, 2010], elles tirent profit des cristaux de PPLN [Miller, 1998] (Periodically Poled Lithium Niobate) pour le doublage de fréquences et la compression spectrale d'impulsions (voir le chapitre 4). Ainsi, des supercontinua créés dans des fibres hautement non-linéaires (HNLF, Highly Non-Linear Fiber, voir la partie suivante) à partir de 1550 nm deviennent tout à fait adaptés au domaine spectral idéal de la biophotonique. La démonstration de Selm *et al.* [R. Selm, 2010], qui met en œuvre une expérience de T-CARS (CARS résolu en temps) représentée en Figure 1-22, en est un bon exemple. La figure (a) représente le dispositif expérimental. Tout d'abord, l'impulsion pompe de départ, à 1550 nm, est doublée à 778 nm et comprimée spectralement par un cristal de PPLN [M. Marangoni, 2009b] (partie « haute » du montage) et est utilisée en tant qu'impulsion pompe. La conception particulière du cristal de PPLN permet de générer une impulsion « carrée » temporellement (figure (e)) et fine spectralement (figure (d)). Cette conception présente l'intérêt d'un front montant raide qui permet une bonne efficacité pour le sondage du milieu d'analyse après l'excitation par la première impulsion.

Dans l'autre partie du montage, un supercontinuum est généré dans une fibre hautement non-linéaire à 1550 nm (partie « basse » du montage). Ce supercontinuum est composé de solitons spectralement décalés aux grandes longueurs d'onde et d'ondes dispersives aux faibles longueurs d'ondes (chapitre 2). La largeur spectrale de ces dernières (figure (b)), de 500 nm autour de 1200 nm, contient les composantes pompe et Stokes servant à exciter les vibrations moléculaires. Ses propriétés temporelles (figure (c)) sont contrôlées par un ajustement précis du compresseur à prisme.

Ces montages mettent ainsi en valeur le potentiel très important du matériel des télécommunications optiques comme base fibrée judicieuse.

De toutes ces solutions, la solution choisie initialement pour ce travail de thèse a été celle de l'emploi de solitons spectralement décalés. Cette solution permet de bénéficier d'une bonne densité spectrale d'énergie et d'impulsions de forme spectrale mieux définie que celle des supercontinua. De plus, le chapitre 2 montrera la grande richesse des caractéristiques des impulsions que cette

solution permet de générer et ainsi les possibilités d'évolution et d'adaptation de la source développée.

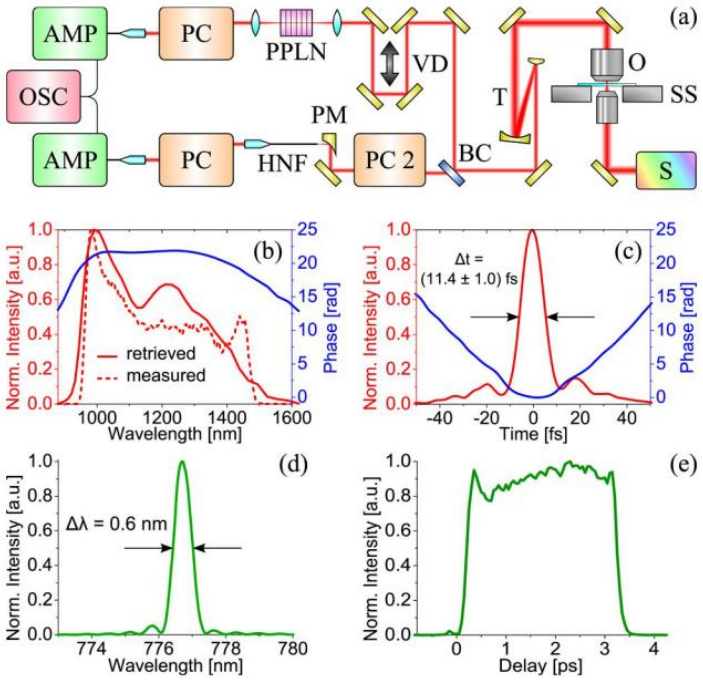


Figure 1-22 : Principe de montage CARS fibré avec utilisation d'un cristal de PPLN (d'après [R. Selm, 2010]). (a) Dispositif employé. OSC : oscillateur, AMP : amplificateur, PC : compresseur à prisme en SF6, PPLN : cristal de niobate de lithium, HNF : fibre hautement non-linéaire, PM : miroir parabolique, VD : ligne à retard B : lame combinatrice, T : télescope, O : objectif, SS : échantillon, S : spectromètre. (b,c,d,e) Profils d'intensité spectrale et temporelle, et phases associées, des faisceaux Stokes (b,c) et pompe(d,e)

Cette solution repose, le plus souvent, sur l'emploi de fibres spéciales, dites fibres micro-structurées air-silice (ou FMAS). On emploiera par la suite l'abréviation FMS, pour Fibre Micro-Structurée, ou PCF, pour Photonic Crystal Fiber, ou fibre à cristal photonique. La partie suivante présente des éléments de théorie sur les fibres en général et sur ces FMS en particulier.

1.3.2 Eléments de théorie sur les fibres

Cette partie présente des éléments généraux sur les propriétés des fibres optiques en général et les fibres microstructurées en particulier et s'appuie sur la thèse de Laurent Labonté [Labonté, 2005].

1.3.2.1 Principes de guidage

On distingue majoritairement deux types de guidages : le guidage par réflexion totale interne (RTI) et le guidage par bande interdite photonique (BIP).

Guidage par réflexion totale interne : Ce guidage est une simple application des lois de Snell-Descartes par laquelle le guidage dans le cœur est assuré par un indice de cœur supérieur à celui de la gaine. Ce type de profil d'indice est donné en Figure 1-23 (a). Ce guidage est assuré pour les modes dont le vecteur d'onde β vérifie la double-inégalité suivante :

$$k_0 n_g < \beta < k_0 n_c \tag{1.13}$$

avec k_0 le vecteur d'onde, n_c et n_g les indices du cœur et de la gaine. De cette relation découle les notions importantes d'Ouverture Numérique (O.N.) et de fréquence spatiale normalisée V :

$$O.N. = \sqrt{n_c^2 - n_g^2} \quad (1.14) \qquad V = \frac{2\pi}{\lambda_0} a \sqrt{n_c^2 - n_g^2} \quad (1.15)$$

avec λ_0 la longueur d'onde du mode guidé et a le rayon du cœur. L'ouverture numérique définit l'angle maximal d'incidence pour qu'un rayon soit guidé. La fréquence V permet de définir la longueur d'onde de coupure λ_c en dessous de laquelle la fibre n'est plus monomode. La fibre sera monomode pour V < 2.405.

C'est ce mode de guidage qui est choisi dans ce travail de thèse, en particulier car il peut proposer, pour un certain type de fibre disponible simplement, une réponse non-linéaire suffisamment importante pour la génération de fréquence recherchée. On s'intéresse donc aux fibres présentant ce type de guidage, dont le principe consiste à obtenir un cœur d'indice plus élevé que celui de la gaine. Les différentes techniques possibles afin d'obtenir une telle différence d'indice sont présentées plus loin.

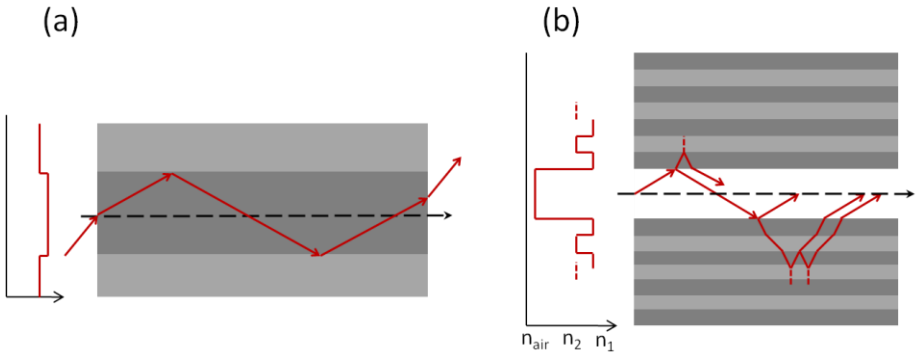


Figure 1-23 : Structure et profil d'indice pour les deux types de guidage généraux en optique fibrée (d'après [J.-L. Auguste, 2005]). (a) Guidage par Réflexion Totale Interne (RTI) et (b) guidage par Bande Interdite Photonique (BIP).

Guidage par Bande Interdite Photonique : Le principe est d'adapter ce type de guidage (BIP, ou PBG en anglais, pour Photonic Band-Gap) [Yablonovitch, 1993] aux guides d'onde cylindriques que constituent les fibres optiques. Il consiste à créer une structure qui assure le confinement d'un certain intervalle spectral dans une zone spatiale définie. Les premières fibres reposant sur ce principe étaient constituées d'une succession de couches de haut et bas indice qui formait un réseau de Bragg radial. Ce réseau assure la réflexion d'une certaine gamme de longueurs d'ondes et leur confinement dans le cœur. Ces fibres sont donc nommées « fibres de Bragg » et une représentation de leur fonctionnement est fourni en Figure 1-23 (b).

L'intérêt de ce type de fibre est que le cœur peut être constitué de tout type de matériau, qui peut être *a fortiori* l'air. Il est donc possible de concevoir des fibres à faibles pertes pour le transport de puissance [D.G. Ouzounov, 2003].

1.3.2.2 Différents « types » de fibres à guidage par RTI

Les fibres "classiques" : Cette première génération de fibres utilise le dopage de la silice par certains éléments afin d'augmenter ou d'abaisser l'indice de réfraction, ce qui permet de constituer respectivement le cœur et la gaine de la fibre. On utilise généralement des oxydes de germanium (GeO_2) ou de phosphore (P_2O_5) pour augmenter l'indice et des oxydes de bore (B_2O_3) ou de fluorures pour le baisser. Les fibres typiques des télécommunications optiques (par exemple, le modèle SMF-28 de Corning [Corning, 2012]) présente une différence d'indice de 0.36 % pour un diamètre de cœur de 10 µm, ce qui assure un guidage monomode au-delà de 1260 nm. La configuration usuelle consiste à ne doper que le cœur. La fibre « basique » est représentée en Figure 1-24 (a).

Ce type de fibre présente un coefficient non-linéaire (voir plus loin) faible (1 à 2 $W^{-1}.km^{-1}$ à 1550 nm) et n'est pas un bon candidat pour la génération de nouvelles fréquences. Il a ainsi été mis au point des fibres possédant un diamètre de cœur réduit (environ 2 µm) et une certaine stratégie de dopage, dont le confinement plus important du mode guidé permet d'augmenter ce paramètre non-linéaire d'un facteur 10 environ [OFS, 2012]. Ce type de fibre, dite hautement non-linéaire (ou HNLF : Highly NonLinear Fiber) est représenté en Figure 1-24 (b). La baisse d'indice par l'ajout de fluor permet de contrôler le profil de dispersion. Cependant, il n'est pas possible d'augmenter encore le coefficient non-linéaire à l'aide de telles fibres. Augmenter encore ce paramètre non-linéaire passe par la mise au point des fibres microstructurées.

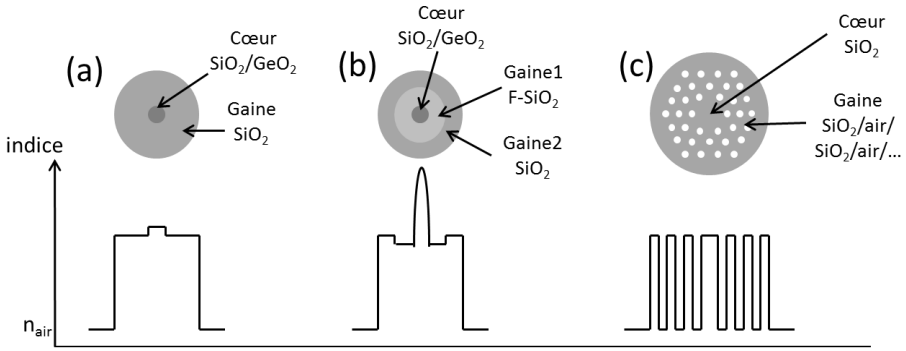


Figure 1-24 : Profils d'indice de différents types de fibres. SiO_2 : oxyde de silice, GeO_2 : oxyde de germanium, F : fluor. (a) Fibre monomode classique à saut d'indice. (b) Fibre fortement non-linéaire (HNLF). (c) Fibre microstructurée air-silice à guidage par RTI.

Les fibres microstructurées : Cette "seconde génération" de fibres permet en effet une augmentation notable du coefficient non-linéaire, couramment d'un facteur 10 à 100, par la réduction de la taille du coeur. Le guidage est obtenu en agissant pas sur l'indice du cœur, mais plutôt sur celui de la gaine, que l'on baisse par l'introduction de « canaux d'air » afin de diminuer son indice effectif. On obtient ainsi un « cylindre troué » dont un exemple de coupe transverse est donné en Figure 1-24 (c). De plus, le nombre et la répartition de ces canaux permettent un contrôle précis et avancé de la dispersion chromatique, évoqué plus loin. Comme évoqué précédemment et vu par la suite, le contrôle de ces propriétés constitue un point primordial pour le développement d'une

source adéquate. La grande étendue des possibilités offertes par ces fibres fait par ailleurs l'objet d'un intérêt très important depuis une quinzaine d'années. Cet intérêt est parfaitement illustré par les plusieurs centaines de brevets et de publications déposés depuis la fin des années 90.

En effet, hormis une première démonstration de fibre à cœur suspendu en 1974 [P.V. Kaiser, 1974], la première démonstration de fibre microstructurée par « gaine trouée » remonte à 1996 [J.C. Knight, 1996]. Cette démonstration par l'équipe de P. St. J. Russel avait pour objectif un guidage par BIP. Cependant, la microstructure de la première fibre fabriquée ne possédait pas la régularité nécessaire à ce type de guidage, qui était pourtant monomode de 337 à 1500 nm. En fait, le réseau de capillaires d'air abaissait l'indice effectif de la gaine et permettait le guidage par RTI [J.C. Knight, 1997]. Comme il n'existe pas d'interface clairement définie entre le cœur et la gaine, ce guidage a été nommé RTI modifiée. Il est à la base d'un développement technologique très important.

En effet, le guidage par RTI dans une fibre microstructurée présente des différences avec le guidage classique. Dans une fibre classique, les indices du cœur et de la gaine varient de la même manière avec la fréquence optique. L'ouverture numérique est donc quasiment invariante avec la longueur d'onde, de même que la fréquence spatiale ne varie qu'en $1/\lambda_0$. Ceci n'est plus vrai dans une fibre microstructurée, qui voit l'indice effectif de la gaine diminuer à mesure que la longueur d'onde augmente et que le mode s'étend dans la gaine. Ces propriétés uniques permettent aux microstructures à faible fraction d'air dans la gaine ($d/\Lambda < 0.406$) d'être monomodes quelque-soit la longueur d'onde. Ces fibres remarquables sont appelées fibres infiniment monomode, ou ESM (Endlessly Single-Mode) [T.A. Birks, 1997].

Evolutions des fibres microstructurées : Les deux tendances actuelles sont soit d'allier ces fibres, uniquement composée de silice, à d'autres matériaux, soit de faire évoluer les types de microstructures, notamment dans d'autres matériaux que la silice [Cerqueira, 2010].

La première tendance a vu la création de fibres hybrides exploitant les deux types de guidage (RTI et BIP) [A. Cerqueira S. Jr., 2006, M. Perrin, 2007], de fibres intégrant des liquides [C.M.B. Cordeiro, 2006], des gaz [F. Benabid, 2005], ou encore des fibres présentant des inclusions de métaux pour le guidage par résonance plasmonique [A. Hassani, 2006, K. Lin, 2008].

La seconde tendance a vu la naissance de fibres en verres de chalcogénures [J. Troles, 2010], ou encore des fibres de polymères pour le guidage d'ondes térahertz [C.S. Ponseca Jr., 2008].

1.3.2.3 Effets d'atténuation du signal

La propagation d'une impulsion est inévitablement sujette à pertes, dues principalement au matériau utilisé et au guide lui-même [Agrawal, 2007]. Ces effets dépendent de la longueur d'onde et on donne souvent le spectre d'atténuation, en dB/km, du type de ceux représentés en Figure 1-25. L'atténuation linéaire présente plusieurs origines physiques :

- ***la diffusion élastique Rayleigh***, qui suit une loi en $1/\lambda^4$. Ce processus diffuse dans toutes les directions les photons incidents et représente la limite fondamentale des pertes au sein d'une fibre. Il domine l'absorption par les résonances électroniques dans l'ultra-violet.
- ***les pertes par absorption***, dues à la présence d'espèces constituant des impuretés et absorbant à certaines longueurs d'onde. Au sein des fibres à base de silice, l'impureté la plus importante est l'ion OH^-, qui possède un pic d'absorption vibrationnelle vers 2.73 µm. Les

harmoniques de ce pic, combinées aux résonances de la silice, sont responsables des pics d'absorption vers 1.23 et 1.38 µm. Les procédés de fabrication des fibres monomodes standards des télécoms (SMF-28) ont permis une quasi-suppression de ce pic et des valeurs de pertes inférieures à 0.2 dB/km à 1550 nm. En revanche, outre les records d'atténuation du même ordre (0.7 dB/km à 1380 nm, 0.18 dB/km à 1550 nm) [K. Kurokawa, 2009], ce pic reste une limitation forte pour les PCF, en particulier au sein de celles issues de la première décennie de développement. Ainsi, les pertes des premières fibres utilisées sont supérieures à 200 dB/km, avec un pic OH (estimé supérieur à 1000 dB/km) interdisant en pratique tout décalage spectral d'impulsions au delà de 1350 nm (chapitre 2). Ces pertes ont toutefois fortement baissé, avec des niveaux de l'ordre de 30 dB/km au pic OH et de 15 dB/km hors pic pour certaines fibres fournies par PERFOS (partie 2.2).

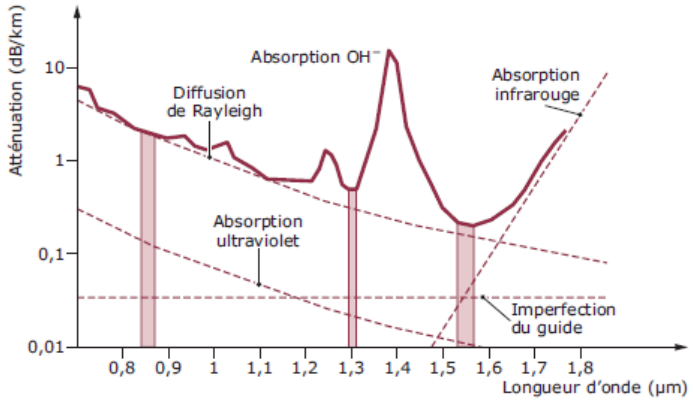


Figure 1-25 : Spectre d'atténuation classique d'une fibre monomode standard des télécommunications optiques (modèle SMF-28, d'après [J.-L. Auguste, 2005]).

- ***les vibrations moléculaires de la silice dans l'infra-rouge*** moyen et lointain (au delà de 2 µm). Les développements de nouveaux verres (chalcogènures, tellures...) ont pour but d'étendre la zone de transparence aux plus grandes longueurs d'onde.
- ***les pertes "de guide"*** : dues aux rugosités des interfaces air/verre qui augmentent les pertes par diffusion et à la courbure de la fibre. Les fibres microstructurées peuvent également présenter des pertes de confinement du mode guidé qui peut s'échapper à travers la gaine.

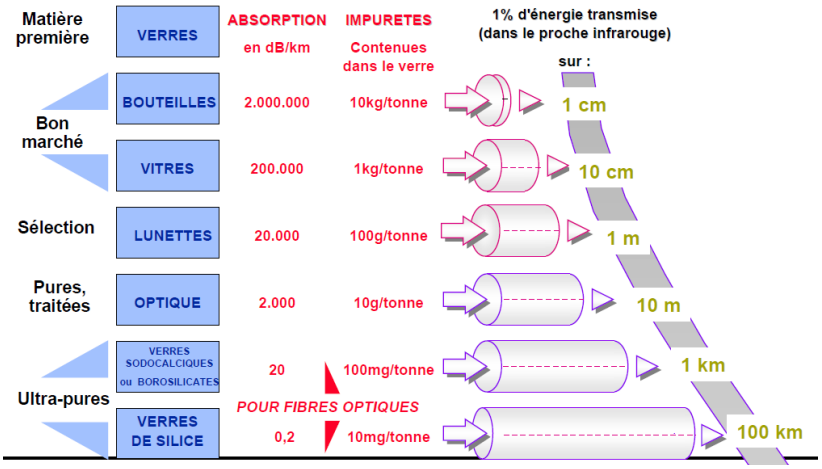


Figure 1-26: L'atténuation linéaire dans des verres destinés à différentes utilisations (d'après [CNAM, 2000]).

Il faut toutefois souligner le niveau incroyablement bas de ces pertes, nettement inférieures à celui d'autres verres utilisés pour d'autres applications, comme le montre la Figure 1-26.

1.3.2.4 La dispersion chromatique

La dispersion chromatique est le fait, pour un signal polychromatique, de voir ses différentes composantes spectrales se propager à des vitesses de phase ($v_\phi = \frac{\omega}{\beta} = \frac{c}{n(\omega)}$) différentes. La vitesse de propagation de ce signal est donc plutôt décrite par la vitesse de groupe et on s'intéresse de fait à la dispersion de cette vitesse de groupe. Ce phénomène est souvent pris en compte en développant la constante de propagation β(ω) autour de la fréquence optique centrale ω_0 :

$$\begin{aligned}\beta(\omega) = \frac{\omega}{c}n(\omega) &= \sum_{m=0}^{+\infty}\frac{1}{m!}\left(\frac{\partial^m\beta}{\partial\omega^m}\right)(\omega-\omega_0)^m \\ &= \beta_0 + \beta_1(\omega-\omega_0) + \frac{1}{2}\beta_2(\omega-\omega_0)^2 + \frac{1}{6}\beta_3(\omega-\omega_0)^3 + \cdots\end{aligned} \tag{1.16}$$

On distingue ainsi les coefficients suivants :

- β_0, qui correspond à la vitesse de phase $\beta_0 = \omega/v_\phi$
- β_1, qui est l'inverse de la vitesse de groupe v_g
- β_2, qui décrit la dispersion de cette vitesse de groupe, ou GVD, pour Group Velocity Dispersion
- β_3, qui décrit une "vitesse de variation" de la dispersion de la vitesse de groupe.

Il est parfois d'usage de considérer plus de termes, notamment pour étudier précisément le développement des supercontinua [J.M. Dudley, 2006]. Les constructeurs préfèrent utiliser la grandeur de dispersion, donnée par

$$D = -\frac{2\pi c}{\lambda^2}\beta_2 \tag{1.17}$$

Elle s'exprime en ps/km/nm. Ainsi, pour une longueur de fibre fixée, elle détermine la différence de temps de trajet, par rapport à la vitesse de groupe, pour une longueur d'onde donnée. Une valeur ***positive*** (ou négative) signifie que les ***grandes longueurs d'onde*** se propagent ***plus lentement*** (ou plus vite) ***que les faibles longueurs d'onde***. Ces régimes de propagation sont respetivement nommés régime ***anormal*** et normal. Au sein d'une fibre, les deux composantes principales contribuant à la dispersion chromatique sont la dispersion du matériau et la dispersion du guide d'onde lui-même.

Dispersion du matériau : La vitesse de propagation d'une onde dans un milieu est fonction de sa "force d'interaction" avec celui-ci, via ses électrons de valence. Cette relation entre l'onde et le milieu est donnée par l'indice de réfraction, *via* l'équation de Sellmeier :

$$n^2(\omega) = 1 + \sum_{j=1}^{m}\frac{B_j\omega_j^2}{\omega_j^2-\omega^2} = 1 + Re\left(\chi^{(1)}(\omega)\right) \tag{1.18}$$

avec B_j et ω_j possédant les valeurs suivantes ($\lambda j = 2\pi c/\omega_j$) :

j	B_j	λ_j (µm)
1	0.6961663	0.0684043
2	0.4079426	0.1162414
3	0.8974794	9.896161

Tableau 1-5: Coefficients de Sellmeier pour la modélisation de l'indice de réfraction linéaire de la silice.

Cette relation est valable hors des zones d'absorption UV et IR du matériau. Les coefficients de Sellmeier donnés correspondent à la silice pure. Ils varient dans le cas des fibres "classiques" à saut d'indice, dans lesquelles la différence d'indice entre le cœur et la gaine est assurée par dopage de la silice (voir la partie précédente). Ils sont par contre tout à fait adaptés pour les PCF utilisées.

La courbe de dispersion de la silice en fonction de la longueur d'onde est donnée Figure 1-27 (a). On remarque que la dispersion s'annule pour λ = 1.27 µm. Cette longueur d'onde est appelée ***« longueur d'onde de dispersion nulle », ou ZDW (Zero Dispersion Wavelength)***. Cette abréviation sera utilisée par la suite. On constate également qu'au delà de 1.27 µm, la valeur de dispersion est positive et traduit un ***régime de dispersion anormal***. Il est d'une importance capitale pour la suite de ce travail de thèse. En effet, il constitue un des piliers du SSFS (chapitre 2) et de la compression spectrale (chapitre 4, utilisation de ce régime en air libre).

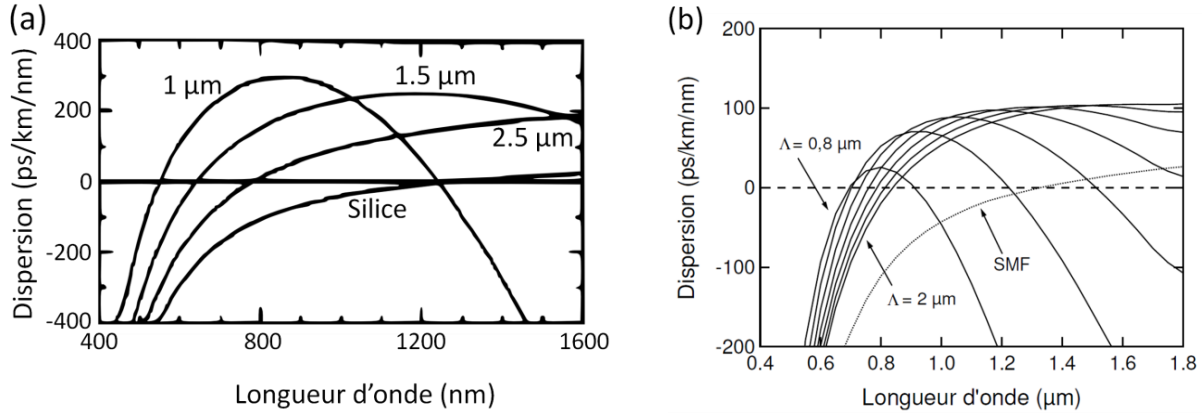


Figure 1-27 : Profils de dispersion chromatique de différentes structures de guides d'ondes, comparés au profil de la silice pure. (a) Profils de dispersion pour différents diamètres de tapers, d'après [T.A. Birks, 2000, Labonté, 2005]. (b) Profils de dispersion pour différentes microstructures, calculés à l'aide du logiciel BeamPROP, pour un rapport d/Λ de 0.85 comparé au profil d'une fibre classique, d'après [Kibler, 2007].

Dispersion du guide d'onde : Au sein d'une fibre monomode classique [Corning, 2012], la dispersion du guide est toujours négative (normale), ce qui a pour effet d'abaisser les valeurs de dispersion et de déplacer la ZDW de 1.27 µm vers 1.31 µm. Cependant, il pourrait être intéressant d'abaisser cette valeur de ZDW afin de bénéficier d'un régime de dispersion anormale aux longueurs d'ondes d'autres lasers tels que les lasers ytterbium (1033 nm) ou encore titane:saphir (≈ 800 nm). Ce type de guide nécessite un confinement important du champ. De tels confinements ont été démontrés par Birks *et al.* au moyen de « tapers » (ou « fibres effilées ») de diamètres de 1 à 2.5 µm [T.A. Birks, 2000]. En effet, pour de tels diamètres, la fibre elle-même joue le rôle de cœur et le mode est fortement confiné par la grande différence entre l'indice du cœur et celui de l'air qui joue le rôle de gaine. Ce confinement fort entraîne une dépendance nettement plus faible du diamètre du mode à la longueur d'onde et une dispersion positive (anormale), qui sur-compense donc la dispersion du matériau et qui varie en fonction du diamètre du taper. Le profil de dispersion pour différents diamètres de tapers de fibre classique sont représentés en Figure 1-27 (a).

Cependant, la manipulation de tapers reste délicate, notamment car le fort confinement du champ aboutit à une forte proportion de champ évanescent qui peut fuir par couplage externe. Cette configuration de taper ne peut pas être reproduite parfaitement, mais peut être approchée par une grande proportion d'air dans la gaine et un cœur réduit pour conserver un guidage monomode, ce qui correspond à l'emploi d'une fibre microstruturée à cœur plein. Les profils pour différentes fractions d'air à diamètre constant sont donnés Figure 1-27 (b). On constate que ce principe permet d'accéder à une grande richesse de profils de dispersion. Cette configuration est importante car elle est la configuration choisie pour ce travail de thèse.

Conséquences de la dispersion : La dispersion chromatique conduit à une "réorganisation temporelle" des composantes fréquentielles de l'impulsion. Cette réorganisation, appelée ***chirp***, ou dérive de fréquence en français, produit une modification de la largeur temporelle de l'impulsion. Dans le cadre d'une impulsion initiale gaussienne non-chirpée, aussi dite "en limite de Fourier", les largeur, phase et chirp induits pour une distance de propagation z sont

$$T(z) = T_0\sqrt{1+\left(\frac{z}{L_D}\right)^2} \tag{1.19}$$

$$\Phi(z,T) = -\frac{sgn(\beta_2)(z/L_D)}{1+(z/L_D)^2}\frac{T^2}{2T_0^2} + \frac{1}{2}\tan^{-1}\left(\frac{z}{L_D}\right) \rightarrow \tag{1.20}$$

$$\delta\omega(T) = -\frac{\delta\Phi}{\delta \mathrm{T}} = \frac{sgn(\beta_2)(z/L_D)}{1+(z/L_D)^2}\frac{T}{T_0^2} \tag{1.21}$$

avec T la largeur temporelle caractéristique de l'impulsion à un z donné, T_0 la largeur temporelle caractéristique de l'impulsion, $L_D = T_0^2/|\beta_2|$ la longueur de dispersion, définie en fin de chapitre.

La dispersion chromatique peut également mener à une compression temporelle de l'impulsion, si celle-ci est initialement chirpée. Cet effet est utilisé, par exemple, dans les télécommunications optiques pour compenser les chirps induits lors de la propagation au sein d'un réseau fibré. Pour finir, la dispersion chromatique est d'importance pour la formation de solitons (chapitre 2), ou la compression spectrale (chapitre 4).

Cependant, cet effet n'est pas le seul effet présent lors de la propagation d'une impulsion ultracourte. En effet, une telle impulsion signifie une grande concentration instantanée de photons, et de ce fait la polarisation non-linéaire d'ordre 3 (partie 1.1) n'est plus négligeable.

1.3.2.5 Les effets non-linéaires

Il a été vu dans la partie 1.1 que les effets non-linéaires ont pour origine la polarisation non-linéaire. La silice constituant les fibres optiques étant amorphe, il s'agit d'un milieu isotrope dans lequel la susceptibilité d'ordre 2 est nulle. Par conséquent, les effets non-linéaires ayant lieu dans les fibres ont pour origine la susceptibilité d'ordre 3. Celle-ci est responsable de phénomènes tels que la génération de troisième harmonique ou encore la réfraction non-linéaire [Shen, 1984]. Elle est prise en compte dans l'équation de propagation (partie 2.1) à travers le coefficient non-linéaire γ :

$$\gamma(\omega) = \frac{n_2(\omega_0)\omega_0}{cA_{eff}}, \quad n_2(\omega_0) = \frac{3}{8n_L}Re(\chi^{(3)}_{xxxx}) \tag{1.22}$$

avec n_2 l'indice de réfraction non-linéaire (valeur intrinsèque au matériau constituant la fibre), ω_0 la fréquence optique centrale, c la vitesse de la lumière dans le vide, A_{eff} l'aire effective du mode et n_L l'indice de réfraction linéaire. On constate que ce coefficient décrit, en fait, le "taux de confinement" du mode guidé, par le rapport du vecteur d'onde à l'aire effective. Cette relation est importante car les fibres choisies étant à base de silice amorphe, l'indice non-linéaire est fixé, ainsi que la fréquence optique de travail (par les conditions expérimentales). Un coefficient non-linéaire important ne peut ainsi être obtenu que par la réduction de l'aire effective. Il est intéressant de remarquer que cette évolution se produit automatiquement lors de la conception du profil de dispersion de la fibre pour abaisser la longueur d'onde de dispersion nulle. Une conséquence importante, rappelée au chapitre 2, est que pour ce type de fibre microstructurée, le coefficient de non-linéarité ne peut pas être fixé indépendamment du profil de dispersion.

En termes d'effets non-linéaires, on néglige au sein des fibres de silice le processus d'absorption à deux photons. On signale que ce processus sera toutefois mis à profit en partie 5.2, mais au sein d'un semi-conducteur, afin de contrôler la synchronisation temporelle des faisceaux pompe et Stokes.

Effets non-linéaires élastiques instantanés : Ces effets non-linéaires ont pour origine l'interaction du champ avec les électrons de valence du matériau. Ils sont qualifiés d'élastiques car ils n'induisent pas d'échanges d'énergie avec le milieu. Leur temps de réponse inférieur à la femtoseconde permet de les considérer comme instantanés. Les effets instantanés considérés dans cette thèse ont pour origine l'effet Kerr, qui vient du fait que l'intensité de l'impulsion modifie l'indice de réfraction selon

$$n = n_L + n_2|E|^2 \tag{1.23}$$

avec n_L l'indice de réfraction linéaire.

L'effet non-linéaire instantané prépondérant est ***l'auto-modulation de phase*** (ou ***SPM : Self-Phase Modulation***). Elle intervient dans tous les effets étudiés. En effet, elle est à l'origine de la formation et du maintien des solitons (chapitre 2), et agit comme "convertisseur de fréquence" pour le processus de compression spectrale (chapitre 4). L'effet de la SPM est d'introduire un déphasage non-linéaire, dépendant de l'intensité, au sein même de l'impulsion, selon :

$$U(L,T) = U(0,T)\exp\left(i\Phi_{NL}(L,T)\right), avec\ \Phi_{NL}(L,T) = |U(0,T)|^2\left(\frac{1-\exp(-\alpha L)}{\alpha}\right)\gamma P_c \tag{1.24}$$

avec α le coefficient de pertes linéaires et U l'amplitude normalisée de l'impulsion, définie comme :

$$A(z) = \sqrt{P_C}\exp\left(-\frac{\alpha z}{2}\right)U(z)$$

Ce déphasage effectue une réorganisation temporelle des fréquences au sein de l'impulsion. Il induit donc une dérive de fréquence, appelée chirp, selon :

$$\delta\omega = -\frac{\delta\Phi_{NL}}{\delta T} = -\left(\frac{1-\exp(-\alpha L)}{\alpha}\right)\gamma P_c\frac{\delta}{\delta \mathrm{T}}|U(0,T)|^2 \tag{1.25}$$

La Figure 1-28 ci-dessous représente la phase non-linéaire et le chirp induits par la SPM.

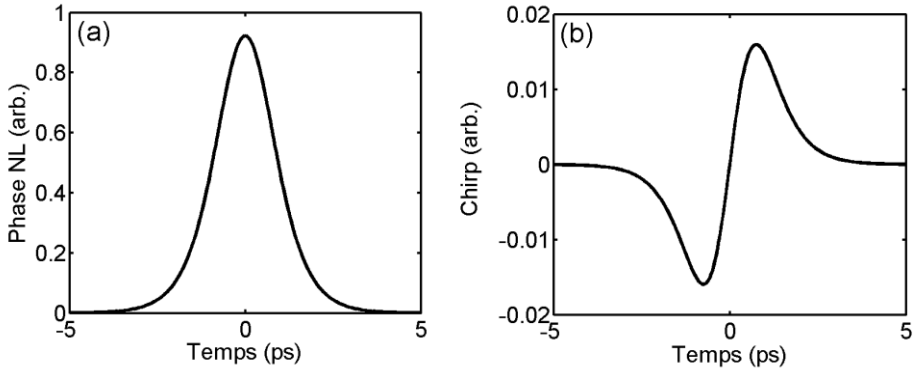


Figure 1-28 : Effet de la SPM sur une impulsion de type gaussienne. (a) Phase non-linéaire induite. (b) Chirp induit.

Le deuxième effet non-linéaire instantané pouvant apparaitre est l'effet ***d'auto-raidissement de l'impulsion, ou "self-steepening"***. Cet effet traduit la dépendance de la vitesse de groupe à l'intensité de l'impulsion et est une autre conséquence de l'effet Kerr. En effet, on peut observer que l'indice va augmenter avec l'intensité. Ceci a pour effet de retarder le sommet de l'impulsion par rapport à son front montant. Cet effet est pris en compte par le terme de "choc optique" de l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée (ou ESNLG, partie 2.1). Il faut cependant signaler qu'il est considérablement amoindri par les effets Raman et de dispersion chromatique.

Effets non-linéaires inélastiques retardés : Il existe une autre catégorie d'effets non-linéaires, qui ont pour origine l'interaction du champ avec les noyaux atomiques ou les molécules elles-mêmes. Il s'agit des diffusions Brillouin et Raman. La diffusion Brillouin, produite par électrostriction [Boyd, 2008], se produit sur une constante de temps d'environ 100 ps et n'agit donc pas sur les impulsions considérées, qui sont généralement inférieures à 5 ps. On ne la considère donc pas dans cette thèse.

En revanche, la ***diffusion Raman*** (partie 1.2), qui a pour origine les vibrations intra-moléculaires, a lieu sur une constante de temps de l'ordre de 100 fs. Elle devient particulièrement importante en régime de dispersion anormale pour des impulsions inférieures à la picoseconde, car dans ce régime de propagation, la diffusion Raman Stokes stimulée peut diminuer de manière significative la fréquence centrale de l'impulsion. Cet effet est l'effet de SSFS évoqué en partie 1.3.1 et est étudié au chapitre 2.

1.3.2.6 Importance relative des effets linéaires et non-linéaires

L'importance relative des effets de dispersion chromatique et non-linéaires est quantifiée par le calcul de leur longueur caractéristique. Ces longueurs permettent de déterminer la longueur de propagation à partir de laquelle un effet en particulier devient important, et ainsi de déterminer si, par exemple, un effet est prépondérant par rapport aux autres. Pour les besoins de cette thèse, on ne définit que deux longueurs caractéristiques :

- La ***longueur de dispersion*** : Elle est définie par $L_D = \frac{T_0^2}{|\beta_2|}$, avec T_0 la largeur de l'impulsion à 1/e du profil d'intensité temporelle.

- La ***longueur non-linéaire*** : Elle est définie par $L_{NL} = \frac{1}{\gamma P_c}$, avec P_C la puissance crête du profil d'intensité temporelle de l'impulsion.

Il est possible de calculer d'autres longueurs caractéristiques, suivant l'effet que l'on cherche à quantifier.

Conclusion du chapitre

Ce chapitre a permis de poser les bases théoriques du travail de thèse. Les deux premières parties ont effectué un tour d'horizon des techniques d'imagerie biologique récentes et a montré la grande richesse des effets physiques exploités. Elle a également mis en valeur la possibilité, pour une source d'impulsions ultraourtes, de permettre plusieurs types d'imageries différentes qui donnent accès à des informations différentes sur l'échantillon analysé. Ce type de source est nommée "source multimodale". Elle a enfin permis d'aboutir à un cahier des charges de la source à développer. Ce cahier des charges est rappelé ici :

- un ***domaine de travail de 700 à 1350 nm*** environ, afin de minimiser l'absorption par l'eau et les échantillons.
- un ***décalage spectral de 3000 cm^{-1}***, soit 260 nm à partir de 800 nm (laser titane:Saphir) ou 480 nm à partir de 1034 nm (laser ytterbium)
- une ***énergie par impulsion de 100 à 150 pJ*** pour les taux de répétition de plusieurs dizaines de mégaHertz.
- une ***DSE supérieure à 2.5 pJ/nm***.

Cette source nécessitant un faisceau facilement accordable en longueur d'onde, la solution retenue est d'utiliser l'auto-décalage en fréquence d'un soliton. Cet effet est l'objet du chapitre suivant.

2 L'effet Raman intra-impulsion : la longueur d'onde à la demande

Outre la microscopie CARS, d'autres domaines comme la spectroscopie [J.W. Walewski, 2004] ou les télécommunications optiques [T. Konishi, 2002] ont bénéficié du décalage Raman d'un soliton (ou SSFS : Soliton Self-Frequency Shift) [J.H. Lee, 2008] et témoignent du grand potentiel pratique de cet effet. Ce chapitre présente les travaux réalisés à son sujet. La première partie introduit les concepts théoriques, avec l'équation de propagation d'une impulsion dans une fibre optique et la description du SSFS. La deuxième partie décrit les tests de fibres effectués afin de trouver une fibre optimale pour l'application visée. La troisième partie traite de la stabilité des impulsions ainsi générées, une problématique d'importance en imagerie biologique et pour les sources laser en général.

2.1 Principe et théorie

La théorie énoncée ici s'appuie principalement sur les livres de Shen *et al.* [Shen, 1984], Agrawal *et al.* [Agrawal, 2007], ainsi que sur l'article de revue de Dudley *et al.* [J.M. Dudley, 2006].

2.1.1 Equation de propagation

Les effets énoncés en partie 1.3 peuvent être pris en compte dans l'***Equation de Schrödinger Non-Linéaire Généralisée (ou ESNLG)***, qui décrit la propagation d'impulsions au sein de guides d'ondes, et plus particulièrement au sein des guides d'ondes cylindriques que sont les fibres optiques. En quelques lignes, cette équation est issue des équations de Maxwell, que l'on applique

pour constituer une équation d'onde dite équation de Helmholtz. En utilisant la méthode de résolution par variables séparées, les caractéristiques du (des) mode(s) de propagation, tels que la constante de propagation β(ω), sont déterminés pour une structure de fibre donnée. Ces caractéristiques sont ensuite utilisées pour traiter l'équation de propagation de l'enveloppe de l'impulsion et aboutir à l'Equation de Schrödinger Non-Linéaire (ou ESNL), généralisée ou non.

Les impulsions employées dans cette thèse sont de type gaussienne ou sécante hyperbolique. Les caractéristiques des profils d'intensité temporels de ces impulsions sont données ci-dessous :

Forme	Gaussienne	Sécante hyp.
I(t)	$P_C \exp^2\left[-\frac{t^2}{2T_C^2}\right]$	$P_C sech^2\left(\frac{t}{T_C}\right)$
$k_1 = T_{LMH}/T_C$	$2\sqrt{\ln(2)} = 1.665$	$2\ln\left(1+\sqrt{2}\right) = 1.763$
$k_2 = E/P_cT_C$	$\sqrt{\pi}$	≈ 2
$\Gamma = T_{LMH}.\nu_{LMH}$	*0.441*	0.315

Tableau 2-1 : Caractéristiques des profils d'intensité temporels des types d'impulsions utilisées dans cette thèse. I(t) : intensité temporelle, T_C : durée caractéristique, T_{LMH} : largeur à mi-hauteur du profil d'intensité temporelle, ν_{LMH} : largeur à mi-hauteur du profil d'intensité spectrale, Pc = puissance crête, E : énergie de l'impulsion.

T_c est demi-largeur à 1/e du profil d'intensité temporel. L'énergie d'une impulsion est estimée par $E = k_1k_2P_CT_C \approx 1.15*P_CT_{LMH}$ [Finot, 2005]. Le produit Γ permet de définir la notion de "limite de Fourier" qui correspond à la largeur temporelle minimale que peut atteindre une impulsion d'une largeur spectrale donnée.

2.1.1.1 Equation de Schrödinger non-linéaire "classique"

L'ESNLG est une extension de l'Equation de Schrödinger Non-Linéaire (ESNL). Cette dernière décrit la propagation d'impulsions picosecondes au sein d'une fibre optique monomode. Bien qu'elle néglige les effets de dispersion d'ordre supérieur et la diffusion Raman, elle est présentée dans un premier temps pour sa simplicité et car elle constitue la base de l'ESNLG. Cette équation est la suivante :

$$\frac{\partial A}{\partial z} + i\frac{\beta_2}{2}\frac{\partial^2 A}{\partial T^2} = i\gamma|A|^2A \qquad (2.1)$$

avec A l'enveloppe complexe temporelle de l'impulsion, z la direction de propagation, T est le temps réduit au repère de l'impulsion, β_2 le coefficient de dispersion de la vitesse de groupe et γ le coefficient de non-linéarité. Ces deux derniers paramètres sont considérés comme constants sur l'intervalle spectral de travail (< 0.5 THz). Le référentiel temporel se déplace à la vitesse de groupe ($T = t-z/v_g$ avec v_g la vitesse de groupe), afin de s'affranchir du terme $\beta_1 = 1/v_g$ (partie 1.3). Le coefficient de non-linéarité permet de prendre en compte l'effet Kerr et donc l'auto-modulation de phase. Cette équation est établie sur la base de certaines approximations, faites principalement sur l'impulsion qui se propage. Ces approximations sont reprises dans l'équation généralisée et sont les suivantes :

- ***La polarisation de l'impulsion reste rectiligne et constante au cours de la propagation.*** Cette approximation fournit de bons résultats en pratique. Elle permet de considérer une approche scalaire de l'équation et non vectorielle.
- ***Enveloppe lentement variable.*** L'impulsion couvre de nombreux cycles optiques. Cette approximation est valide pour des impulsions supérieures à 100 fs dans l'intervalle spectral

d'intérêt (700-1500 nm). Elle amène à considérer l'impulsion comme étant quasi-monochromatique, hypothèse qui est évidemment physiquement fausse mais qui reste mathématiquement valide pour les largeurs spectrales considérées. En effet, cette condition impose $\Delta\nu << \nu_0$. Si on considère une impulsion gaussienne en limite de Fourier de 180 fs et de longueur d'onde centrale 1.03 µm (produite typiquement par l'oscillateur utilisé dans cette thèse), il vient $\Delta\nu/\nu_0 = 8{,}4.10^{-3}$. Cette approximation est donc valide.

- ***Réponse non-linéaire instantanée du matériau :*** Cette approximation revient à négliger les effets inélastiques comme la diffusion Raman. Elle est valide pour les systèmes faiblement non-linéaires, comme les impulsions décrites dans l'hypothèse de monochromaticité. De plus, elle permet d'introduire simplement le concept de soliton utilisé dans ce chapitre. La prise en compte de la diffusion Raman (l'autre effet notoire, la diffusion Brillouin (partie 1.3), étant négligé) est effectuée par la suite.

2.1.1.2 Impulsion indéformable

Au début des années 70, Zakharov et Shabat [V. E. Zakharov, 1972], puis Hasegawa et Tappert [A. Hasegawa, 1973] prédisent la possibilité, au sein d'une fibre, de la propagation sans déformation d'une impulsion. Cette impulsion est appelée ***soliton***, est solution de l'ESNL et a pour expression [J.M. Dudley, 2001] :

$$A(z,T) = \sqrt{P_c}\,\mathrm{sech}\left(\frac{T}{T_c}\right)\exp\left(i\frac{|\beta_2|}{2T_c^2}z\right) \tag{2.2}$$

Elle correspond au régime de propagation pour lequel le chirp linéaire induit par la dispersion compense en permanence le chirp non-linéaire induit par la SPM. Cette compensation impose un régime de dispersion anormale (partie 1.3). L'aspect indéformable suppose une invariance des paramètres β_2 et Y. Il a de plus été démontré que la structure soliton est très résistante aux perturbations et qu'elle se préserve lors d'une variation de ces termes, sa largeur temporelle et sa puissance crête s'adaptant aux nouvelles conditions [A. Hasegawa, 1973].

La première démonstration expérimentale a lieu en 1980 par Mollenauer *et al.* [L.F. Mollenauer, 1980]. Ce type d'impulsion est important pour la suite car il constitue la brique de base du SSFS.

Peu après la prédiction théorique de cette solution, Satsuma et Yajima [J. Satsuma, 1974] démontrent l'existence possible de solitons d'ordre supérieur, eux aussi solutions de l'ENSL. Il est alors possible de calculer l'ordre N de ces solitons (dont l'entier naturel le plus proche correspond au nombre de solitons fondamentaux pouvant être générés suite à leur fission) à l'aide de la relation

$$N^2 = \frac{\gamma P_c T_c^2}{|\beta_2|} \tag{2.3}$$

Il a été montré qu'en l'absence de pertes et de bruit, un soliton d'ordre supérieur se propageait en évoluant temporellement et spectralement de manière cyclique. Cependant, les approximations de l'ESNL ne permettent pas de prédire si un soliton (fondamental ou d'ordre supérieur) est immun aux autres effets, comme l'effet Raman, pouvant intervenir lors de la propagation.

On atteint donc les limites de l'ESNL, dont une partie des approximations ne sont plus valides pour décrire la propagation d'impulsions de durées inférieures à la picoseconde. En effet, ces

impulsions possèdent un spectre plus large et certains effets non-linéaires ou dispersifs ne peuvent plus être négligés ou considérés comme indépendants de la fréquence optique. C'est notamment le cas de la diffusion Raman, qui, pour une impulsion courte, peut induire une diminution non négligeable de sa fréquence optique centrale, la structure soliton de l'impulsion étant préservée. Ce processus correspond au SSFS. La prise en compte de ces effets aboutit à l'ESNLG, présentée ci-dessous.

2.1.1.3 Equation de Schrödinger non-linéaire généralisée

Les effets négligés dans le cas d'une impulsion picoseconde sont ainsi pris en compte dans l'équation généralisée :

$$\frac{\partial A}{\partial z}+\frac{\alpha}{2}A-\sum_{m\geq 2}^{+\infty}\frac{i^{m+1}}{m!}\left(\frac{\partial^m\beta}{\partial\omega^m}\right)\frac{\partial^m}{\partial T^m}A = i\gamma\left(1+i\tau_{shock}\frac{\partial}{\partial T}\right)\times A\left[(1-f_R)|A|^2+f_R\int_{-\infty}^{+\infty}h_R(\tau_1)|A(T-\tau_1)|^2d\tau_1\right] \quad (2.4)$$

On retrouve l'équation non généralisée à laquelle on a intégré les termes suivants :

- le terme de pertes linéaires (α) de la fibre. Ces pertes, négligeables dans le cas de fibres standards à saut d'indice, demeurent importantes au sein des fibres microstructurées utilisées dans ce chapitre (voir également la partie 1.3).
- les termes de ***dispersion d'ordres supérieurs à 2***, qui prennent en compte la variation de la dispersion pour les spectres larges. Il est important de les inclure dès lors que la longueur d'onde centrale de l'impulsion se rapproche de la longueur d'onde de dispersion nulle, ou pour les élargissements spectraux très forts (> 100 THz) typiques des *supercontinua* [J.M. Dudley, 2006].
- un terme de "***choc optique***" ($i\tau_{shock}\frac{\partial}{\partial T}$), aussi appelé "dispersion en fréquence de la non-linéarité", avec $\tau_{shock}=\tau_0-\left\{\frac{\partial}{\partial\omega}\left[\ln\left(A_{eff}\right)\right]\right\}_{\omega=\omega_0}$. Ce terme prend en compte la dépendance en fréquence de la non-linéarité qui contient la dépendance de l'aire effective A_{eff}. Cette dernière devient importante pour des décalages supérieurs à 100 THz, qui ont lieu dans les fibres étudiées (les impulsions utilisées peuvent se décaler sur 150 THz environ, soit un déplacement de 500 nm à partir de 1000 nm). Ce terme peut également inclure la dépendance de l'indice Kerr (n_2) à la fréquence optique.
- un terme de ***réponse Raman*** $\int_{-\infty}^{+\infty}h_R(\tau_1)|A(T-\tau_1)|^2d\tau_1$. Ce terme est étudié par la suite.

Cette équation est établie de la même manière que dans le cadre de l'équation non généralisée. Cependant, dans un premier temps, on intègre la réponse Raman de la silice dans l'expression de $\chi^{(3)}$

$$\chi^{(3)}(t-t_1,t-t_2,t-t_3)=\chi^{(3)}R(t-t_1)\delta(t-t_2)\delta(t-t_3) \quad (2.5)$$

au travers de la réponse matériau

$$R(t)=(1-f_R)\delta(t-t_e)+f_Rh_R(t) \quad (2.6)$$

avec f_R la fraction de contribution de l'effet Raman à la réponse du matériau (18 % pour la silice amorphe, dont le spectre Raman spontané est donné en Figure 2-1 (a) par la courbe en trait plein

noir), t_e le temps de réponse du nuage électronique (typiquement < 1 fs) et $h_R(t)$ la réponse Raman temporelle. Cette réponse n'est pas calculée directement, du fait de la nature amorphe du verre de silice, et est obtenue à partir du spectre Raman spontané selon [R.H. Stolen, 1984, R.H. Stolen, 1989]:

$$g_R(\Delta\omega) = \frac{\omega_0}{cn(\omega_0)} f_R \chi^{(3)}_{xxxx} Im[h_R(\Delta\omega)] \tag{2.15}$$

où Δω est le décalage en fréquence Stokes. La partie réelle de $h_R(\Delta\omega)$ est obtenue à partir des relations de Kramers-Kronig et une transformée de Fourier inverse permet de retrouver la fonction réponse $h_R(t)$. Cette fonction est donnée par la courbe en trait plein, Figure 2-1 (b). Elle est modélisée, dans les simulations numériques, par la relation suivante [Q. Lin, 2006] :

$$h_R(t) = (f_a + f_c)\frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2^2} \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) \sin\left(\frac{t}{\tau_1}\right) + f_b \frac{2\tau_3 - t}{\tau_3^2} \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) \tag{2.16}$$

avec [τ_1 = 12.2 fs, τ_2 = 32 fs et τ_3 = 96 fs] et [f_a = 0.75, f_b = 0.21 et f_c = 0.04]. Cette relation aboutit à la courbe en tirets, en Figure 2-1 (b). La partie imaginaire de la transformée de Fourier de cette réponse permet d'aboutir au spectre Raman modélisé et représenté en tirets sur la Figure 2-1 (a). Le second terme de cette relation prend en compte le pic de bosons qui ne l'était pas dans la première modélisation [R.H. Stolen, 1989]. Il permet de mieux modéliser l'importance des résonances inférieures à 150 cm^{-1}, qui sont les résonances maximales donnant lieu à une diffusion Raman stimulée pour les impulsions considérées.

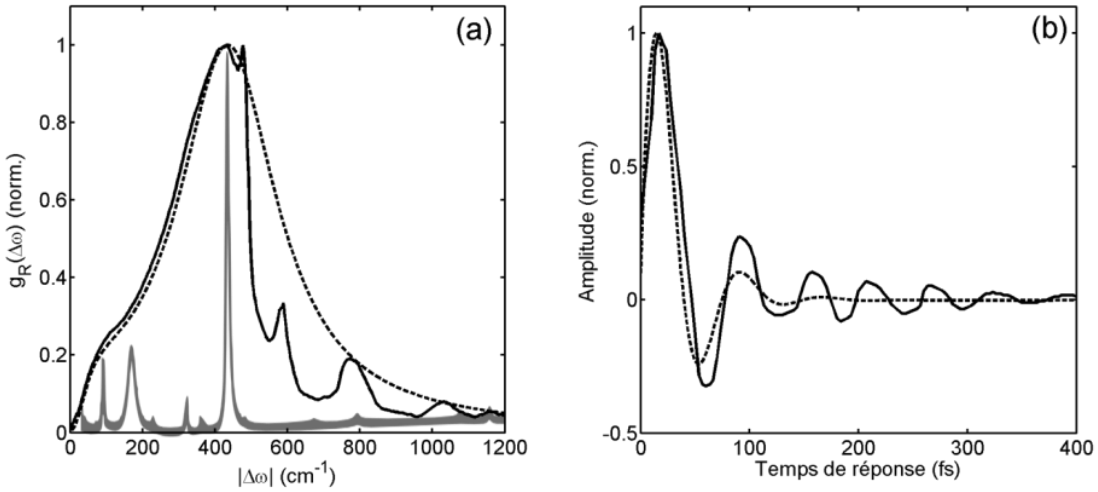


Figure 2-1: (a) Comparaison des spectres Raman du quartz-α (cristal, gris) et de la silice amorphe (spectre mesuré : trait plein, issu de la réponse temporelle analytique : tirets noirs). (b) Réponse Raman temporelle de la silice extraite du spectre Raman spontané (trait plein) et formulation analytique (tirets noirs).

La polarisation de l'impulsion est toujours considérée comme étant rectiligne et fixe, pour conserver une approche scalaire de la propagation. Il a été également vérifié tant au niveau théorique [T. Brabec, 1997, Gaeta, 2002] qu'expérimental [N. Karasawa, 2001] que l'hypothèse d'enveloppe lentement variable et l'équation 2.4 restent valides pour des impulsions de quelques cycles optiques, et plus généralement pour des élargissements spectraux très importants ($\Delta\nu \approx \nu_0$).

2.1.1.4 Résolution numérique

Une résolution analytique est bien souvent impossible. Il faut donc passer par une intégration numérique. La méthode utilisée est la méthode de Fourier par pas divisés. Elle consiste à considérer l'ESNLG sous la forme suivante :

$$\frac{\partial A}{\partial z} = (\widehat{D} + \widehat{N})A \tag{2.7}$$

avec les opérateurs suivants :

- un opérateur de dispersion, prenant en compte la dispersion et les gains/pertes :

$$\widehat{D} = -i\frac{\beta_2}{2}\frac{\partial^2 A}{\partial T^2} + \frac{\beta_3}{6}\frac{\partial^3 A}{\partial T^3} - \frac{\alpha}{2} \tag{2.8}$$

- un opérateur non-linéaire, prenant en compte les effets non-linéaires (effet Kerr, choc optique, réponse Raman...) :

$$\widehat{N} = i\gamma(1 + i\tau_{shock}\frac{\partial}{\partial T}) \times \left[(1 - f_R)|A|^2 + f_R \int_{-\infty}^{+\infty} h_R(\tau_1)|A(T - \tau_1)|^2 d\tau_1\right] \tag{2.9}$$

La résolution de cette équation repose sur l'approximation selon laquelle sur une faible longueur *dz* de propagation, les effets dispersifs et non-linéaires peuvent être découplés et appliqués successivement sur l'impulsion. Ainsi, on divise la longueur de la fibre en pas élémentaires, et pour chaque pas de propagation, on effectue le traitement suivant :

1. passage dans le domaine fréquentiel
2. application de l'opérateur de dispersion, selon

$$A(z + h, \omega) = \exp(dz\widehat{D})A(z, \omega) \tag{2.10}$$

3. retour dans le domaine temporel
4. application de l'opérateur non-linéaire, selon

$$A(z + h, T) = \exp(dz\widehat{N})A(z, T) \tag{2.11}$$

L'application de l'opérateur non-linéaire dans le domaine temporel se fait par méthode de Runge-Kutta. Au préalable, l'intégration de la réponse Raman $h_R(t)$ sur le profil d'intensité est effectuée dans le domaine des fréquences, espace dans lequel le produit de convolution se réduit à un simple produit.

Le code utilisé pour les simulations numériques est un code développé dans l'équipe et qui inclut tous les termes présentés dans l'ESNLG. Les différences entre l'expérience et les simulations seront généralement dues à une connaissance imparfaite de certains paramètres de fibre, comme le profil de dispersion ou de pertes. De ce fait, ces simulations ne sont ici utilisées que pour prédire un comportement général et non dans un but de modélisation précise ou de reproduction quantitative de l'expérience.

2.1.2 L'effet Raman intra-impulsion

2.1.2.1 Introduction de cet effet

Le SSFS a été prédit dès 1983 [V.A. Vysloukh, 1983], démontré expérimentalement de manière indépendante en 1985 [E.M. Dianov, 1985] et 1986 [F. M. Mitschke, 1986] et formulé de manière théorique la même année [Gordon, 1986]. Il est compris comme étant une ***diffusion Raman Stokes stimulée des composantes de haute fréquence de l'impulsion vers les composantes de basse fréquence.*** Cette diffusion Raman stimulée amène ainsi un « glissement » de fréquence optique centrale de l'impulsion vers les basses fréquences. *Appliqué à un soliton, on parle d'auto-décalage Raman d'un soliton, ou de SSFS (Soliton Self-Frequency Shift).* ***Si ce soliton est un soliton fondamental, sa struture se conserve même en présence de cette variation de fréquence optique et en présence des possibles variations de dispersion et de non-linéarité. Cette conservation permet ainsi la production de solitons stables et réglables en fréquence optique.***

Pour que cet effet soit efficace, il est nécessaire que la largeur du spectre de l'impulsion soit de l'ordre de celle du spectre Raman de la silice, soit typiquement supérieure à 1 THz, pour générer un effet Raman efficace. Il est ainsi souvent décrit comme devenant important pour les impulsions inférieures à 1 ps. Cependant il peut également être observé pour des impulsions beaucoup plus longues. En effet, la démonstration de 1985 utilisait des impulsions de 30 ps qui, après une étape d'élargissement spectral par SPM, possédaient un spectre suffisamment large (2 THz) pour induire cet effet. De même, les bandes d'instabilité de modulation créées par des impulsions de 100 ps ont pu mener à la fission de ces impulsions en un train d'impulsions courtes (60 fs), impulsions possédant la largeur spectrale nécessaire à la formation de solitons Raman [Gouveia-Neto, 1992].

Note sur la structure amorphe d'un matériau : Il est important de noter que ce « glissement progressif » est rendu possible grâce à la nature amorphe de la silice composant les fibres utilisées. En effet les atomes voisins d'une molécule interagissent avec elle et modifient ses niveaux d'énergie électroniques et vibrationnels. Dans le cas de la silice, les molécules voisines sont réparties de manière aléatoire (définition d'un matériau amorphe : absence d'ordre à grande distance) et modifient donc ces niveaux d'énergie de manière aléatoire. Les "pics" du spectre Raman, correspondant à des niveaux d'énergie précis, s'élargissent alors en un continuum. Ce continuum permet d'obtenir une probabilité non nulle de diffusion stimulée pour toutes les fréquences de l'impulsion. Cette propriété est clairement visible Figure 2-1 (a) en comparant les spectres Raman de la silice amorphe (trait plein noir) [R.H. Stolen, 1989] à celui du quartz-α (trait plein gris) [K.J. Kingma, **1994**], qui est un cristal de silice possédant un ordre à grande distance. A titre d'illustration, un SSFS peut avoir difficilement lieu dans un guide d'onde de silicium cristallin, dont le spectre Raman ne comporte que quelques résonances très fines (largeur d'environ 100 GHz, à comparer aux ≈ 8 THz du pic général de la silice amorphe [Q. Lin, 2007]). Le SSFS peut enfin se produire au sein d'autres matériaux amorphes sujets à la diffusion Raman. On peut citer en exemple les verres de chalcogénures [A.C. Judge, 2010] ou de tellures [G.S. Qin, 2011].

Caratéristiques de cet effet : Une illustration est donnée par une simulation Figure 2-2, qui représente le décalage subi par une partie d'une impulsion de 190 fs et de 1000 W crête injectée dans une fibre microstructurée (Υ = 80 $W^{-1}.km^{-1}$, profil de dispersion fourni en Figure 2-2 (c)).

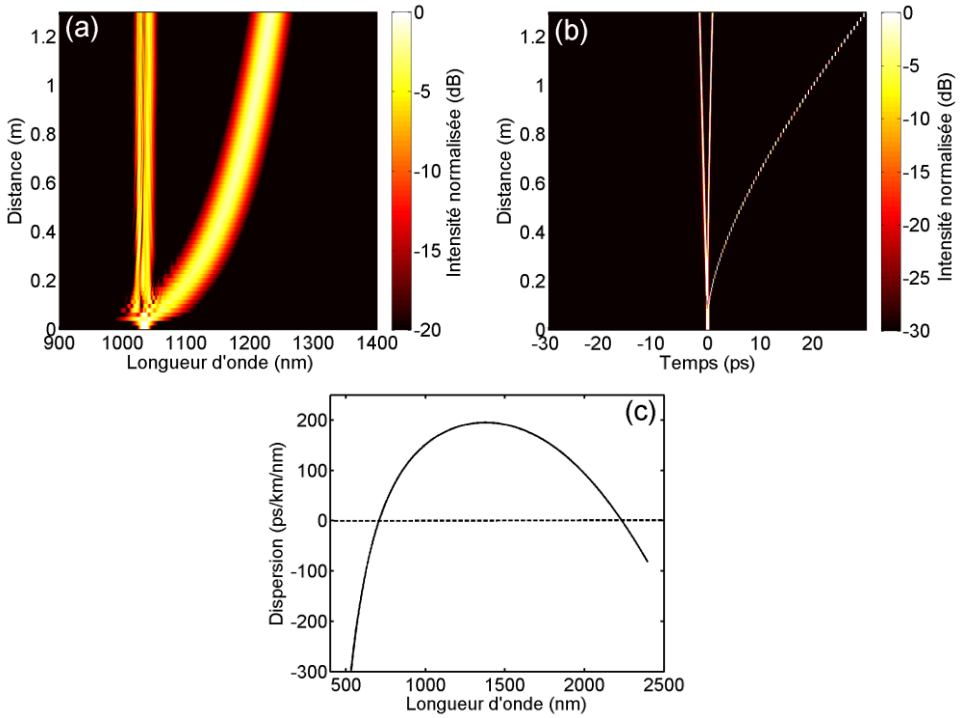


Figure 2-2: Simulation de propagation d'une impulsion soumise au SSFS. (a) Evolution longitudinale du spectre. (b) Evolution longitudinale du profil d'intensité temporelle. (c) Courbe de dispersion utilisée lors de la simulation.

La propagation de l'impulsion suit le scénario suivant :

1. Durant les premiers centimètres de propagation (les 5 premiers centimètres dans le cas présent), les effets non-linéaires dominent et l'impulsion subit un élargissement spectral par SPM accompagné d'une compression temporelle.
2. Au point d'élargissement spectral maximal (approximativement donné par $z = L_D/N$, avec L_D la longueur de dispersion donnée en fin de chapitre 1 et N par la relation 2.3), certains effets comme la dispersion d'ordre 3 ou l'effet Raman stimulé agissent comme source d'instabilité pour l'impulsion et la font se briser en *n* impulsions courtes, qui sont des solitons, *n* étant l'arrondi de l'ordre du soliton N (relation 2.3, N = 3.4 dans le cas présent) à l'entier naturel le plus proche [K. Tai, 1988]. Les durées et puissances crêtes sont données par les relations suivantes [Y. Kodama, 1987] :

$$T_k = \frac{T_0}{2N+1-2k}, \qquad P_k = \frac{(2N+1-2k)^2}{N^2} P_0 \tag{2.12}$$

3. Ces solitons sont générés un à un. Ils possèdent des durées courtes (environ 50 à 100 fs), donc un spectre large, pour lequel la diffusion Raman stimulée sera importante. La vitesse de décalage de la fréquence optique moyenne $\bar{\omega}$ de ces solitons est donnée par [Gordon, 1986]

$$\frac{\partial \bar{\omega}}{\partial z} = -\frac{8T_R \gamma P_0}{15T_0^2} z = -\frac{8T_R |\beta_2|}{15T_0^4} z \tag{2.13}$$

avec T_R le temps de réponse Raman de la silice amorphe. La relation 2.13 permet de constater qu'à longueur de fibre déterminée, le soliton possédant la durée la plus faible et la puissance pic la plus grande subira le décalage le plus important. Ce soliton étant le premier soliton généré lors de la fission de l'impulsion initiale, cette relation concorde avec le comportement observé en Figure 2-2.

La relation 2.13 n'est valide que pour les impulsions supérieures à 100 fs mais est présentée pour sa simplicité d'interprétation. Elle montre que le décalage est rapide pour des impulsions courtes (spectre large, donc effet stimulé important), des puissances pics importantes (effet Raman proportionnel à la puissance) et une non-linéarité importante (guide possédant une réponse Raman "forte"). Le régime de dispersion étant le régime anormal, les solitons décalés seront retardés temporellement par rapport au résidu de l'impulsion initiale non-décalé. Cet effet est clairement visible sur la Figure 2-2 (b).

A partir des équations de Gordon [Gordon, 1986], de nombreux efforts ont aussi porté sur la validité de cette relation et sur son extension aux impulsions plus courtes [J. Herrmann, 1994, A.C. Judge, 2009, Vanvincq, 2011], et dont les propriétés varient lors de la propagation. Ces travaux ont mené à la relation suivante [R. Pant, 2010] qui exprime ce décalage, pour le premier soliton, en fonction de son énergie $E_1(\omega_p) \approx 4\sqrt{\frac{P_0|\beta_2(\omega_p)|}{\gamma(\omega_p)}}$:

$$\frac{\partial \bar{\omega}}{\partial z} = -\frac{\gamma^3(\bar{\omega})E_1^3(\bar{\omega})}{8|\beta_2(\bar{\omega})|^2}R\big(T_1(\bar{\omega})\big) = -8\frac{\gamma^3(\bar{\omega})\overline{\omega^3}}{|\beta_2(\bar{\omega})|^2\omega_p^3}\sqrt{\frac{P_0^3\big|\beta_2(\omega_p)\big|^3}{\gamma^3(\omega_p)}}R\big(T_1(\bar{\omega})\big), \qquad (2.14)$$

avec $\bar{\omega}$ la fréquence centrale des solitons, ω_p la fréquence initiale, T_1 et E_1 les durée caractéristique et énergie du premier soliton décalé et R une fonction de convolution du spectre Raman spontané de la silice avec celui de l'impulsion. Cette relation peremt de distinguer le recouvrement du spectre Raman spontané par celui de l'impulsion ($R\big(T_1(\bar{\omega})\big)$) et la traduction de la conservation du nombre de photons $E_1(\bar{\omega})/\overline{\omega^3} = E_1(\omega_p)/\omega_p^3$. Ces relations fournissent des lignes directrices pour déterminer les propriétés optimales d'une fibre en termes d'énergie de soliton et de vitesse de décalage. Elles présentent également l'avantage d'un temps de calcul nettement moins long que celui nécessaire à la résolution de la GNLSE. De plus, leur accord avec cette dernière a été prouvé. Cependant, dans le cadre de cette thèse, la GNLSE est le seul outil utilisé car elle permet d'étudier toute la dynamique du signal généré et pas seulement celle des impulsions décalées.

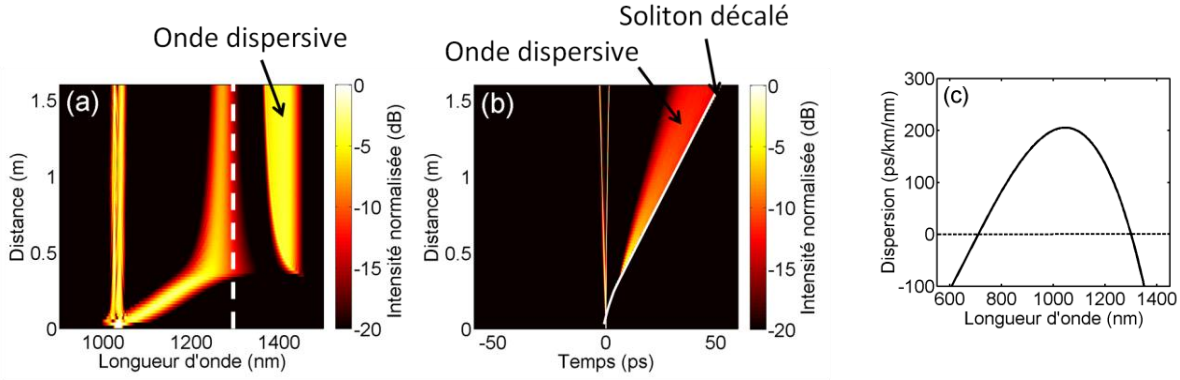


Figure 2-3 : Illustration du phénomène d'onde dispersive par la simulation de propagation d'une impulsion soumise au SSFS dont le soliton décalé atteint une longueur d'onde de dispersion nulle. (a) Evolution longitudinale du spectre. (b) Evolution longitudinale du profil temporel d'intensité. (c) Courbe de dispersion utilisée lors de la simulation.

Le SSFS peut enfin être stoppé à l'approche d'une longueur d'onde de dispersion nulle par la génération d'ondes dispersives (voir la partie 2.2.3) [D. V. Skryabin, 2003]. En effet, dans ce cas, un accord de phase s'effectue entre les fréquences du soliton et des fréquences se situant dans la zone de dispersion normale. Le soliton décalé transfert ainsi son énergie vers ces fréquences. Ce tranfert

aboutit à une baisse de sa puissance, et selon la relation 2.13, à un ralentissement voire à un arrêt du décalage. Une illustration de ce phénomène est donnée en Figure 2-3 (a) et (b), au travers d'une simulation de la propagation d'une impulsion de 180 fs dans un mètre de fibre microstructurée ($\Upsilon = 80\ W^{-1}.km^{-1}$) dont le profil de dispersion, fourni en Figure 2-3 (c), présente une seconde longueur d'onde de dispersion nulle vers 1300 nm.

On constate clairement l'apparition d'ondes dispersives vers 1400 nm à partir de 40 cm de propagation. Ces ondes sont également visibles sur l'évolution du profil temporel (Figure 2-3 (b)), en avance du soliton décalé (repéré par la ligne blanche). On constate également un recul de la longueur d'onde du soliton décalé, qui permet de satisfaire la conservation de la quantité de mouvement [N. Akhmediev, 1995]. Bien que cet effet soit « utilisé » afin de stopper le SSFS ou de mesurer la longueur d'onde de dispersion nulle (repérée par les tirets sur la Figure 2-3 (a)) [B. Kibler, 2008], il est néfaste dans le cadre de ce travail de thèse et on recherchera donc des fibres possédant une dispersion anormale sur un intervalle spectral large.

2.1.3 Démonstrations

De nombreuses démonstrations pour différentes longueurs d'onde initiales et différents décalages dans différents types de fibres et de guides ont suivi la démonstration initiale. On ne se concentrera ici que sur le SSFS effectué au sein de fibres optiques, et légèrement au sein de guides d'onde planaires. Cet état des lieux s'appuie sur un article de revue [J.H. Lee, 2008] qui est complété par une bibliographie relative à d'autres matériaux que la silice amorphe.

On souligne que les possibilités offertes par le SSFS ont évidemment été sujettes à applications, qui sont nombreuses et variées. Parmi elles, on peut évidemment citer la biophotonique avec son utilisation pour la génération d'impulsion Stokes pour l'imagerie CARS [E.R. Andresen, 2006] ou comme source large-bande pour l'OCT [K. Sumimura, 2008]. On peut également citer la spectroscopie d'absorption [J.W. Walewski, 2004]. Le domaine des télécommunications peut également en bénéficier avec différentes démonstrations de convertisseurs analogique/digital [T. Konishi, 2002], de démultiplexage [H. Hatami-Hanza, 1997], ou encore de ligne à retard [S. Oda, 2006].

Fibres à base de verre de silice : Dianov *et al.* [E.M. Dianov, 1985] ont été les premiers à démontrer expérimentalement ce processus de décalage d'impulsions en longueur d'onde. Cette démonstration utilisait des impulsions de 30 ps à 1540 nm se propageant dans 250 m de fibre monomode. La faible puissance crête (900 W) nécessitait une longueur de fibre importante. Peu après, Mitschke *et al.* ont effectué le même type de démonstration [F. M. Mitschke, 1986]. L'emploi d'impulsions de durée inférieure à la picoseconde (560 fs), donc de puissance crête et de largeur spectrale plus importantes, a permis l'observation claire (dans le domaine spectral) d'impulsions décalées. Par la suite, d'autres démonstrations de ce type ont été effectuées, comme un décalage de 1550 à 1750 nm dans une fibre à maintien de polarisation [Y. Matsuo, 2000]. L'amplitude du décalage (à longueur de fibre fixe) augmentant avec la non-linéarité, des fibres hautement non-linéaires ont été utilisées, à l'image de Chestnut *et al.*, [D. A. Chestnut, 2003] qui ont réalisé un décalage de 1.56 à 1.72 µm dans 580 m de fibre hautement non-linéaire (ou HNLF, highly nonLinear fiber). Dans cette

démonstration, l'emploi d'impulsions de 400 fs permet un décalage clairement observable pour des puissances crêtes faibles (quelques Watts), typiques des télécommunications optiques.

La mise au point des ***fibres microstructurées*** à la fin des années 90 a permis une nouvelle augmentation de la non-linéarité, tout en abaissant la longueur d'onde de dispersion nulle [Russel, **2006**]. Cette baisse a permis la génération de solitons décalés à partir de longueurs d'onde plus faibles, issues par exemple de lasers titane:saphir [B.R. Washburn, 2001, I.G. Cormack, 2002]. Pour de telles fibres, le contrôle des pertes par absorption des ions OH^- vers 1400 nm a permis des décalages records de 650 nm à partir de 1050 nm [J. Takayanagi, 2006] et de 900 nm à partir de 800 nm [A. S. Dekker, 2011]. Cormack *et al.* montrent également que ce décalage peut être contrôlé par le chirp initial de l'impulsion (imposant une étape initiale de compensation de ce chirp par la dispersion de la fibre qui retarde la génération d'un soliton décalé), ce qui est également montré par Efimov *et al.* [A. Efimov, 2004]. Cormack *et al.* démontrent un SSFS pour un mode d'ordre supérieur (identifié par le faible taux de couplage (15 %) et par la structure annulaire du mode de sortie). La grande valeur de dispersion de ce mode permet d'obtenir des solitons très énergétiques (400 pJ). Kibler *et al.* [B. Kibler, 2008] démontrent également un décalage de 310 nm dans une fibre à cœur suspendu dont le diamètre est de 0.96 µm, qui aboutit ainsi à un confinement encore plus important du champ. Cependant, ces fibres étant à cœur solide, leur dispersion possédaient également une longueur d'onde de dispersion nulle dans le proche infra-rouge. Cette propriété a amené Skryabin *et al.* à observer des ondes dispersives [D. V. Skryabin, 2003]. Il faut de plus noter que la faible aire effective de ces fibres (≈ 5 µm², c'est à dire environ dix fois moins que les fibres classiques) limite l'énergie des impulsions à quelques centaines de picojoules. A l'inverse, les fibres microstructurées à cœur creux possèdent des indices non-linéaires proches de celui de l'air (≈ 2.10^{-3} $W^{-1}.km^{-1}$), à aire effective constante, et nécessitent des énergies importantes afin de générer des décalages spectraux significatifs [D.G. Ouzounov, 2003, A. A. Ivanov, 2006]. Les fibres microstructurées à mode d'ordre supérieur ("HOM" : Higher Order Mode) [J. van Howe, 2007], ou également à grande aire modale [A.B. Fedotov, 2009a, K. Wang, 2011b], proposent des alternatives intéressantes avec des impulsions d'énergies de l'ordre du nanojoule (1 à 45 nJ) sur des décalages spectraux d'environ 500 nm. Cette voie de l'augmentation de l'aire effective a également été utilisée au sein de fibres microstructurées à bande interdite photonique et à cœur solide (SC-PBGF : Solid-Core Photonic BandGap Fibers) pour générer des solitons énergétiques (≈ 2 nJ) sur un décalage spectral d'environ 300 nm [Vanvincq, 2010]. Cette démonstration souffre cependant d'un besoin en énergie important qui se traduit par un taux de répétition faible (1 kHz).

L'intérêt des ***fibres étirées*** (ou "tapers") a aussi été démontré avec des décalages dans des tapers de SMF [S.M. Kobtsev, 2004] ou même de PCF [X. Liu, 2001], dont les énergies obtenues (1 nJ) sont intéressantes. Ce type de fibre est cependant limité par sa seconde longueur d'onde de dispersion nulle dont la valeur diminue avec le diamètre du taper qui doit alors être optimisé pour une gamme d'énergies incidentes [A.C. Judge, 2009].

Il faut enfin souligner que d'autres matériaux en conjonction avec la silice ont été mis à profit dans la création de supercontinua en dispersion anormale en général et *a fortiori* de SSFS. En effet, Barviau *et al.* ont démontré l'intérêt d'un dopage du cœur accru en germanium pour le décalage Raman [B. Barviau, 2011]. De plus, Bétourné *et al.* ont étudié l'arrêt de l'élargissement de supercontinua par la bande interdite photonique de fibres SC-PBGF possédant des inclusions de germanium dans la gaine [A. Bétourné, 2009]. Cet élargissement était dû en premier lieu à de l'instabilité de modulation (mélange à quatre ondes généré par les fluctuations d'amplitude) couplée

à un mélange à quatre ondes consécutif et en second lieu au SSFS de solitons créés par la brisure de l'impulsion initiale.

Les démonstrations les plus significatives sont résumées dans le Tableau 2-2. Si on reprend le cahier des charges présent en conclusion du chapitre 1, on remarque que les ***SC-PCF sont les seules fibres répondant à ce cahier de manière quasi systématique***. Il semble donc intéressant d'orienter les choix de fibres vers ce type de fibre en particulier.

Autres matériaux : Les autres matériaux étudiés le sont en général pour leur susceptibilité d'ordre 3, nettement plus élevée que celle de la silice, qui permet de générer des effets non-linéaires plus importants. Cependant, une dispersion anormale est également nécessaire, ce qui impose des contraintes supplémentaires dans le cas de ces matériaux, qui possèdent en général des longueurs d'onde de dispersion nulle de plusieurs µm. Le décalage Raman de solitons a ainsi été démontré pour des verres de bismuth de 1550 à 1650 nm [H. Ebendorff-Heidepriem, 2004]. Il l'a également été pour des verres de chalcogénure (As_2Se_3) dans des tapers, de 1550 à 1650 nm [D.-I. Yeom, 2008] et de 2100 à 2750 nm [A.M. Al-Kadry, 2012]. Des verres de tellure (exemple : TeO_2-Bi_2O_3-ZnO-Na_2O, ou TBZN [X. Yan, 2011]) ont été utilisés sous forme de fibre à coeur suspendu, pour démontrer un décalage de 1550 à 2130 nm [G.S. Qin, 2011].

Le spectre Raman de verres de fluor et métaux lourds (ZrF4-BaF2-LaF3-AlF3-NaF, ou ZBLAN) [X. Yan, 2012] ont également été mesurés et des simulations de décalage Raman de solitons ont été effectuées. Ces résultats laissent présager un développement intéressant de décalages Raman à leurs longueurs d'onde de travail (c'est à dire supérieures à 1550 nm). Il faut cependant noter que ces matériaux ne sont pas pertinents dans le cadre de cette thèse, car il est difficile d'abaisser leur longueur d'onde de dispersion nulle en dessous de 1500 nm.

Fibre	λ_i *(µm)*	*Δλ (nm)*	*Δt (fs)*	*E (pJ)*	*DSE (pJ/nm)*	*Référence*
SMF	1.54	Qqes nm	200	-	-	[E.M. Dianov, 1985]
SMF-PM	1.5	100-150	120	-	-	[F. M. Mitschke, 1986]
SMF-PM	1.56	200	250	≈ 70	5.4	[Y. Matsuo, 2000]
HNLF-DS	1.56	160	110	15	0.39	[D. A. Chestnut, 2003]
SC-PCF	0.85	200	≈ 55	60	1.5	[B.R. Washburn, 2001]
SC-PCF	0.81	450	40	≈ 400	12	[I.G. Cormack, 2002]
SC-PCF	1.05	650	≈ 120	120	6.7	[J. Takayanagi, 2006]
SC-PCF	0.8	900	-	200	8	[A. S. Dekker, 2011]
HC-PCF	1.47	55	115	$5.8.10^5$	38600	[D.G. Ouzounov, 2003]
HC-PCF	0.62	≈ 20	120	$1.3.10^5$	28600	[A. A. Ivanov, 2006]
HOMF	1	200	50	800	50.6	[J. van Howe, 2007]
LMA-PCF	1.3	500	35	2900	17.4	[A.B. Fedotov, 2009a]
LMA-PCF	1.58	550	80	35000	1060	[K. Wang, 2011b]
TF-SMF	0.8	320	≈30	125	2.7	[S.M. Kobtsev, 2004]
TF-PCF	1.3	350	85	1	0.017	[X. Liu, 2001]

Tableau 2-2: Récapitulatif des décalages Raman cités. SMF : fibre monomode (fibre classique des télécommunications optiques), SMF-PM : fibre monomode à maintien de polarisation (PM), HNLF-DS : fibre hautement non-linéaire (HNLF) à dispersion décalée (DS), SC-PCF : fibre microstructurée (PCF) à coeur solide (SC), HC-PCF : fibre microstructurée à coeur creux (HC), HOMF : fibre à mode supérieur (Higher Order Mode Fiber), LMA-PCF : fibre microstructurée à grande aire modale (LMA : Large Mode Area), TF : fibre étirée (dite « taper » en anglais »).

Autres guides d'onde : Le décalage Raman d'un soliton nécessite, idéalement, une impulsion spectralement large dans un milieu possédant une réponse non-linéaire suffisante pour maintenir la structure de ce soliton et générer un effet Raman suffisant. Ces conditions se retrouvent dans d'autres guides d'ondes que les fibres. On peut ainsi citer la démonstration récente de Colman *et al.* [P. Colman, 2012] dans des guides à cristaux photoniques et également les travaux théoriques de Judge *et al.* [A.C. Judge, 2010] sur la conception de guide planaire en chalcogénures et de Xiang *et al.* [Y. Xiang, 2011] sur un possible SSFS dans les métamatériaux.

La grande richesse des propriétés des fibres optiques permet donc de générer un SSFS très diversifié, en termes de gamme spectrale et d'énergie d'impulsion. Cet effet possède de bonnes chances de franchir un pas supplémentaire avec le développement de nouvelles fibres (nouveaux matériaux, fibres hybrides ou encore fibres à étirement contrôlé, voir notamment la partie 1.3). En accord avec le chapitre 1, il faut maintenant déterminer les paramètres de fibres générant un SSFS optimal (c'est à dire générant des impulsions énergétiques sur un grand intervalle spectral). La partie suivante détermine ces paramètres et présente les résultats expérimentaux.

2.2 Test de différentes fibres

2.2.1 Considérations qualitatives préalables

On rappelle ici le cahier des charges établi au chapitre 1 :

- un ***domaine de travail de 700 à 1350 nm***
- un ***décalage spectral de 3000 cm^{-1}***, soit 260 nm à partir de 800 nm (laser titane:Saphir) ou 480 nm à partir de 1034 nm (laser Ytterbium)
- une ***DSE supérieure à 2.5 pJ/nm***.

Le soliton qui se décale est un soliton fondamental, issu de la fission d'un soliton d'ordre supérieur. En posant donc N = 1 et en supposant des solitons en limite de Fourier, on exprime la densité spectrale d'énergie (ou DSE), en pJ/nm, comme

$$DSE = \frac{E_{impulsion}}{\Delta\lambda_{LMH}} = \frac{k_1 k_2}{\Gamma}\frac{c}{\lambda^2}\frac{|\beta_2|}{\gamma} = \frac{k_1 k_2}{2\pi\Gamma}\frac{D}{\gamma} \tag{2.17}$$

avec $\Delta\lambda_{LMH}$ la largeur spectrale à mi-hauteur de l'impulsion, k_1, k_2 et Γ les constantes citées au Tableau 2-1, c la vitesse de la lumière, λ la longueur d'onde centrale de l'impulsion, $|\beta_2|$ et γ définis précédemment et D la valeur de dispersion de la fibre à la longueur d'onde λ. On constate donc que la DSE calculée est une valeur moyenne sur l'ensemble de l'impulsion, qui permet notamment d'estimer rapidement si cette dernière répond ou non au cahier des charges fixé.

La DSE est donc proportionnelle à la dispersion et inversement proportionnelle à la non-linéarité. Ceci est aisément interprétable en pensant qu'une dispersion élevée favorise les impulsions énergétiques, car larges temporellement et donc courtes spectralement, et qu'une faible non-linéarité limite les élargissements spectraux. On remarque également que la DSE est indépendante

des caractéristiques de l'impulsion de départ, ce qui simplifie fortement les études préalables de design. Ainsi, la configuration expérimentale idéale semble être la suivante :

- ***Valeur de dispersion importante***. Les fibres microstructurées, loin de leurs zéros de dispersion, offrent des valeurs importantes. Il sera ainsi nécessaire de posséder une fibre avec une grande zone de dispersion anormale pour pomper ces fibres loin de ces zéros. L'autre intérêt d'un pompage loin du premier zéro de dispersion est, notamment, d'éviter la perte d'énergie en ondes dispersives lors de l'étape initiale d'élargissement de l'impulsion par SPM.
- ***Coefficient non-linéaire faible.*** De tels coefficients se trouvent au sein des fibres HC-PCF (à cœur creux). Cependant, ces fibres ne permettent pas un décalage spectral important et on choisit donc d'employer des PCF à cœur solide "standards" dans un premier temps.
- On ajoute à ces deux conditions la condition ***d'oscillateur à grand taux de répétition***, typiquement dans le domaine 1-100 MHz, qui permet mécaniquement de posséder une bonne vitesse d'imagerie (impulsions fréquentes et énergétiques) tout en limitant l'échauffement des échantillons (voir la partie 1.2).

Une information importante est qu'il est nécessaire de réaliser un ***compromis entre décalage spectral important et DSE***. En effet, un décalage important signifie (entre autres) une non-linéarité importante aux dépends de la DSE. De plus, selon la partie 1.3, la baisse de la longueur d'onde de dispersion nulle est obtenue par la baisse du diamètre du cœur, qui amène naturellement un confinement important du champ et donc une non-linéarité élevée. Ce mécanisme est mis en évidence dans la Figure 2-4 et le Tableau 2-3, qui représentent les profils de dispersion et coefficients non-linéaires de différentes fibres fournies par Blaze Photonics, avec les valeurs de non-linéarité associées. On souligne que l'élargissement contrôlé d'une fibre, évoqué précédemment [A.C. Judge, 2009], apporte un degré de liberté supplémentaire dans le réglage de ces propriétés, mais que cette pratique n'est pas encore proposée commercialement de manière courante.

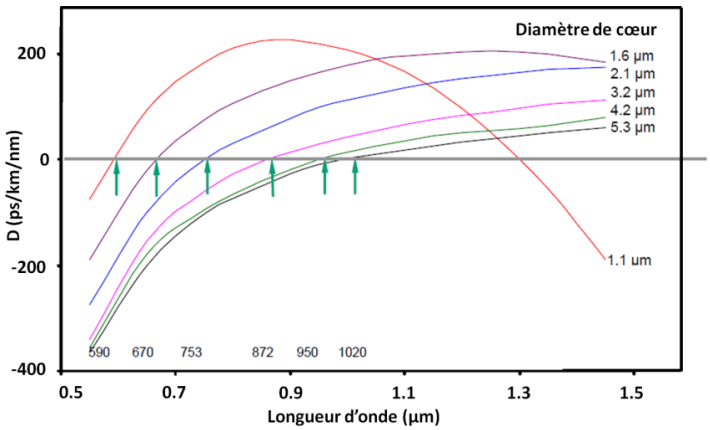


Figure 2-4: Profils de dispersion de différentes fibres, en fonction de leur diamètre de cœur, pour une fraction d'air donnée.

Ø (µm)	γ@1000nm ($W^{-1}.km^{-1}$)	γ@1500nm ($W^{-1}.km^{-1}$)
1.5	127	63
1.7	104	54
1.8	92	49
2.0	77	5
2.3	64	38
2.4	60	36
2.5	40	23
2.6	51	31

Tableau 2-3 : Coefficients non-linéaires pour différents diamètres de coeur, correspondant à différentes fibres.

Ainsi, puisque la non-linéarité sera de toute façon importante, il est décidé de se concentrer sur le choix d'un profil de dispersion adéquat parmi les profils disponibles au moment de la commande de fibres. Un compromis est à nouveau à réaliser car à mesure que la première longueur d'onde de dispersion nulle diminue, le profil de dispersion se courbe et génère un second zéro de dispersion dans l'intervalle spectral d'intérêt. Selon la Figure 2-4, les fibres possédant un ***diamètre de***

cœur situé entre 1.6 et 2.1 µm réalisent le meilleur compromis. Cette observation est effectuée sans connaître la proportion d'air dans la gaine, mais celle-ci est supposée importante (> 0.7) par comparaison de la Figure 2-8 avec les observations de la partie 1.3. Les tests effectués sur les fibres fournies par PERFOS (partie 2.2.3.2) permettront de confirmer ces hypothèses sur la microstructure.

Dans un premier temps, des fibres commerciales sont testées. Puis, des designs de fibres améliorés avec, notamment, des pertes OH moins importantes, fournis par PERFOS, sont testés.

2.2.2 Montage expérimental

2.2.2.1 Description du montage

Le montage général est représenté en Figure 2-5. L'oscillateur utilisé est un oscillateur femtoseconde ytterbium à blocage de modes passif (modèle tPulse, Amplitude Systèmes), émettant des impulsions de 180 fs à 1033 nm (largeur spectrale : 7 nm) à un taux de répétition de 50 MHz (mesure à l'analyseur de spectre électrique). La puissance moyenne d'émission est de 1 à 1.3 W. Il s'agit de l'oscillateur utilisé tout au long de ce travail de thèse. Un isolateur de Faraday est introduit en sortie du laser afin d'éviter les retours par réflexion dans la cavité. Une lame de densité variable (par concentration variable de particules métalliques dans un disque polymère) est utilisée pour faire varier la puissance générale sur le montage. La puissance injectée dans la fibre microstructurée est contrôlée au moyen d'un couple lame de phase/polariseur. La lame de phase est soit une lame demi-onde, soit un modulateur électro-optique. Une microlentille asphérique (O.N. = 0.6, f = 4 mm) focalise le faisceau dans la fibre dont l'injection peut être stabilisée par une platine piézoélectrique et un dispositif de contre-réaction (partie 2.3.2). La polarisation, rectiligne, est alignée grâce à une lame demi-onde selon un axe principal déterminé en optimisant le décalage spectral pour une puissance modérée [N. Nishizawa, 1999].

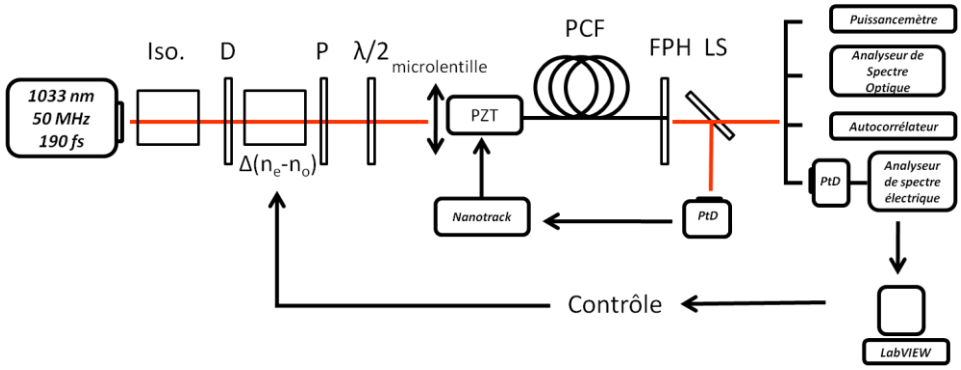


Figure 2-5: Montage expérimental général. D : densité variable, $\Delta(n_e-n_o)$: lame de phase, P : polariseur, PZT : platine piézoélectrique, PCF : fibre microstructurée, FPH : filtre passe-haut, LS : lame séparatrice, PtD : photodiode

En sortie de fibre, un filtre passe-haut est utilisé pour stopper le résidu des impulsions non converties en impulsions décalées. Ce filtre (ou une lame séparatrice 95/5) peut être utilisé afin de prélever une partie de la puissance de sortie nécessaire à la contre-réaction. Les solitons décalés sont analysés grâce à un puissancemètre, un analyseur de spectre optique (modèle MS9710B d'Anritsu,

600-1750 nm, résolution de 0.07 nm) et un autocorrélateur d'intensité (modèle FR-103HS de Femtochrome, possédant un cristal de $LiIO_3$ avec un accord de phase de type II et une plage de longueur d'onde de 700 à 1800 nm). Ils peuvent être dirigés sur une photodiode InGaAs (modèle SIR5-FC de Thorlabs, B.P. = 5 GHz) reliée à un analyseur de spectre électrique (B.P. = 26.5 GHz, modèle N9010A d'Agilent) afin de réaliser une étude de stabilité à court-terme (µs-s) du train d'impulsions [von der Linde, 1986]. Cette étude est présentée en partie 2.3.1.

2.2.2.2 Quelques mots sur la lame de phase

Utilisation d'une lame demi-onde : La première lame de phase était une lame demi-onde classique, montée sur une platine de rotation automatisée. Ce type de configuration suffit dans le cadre des spectroscopie et microscopie CARS, qui utilisent des faisceaux à longueur d'onde fixe sur des durées de l'ordre de la seconde. La platine de rotation permet d'automatiser l'acquisition de la puissance de sortie de la fibre ainsi que son spectre, afin de réaliser des fonctions de transfert et des cartographies de spectres en fonction de la puissance injectée. Cette étape, mise en place en début de thèse, rend aisée l'observation fine de l'évolution de certains phénomènes par l'enregistrement d'un grand nombre de spectres. Ainsi, les premières caractérisations ont par exemple consisté en l'enregistrement d'environ 50 spectres sur la zone de décalage utile, soit un spectre tous les 7 à 8 nm de décalage du soliton.

Cependant, la platine de rotation est un élément mécanique qui limite le contrôle de la puissance injectée. En effet, une variation maximale de la puissance injectée s'obtient en environ 2 secondes (à vitesse de rotation maximale). Cette échelle de fréquence (≈ 0.5 Hz) complique notablement l'observation de quasi-supercontinua (partie 3.1), ou d'amplification de faibles fluctuations relatives d'intensité (partie 3.2), qui nécessitent pour les premiers des fréquences de plusieurs MHz pour être utilisés de manière optimale à des fins d'OCT (partie 1.1). A cette limitation s'ajoute un phénomène d'hystérésis mécanique qu'il faut prendre en compte (*via* un terme correctif de "backlash correction") afin de réaliser un étalonnage angle de lame/puissance injectée fiable.

Utilisation d'un modulateur électro-optique : Ces contraintes mécaniques ont été surmontées par l'emploi d'un modulateur électro-optique, acquis en premier lieu pour les expériences présentées en chapitre 3. La commande par programmation de ce modulateur a par la suite intégré l'établissement des cartographies effectuées au moyen de la lame demi-onde. Le modulateur utilisé est constitué de deux cristaux de Niobate de Lithium ($LiNbO_3$), tournés de 90° (du point de vue de leurs axes) l'un par rapport à l'autre. Cette configuration permet de s'affranchir de la biréfringence naturelle de ces cristaux et de leur dépendance en température [Thorlabs, 2007]. Il possède de plus une bande passante intéressante de 0 à 100 MHz et peu de pertes d'insertion (de l'ordre du pourcent). La tension nécessaire à l'effet électro-optique est appliquée par un amplificateur haute tension (± 200 V, 100 mA).

2.2.3 Résultats expérimentaux

Cette partie présente les tests effectués pour déterminer la fibre la plus adaptée parmi les fibres obtenues. Ces tests ne constituent pas une caractérisation à proprement parler, car les caractéristiques des fibres ne sont pas réellement mesurées, il s'agit d'un simple contrôle des performances. Toutes les fibres présentent, selon les caractéristiques fournies par les constructeurs, des propriétés intéressantes. Cependant elles ne sont pas entièrement caractérisées, et le premier test effectué est d'injecter le faisceau laser dans la fibre afin de contrôler la présence et l'amplitude du décalage spectral des solitons.

2.2.3.1 Fibres NKT Photonics

Ces fibres ont été choisies pour leur longueur d'onde de dispersion nulle éloignée de la longueur d'onde de pompage. Elles ne sont pas des fibres standards et ne sont pas complètement caractérisées. Les données disponibles sur ces fibres sont fournies dans le Tableau 2-4 ci-dessous. Les longueurs testées sont de 1,75 m. Le test de ces fibres fait suite à ceux effectués sur une fibre standard et très diffusée par NKT Photonics, la fibre NL-PM-750, qui a montré l'apparition d'ondes dispersives vers 1350 nm ce qui a permis d'estimer une longueur d'onde de dispersion nulle aux alentours de 1235 nm [B. Kibler, 2008]. L'ouverture numérique et le diamètre du mode guidé des deux premières fibres sont indiqués pour une longueur d'onde de 780 nm car ces fibres sont faites pour la génération de *supercontinua*, pour lesquels le pompage s'effectue proche de (ou à) la longueur d'onde de dispersion nulle [A. Ortigosa-Blanch, 2002].

Fibre	***Figure***	$\emptyset_{coeur}$ ***(µm)***	***ZDW1 (nm)***	***ZDW2 (nm)***	***MFD (µm)***	***O.N.***	γ ***($W^{-1}.km^{-1}$)***
NL-1.7-785	A1-3	1.7	785	-	1.52	0.40@780 nm	106 @780nm
NL-1.7-765	B1-3	1.7	765	1700	1.49	0.40@780 nm	110 @780nm
NL-1.8-710	C1-3	1.8	710	-	1.1	-	139 @710nm

Tableau 2-4 : Caractéristiques disponibles des fibres testées (données constructeur). ZDW: longueur d'onde de dispersion nulle, MFD : diamètre du mode guidé, ON : ouverture numérique, Υ : coefficient non-linéaire

Les performances de ces fibres sont représentées en Figure 2-6. Pour chaque fibre, la puissance de sortie et le spectre sont acquis pour 80 puissances d'entrée différentes réparties sur un intervalle donné. Ces mesures permettent de déterminer les caractéristiques principales du décalage des solitons.

Fibre NL-1.7-785 : Sa cartographie (figure a1) montre immédiatement que cette fibre ne présente pas les performances requises. En effet on constate la génération d'ondes dispersives vers 1300 nm, ce qui permet d'estimer une seconde longueur d'onde de dispersion nulle vers 1250 nm [B. Kibler, 2008], repérée par les tirets blancs verticaux. Cette dispersion nulle n'était pas attendue. De plus, les solitons décalés présentent une grande largeur spectrale (figure a2). Par hypothèse d'un soliton non chirpé, on en déduit une largeur temporelle faible, qui peut s'interpréter comme issue de valeurs de dispersion faibles. Cette fibre présente cependant l'avantage physique de mettre en évidence la génération d'ondes dispersives par accord de phase avec le second soliton décalé [B.H. Chapman, 2010], visibles vers 1430 nm.

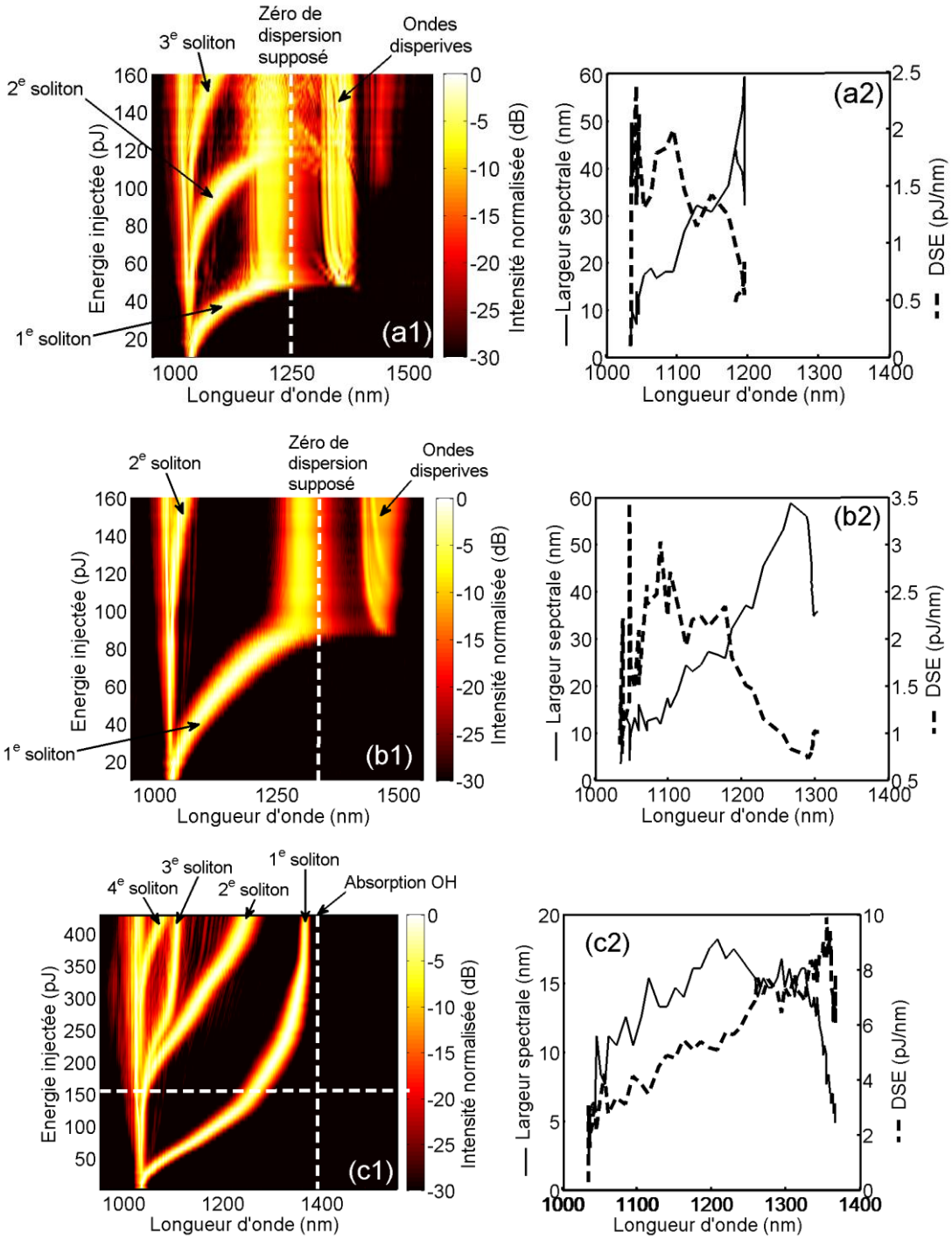


Figure 2-6: Performances des fibres Blaze Photonics, illustrée par l'enregistrement, pour chaque fibre, de 80 spectres et d'une fonction de transfert en puissance de 80 points. Colonne 1 : Cartographies des spectres de sortie de la fibre en fonction de l'énergie injectée. Colonne 2 : Largeur spectrale à mi-hauteur des solitons décalés (trait noir continu) et DSE (tirets noirs). (a) Fibre NL-1.7-785. (b) Fibre NL-1.7-765. (c) Fibre NL-1.8-710. Pour cette fibre, les tirets blancs horizontaux délimitent l'énergie maximale injectée dans les deux fibres précédentes.

Fibre NL-1.7-765 : Cette fibre possède une première longueur d'onde de dispersion nulle plus faible. Selon la Figure 2-4, la valeur de dispersion à la longueur d'onde de pompage doit être plus importante. Sa cartographie (figure b1) montre un décalage plus progressif ce qui semble confirmer une dispersion plus importante. Cette hypothèse est appuyée par la largeur spectrale plus faible des solitons (figure b2) à décalage identique. Cependant, des ondes dispersives sont également créées vers 1450 nm et permettent d'estimer une dispersion nulle vers 1350 nm, repérée également par les tirets blancs verticaux. Cette fibre ne convient donc pas non plus.

Fibre NL-1.8-710 : La cartographie de cette fibre (figure c1) ne montre pas, cette fois-ci, de génération d'ondes dispersives. Le décalage est encore plus progressif que dans les cas précédents et permettra de réaliser des spectres CARS jusqu'à des fréquences de résonance de 2300 cm^{-1}. Il sera donc possible de valider le fonctionnement du système par l'acquisition de spectres sur des fréquences "simples" (980, 1460 ou 2200 cm^{-1} pour n'en citer que quelques unes).

La largeur spectrale (figure c2), plus faible de 50 % par rapport aux fibres précédentes, serait le signe d'une dispersion encore plus importante, qui amènerait une largeur temporelle forte et donc un décalage lent. Il est intéressant de constater que ce décalage plus lent ne s'accompagne pas d'une augmentation de l'énergie de l'impulsion par rapport aux autres fibres. De plus, le taux de conversion de la pompe vers le soliton est bon, de l'ordre de 60 % (Figure 2-7).

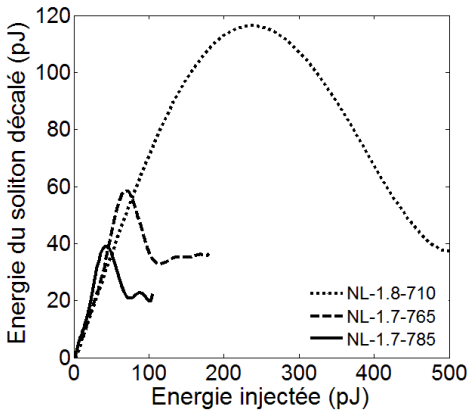


Figure 2-7 : Energie des premiers solitons décalés en fonction de l'énergie injectée.

En termes de densité d'énergie, un retour sur la Figure 2-6 (c2) montre une DSE suffisante pour une imagerie cellulaire. Ce résultat est remarquable car par le respect de quelques règles simples quant au choix des propriétés de la fibre, il est possible d'obtenir simplement une DSE égale ou supérieure à celles démontrées dans les dispositifs fibrés "classiques" pour l'imagerie CARS. Cependant, il sera intéressant de l'augmenter afin d'augmenter la vitesse d'acquisition des images produites en microscopie vibrationnelle. La baisse de l'énergie au-delà de 250 pJ d'énergie injectée (Figure 2-7) se comprend par la formation d'un second soliton et dans le même temps par son rapprochement de la zone des pertes OH importantes (1380 nm, repérées sur la Figure 2-6 (c1) par le tirets blancs verticaux). L'importance de ces pertes est analysée en Figure 2-8, à l'aide d'une comparaison entre une propagation avec et sans pertes.

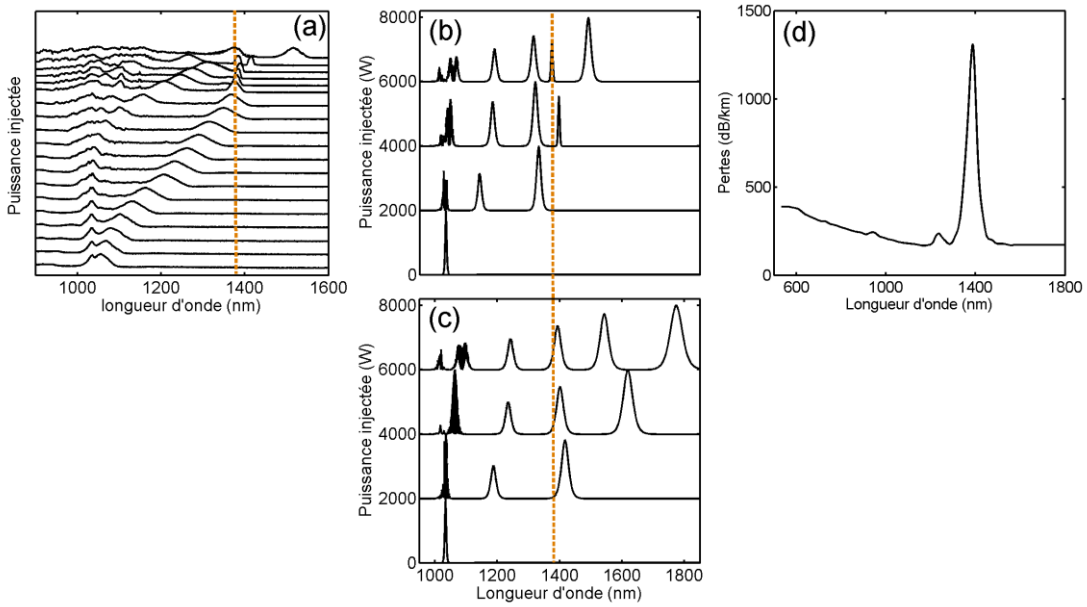


Figure 2-8 : Analyse du profil de pertes de la fibre NL-18-710. (a,c) Evolution du spectre en fonction de la puissance injectée. Comparaison de l'expérience (a) avec des simulations prenant en compte les pertes (b) ou non (c). (d) Profil spectral des pertes utilisé dans les simulations.

La Figure 2-8 (a) présente des spectres expérimentaux et montre que le pic OH peut être passé en injectant une puissance importante. Ce pic de pertes (figure (b)) a été modélisé en simulation et permet de reproduire correctement (figures (c) et (d)) le comportement expérimental, mais des simulations supplémentaires seraient à effectuer pour atteindre une estimation correcte des niveaux de pertes.

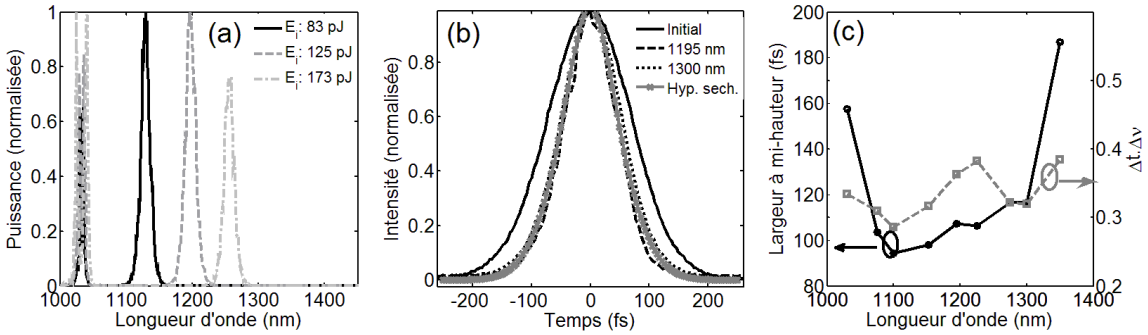


Figure 2-9 : Analyse de la qualité des impulsions décalées. (a) spectres de sortie (en linéaire) pour différentes énergies injectées. (b) Autocorrélations d'intensité pour différents décalages (1195 nm (tirets noirs) et 1300 nm (points noirs)) comparés à la forme idéale de sécante (croix grises) et aux impulsions initiales (trait continu noir). (c) Produit largeur temporelle-largeur spectrale (tirets gris et carrés) et largeurs temporelles associées (traits plein noirs).

La fibre NL-1.8-710 permet donc la validation de la source développée. La qualité des impulsions générées est enfin analysée en Figure 2-9. On constate que les solitons décalés ont une forme correcte (figures (a) et (b)), sans piédestaux, ce qui signifie que toute l'énergie est concentrée dans le lobe principal. Ce résultat est important surtout pour le domaine spectral car il induit de fait une DSE importante. De plus, le produit temps-fréquence (figure (c)) proche de la théorie (0.315) confirme l'hypothèse de solitons par l'abscence de chirp. Une observation importante est que ces résultats sont valables sur tout l'intervalle spectral de décalage des solitons. Il semble ainsi intéressant de garder cette fibre en référence en termes de microstructure et de tester des fibres identiques, présentant des pertes OH plus faibles.

La dernière observation, mais non la moindre, porte sur la largeur spectrale de ces solitons, qui conditionnent en partie le mode d'imagerie CARS, simplex ou multiplex (partie 1.2), adopté. En effet les solitons décalés présentent une largeur temporelle relativement faible, de l'ordre de 110 fs. ***Etant proches de la limite de Fourier, ces durées imposent des largeurs spectrales d'environ 3 THz, soit environ 100 cm^{-1}. Sans mise en forme ultérieure des impulsions, cette largeur spectrale importante guide ce système vers un mode d'imagerie CARS de type multiplex.***

2.2.3.2 Fibres produites par PERFOS

Ces fibres ont été choisies pour leurs pertes OH, inférieures à 30 dB/km (données PERFOS), nettement plus faibles que celles de la fibre choisie. La plateforme PERFOS (Plateforme d'Etude et de Recherche sur les Fibres Optiques Spéciales) [PERFOS, 2012], désormais intégrée au cluster Photonics Bretagne, est une plateforme technologique qui fabrique des fibres microstructurées à la demande pour des besoins spécifiques. Plusieurs tronçons présentant différentes propriétés ont été achetés et testés. Les caractéristiques fournies par PERFOS sont données en Tableau 2-5 et Figure 2-10.

Des fibres présentant des dispersions normale et anormale à la longueur d'onde de l'oscillateur sont testées. On ne présente ici que les tests effectués sur les fibres à dispersion anormale, qui sont d'intérêt pour la validation du dispositif. Parmi ces fibres, celles possédant une dispersion anormale "large" sont intéressantes car les diamètres sont environ 10 % plus importants que celui de la fibre choisie. Elles doivent donc présenter des solitons plus énergétiques (aire effective plus grande).

Fibre	***Ø coeur (µm)***	***d/Λ***
Dispersion anormale		
HF305 M1B A1	184	0.63
HF305 M1B B9	2	072
HF305 M1B A9	2	0.8
HF305 M1B A6	2	0.89

Tableau 2-5 : caractéristiques géométriques des fibres fournies par PERFOS

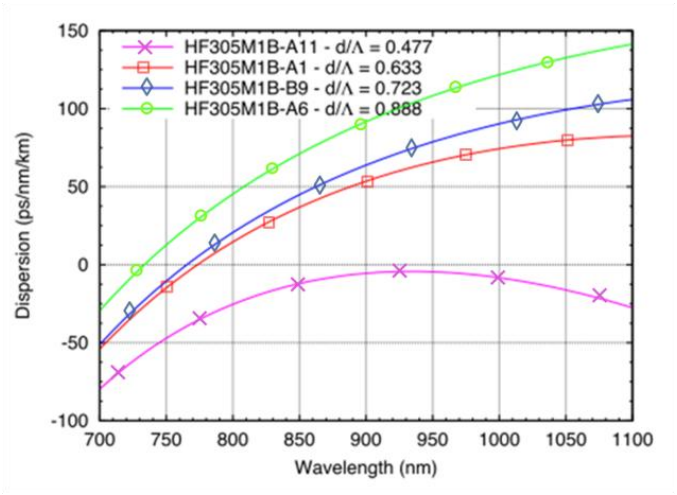


Figure 2-10 : Courbes de dispersion calculées pour les fibres de la série 305

Concernant ces fibres, les pertes OH plus faibles que celle de la fibre retenue sont confirmées par l'ensemble de ces fibres, qui génèrent des solitons décalés jusqu'à 1500 à 1700 nm. La Figure 2-11 montre des cartographies de la fibre HF305-M1B-A1 (figures (a) et (b)) et de la fibre HF305-M1B-A9 (figures (c) et (d)), représentatives des fibres testées. Les longueurs des fibres testées sont de 260 cm (figures (a) et (c)) et 75 cm (figures (b) et (d)). A l'image des fibres achetées chez NKT Photonics, les cartographies ont été construites à partir de 100 spectres. Les tirets blancs situent le pic d'absorption OH.

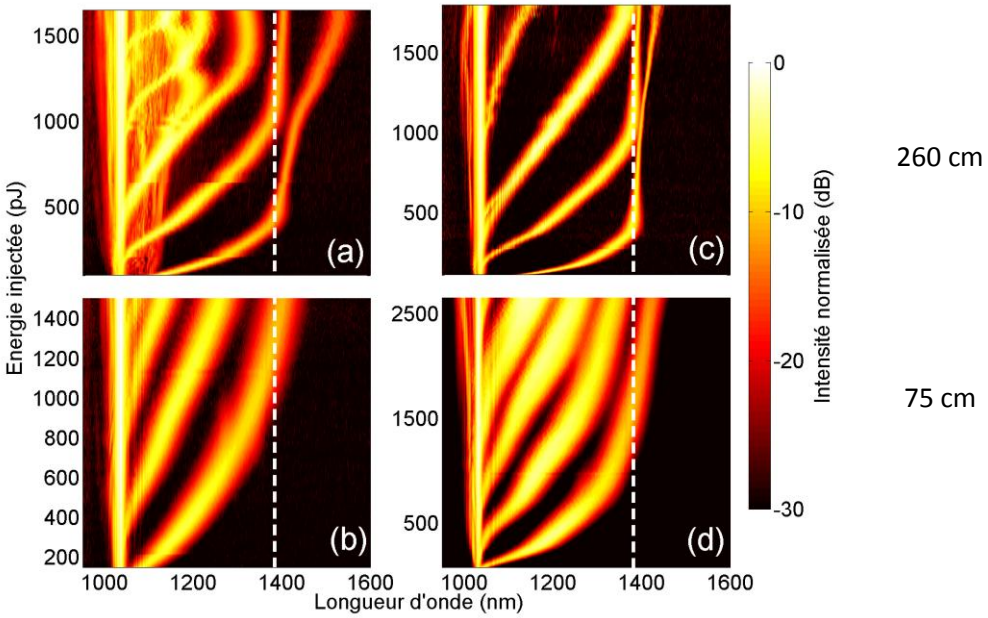


Figure 2-11: Cartographies représentatives des fibres PERFOS testées, composées chacune de 100 spectres. Fibre HF305-M1B-A1, pour des longueurs de (a) 260 cm et (b) 75 cm. Fibre HF305-M1B-A9, pour des longueurs de (c) 260 cm et (d) 75 cm. Les tirets blancs représentent le pic d'absorption OH.

On constate cependant toujours la présence de ces pertes OH car il est nécessaire d'injecter un "surplus" d'énergie pour passer ce pic (figures (a) et (c)). Les solitons décalés présentent également des largeurs spectrales plus importantes, ce qui présente un avantage en termes d'intervalle spectral sondé, pour un décalage donné, dans une configuration CARS multiplex, mais qui peut également présenter un désavantage en termes de DSE si l'énergie des solitons décalée n'augmente pas en conséquence. Cette observation est confirmée par le calcul des caractéristiques des solitons créés par le tronçon de 75 cm de la fibre HF305-M1B-A1 (injection sur un axe, déterminé par la maximisation du décalage spectral), qui sont analysées en Figure 2-12. Cette figure représente l'énergie du premier soliton décalé (figure (a)), sa largeur spectrale et sa DSE (figure (b)) en fonction de sa longueur d'onde centrale.

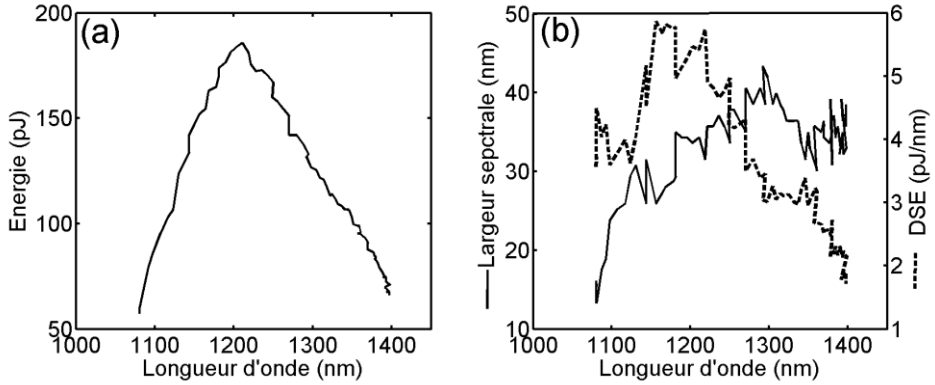


Figure 2-12 : HF305-M1B-A1, L = 75 cm, injection sur un axe : Caractéristiques du premier soliton décalé. (a) Energie du soliton en fonction de sa longueur d'onde. (b) Largeur spectrale (trait noir continu) et DSE (tirets noirs).

Cette fibre produit donc en général des solitons plus énergétiques mais également plus larges spectralement, au détriment de leur DSE, qui reste néanmoins suffisante pour générer un signal CARS observable. Les autres fibres ont un comportement identique mais il n'a malheureusement pas été possible de corréler clairement ces comportements aux caractéristiques des microstructures.

La théorie exposée précédemment et ces tests permettent de penser qu'un diamètre de cœur d'environ 2 µm et une fraction d'air importante (> 0.6) fournit des résultats satisfaisants. Pour extrapoler ce résultat, on peut penser qu'il serait intéressant d'augmenter encore le diamètre du cœur (énergie importante et non-linéarité faible) et la fraction d'air (dispersion importante) afin d'améliorer les performances. Cet aspect est abordé dans la partie suivante.

2.2.3.3 Augmentation de la DSE

D'autres types de fibres semblent prometteurs pour augmenter la DSE, comme les fibres à mode d'ordre supérieur. On peut toutefois se pencher, dans un premier temps, sur des fibres aux microstructures proches de celle de la fibre choisie, mais avec un cœur légèrement plus gros [E.R. Andresen, 2007].

Des simulations ont donc été effectuées pour une fibre de type NL-2.6-825 de Blaze Photonics. Cette fibre possède un diamètre de mode de 1.6 à 1.7 µm, soit 50 % plus important que celui de la fibre choisie (NL-1.8-710). La comparaison de ces deux fibres est donnée en Figure 2-13 qui représente les énergie (figure (a)) et DSE (figure (b)) des solitons décalés. Elle se fonde sur deux aspects :

- l'augmentation de la puissance injectée dans une fibre de longueur plus faible (courbes représentées par les étoiles et les croix)
- l'augmentation de la puissance injectée dans une fibre de cœur plus important (courbes représentées par les étoiles et les losanges).

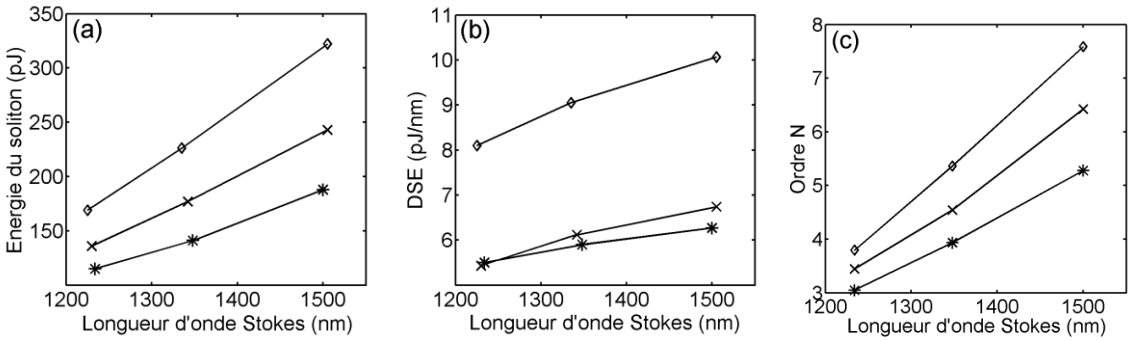


Figure 2-13 : Comparaison des énergie et DSE pour deux fibres de diamètres de cœur différents : 1.75 m de NL-1.8-710 (étoiles), 87.5 cm de la même fibre (croix) et 1.75 m de NL-2.6-825 (losanges). Données issues de simulations. (a) Comparaison des énergies, (b) comparaison des DSE et (c) comparaison de l'ordre N des impulsions initiales.

Les pertes sont considérées comme nulles. A décalage spectral égal, l'injection d'une énergie plus importante pour une longueur de fibre plus faible ne semble pas pertinente en termes de gain de DSE. En revanche, on constate que l'aire effective plus importante de 50 % (courbes marquées par des losanges) permet de doubler l'énergie des solitons décalés et d'augmenter la DSE de 50 %. Ce comportement peut être expliqué par une valeur de dispersion qui diminue moins rapidement que celle du coefficient non-linéaire. Ces simulations mettent ainsi en valeur le bénéfice d'une aire

effective plus importante. Il faut cependant pointer une limitation de cette solution qui impose d'injecter, à décalage spectral identique, une énergie initiale plus importante. Cette augmentation aboutit à un nombre de solitons plus important (visible sur la Figure 2-13 (c)) et également à la formation d'ondes dispersives dans les courtes longueurs d'onde. Ainsi cette piste d'amélioration doit être étudiée en détail afin de vérifier notamment que ces entités supplémentaires ne génèrent pas de paires de solitons liés [A. Podlipensky, 2007] qui pourraient agir au détriment de la stabilité de la source.

Une ou plusieurs fibres testées remplissant le cahier des charges sont donc disponibles. La largeur spectrale des solitons créés guide le système vers une ***imagerie CARS Multiplex*** *(ou M-CARS, voir la partie 1.2). Avant de les tester dans un montage de spectroscopie, il est nécessaire de caractériser la stabilité des solitons générés. Cette caractérisation fait l'objet de la partie suivante.*

2.3 Etude de la stabilité

Caractériser la stabilité d'une source est d'une grande importance pour bon nombre d'applications comme les télécommunications optiques [J.P. Gordon, 1986, Z. Pan, 2010], la métrologie des fréquences [R.J. Jones, 2001] ou encore les techniques de spectroscopie [T. Schröder, **2007**, Y. Matsuo, 2000]. Dans le cas présent, les fluctuations en énergie des impulsions initiales peuvent se répercuter sur la longueur d'onde des solitons décalés. Il est donc important d'étudier ces fluctuations à court (microseconde) et long-terme (seconde-minute-heure). De plus, le chapitre 4 permet de montrer qu'une impulsion pompe subissant le processus de compression spectrale se synchronise avec l'impulsion Stokes suivante dans le train d'impulsions. Il est donc nécessaire d'étudier les fluctuations temporelles à court-terme (impulsion à impulsion, soit sur 20 à 40 ns dans le cas présent) pour étudier la possibilité de la synchronisation des 2 impulsions et donc de la génération d'un signal spectroscopique. La stabilité à court-terme est étudiée dans la partie 2.3.1 et la stabilité à long-terme est étudiée dans la partie 2.3.2. Ces études sont effectuées avec la ***fibre NL-1.8-710 de Blaze Photonics***, qui a été sélectionnée pour ses performances et qui sera utilisée pour la génération du signal CARS (chapitre 5).

2.3.1 Stabilité court-terme

2.3.1.1 Types de techniques de mesure

La stabilité court-terme (microseconde-seconde) est souvent étudiée. Diverses techniques peuvent être envisagées :

- ***Visualisation du signal laser par une photodiode et un oscilloscope***. Cette technique est limitée par l'électronique actuelle à des impulsions de quelques dizaines à centaines de picosecondes.
- ***Extraction des gigues*** de fond continu, d'amplitude et de période d'un ***signal d'inter-corrélation*** [J. Fatome, 2008]. Cette technique est réservée, par la longueur du bras de scan du corrélateur, à des taux de répétition de l'ordre du GHz au minimum.

- ***Amplification des faibles fluctuations*** [C. Finot, 2010]. Cette technique est réservée aux mesures de gigues d'amplitude. La partie 3.1 est réservée à cette technique.
- ***Comparaison de deux oscillateurs lasers*** [R. Paschotta, 2005]. Cette technique est la plus évoluée, mais sa mise en œuvre peut être complexe, notamment au niveau du traitement numérique. Cependant, dans le cadre du dispositif complet (faisceaux pompe et Stokes), cette technique est envisageable. La partie 5.2.4.2 donne plus de détails.
- ***Mesure d'une déviation par rapport à une phase donnée*** [M.J.W. Rodwell, 1989] : cette méthode requiert une électronique complexe et ne peut pas être simplement mise en œuvre.
- ***Analyse du spectre Radio-Fréquence*** (nommé RF par la suite) du signal électrique produit par une photodiode illuminée par le laser à caractériser [von der Linde, 1986]. Cette technique, adaptée à l'étude de lasers à modes bloqués, nécessite un matériel simple et courant et est actuellement l'une des méthodes les plus employées [A. Finch, 1990, U. Keller, 1990]. ***Il s'agira donc la méthode utilisée.***

2.3.1.2 Mesure des gigues d'un laser par analyse de son spectre radio-fréquences

Approche Originelle : Cette approche est due à D. Von der Linde [von der Linde, 1986]. Elle consiste à effectuer des hypothèses physiquement plausibles sur les types de fluctuations pouvant être présentes dans un train d'impulsions et d'en étudier les effets sur le spectre d'intensité en puissance. Ce spectre est enregistré par un analyseur de spectre électrique. On considère pour commencer le train d'impulsions parfait

$$F(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} f(t + nT) \tag{2.18}$$

avec f(t) le profil temporel d'intensité d'une impulsion individuelle et T la période du train d'impulsions. Dans le cadre d'un laser à modes bloqués, le spectre de ce laser sera constitué d'un peigne de fréquences, dont les dents sont espacées du taux de répétition du laser et dont l'amplitude correspond au spectre de l'enveloppe d'une impulsion. Ce type de train laser, ainsi que son spectre de puissance, pour les premières harmoniques, est représenté en Figure 2-14 (a1) et (a2) respectivement.

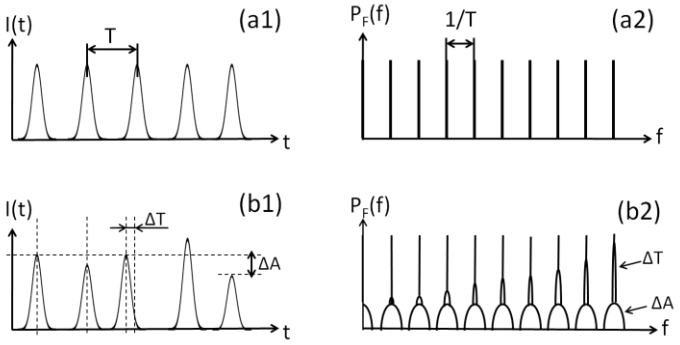


Figure 2-14: Effet des gigues d'amplitude et de taux de répétition sur le spectre RF du train d'impulsions. (a1) Intensité temporelle d'un train d'impulsions parfait. (a2) Spectre RF de ce train parfait. (b1) Intensité temporelle d'un train d'impulsions réel, présentant des gigues d'amplitude et de taux de répétition. (a2) Spectre RF de ce train réel.

Cependant, un train d'impulsions réel est soumis à différentes gigues. L'approche originelle ne considère que des gigues d'amplitude et de période des impulsions. Un train d'impulsions subissant ces gigues est représenté en Figure 2-14 (b1). Ces gigues sont supposées ne pas être corrélées entre elles. On peut montrer que le spectre de puissance Figure 2-14 (b2) $P_F(\omega)$ d'un train présentant ce type de fluctuations Figure 2-14 (b1) est :

$$P_F(\omega) = \left(\frac{2\pi}{T}\right)^2 \left|\tilde{F}(\omega)\right|^2 \sum_{n=0}^{+\infty} \left[\delta(\omega_n) + P_A(\omega_n) + (2\pi n)^2 P_J(\omega_n)\right] \tag{2.19}$$

avec ω_n la pulsation du $n^{ième}$ harmonique, $P_A(\omega_n)$ le spectre de puissance des gigues en amplitude et $P_J(\omega_n)$ le spectre de puissance des gigues de période. La Figure 2-14 (b2) montre que la gigue d'amplitude sera présente sous la forme de composantes spectrales constantes tandis que la gigue temporelle augmentera avec les harmoniques. Ces observations sont utilisées afin d'extraire les deux spectres de puissance P_A et P_J. En général, l'hypothèse de prédominance des gigues d'amplitude à faibles harmoniques et des gigues temporelles aux hautes harmoniques est effectuée. Ceci permet d'extraire directement le spectre de gigue d'amplitude du fondamental et ensuite de le soustraire au spectre d'une harmonique d'ordre élevé [M.J.W. Rodwell, 1989, an2, 1976]. Dans les mesures à venir, le fondamental et les harmoniques 20 et 40 sont utilisés. Ce spectre de puissance est normalisé selon

$$L(\omega) = 10log_{10}\left(\frac{P_F(\omega)}{kBP_c}\right) \tag{2.20}$$

avec k une constante dépendant de l'analyseur, B la résolution de l'analyseur et P_c la puissance crête du spectre de l'harmonique concerné. On obtient donc un spectre en dBc/Hz, c'est à dire en dB par rapport à la puissance de l'harmonique, sur une bande fréquentielle de 1 Hz. Comme évoqué juste avant, les gigues d'énergie sont extraites du spectre du fondamental selon

$$L_A(\omega) = L_1(\omega) = P_A(\omega) \rightarrow \frac{\Delta E}{E}(\%) = 100 * \left(2\int_{f_b}^{f_h} 10^{L_A(f)/10} df\right)^{1/2} \tag{2.21}$$

avec $L_1(f)$ le spectre normalisé du fondamental et f_b et f_h les bornes d'intégration basse et haute des bandes de bruit. Le facteur 2 permet de considérer les deux bandes de bruit de l'harmonique, supposé symétrique. Dans cette thèse, les deux bandes sont intégrées, ce qui est équivalent. Enfin, les gigues temporelles sont extraites selon

$$L_J(f) = 10log_{10}\left(\frac{10^{L_n(f)/10} - 10^{L_A(f)/10}}{(2\pi n)^2}\right) \rightarrow \Delta T = \frac{T}{2\pi n}\left(2\int_{f_b}^{f_h} 10^{L_J(f)/10} df\right)^{1/2} \tag{2.22}$$

La relation 2.21 montre que la gigue d'amplitude est reliée aux fluctuations d'énergie des impulsions. Ce résultat est issu du fait que la chaîne de mesure possède un temps de réponse (≈ nanoseconde) nettement supérieur à la durée d'une impulsion (≈ picoseconde). Ainsi, la photodiode agit comme un intégrateur et l'amplitude du signal obtenu est reliée à l'énergie de l'impulsion. Il est également d'usage de considérer les spectres de ces fluctuations afin de mieux voir l'évolution en fréquence des gigues. Ces spectres sont représentés en partie 2.3.1.4.

Evolutions du modèle : Cette méthode repose sur les méthodes d'analyse et de calcul de bruits du domaine des transmissions radiofréquences [an2, 1976, an1, 2006]. Cependant, une prise en compte plus fine des propriétés et causes possibles des bruits rendent cette technique très discutable et ce pour plusieurs raisons :

1. Les fluctuations de largeur temporelle des impulsions peuvent également participer à la gigue d'énergie [Fuss, 1994].
2. Les possibles corrélations inter ou intra-bruits rendent difficilement pondérables les gigues concernées [Fuss, 1994, M.C. Gross, 2002]. Cette remarque vient en contradiction des hypothèses de bruits indépendants et non-corrélés de Von der Linde.
3. L'utilisation d'un analyseur de spectre électrique demande de nombreuses précautions pour s'affranchir au maximum du bruit de la chaîne de mesure [R. Paschotta, 2005, an1, 2006]

Il faut garder ces limitations à l'esprit. Elles ont amené le choix de ne ***mesurer que des "grandeurs générales", à savoir les gigues d'énergie relatives ΔE/E et temporelles absolues ΔT***. Ces grandeurs permettront notamment de comparer l'oscillateur simple au bras Stokes complet afin de déterminer s'il n'introduit pas de bruit supplémentaire. Elles seront également comparées à d'autres moyens de mesures afin d'appuyer la méthode employée. Une recherche de l'origine des gigues sort du cadre de cette thèse et est un sujet abordé dans d'autres équipes [Paschotta, 2004a, Paschotta, 2004b, H.A . Haus, 1993].

2.3.1.3 Estimations préalables

Comparaison à l'amplificateur de faibles fluctuations : Une première comparaison consiste à utiliser l'amplification de faibles fluctuations relatives (partie 3.1). Il sera montré que ce montage amplifie ces fluctuations relatives d'énergie d'un facteur 20 environ et peut être utilisé pour faire ressortir le signal du bruit des instruments. Cette méthode permettra d'estimer une ***fluctuation réelle d'énergie de 0.33 % environ***. Des simulations de SSFS pour un décalage central de 1280 nm (choisi aléatoirement, mais loin des pertes OH) à une puissance crête de départ de ***Pc ± 0.17 %*** mènent à un ***écart temporel de ± 0.1 ps, soit ± 10^{-3} %*** de la période du train d'impulsions (l'écart en puissance n'a pas été évalué). Cette référence servira de comparaison aux mesures.

Validation du modèle de bruit : Une seconde estimation consiste à étudier le comportement et les niveaux de bruit du spectre RF en fonction de différents types de gigues, afin de vérifier que les niveaux de bruit mesurés sont réalistes. Pour ce faire, on simule le spectre RF d'un train d'impulsions gaussiennes présentant différentes caractéristiques de gigues (aucune gigue, gigue d'amplitude seule, gigue temporelle seule, etc.). Le taux de répétition de ce train est de 50 MHz, le train simulé comporte 1000 périodes sur 2^{19} points, soit environ 500 points par période. Les résolutions temporelle et spectrale respectives de ce train sont donc de 39 ps et 49 kHz. Les niveaux de gigues choisies sont des niveaux couramment rencontrés dans la littérature, soit des niveaux de 0.1 % en amplitude et de 10^{-3} % en période.

Les spectres résultants sont donnés en Figure 2-15, pour un train comportant des gigues d'amplitude seules (figures a1->a4) et des gigues temporelles seules (figures b1->b4). Pour chaque colonne, on considère un train sans gigue (ligne 1), une gigue non corrélée (ou bruit blanc, ligne 2), une gigue corrélée (dérive lente du laser [M.C. Gross, 2002, Gross, 2003], ligne 3) et une combinaison de ces gigues (ligne 4). Concernant les gigues corrélées, il est important de comprendre que la corrélation évoquée (modélisée par la convolution temporelle d'un bruit blanc avec une courbe

gaussienne) s'applique à la gigue seule, et non pas entre différentes gigues. Les hypothèses de départ (gigues indépendantes les unes des autres, partie 2.3.1.2) sont donc valides.

Les figures (a2) et (b2) montrent tout d'abord qu'un bruit blanc classique ne correspond pas aux spectres rencontrés dans la littérature, que ce soit au niveau de gigues d'amplitude ou temporelle. Il est ainsi nécessaire d'introduire des gigues corrélées (Figure 2-15 (a3) et (b3)) afin de retrouver les formes de spectres habituelles, c'est à dire présentant une gigue concentrée autour des harmoniques. Les Figure 2-15 (a4) et (b4) montrent enfin que les bruits présents dans un laser sont une combinaison des deux types de bruits. Les niveaux de puissance correspondant aux gigues attendues semblent de plus à portée de mesure.

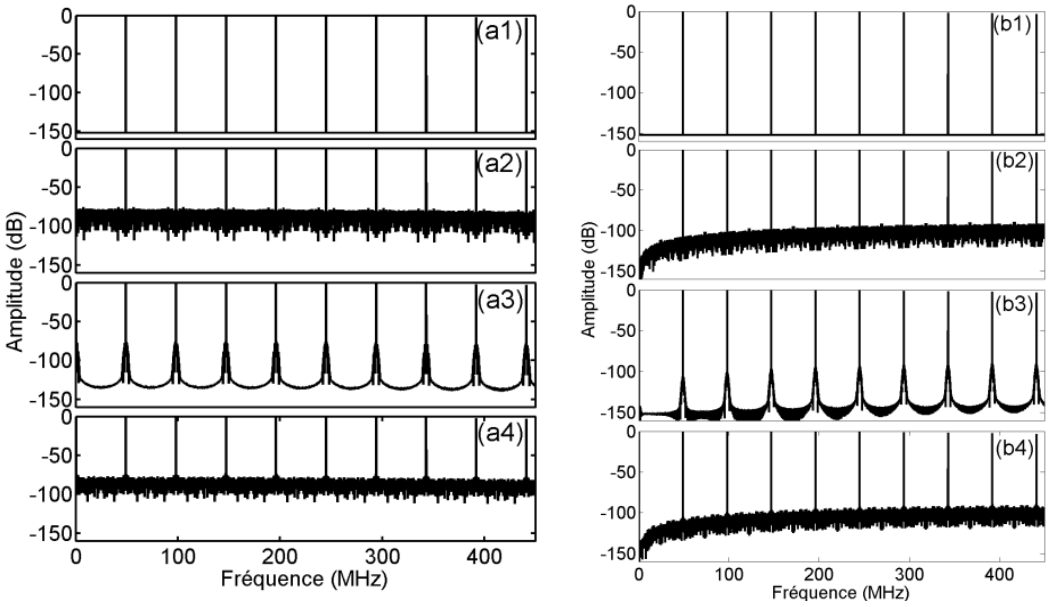


Figure 2-15 : Etude de la répercussion des gigues d'amplitude (colonne 1) et temporelles (colonne 2) sur les spectres RF. Ces spectres sont issus de trains d'impulsions ne présentant aucune gigue (ligne 1), une gigue non-corrélée (ligne 2), une gigue corrélée (ligne 3) et une association des deux types de gigues (ligne 4).

Ces simulations ont été comparées aux spectres RF d'un signal présentant les mêmes caractéristiques (50 MHz, différent type de gigues...). Le comportement et les niveaux de puissance de ces spectres se sont révélés identiques aux simulations ce qui signifie que les spectres RF enregistrés permettent un calcul pertinent des gigues.

2.3.1.4 Mesure de gigues

Réglages initiaux : La justesse des spectres enregistrés dépend fortement des réglages de l'analyseur de spectre [an1, 2006]. Les spectres sont enregistrés avec les mêmes paramètres expérimentaux pour toutes les configurations (oscillateur seul, bras Stokes, etc). Ces paramètres sont une résolution (RBW) de 30 Hz, un filtre de lissage (VBW) de 3 Hz, un span de 10 kHz limité par la sensibilité de la chaîne de mesure et une puissance incidente sur la photodiode 2 mW, qui permet d'éviter les conversions non-linéaires entre les gigues. Il est vérifié que le signal sort du bruit de fond d'une décade au minimum. Comme indiqué en Figure 2-5, le train d'impulsions est récupéré par une jarretière SMF qui est branchée sur une photodiode (B.P. = 5 GHz, NEP (Noise Equivalent Power) < 2.10^{-15} W/√(Hz), qui aboutit à un sueil de bruit de -147 dBc/Hz maximum) reliée par câble

BNC à l'analyseur de spectre électrique. Cette jarretière est donc présente dans toutes les mesures et on peut ainsi clairement identifier la différence de bruits entre le laser seul et le bras Stokes. La convention adoptée est de ne représenter qu'une seule aile des spectres RF enregistrés et ainsi d'ajouter 3 dB aux spectres des gigues [an2, 1976] afin de représenter leur niveau réel. De plus, le fondamental est employé pour le calcul de la gigue d'amplitude et pour cette harmonique, la gigue temporelle est négligée [von der Linde, 1986, M.J.W. Rodwell, 1989].

Oscillateur seul : Les spectres RF du fondamental et des harmoniques 20 et 40, ainsi que les gigues extraites, sont donnés en Figure 2-16. Les spectres de l'oscillateur (figure (a)) montrent clairement l'existence d'une bande de bruit qui augmente avec l'harmonique. Le début de la bande de bruit est déterminé à 60 Hz.

La ***gigue d'énergie est estimée à 0.35 %.*** Cette gigue peut se traduire en une gigue de longueur d'onde des solitons décalés (la longueur d'onde de décalage étant fonction de la puissance injectée) et également, du fait de la dispersion chromatique de la fibre, en une gigue temporelle. Des simulations de propagation d'une impulsion au sein de la fibre choisie (fibre NL-1.8-710) permettent ainsi d'estimer une ***gigue de longueur d'onde inférieure au nanomètre***, inférieure à 6 % de la largeur spectrale des solitons décalés. Elles permettent également d'estimer et une ***gigue temporelle d'environ 170 fs***, qui ne compromet pas la synchronisation avec les impulsions pompe, celles-ci possédant une largeur temporelle de 2.5 ps (voir le chapitre 4).

La gigue temporelle à environ 700 fs, soit $3{,}3.10^{-3}$ %, par intégration des spectres montrés en figures b1 et c1. La chute de la gigue temporelle est beaucoup plus rapide que celle de la gigue d'énergie. Ces observations se retrouvent sur les figures (b2) et (c2). Aussi, ces figures sont suffisantes pour l'interprétation des spectres et on ne montrera plus que ces figures à l'avenir. Les niveaux de gigues sont cohérents avec la littérature [M.J.W. Rodwell, 1989, U. Keller, 1990, J. Son, 1992]. Le calcul de la gigue temporelle emploiera, par la suite, la 40e harmonique, car cette harmonique d'ordre élevé reste relativement stable et permet une extraction simple de la gigue.

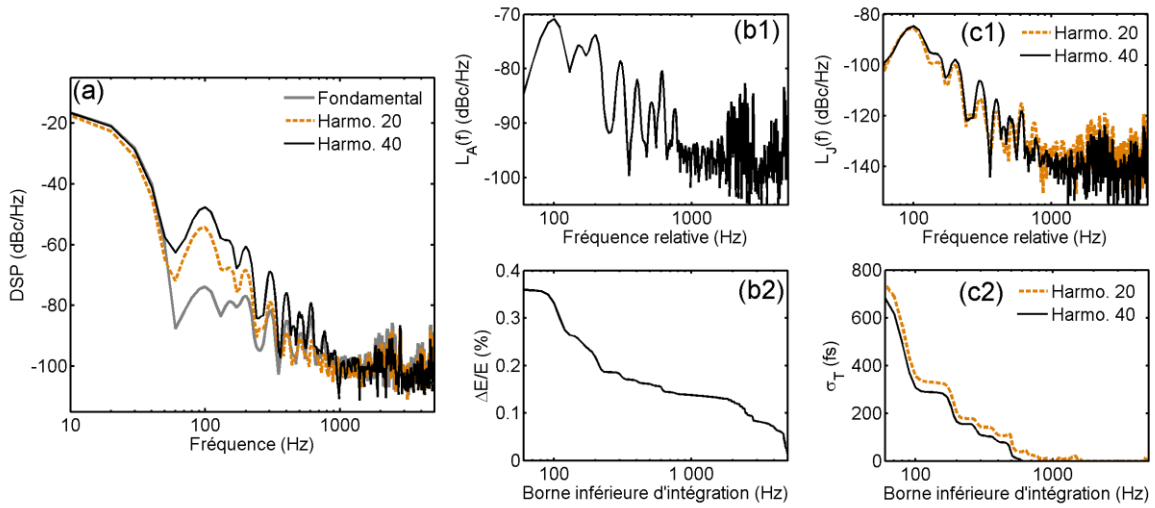


Figure 2-16 : récapitulatif des données RF du laser seul, pour le fondamental et les 20e et 40e harmoniques. (a) Spectres RF normalisés (dBc/Hz). (b1) Spectre du bruit d'amplitude. (b2) Gigue d'énergie intégrée, pour différentes bornes inférieures d'intégration. (c1) Spectre de gigue temporelle. (c2) Gigue temporelle intégrée pour différentes bornes inférieures d'intégration.

Bras Stokes : Les gigues d'énergie et temporelle sont ainsi extraites des spectres RF pour des décalages de solitons de 1100 à 1350 nm par pas de 50 nm. On ne montre en Figure 2-17 que les calculs de gigues pour les décalages de 1150, 1250 et 1350 nm, comparés aux calculs de l'oscillateur seul.

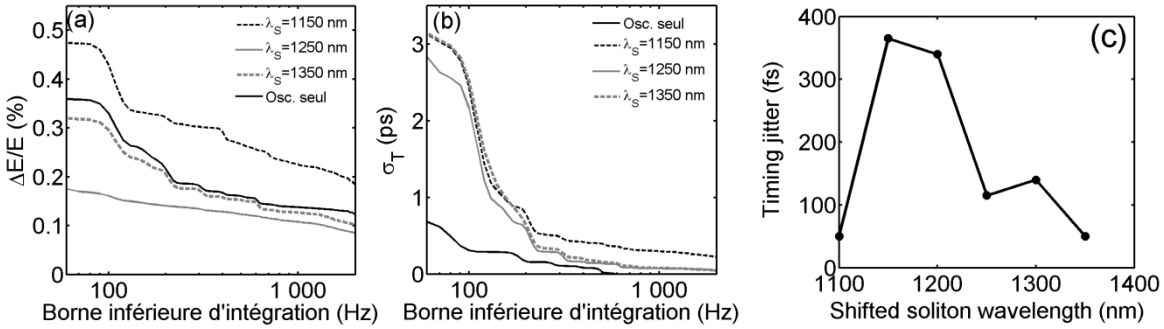


Figure 2-17: Bilan des calculs de gigues, de l'oscillateur seul (trait noir plein) et des décalages à 1150 (tirets noirs), 1250 (trait plein gris) et 1350 nm (tirets gris). (a) Bilan des gigues d'énergie. (b) Bilan des gigues temporelles. (c) Comparaison des gigues temporelles obtenues pour différents décalages, par l'intégration des spectres $L_J(f)$ entre 800 et 5 kHz.

Les gigues d'amplitude sont de l'ordre de 0.2 à 0.5 %. Ces valeurs sont en accord avec l'amplificateur de fluctuations relatives, ce qui laisse penser que ce dernier, présenté au chapitre 3, permet de s'affranchir correctement du bruit introduit par la chaîne de mesure. Les gigues temporelles sont très élevées (≈ 3 ps), mais chutent très rapidement avec la fréquence. Deux observations générales peuvent être tirées de ces mesures :

1. Les valeurs de gigues calculées ***chutent très fortement avec la borne inférieure d'intégration***, ce qui permet de déduire que la ***stabilité à court-terme (mégahertz) assez bonne mais une stabilité à moyen-terme (100 Hz) plus moyenne. Le SSFS introduit donc surtout de la gigue temporelle à long-terme.*** A court-terme, les valeurs de gigues très faibles (≈ femtoseconde) permettent d'affirmer que la synchronisation est possible. Cette observation sera validée par les opérations de synchronisation et de spectroscopie CARS effectuées au chapitre 5.
2. ***Le processus de SSFS n'introduit que de la gigue temporelle à long-terme***, les autres gigues mesurées provenant majoritairement de l'osillateur initial.

Les gigues augmentent de manière générale à haute fréquence pour un décalage proche de 1150 nm. Cette augmentation est attribuée au processus de fission du soliton d'ordre supérieur, car ce décalage coïncide avec la création d'un second soliton. Cette augmentation est clairement visible sur la Figure 2-17 (c), qui représente la gigue temporelle, issue de l'intégration des spectres entre 300 et 5 kHz, pour différents décalages de solitons.

Une observation générale est que la mesure de faibles fluctuations est une pratique extrêmement délicate qui nécessite une connaissance parfaite de la chaîne de mesure et des phénomènes induisant ces fluctuations. Ainsi, outre la mesure des gigues d'amplitude qui ont pu être confirmées par un autre moyen de mesure (chapitre 3), il vaut mieux considérer une analyse qualitative de la gigue temporelle si aucune contre-mesure n'est possible.

La stabilité à court terme étant démontrée, il est nécessaire de considérer la stabilité à long-terme (seconde->minute/heure), importante en imagerie biologique [H.A. Rinia, 2006, C.L. Evans, 2005].

2.3.2 Stabilité long-terme

La stabilité à long terme de l'expérience est fonction de la stabilité mécanique des différents composants (platines d'injection, supports d'optiques, table ...) Ces composants peuvent subir des dérives sur une échelle de temps de l'ordre de la seconde à la minute, ce qui est préjudiciable dans le cas de l'injection dans la fibre de SSFS. L'étude de cette stabilité est effectuée par l'enregistrement d'une mesure de puissance par seconde sur une heure, avec et sans l'activation du système de stabilisation (élément nommé "PZT" sur la Figure 2-5). Ce système est le système nommé « Nanotrack », fourni par la société Thorlabs. Ayant prouvé son efficacité [S. Michel, 2011], il est mis en œuvre à Dijon. Il repose sur l'optimisation de la puissance de sortie de la fibre. En effet, une partie de la puissance de sortie est récupérée par une photodiode. Le photocourant généré constitue un signal de contre-réaction pour la platine d'injection de la fibre, contrôlée par actionneurs piézoélectriques. Cette platine fait décrire des cercles à la fibre à une fréquence de plusieurs dizaines à centaines de Hertz. Toute baisse du signal de contre-réaction est interprétée et corrigée.

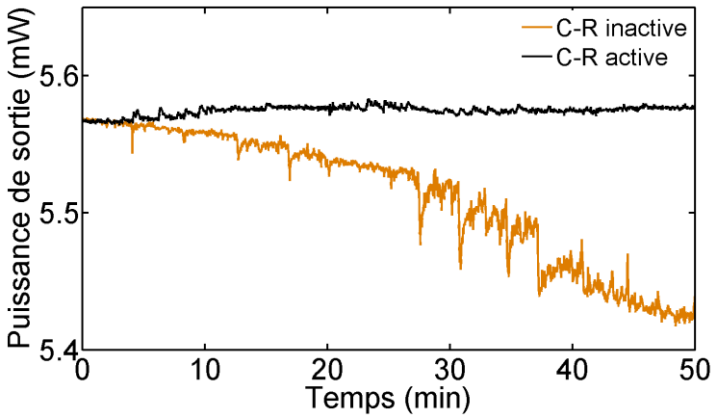


Figure 2-18 : Analyse de la stabilité à long-terme. La puissance de sortie de la fibre est mesurée avec le système de contre-réaction actif (noir) et inactif (orange)

L'apport de cette stabilisation est étudié par l'évolution de la puissance de sortie de la fibre générant les solitons décalés. Cette puissance est mesurée sur 50 minutes, à raison d'une mesure par seconde. La Figure 2-18 synthétise cette étude par la comparaison de l'évolution de la puissance pour une injection non-stabilisée (courbe orange) et stabilisée (courbe noire). La stabilisation permet de diminuer les fluctuations de puissance de 0.9 % (en écart-type) à 0.06 %. Ce méanisme e stabilisation est donc efficace. Cependant, un fonctionnement optimal impose un diamètre de rotation de la fibre de l'ordre du dixième de celui du faisceau focalisé. Dans ce cas, on atteint le diamètre minimal possible pour le système de stabilisation et bien que la stabilité à long-terme soit améliorée, il a été relevé un léger élargissement spectral des solitons décalés ainsi qu'une augmentation de la gigue d'énergie pour certains spectres RF. Ainsi, bien que son utilité ait été prouvée, il serait nécessaire, par exemple, de le tester lors de l'enregistrement de spectres CARS afin de réellement établir sa pertinence.

Conclusion du chapitre

Ce chapitre a présenté l'auto-décalage en fréquence d'un soliton (ou SSFS, Soliton Self-Frequency Shift) au sein de fibres microstructurées. Différentes fibres ont été testées et ont abouti, pour la fibre choisie, à un décalage de 320 nm pour une densité spectrale d'énergie moyenne de 6 pJ/nm. Ces tests ont conforté les choix initiaux d'un pompage loin des longueurs d'onde de dispersion nulle, d'une zone de dispersion anormale très large et d'une non-linéarité limitée.

La fibre choisie permet une imagerie CARS de résonances de 2200 cm^{-1} au maximum. Des fibres présentant des pertes OH plus faibles ont été testées et ont abouti à un décalage jusqu'à 1700 nm qui permettent au dispositif final d'accéder à toute la gamme spectrale d'intérêt. Cependant ces fibres présentent des densités d'énergie, bien que suffisantes, plus faibles.

Une conclusion importante est que les quelques règles simples de conception (grande valeurs de dispersion, intervalle spectral de dispersion anormale large et pompage loin des longueurs d'onde de dispersion nulle) permettent d'obtenir une DSE de 5 à 8 pJ/nm, égale ou supérieure à de nombreuses démonstrations similaires. On peut donc s'attendre à des performances accrues en termes d'imagerie CARS par rapport à ces démonstrations.

Enfin, la stabilité à court et long terme du système a été étudiée. Des gigues d'amplitude de 0.3 % et temporelle de 3 ps ont été mesurées et permet la synchronisation des impulsions pompe et Stokes nécessaire à l'imagerie CARS. Elles sont relativement constantes avec la longueur d'onde de décalage. Il a été constaté que le SSFS introduit surtout de la gigue temporelle.

3 Applications de l'effet Raman intra-impulsion

Le chapitre 2 a montré le potentiel important du SSFS (décalage Raman intra-impulsion, ou Soliton Self-Frequency Shift) et la diversité de ses applications. Dans cette optique d'une source multi-usages, ce chapitre présente deux applications distinctes de cet effet :

1. l'amplification des fluctuations relatives d'amplitude d'un train d'impulsions, afin de mieux les détecter et voire de les mesurer.
2. le balayage rapide, sur un certain intervalle spectral, de la longueur d'onde centrale du soliton décalé, qui sera vu par un milieu biologique comme un supercontinuum. Ce type de balayage rapide est appelé "quasi-supercontinuum" et son intérêt pour la tomographie de cohérence optique (ou OCT : Optical Coherence Tomography) a récemment été démontré [K. Sumimura, 2008].

3.1 L'amplification de faibles fluctuations relatives d'amplitude

La partie 2.3 a présenté l'analyse du spectre radiofréquence du train des impulsions spectralement décalées afin d'extraire de cette gamme de fréquences les fluctuations temporelle et d'amplitude. Cette analyse nécessite cependant de nombreuses hypothèses et approximations qui rendent l'interprétation des spectres peu aisée. Dans le même temps, certaines méthodes d'imagerie comme la microscopie SRS (chapitre 1) ont pour principe la détection de faibles fluctuations d'intensité. Ce type de microscopie emploie généralement une détection synchrone [Syndenham and

Thorn, 2009] qui demeure peu évidente à mettre en œuvre. D'autres solutions existent pour la détection de ces fluctuations ou la mesure de tels bruits, comme les mesures d'auto et d'inter-corrélation d'un train d'impulsions [J. Fatome, 2008]. Cependant, toutes ces méthodes sont limitées soit par le taux de répétition de la source, soit par l'utilisation d'instruments spécifiques et onéreux.

Dans ce contexte, il a été récemment proposé d'amplifier les fluctuations relatives d'intensité d'un train d'impulsion afin de mieux les détecter et les caractériser [C. Finot, 2010]. Le principe de cette amplification est présenté en première partie, ainsi que sa mise en œuvre dans le montage actuel.

3.1.1 Mise en œuvre expérimentale

3.1.1.1 Principe

L'objectif est d'amplifier les fluctuations relatives, définies comme $\Delta P/P_m$, avec ΔP l'écart-type de ces fluctuations et P_m la puissance moyenne. Le principe employé est illustré en Figure 3-1 (a) et est visualisé relativement simplement à l'aide d'un diagramme de l'œil, qui est la superposition, au cours du temps, des différentes périodes d'un signal périodique. Ces diagrammes sont représentés par les formes sur fond noir.

En pratique, il est nécessaire de créer une fonction de transfert en puissance qui peut être décrite par une fonction affine dont l'ordonnée à l'origine est négative. Cette fonction doit donc être constituée d'un « front montant » qui coupe l'axe des abscisses à une certaine puissance (notée P_c). Une telle fonction est représentée en trait continu noir en Figure 3-1 (b).

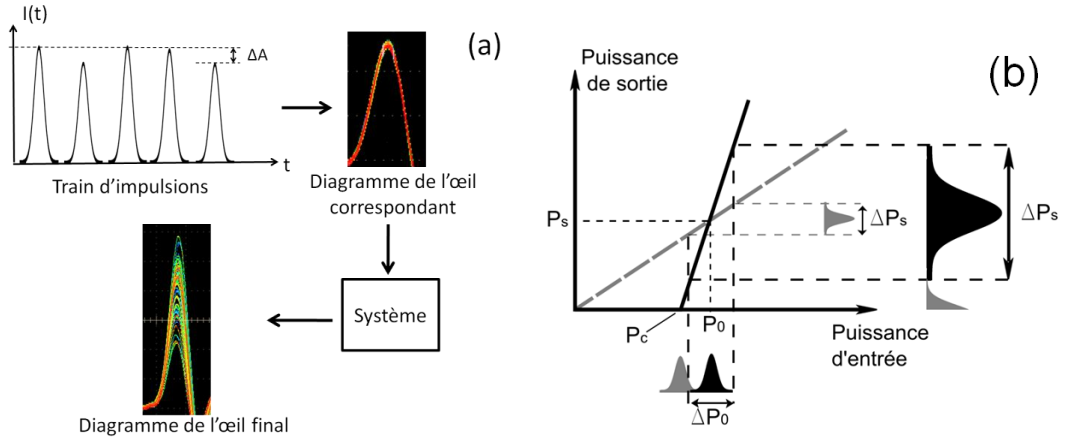


Figure 3-1 : Principe du dispositif. P_0 : puissance d'entrée, ΔP_0 : fluctuation de cette puissance, Pc : puissance de seuil, Ps : puissance de sortie, ΔPs : fluctuation de cette puissance. (a) Effet du dispositif sur un signal entrant. (b) Fonction de transfert.

Dans une telle fonction, les fluctuations relatives du signal de sortie sont reliées aux fluctuations relatives du signal d'entrée par la relation suivante [C. Finot, 2011] :

$$\frac{\Delta P_s}{P_s} = \frac{\Delta P_0}{P_0} \frac{1}{1 - P_c/P_0} \tag{3.1}$$

Le coefficient d'amplification G est donc $G = \frac{1}{1-{P_c}/{P_0}}$ avec P_0 la puissance de travail. On constate ainsi qu'une valeur absolue du coefficient d'amplification supérieure à 1 impose la double inégalité suivante : $\boldsymbol{0 < P_c < 2P_0}$. Cette double inégalité exclut une fonction de transfert strictement linéaire, dont un exemple est donné en Figure 3-1 (b) par la fonction en tirets gris.

De telles fonctions ont ainsi été construites aux longueurs d'onde des télécommunications optiques [C. Finot, 2010]. Leur constitution reposait sur l'élargissement spectral d'une impulsion picoseconde dans un régime purement non-linéaire. En effet dans cette configuration, l'auto-modulation de phase est l'effet non-linéaire dominant et l'élargissement spectral caractéristique de cet effet créé des oscillations en puissance de la fréquence centrale de l'impulsion, comme le montre la Figure 3-2 (a).

Un réseau de Bragg fibré (ou FBG : Fiber Gragg Grating, forme gaussienne verte en Figure 3-2 (a)) permet alors d'isoler cette puissance, qui correspond à la puissance de sortie du système. La fonction de transfert liant cette puissance à la puissance d'entrée est montrée en Figure 3-2 (b). On reconnaît en tirets verts la fonction de transfert souhaitée.

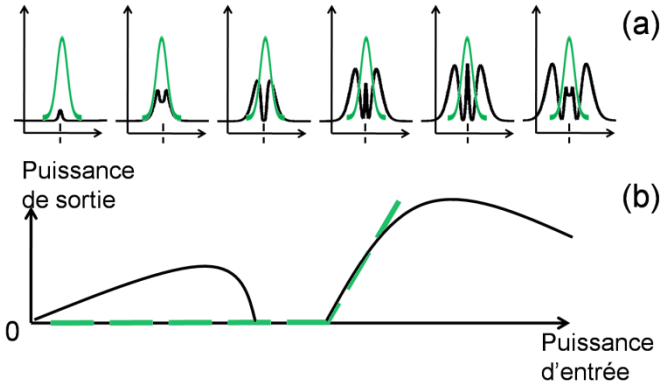


Figure 3-2 : Principe de la génération de la fonction de transfert employée par Finot *et al.* [C. Finot, 2010] (a) Evolution caractéristique du spectre d'une impulsion gaussienne uniquement soumise à l'auto-modulation de phase (lignes noires). Représentation du filtrage du centre du spectre (lignes vertes). (b) Fonction de transfert résultante (ligne noire) et comparaison à la fonction de transfert idéale (tirets verts).

Ce montage a permis de démontrer un coefficient d'amplification de 10. Il a de plus été démontré que si les fluctuations d'entrée sont suffisamment faibles pour être contenues dans la partie linéaire du front montant, la distribution statistique des fluctuations se conservait, comme le montre la statistique noire de la Figure 3-1 (b).

Les performances de tels systèmes peuvent donc être définies par deux caractéristiques : ***la linéarité du front montant de la fonction de transfert*** et ***le coefficient d'amplification G***.

3.1.1.2 Dispositif mis en œuvre

La problématique réside donc dans l'obtention d'une fonction de transfert adéquate. Cette fonction peut être construite grâce au SSFS, à la suite duquel on applique un filtrage passe-haut. Ce filtrage détermine la longueur d'onde correspondant à la puissance P_c. Le principe est illustré en Figure 3-3 (a) et (b), pour une longueur d'onde de coupure de 1200 nm. On souligne le fait que cette configuration et bien distincte de la précédente démonstration et n'est pas une simple transposition. En effet, l'effet physique exploité est totalement différent et est, lui, adapté à des impulsions sub-picoseconde.

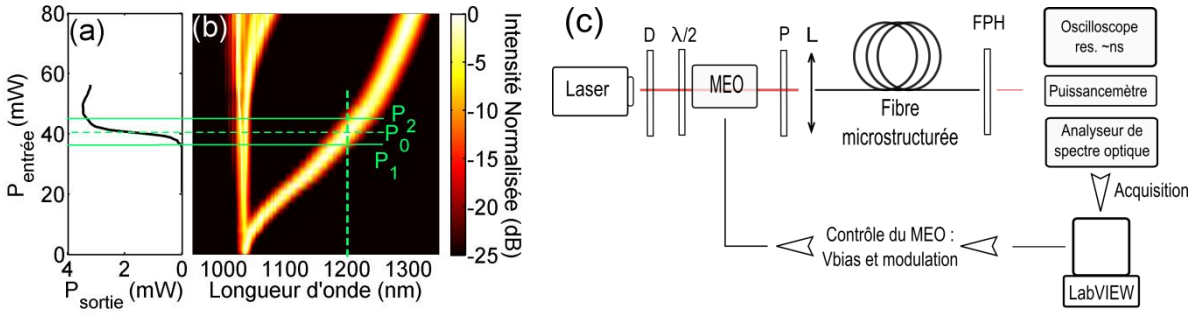


Figure 3-3 : Principe du montage et dispositif expérimental. (a) Fonction de transfert utilisant un filtre passe-haut de longueur d'onde de coupure de 1200 nm. (b) Cartographie du spectre de sortie de fibre en fonction de la puissance incidente (c) Montage expérimental. D : densité variable, λ/2 : lame demi-onde, MEO : modulateur électro-optique, P : polariseur, L : lentille, FPH : filtre passe-haut.

La fonction de transfert obtenue peut être divisée en trois parties. Pour une puissance d'entrée faible (inférieure à P_1) et donc un décalage spectral faible, la longueur d'onde du soliton décalé n'atteint pas la longueur d'onde de coupure du filtre et la puissance de sortie est nulle. Pour une puissance d'entrée comprise entre P_1 et P_2, le soliton décalé atteint et passe progressivement la longueur d'onde de coupure du filtre et la puissance augmente rapidement. Il s'agit bien sûr de la zone délimitant le front montant de la fonction. Enfin, pour des puissances supérieures à P_2, le soliton décalé n'est plus filtré et la puissance de sortie se stabilise, la légère décroissance observée étant due à la formation du second soliton.

Le dispositif expérimental mis en œuvre s'appuie donc sur le montage classique d'auto-décalage Raman de solitons et est représenté en Figure 3-3 (c). La fibre utilisée pour les mesures est la fibre NL-1.8-710, choisie au chapitre 2 pour ses performances, et choisie dans le cas présent pour son décalage progressif et important (320 nm). A ce montage, on ajoute un filtre passe-haut en sortie de fibre à la longueur d'onde de coupure choisie (1150 ou 1200 nm pour les mesures effectuées). On enregistre soit la puissance de sortie dans le cas de la réalisation d'une fonction de transfert, soit le signal d'une photodiode (bande passante de 5 GHz) reliée à un oscilloscope (bande passante de 500 MHz, fréquence d'échantillonnage de 5.10^9 échantillons/seconde) dans le cas de l'observation temporelle du signal de sortie. Dans ce cas, le signal issu de la photodiode, trop lente pour résoudre temporellement les impulsions, est relié à l'énergie de ces dernières. Un générateur de fonctions arbitraires est utilisé pour imposer au modulateur électro-optique soit un signal continu dans le cas des fonctions de transfert soit des signaux évolués (signal carré au rapport cyclique variable, signal triangle, bruit...) pour l'étude de la distribution statistique du signal de sortie.

Note sur le filtre de sortie : Il est important de remarquer que la pente du front montant du filtre de sortie utilisé n'est pas infinie. En effet, la largeur de ce front montant du filtre est d'environ 15 nm (définie à partir des données constructeur par le passage de 10 à 90 % du taux de transmission maximal) et correspond à la largeur spectrale des solitons décalés. Il se confond donc avec la fonction de transfert de la Figure 3-3 (a). L'utilisation d'un filtre plus raide permettrait de déterminer clairement son influence sur la fonction de transfert totale. Cette précision ne remet cependant pas en cause le fonctionnement du dispositif actuel.

3.1.1.3 Fonctions de transfert du système

Les premiers tests réalisés consistent à vérifier que l'on obtient bien les fonctions de transfert souhaitées. Des fonctions de transfert pour différentes longueurs d'onde de coupure sont enregistrées et représentées en Figure 3-4 (a). Ces fonctions sont construites à partir de 100 points de mesure sur un intervalle de puissance d'environ 20 mW. Le pas de puissance incidente est donc d'environ 0.2 mW et les fronts montants des fonctions sont constitués d'environ 20 points. Une comparaison à 1200 nm avec une fonction de transfert construite à partir de 1000 points de mesure a été effectuée mais n'est pas représentée ici. Cette comparaison a mené à des fonctions identiques ce qui signifie que l'échantillonnage choisi est suffisant pour la suite des mesures.

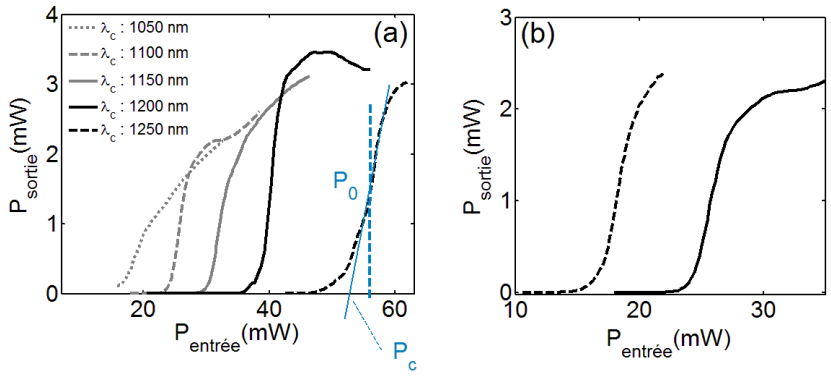


Figure 3-4 : Analyse des fonctions de transfert. (a) Fibre NL-1.8-710, fonctions de transfert pour différentes longueurs d'onde de coupure : 1050 nm (points gris), 1100 nm (tirets gris), 1150 nm (ligne grise), 1200 nm (ligne noire) et 1250 nm (tirets noirs). (b) Longueur d'onde de coupure de 1100 nm, comparaison des fonctions de transfert effectuées grâce aux fibres NL-1.7-765 (ligne continue) et NL-1.8-710 (tirets)

Les différentes fonctions montrent une forme en très bon accord avec les besoins du dispositif, à savoir un front montant prononcé à partir d'une certaine puissance de coupure P_c. La forme simple et marquée des fonctions, qui ne présentent plus de "rebonds" comme celui présent à faible puissance d'entrée sur la Figure 3-2 (b), est une amélioration significative par rapport à la précédente démonstration [C. Finot, 2010]. On constate que le front montant est moins prononcé pour la longueur d'onde de coupure de 1050 nm car celle-ci étant proche de la longueur d'onde de l'oscillateur (1033 nm), elle ne nécessite qu'une faible puissance injectée pour être atteinte. La décroissance observée pour la fonction de transfert issue de l'utilisation d'un filtre de longueur d'onde de coupure de 1200 nm est due à la formation d'un second soliton (voir la Figure 3-3 (b)). Les valeurs P_0, P_c et les coefficients d'amplification résultants sont réunis dans le Tableau 3-1 ci-dessous.

Filtre	P_0 (mW)	P_c (mW)	G
1100	25.5	24.3	21.3
1150	31.8	30.5	24.5
1200	40.1	38.2	21.1
1250	56.7	53.8	19.6
1300	73.6	71.2	30.7

Tableau 3-1 : Coefficient d'amplification calculés à l'aide de la relation 3.1

Contrairement au cas idéal, le front montant n'est pas linéaire, notamment pour les puissances de sortie faibles. Ainsi la valeur de P_c est donnée par l'intersection de l'axe des abscisses avec la tangente à la partie linéaire de ce front (voir la Figure 3-4 (a)). Une valeur moyenne de gain de 21.6

pour un écart maximal à cette moyenne de 2.1 est calculé pour les fonctions de 1100 à 1250 nm. Cette valeur stable (± 10 %) s'explique par un décalage linéaire du soliton en fonction de la puissance injectée. Cette linéarité se dégrade vers 1300 nm et explique la valeur de gain différente.

La fibre utilisée influe fortement sur les propriétés de la fonction de transfert. En effet, comme le montre la Figure 3-4 (b), l'utilisation d'une fibre avec une dispersion plus faible (fibre NL-1.7-765, Blaze Photonics) entraîne un décalage du soliton plus rapide (donc un front montant plus raide), mais dans le même temps diminue la puissance de seuil P_c. Il est donc difficile d'établir une relation directe entre les propriétés de la fibre et ses performances (pente et linéarité) car celles-ci résultent d'un équilibre entre rapidité de décalage et énergie maximale du soliton. Cependant on peut penser qu'un décalage plus rapide n'est pas préférable. Cette hypothèse semble confirmée par les valeurs de gain calculées pour la fibre NL-1.7-765, qui sont plus proches de 15. ***La fibre NL-1.8-710 sera donc utilisée, et ce à 1200 nm, car la fonction de transfert relative à cette longueur d'onde présente un front montant très linéaire sur un intervalle de puissance de sortie important.***

Il est maintenant nécessaire de vérifier le bon fonctionnement de cette configuration.

3.1.2 Caractérisation des fluctuations relatives amplifiées

3.1.2.1 Amplification des fluctuations relatives

L'amplitude des fluctuations du signal acquis par la photodiode est mesurée via la distribution statistique de sa valeur crête. Cette distribution statistique est établie par un module d'analyse de données intégré à l'oscilloscope utilisé. Ce module effectue un histogramme statistique de l'amplitude du signal présent dans une fenêtre temporelle donnée.

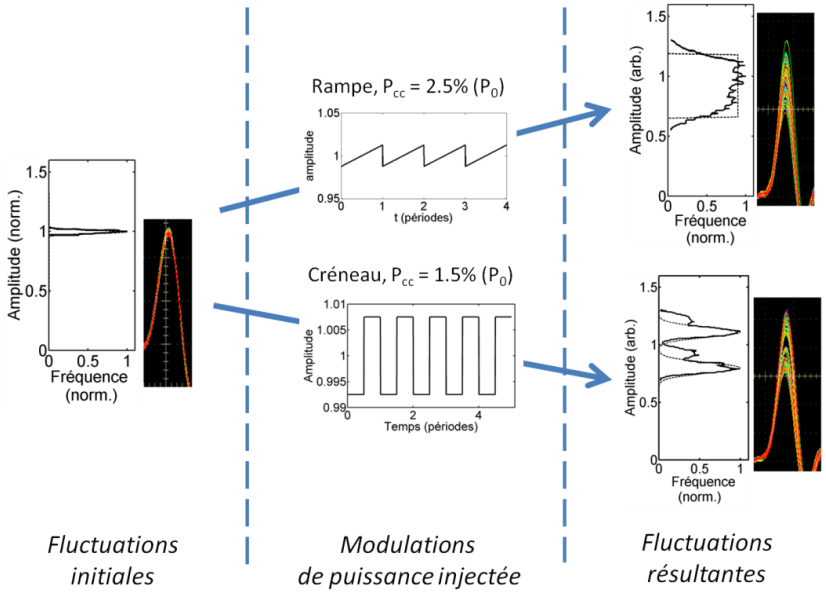


Figure 3-5 : Caractérisation du coefficient d'amplification : distribution statistique du signal initial (gauche), fonctions de modulation d'intensité appliquées au train d'impulsions initial (centre) et distributions statistiques résultantes (lignes continues, droite) comparées aux statistiques théoriques attendues (tirets, droite).

Une première vérification consiste à enregistrer les fluctuations du signal sans aucune modulation imposée sur la puissance injectée dans la fibre. Dans ce cas, le niveau de ces fluctuations doit être proche du niveau de fluctuations calculées en partie 2.3, qui est de 0.3 %. Un exemple de fluctuations enregistrées est donné par la partie de gauche de la Figure 3-5, nommée "fluctuations initiales". La longueur d'onde de coupure choisie est de 1200 nm. La largeur à mi-hauteur de ces fluctuations a été estimée à 6.7 % environ. La division de cette valeur par le gain de la fonction de transfert (21.1) permet d'estimer le niveau réel à 0.32 % qui est en accord avec la valeur calculée précédemment.

Une seconde vérification consiste à appliquer au modulateur une rampe de tension (milieu de la Figure 3-5, nommé "modulations de puissance injectée"). Cette rampe de tension génère une fluctuation relative de 2.5 % par rapport à la puissance de travail (40 mW). Le signal résultant est montré Figure 3-5, dans la partie de droite (nommée "fluctuations résultantes"). L'amplitude des fluctuations du signal résultant est égale à 50 % de sa valeur moyenne. Le facteur d'amplification de 20 concorde avec le coefficient calculé précédemment.

Une dernière vérification est effectuée avec un signal de modulation carré imposant des fluctuations de 1.5 % de la puissance d'entrée. Cette modulation impose une distribution statistique de la puissance d'entrée sur deux niveaux de puissance. Le signal résultant est également représenté Figure 3-5. L'écart en amplitude des deux composantes de ce signal divisé par la moyenne des deux donne une valeur de 29.5 % ce qui permet de confirmer le coefficient d'amplification et de valider le montage. Les légers rebonds observés sont des artefacts de mesure. La valeur de 1.5 % a été choisie afin de visualiser clairement la séparation des deux niveaux du signal. Ainsi, si toutes les précautions sont prises quant à la stabilité de ce système, des fluctuations relatives d'amplitudes inférieures au pourcent sont détectables et mesurables.

Le fonctionnement du système, ainsi que son premier critère de performance (le coefficient d'amplification), ont été vérifiés et validés. Il est maintenant nécessaire d'étudier le second critère, à savoir la linéarité du front montant des fonctions de transfert, entrainant la conservation de la distribution statistique de l'amplitude du signal d'entrée. Les distributions statistiques des signaux représentés en Figure 3-5 semblent vérifier ce critère, étudié en partie suivante.

3.1.2.2 Conservation de la distribution statistique des fluctuations

Afin de tester ce critère, on impose tout d'abord au signal entrant un bruit blanc gaussien de largeur à mi-hauteur égale à 2.5 % de la puissance de travail. Le signal résultant et sa distribution statistique sont donnés Figure 3-6 (a). Pour chaque signal de modulation, la statistique résultante (ligne continue) est comparée à la forme théorique attendue (tirets).

La distribution statistique concorde avec une distribution gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à 50 % du niveau de signal moyen. Ce résultat est comparé avec le signal résultant issu de la rampe de tension précédente, qui possède également une amplitude de 2.5 % de la puissance de travail. Cette rampe de tension impose une distribution statistique uniforme à la puissance du signal d'entrée. La forme de la distribution concorde à nouveau. Une dernière vérification est effectuée. Pour ce faire, le signal carré précédent (Figure 3-5) est repris et comparé avec un signal issu d'une modulation présentant un rapport cyclique de 70 %. Une fois encore, la distribution statistique représentée Figure 3-6 (c) concorde, en reproduisant correctement l'effet du rapport cyclique sur la

distribution statistique finale. De mainère identique à la partie 3.1.2.1, les légers rebonds observés correspondent à des artefacts de mesure.

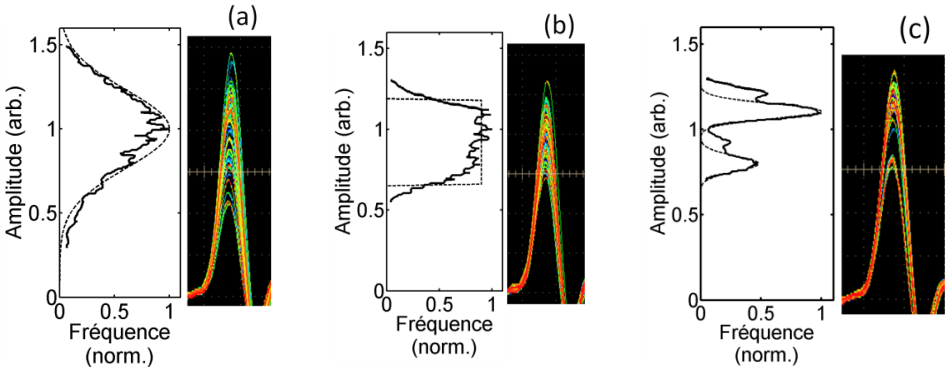


Figure 3-6 : Conservation de la distribution statistique de la puissance d'entrée, pour différentes modulations imposées à cette puissance : (a) Modulation gaussienne, largeur à mi-hauteur = 2.5 %(P_0). (b) Modulation uniforme, amplitude = 2.5 %(P_0). (c) Modulation sur deux niveaux de puissance, amplitude = 1.5 %(P_0). Chaque statistique expérimentale (ligne continue) est comparée à la forme théorique attendue (tirets).

Toutes ces mesures ont été effectuées pour des signaux de modulation de faible amplitude et situés dans une zone de travail linéaire. Cependant il serait intéressant d'effectuer des tests dans une zone non-linéaire, par exemple à la puissance de coude, pour vérifier si la distribution statistique des fluctuations est simplement tronquée ou si d'autres effets apparaissent.

3.1.2.3 Importance de la puissance de travail

Déformation des distributions statistiques résultantes : La distribution statistique du signal résultant est étudiée pour une puissance de travail située au niveau des deux "coudes" de la fonction de transfert. Les résultats sont visibles en Figure 3-7 (b) et (c).

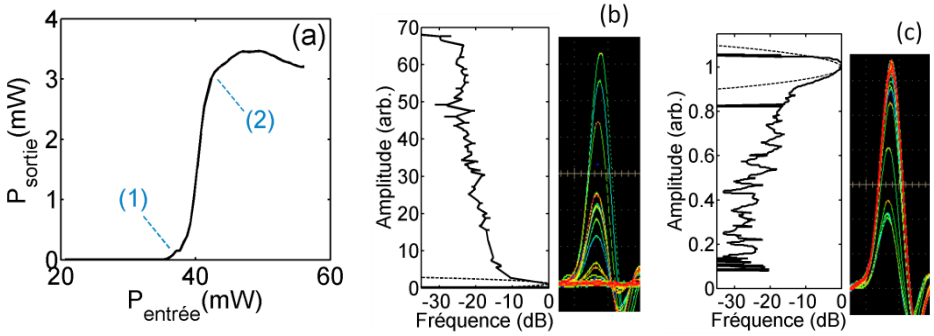


Figure 3-7 : Génération de statistiques déformées. (a) Fonction de transfert qui indique les positions des puissances moyennes employées. (b) Distribution statistique du maximum de signal, puissance de travail en bas du front montant. (c) Distribution statistique du maximum de signal, puissance de travail en haut du front montant.

Les points de fonctionnement (1) et (2) (Figure 3-7 (a)), associés à une distribution initiale de puissance uniforme de 25 % de la puissance de travail (du type de celle présente en Figure 3-6 (b)), montrent des distributions s'écartant fortement de la distribution uniforme attendue. Ces distributions présentent des évènements s'écartant fortement de la distribution moyenne. Ce type

d'évènement, au sein d'une distribution statistique, est défini comme étant un évènement extrême [Hammani, 2011]. Ce résultat confirme le rôle déterminant du filtrage sur la conservation de la distribution du signal entrant. En effet, dans le cas de la Figure 3-7, les distributions possèdent donc des formes caractéristiques de la présence d'évènements de type extrême [Hammani, 2011], bien que le système n'en génère *a priori* pas. Le point suivant discute la présence possible de ce type d'évènement, afin de confirmer ou d'infirmer le rôle de la puissance de travail sur la forme des distributions. On souligne que cette observation fait écho à la remarque finale de Jukna *et al.* [V. Jukna, 2012] dont le travail porte sur le transfert des fluctuations d'un train d'impulsions dans différents régimes de fonctionnement d'un amplificateur optique paramétrique (ou OPA : Optical Parametric Amplifier).

Présence d'évènements extrêmes : Soit une variable aléatoire U possédant une fonction de densité de probabilité. Un évènement extrême est défini comme étant un évènement qui s'écarte de la valeur médiane de U de plus de 2 fois son écart-type [Hammani, 2011]. Ces évènements extrêmes ont été étudiés de manière intensive ces dernières années en optique guidée, notamment au sein d'amplificateurs fibrés [K. Hammani, 2008, K. Hammani, 2009] ou de supercontinua [J.M. Dudley, **2008**]. La génération de tels évènements au sein d'amplificateurs s'effectue par le transfert du bruit du signal de pompe vers le signal amplifié. Il nécessite donc la présence de deux faisceaux au sein d'une même fibre ce qui n'est pas le cas de la configuration présente. Aussi il n'est analysé que l'apparition de ces évènements au sein des supercontinua.

Au sein de ces supercontinua, de tels évènements sont dus à des collisions entre solitons, qui permettent à un soliton puissant d'augmenter son énergie et son décalage Raman [A. Mussot, 2009, F. Luan, 2006]. Quand cette forte augmentation du décalage Raman, pour une puissance donnée, aboutit à un décalage nettement plus important que le décalage moyen, on parle d'évènement extrême. Les collisions qui se produisent nécessitent la présence de multiples solitons coïncidant temporellement au cours de leur propagation au sein de la fibre. La configuration actuelle, utilisant des fibres à grande valeur de dispersion, est optimisée pour la création de solitons en faible nombre (voir le chapitre 2). De plus, cette grande valeur de dispersion sépare temporellement très rapidement les solitons multiples générés par une puissance injectée importante. Elle agit donc contre les collisions entre ces solitons et contre la génération de « solitons extrêmes » pouvant mener à des évènements extrêmes. Aussi, la génération d'évènements extrêmes n'est pas possible *a priori* au sein du dispositif actuel, et les distributions statistiques observées en Figure 3-7 sont uniquement dues à la position particulière du signal injecté sur la fonction de transfert. Cette observation est d'importance pour les études de génération d'évènements extrêmes, notamment au sein de supercontinua, qui emploient un filtrage spectral passe-haut [M. Erkintalo, 2009, M. Erkintalo, 2010].

Il a ainsi été démontré un dispositif efficace, à large bande spectrale, et totalement compatible avec les impulsions sub-picoseonde, d'amplification de faibles fluctuations relatives d'intensité. Ce dispositif, qui emploie le filtrage spectral passe-haut de l'auto-décalage Raman d'un soliton, présente de plus l'avantage de conserver la distribution statistique du signal d'entrée. Une amplification d'un facteur 20 a ainsi été démontrée et des fluctuations relatives d'amplitude inférieures à 0.5 %, correspondant aux fluctuations de l'oscillateur seul, ont pu être calculées et concordent avec d'autres mesures.

3.2 Le quasi-supercontinuum

Cette seconde application consiste en la génération de "continua artificiels", ou "quasi-supercontinua". Ce type de source présente des applications en OCT.

3.2.1 Introduction, dispositif expérimental

Comme évoqué en partie 1.1, les techniques d'OCT [D. Huang, 1991] sont intéressantes car elles réalisent un pont entre les microscopies classiques (linéaires ou non) et les techniques d'échographie utilisant les ultrasons. Elles permettent en effet de contourner la faible profondeur de pénétration des unes et la faible précision spatiale des autres. Outre le travail effectué sur le traitement des signaux d'interférences acquis en continu lors du processus d'imagerie, qui permet d'augmenter le taux de rafraichissement des images générées par cette technique, un effort important s'est porté sur l'amélioration de la résolution spatiale qui passe par le développement de sources lumineuses adéquates. En effet, quelque soit le type d'OCT, la clé de la résolution spatiale se situe dans une source lumineuse spectralement large [W. Drexler, 2008]. Divers types de sources ont été utilisées : SLDs (Super Luminesent Diodes) [E. A. Swanson, 1993], sources femtoseconde [B. Bouma, 1995] et supercontinua [I. Hartl, 2001] sont les sources les plus courantes. Cependant, les SLD ou les lasers femtoseconde sont limités par leur largeur de bande (environ 60 nm) et les supercontinua par leur spectre souvent chahuté qui nécessiterait une mise en forme ultérieure.

Pour palier à ces inconvénients, Sumimura *et al.* ont démontré la génération de "quasi-supercontinua" (ou ***QSC***) [K. Sumimura, 2008, K. Sumimura, 2010] dont le principe est présenté en Figure 3-8 (a). En faisant varier rapidement la longueur d'onde des solitons décalés et en répérant cette variation périodiquement et le plus rapidement possible (c'est à dire à une fréquence de balayage la plus élevée possible), le spectre est "vu" (pour l'analyseur de spectre comme pour l'échantillon) comme un supercontinuum et a été appelé "quasi-supercontinuum". Ce terme est ici employéau lieu du terme "source balayée en fréquence" car le but est bien, du point de vue de l'échantillon, de disposer d'un spectre large et non pas d'une longueur d'onde variable dans le temps.

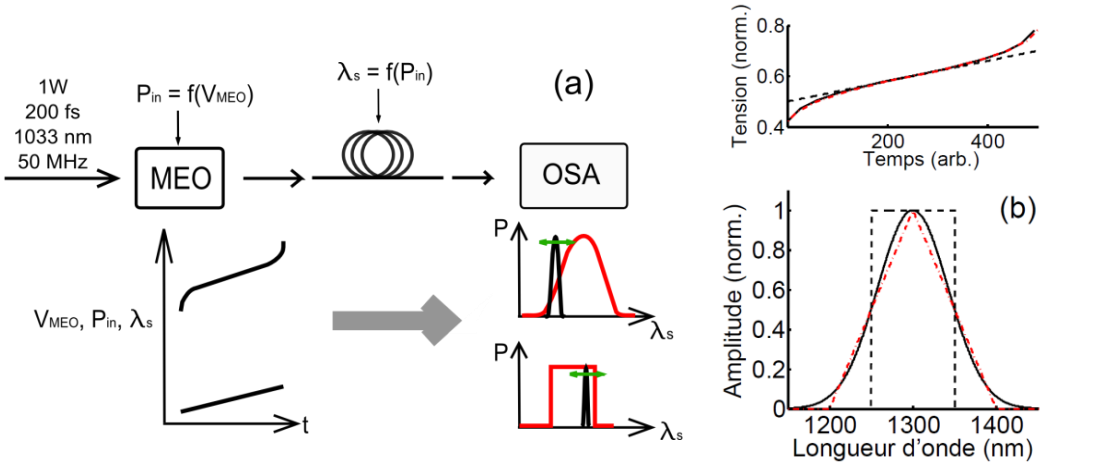


Figure 3-8 : Principe de génération de QSC (a) Principe. MEO : modulateur électro-optique, OSA : analyseur de spectre optique, P_{in} : puissance injectée dans la fibre, V_{MEO} : tension appliquée au modulateur électro-optique, λ_S : longueur d'onde des solitons générés par SSFS (chapitre 2). (b) Fonctions théoriques et spectres correspondants.

Comme le montre la Figure 3-8 (b), la longueur d'onde centrale, la largeur et la forme du spectre sont ajustés en modulant à la bonne vitesse et à la bonne amplitude la puissance injectée dans la fibre, ce qui est effectué au moyen d'un modulateur électro ou acousto-optique. En effet selon la Figure 3-8 (b), l'amplitude de la modulation en puissance contrôle la largeur du spectre, la tension centrale de modulation contrôle la longueur d'onde centrale et la pente de la fonction contrôle la densité spectrale de puissance à une longueur d'onde donnée en contrôlant le "temps de pose" du soliton à cette longueur d'onde. De la sorte, des spectres de forme gaussienne de 78 nm autour de 1660 nm (2008) et de 220 nm autour de 1220 nm (2010) ont été démontrés. Une résolution spatiale dans l'air de 17 µm pour les premiers et de 5.5 µm pour les seconds ont été démontrées au moyen d'un simple interféromètre de Michelson fibré. Les seconds ont également été utilisés en imagerie OCT *in vitro*. La Figure 3-8 (b) illustre ce contrôle par différentes fonctions théoriques à appliquer pour obtenir différentes formes de spectres. Ces formes théoriques peuvent être expliquées simplement :

- ***spectre plat :*** le même "temps de pose" est appliqué sur toutes les composantes spectrales. La forme de la fonction de modulation est donc un segment de droite délimité par les deux longueurs d'onde extrémales, ce qui correspond, pour un aller-retour du soliton entre ces deux longueurs d'ondes, à une fonction de modulation en triangle. Le coefficient directeur n'a pas d'importance dans le cas présent.
- ***spectre "impulsionnel" :*** le temps de pose des différentes composantes varie et la fonction de modulation présentera des "coudes" correspondant aux pieds de l'impulsion, où la puissance varie rapidement. Pour des signaux de type impulsion symétrique, les fonctions posséderont une forme de "s" allongé.

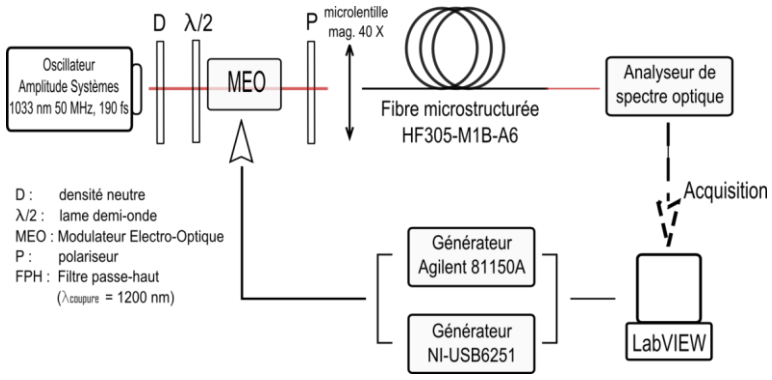


Figure 3-9 : Dispositif mis en œuvre.

La génération de QSC repose une nouvelle fois sur le dispositif classique de décalage Raman d'un soliton décrit au chapitre 2. Le dispositif utilisé est représenté en Figure 3-9. L'évolution principale est l'introduction d'une boucle de contre-réaction (symbolisée par la flèche en tirets) permettant d'optimiser la fonction de modulation afin de s'approcher au mieux du QSC souhaité. Cette boucle est décrite en partie 3.2.3. La fibre microstructurée utilisée pour ces mesures est la HF305-M1B-A6 de PERFOS qui présente un pic d'absorption OH réduit. Il a ainsi été possible de réaliser des quasi-SC qui passaient outre ce pic. Le signal issu de la fibre microstructurée est récupéré par une fibre monomode classique SMF28, pour laquelle il a été vérifié qu'elle n'influençait pas les spectres obtenus (en termes de largeur ou de forme). Le seul effet limitant est la perte de son

caractère monomode en dessous de 1.26 µm qui se traduit par les fortes oscillations observées dans les QSC obtenus.

Le signal de modulation est généré, au choix, par deux appareils : un générateur de signal Agilent N81150A, ou un boitier d'acquisition-génération de signal NI-USB-6251. Le second présente une bande passante nettement moindre que celle du premier et va donc diminuer la fréquence d'application du signal de modulation. Il est cependant beaucoup plus intégrable dans un système général. Cette fréquence d'application du signal de modulation est de plus limitéé par la bande passante de l'amplificateur haute tension du modulateur électro-optique. Celle-ci a en effet été estimée (par déformation d'un signal carré ou diminution de l'amplitude d'un signal sinusoïdal) à 15 kHz. Ainsi, bien que la démonstration de quasi-supercontinua soit tout à fait possible, son utilisation efficace à des fins d'OCT nécessiterait son remplacement. Il a été vérifié que la limite est imposée par l'amplificateur car le modulateur même présente une très faible capacité qui ne baisse donc pas la bande passante [Falco, 2012].

3.2.2 Démonstration expérimentale

Contrôle de la largeur du QSC créé : Dans un premier temps, le générateur Agilent est employé afin de générer des signaux de modulation de type triangles, qui correspondent à des "allers-retours" d'une rampe de tension. La puissance injectée dans la fibre varie donc de manière continue bien que la fonction de transfert du modulateur ne puisse pas tout à fait être assimilée à une droite. L'intérêt est de pouvoir contrôler l'amplitude et l'offset de cette fonction de modulation.

La Figure 3-10 (a) montre des QSC générés par des signaux de modulation de même amplitude mais avec une tension d'offset différente. La rampe possédant l'offset le plus faible (spectre noir, signal 1) montre un QSC de qualité, plat et large (spectre noir, environ 200 nm). Cependant on constate qu'une rampe d'amplitude crête à crête identique mais possédant un offset plus important (spectre orange, signal 2), qui "décale" ce QSC vers les grandes longueurs d'onde, devrait être modifiée pour compenser la perte de puissance subie par les solitons lors de l'approche du pic OH (situé à 1380 nm). Ce spectre comporte également un pic vers 1170 nm qui est en fait un second soliton décalé qui apparaît à haute puissance. Les largeurs des QSC sont différentes car une partie de la fonction de modulation du premier spectre (signal 1) correspond à un décalage spectral nul et de fait, l'amplitude de cette fonction n'est pas entièrement exploitée.

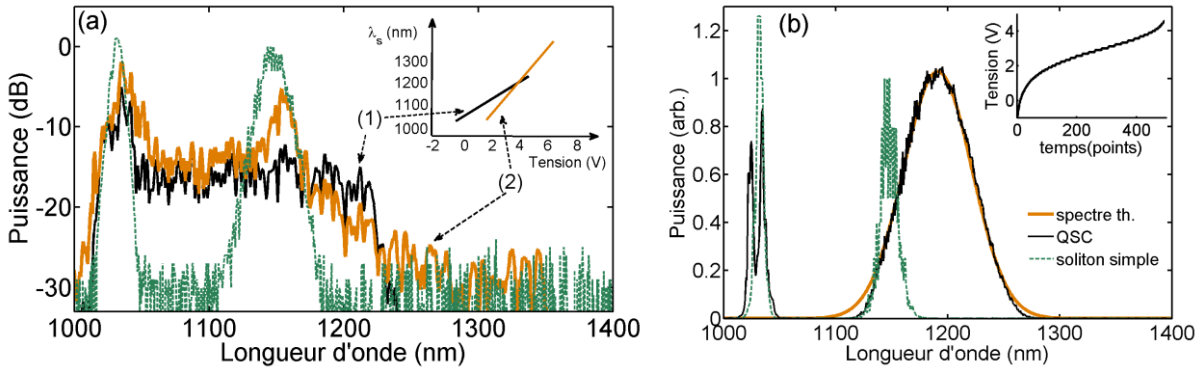
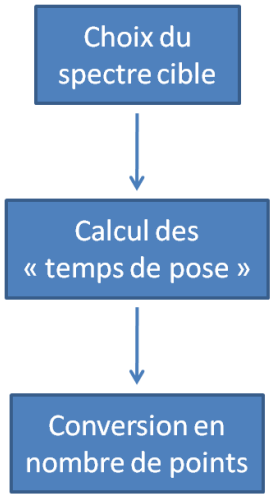


Figure 3-10 : Résultats préliminaires de QSC employant un modulateur électro-optique. Pour chaque spectre, une insertion représente les fonctions de modulation utilisées. (a) Spectres uniformes pour deux tensions d'offset différentes (lignes noire et orange continues) et comparaison à un soliton unique (tirets verts). (b) Spectre expérimental de forme gaussienne (trait noir continu), comparaison avec le spectre cible (tirets orange épais) et un soliton unique (tirets verts).

Contrôle de la forme du spectre : La deuxième phase consiste à générer des fonctions de modulations évoluées du type de celles présentées en Figure 3-8 (b), qui permettent la construction de spectres de type gaussien ou triangulaire. Pour ce faire, le boîtier NI-USB-6251 est employé. La fonction de modulation sera composée d'un certain nombre de points et répétée à la fréquence maximale admissible par le boitier. L'algorithme de génération des fonctions est le suivant :



Choix de la forme, largeur, longueur d'onde centrale...
Représentation par un vecteur

$t_p = \frac{Pc_i}{\sum Pc_i}$: puissance de chaque composante spectrale sur la somme des composantes.

Choix d'un nombre de points total qui permet une fréquence de balayage de quelques kHz.

Afin d'exploiter au mieux les performances du générateur de signal, il est choisi de prendre 500 points pour bénéficier d'une fréquence de répétition du motif de 4 kHz. La cadence correspondante (2.10^6 échantillons/seconde) correspond à la cadence maximale du boitier. Cette fréquence de répétition doit être supérieure d'un facteur 10 environ à la bande passante de l'affichage de l'analyseur de spectre (communément appelée Video BandWidth, ou VBW), afin de fournir une densité spectrale de puissance suffisante à l'affichage d'un spectre "lisse". Elle permet également de visualiser un spectre en un temps raisonnable (quelques secondes).

Un exemple de fonction de modulation et de spectre résultant (spectre noir) est donné en Figure 3-10 (b). Le spectre cible (spectre orange) est un spectre de forme gaussienne, de longueur d'onde centrale 1200 nm et de largeur à mi-hauteur de 100 nm.

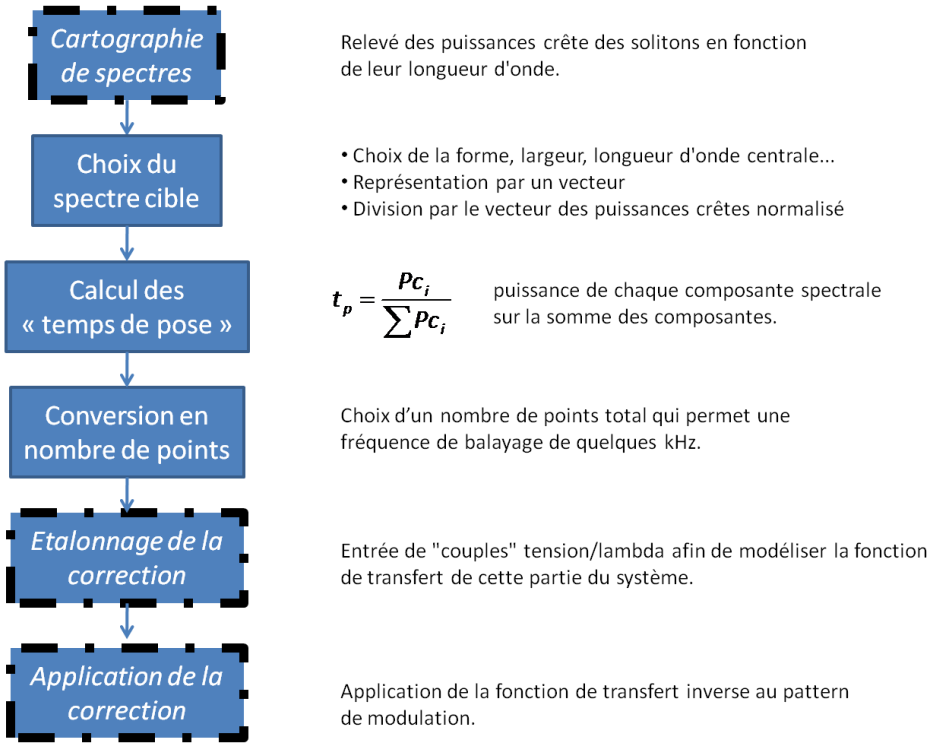
La forme du spectre obtenu correspond à la forme souhaitée. Cependant le résultat est très variable en fonction de la longueur d'onde centrale, notamment près de la longueur d'onde d'absorption OH. On constate également au vu des fonctions de modulation théoriques (Figure 3-8 (b)) qu'un grand nombre de points est nécessaire afin de différencier efficacement les spectres gaussien et triangulaire. Ce grand nombre de points constitue une limitation du générateur NI qui sera contournée en utilisant le générateur Agilent.

La fonction de modulation utilisée jusqu'à présent est calculée en prenant directement en compte l'amplitude et l'offset à appliquer au modulateur. Les valeurs de tension de cette fonction sont donc fixes. Il est ainsi nécessaire de générer une autre fonction si un autre spectre est souhaité ou si la correspondance entre la tension appliquée et la longueur d'onde du soliton décalé change, par exemple lors d'une dégradation de l'injection dans la fibre. Etant donné que la forme théorique de cette fonction donne satisfaction, l'algorithme précédent est remplacé par un choix de fonctions de modulations théoriques normalisées dont on fixe, par la suite, l'amplitude et l'offset. Cette évolution apporte un gain de souplesse dans le processus de génération des QSC.

3.2.3 Amélioration de la qualité du spectre *a priori* et *a posteriori*

3.2.3.1 Amélioration *a priori*

On a constaté que la qualité des QSC pouvait être amélioré, notamment en prenant en compte la dépendance en longueur d'onde de la puissance crête des solitons et la fonction de transfert $\lambda_s = f(V_{modulateur})$ totale du système qui n'est pas linéaire (avec λ_s la longueur d'onde de décalage et $V_{modulateur}$ la tension appliquée au modulateur). L'algorithme de génération devient le suivant :



Les étapes en tirets noirs correspondent aux évolutions par rapport à l'algorithme précédent. Cet algorithme est testé sur trois spectres différents, représentés en Figure 3-11 : plat (figure (a)), triangulaire (figure (b)) et gaussien (figure (c)).

On constate clairement l'apport de la correction, notamment sur la figure (a). Sur cette figure, on constate un 'nivellement' du spectre initial qui permet de le faire tendre vers un spectre plat. Sur les figures (b) et (c), la correction apporte une symétrie aux spectres initiaux, qui présentaient une densité spectrale de puissance plus importante pour les longueurs d'onde plus faibles. L'écart important qui subsiste cependant entre ces spectres et les spectres cibles vient d'une dégradation de l'injection dans la fibre microstructurée au moment des mesures. Cette dégradation montre clairement le besoin d'optimiser ces spectres en "temps réel" par l'ajout d'une boucle de contre-réaction. L'étude de cette boucle fait l'objet de la partie suivante. Le cœur de cette boucle sera composé, à l'image de la génération des fonctions de modulation corrigées, par un algorithme Matlab incorporé à un programme (ou VI) LabVIEW qui d'une part génère ces fonctions et d'autre part acquiert le spectre résultant. Cette étape d'intégration par LabVIEW, couplée avec un étalonnage en puissance pic stable, permet un gain de temps significatif.

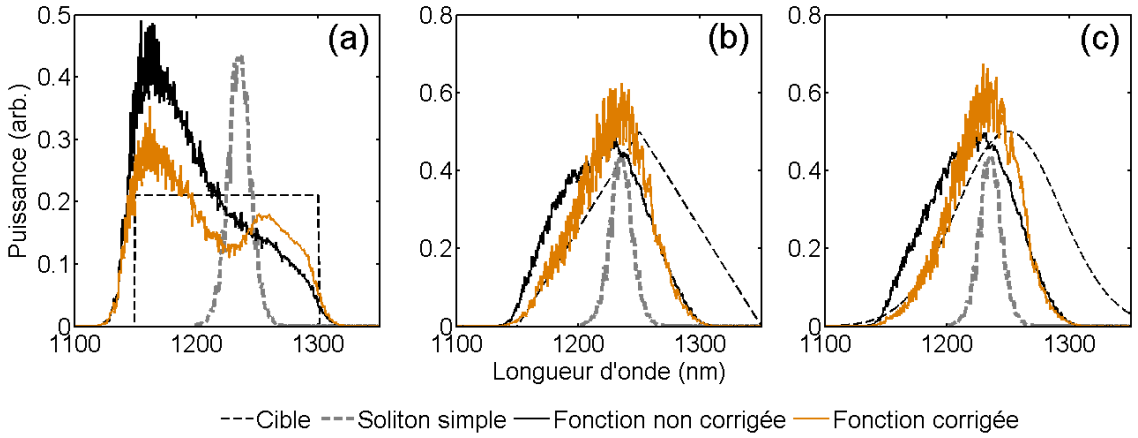
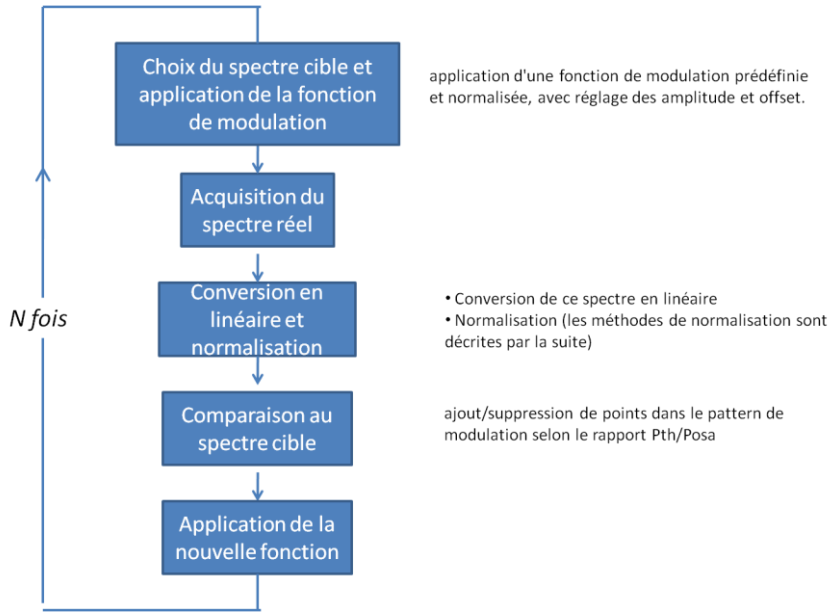


Figure 3-11 : Résultats des tests de correction *a priori* pour les spectres cible suivants : (a) Spectre plat de 1150 à 1300 nm (b) Spectre triangulaire, centré sur 1250 nm avec une largeur à mi-hauteur de 100 nm (c) Spectre gaussien avec les caractéristiques du spectre triangulaire. Le QSC initial (trait noir) est comparé au QSC final (orange) et à un soliton décalé unique (points noirs).

3.2.3.2 Amélioration *a posteriori*

Il est donc nécessaire d'introduire une boucle de contre-réaction pour corriger *a posteriori* la fonction de modulation. Cette boucle repose sur la comparaison du spectre acquis par l'analyseur de spectre à un spectre théorique, normalisé à 1 en intensité. La correction de la fonction de modulation s'effectue alors en lui ajoutant ou lui retranchant des points. L'algorithme est le suivant :



Il est délibérément choisi de travailler sur un nombre d'itérations fixé afin d'éviter toute boucle infinie du programme. Différentes stratégies de normalisation ont été testées afin d'optimiser le couple vitesse de convergence et stabilité du système, une problématique classique de ce type de boucle [J.Baillou, 2012]. Les tests se sont déroulés avec le boitier NI-USB-6251. Ce boitier limite naturellement le nombre de points maximum et constitue donc un bon support pour l'optimisation des paramètres. La recherche itérative des paramètres de normalisation et de correction optimaux est résumée dans le Tableau 3-2.

nombre de points/ méthode	*2 ou /2	±2	±1
Normalisation à 1	diverge	diverge	-
Sur-normalisation à 1.2	-	converge	converge
Sur-normalisation à 1.1	-	converge	converge
$A_{théo.}/A_{exp.}$	-	converge	converge

Tableau 3-2 : Recherche des paramètres optimaux. $A_{exp.}$: aire sous le spectre expérimental normalisé, $A_{théo.}$: aire sous le spectre théorique.

La première ligne du tableau résume la première stratégie adoptée, qui est de diviser le spectre récupéré depuis l'analyseur de spectre par sa puissance maximale (normalisation à 1 en amplitude). Cependant, le spectre obtenu comportant toujours de faibles fluctuations, ce type de normalisation ne peut virtuellement pas converger car le programme sera contraint d'ajouter des points à chaque itération. Aussi il a été choisi en second lieu de "sur-normaliser" par un facteur donné (deuxième et troisième ligne du tableau) afin de répartir la correction entre points à enlever et points à ajouter. Des facteurs de 1.1 et 1.2 ont été testés et semblent permettre une évolution douce et convergente des spectres. Par la suite, un facteur de 1.1 est retenu. Les Figure 3-12 (a1) et (b1) démontrent l'apport de la correction a posteriori par la génération de spectres plat (figure (a1)) et gaussien (figure (b1)) bénéficiant de cette correction et de la normalisation par le facteur 1.1. Ce facteur a enfin été comparé à un facteur correspondant au rapport A_{cible}/A_{OSA}, avec A_{cible} et A_{OSA} les aires des spectres cible et expérimental (Figure 3-12 (a2) et (b2), quatrième ligne du tableau). Ce facteur a abouti à des spectres identiques à ceux obtenus par le facteur 1.1 et il n'a donc pas été possible de déterminer le facteur optimal.

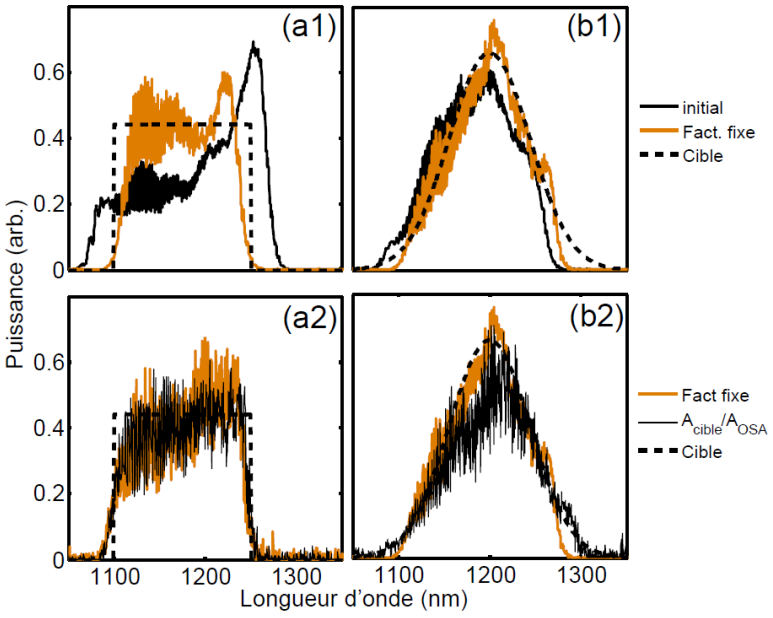


Figure 3-12 : Comparaison entre des spectres initiaux et corrigés. Utilisation du boitier NI-USB-6251. (a1,a2) Objectif de spectre plat de 1100 à 1250 nm, comparaison du spectre théorique (tirets noirs), initial (a1, ligne continue noire), corrigé par un facteur fixe (orange) et par le rapport des amplitudes (a2, ligne fine noire). (b1,b2) Objectif de spectre gaussien centré à 1200 nm avec une largeur à mi-hauteur de 100 nm, comparaison du spectre théorique (tirets larges noirs), initial (b1, ligne continue noire), corrigé par un facteur fixe (orange) et par le rapport des aires (b2, ligne fine noire).

Le nombre de points à ajouter ou retrancher a également été déterminé. Ce nombre de points correspond à l'amplitude de la variation de densité spectrale d'énergie à induire pour une longueur d'onde donnée. Il a d'abord été testé de multiplier ou diviser le nombre de points par 2 en fonction du rapport des puissances théorique et normalisée mais cette solution faisait diverger le nombre de points qui dépassait la capacité du boitier. Il a ensuite été testé d'ajouter ou de retrancher 1 ou 2 points. Les deux solutions semblaient correctes et la première a été retenue pour obtenir là encore une évolution plus progressive.

Observation de la rapidité de convergence : La rapidité de convergence est étudiée et représentée en Figure 3-13. Il faut noter que cette "convergence" est estimée de manière qualitative, quand il n'est plus possible d'observer de changements dans le spectre corrigé. Elle ne sera donc quantifiée par aucun critère mathématique.

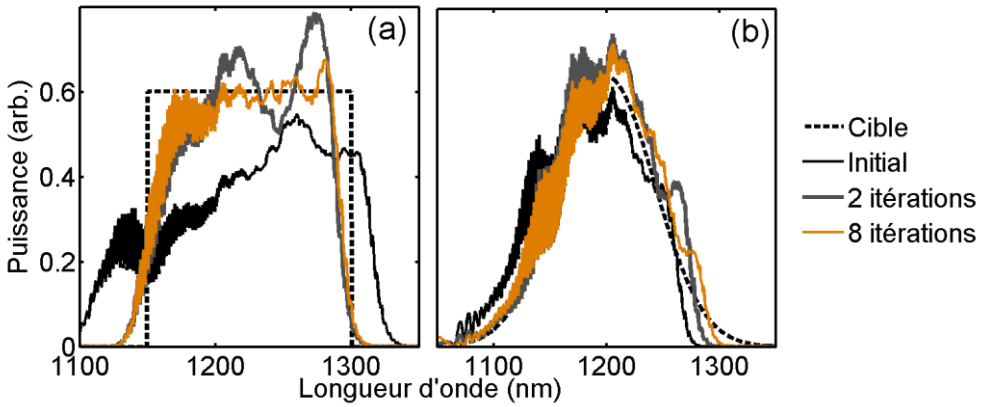


Figure 3-13 : Evolution des spectres pour différents nombres d'itérations. Les spectres initial (vert), après deux itérations (orange) et 8 itérations (bleu) sont comparés au spectre théorique cible (tirets noirs) (a) objectif de spectre plat de 1150 à 1300 nm. (b) Objectif de spectre gaussien centré sur 1200 nm avec une largeur à mi-hauteur de 100 nm.

La convergence vers un spectre acceptable est rapide et s'effectue majoritairement dans les 2 à 3 premières itérations. Cette rapidité de convergence met en valeur l'efficacité de la boucle de contre-réaction, qui est capable de corriger très rapidement les grandes différences entre le spectre acquis et le spectre cible.

Limitation par les paramètres de fibre : Il est intéressant de vérifier si cette méthode est utilisable quand un grand nombre de solitons sont présents dans l'intervalle spectral de travail. Pour ce faire il a été tenté de générer un spectre plat dans la région du pic d'absorption OH. En effet, le passage de cette région impose l'injection d'une puissance importante dans la fibre et donc un grand nombre de solitons décalés. De plus, la puissance des solitons est fortement diminuée au niveau de ce pic et après lui. Aussi, on pourrait penser qu'obtenir un spectre plat dans cette région nécessite un temps de pose très important sur une haute puissance et favorise les longueurs d'onde présentes avant le pic via les autres solitons présents. La Figure 3-15 ci-dessous dément cette idée et représente un spectre généré après 10 itérations de la boucle de contre-réaction (spectre orange). Ce spectre, comparé au spectre initial (spectre noir) montre un résultat satisfaisant, avec un redressement correct du spectre dans la zone du pic OH, et ce sans augmentation notable des composantes spectrales inférieures.

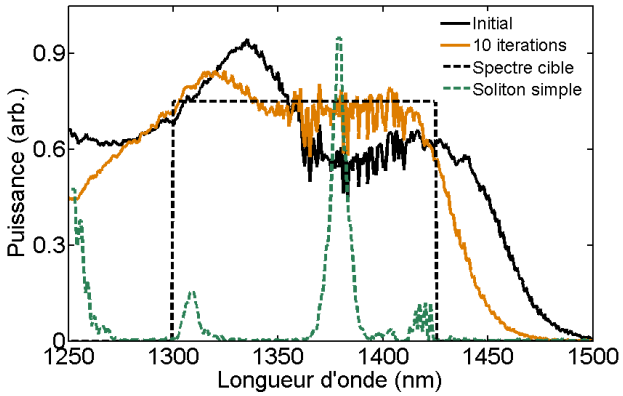


Figure 3-14 : Réalisation de spectre plat de 1300 à 1425 nm dans la zone d'absorption OH. Spectre initial (noir) comparé au spectre après 10 itérations (orange), au spectre théorique (tirets noirs) et à un spectre de soliton simple (tirets verts).

Génération de spectres originaux : Pour illustrer les possibilités du système, des spectres de formes originales ont été générés. Le premier spectre est un spectre plat, de type porte, présentant des fronts montant et descendants de pentes absolues différentes. Le second est un spectre plat sur deux intervalles spectraux distincts.

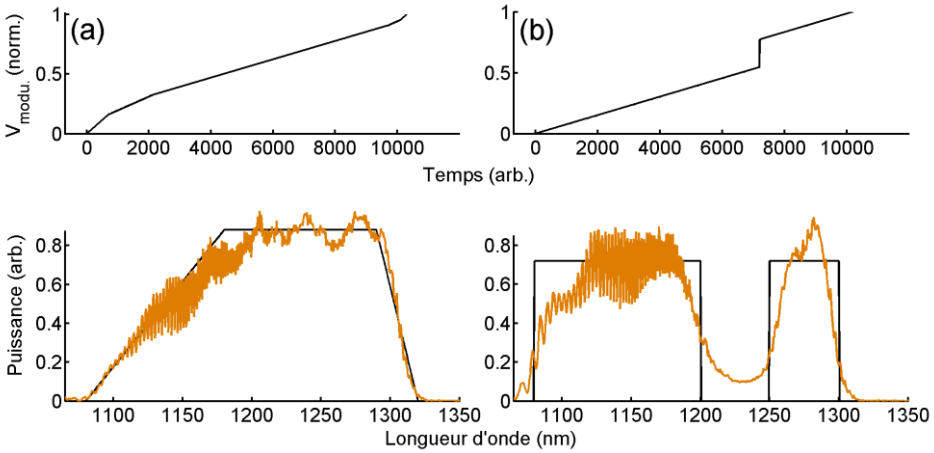


Figure 3-15 : Réalisation de spectres originaux. Pour chaque spectre, le spectre théorique (noir) est comparé au spectre obtenu après 10 itérations (orange). (a) Spectre plat avec pentes absolues des fronts montant et descendant différentes. (b) Spectre plat sur deux intervalles : de 1050 à 1200 nm et de 1250 à 1300 nm.

Le premier spectre présente une forme concluante. en revanche, le second spectre montre les limites du système en termes de "largeur spectrale minimale". Des solitons plus fins spectralement seraient plus efficaces dans ce cas.

Enfin, ce travail a permis le développement progressif d'un logiciel de mise en forme de spectres LabVIEW (Figure 3-16), intégrant la contre-réaction et la mise en forme par choix initial de fonctions normalisées et paramétrables en amplitude et offset. L'application de fonctions de modulation sans contre-réaction s'effectue simplement en fixant le nombre de corrections (partie "Lancement !" du logiciel) à zéro. Ce logiciel peut constituer un point de départ pour l'étude de stratégies de balayage spectral en OCT ou pour d'autres applications.

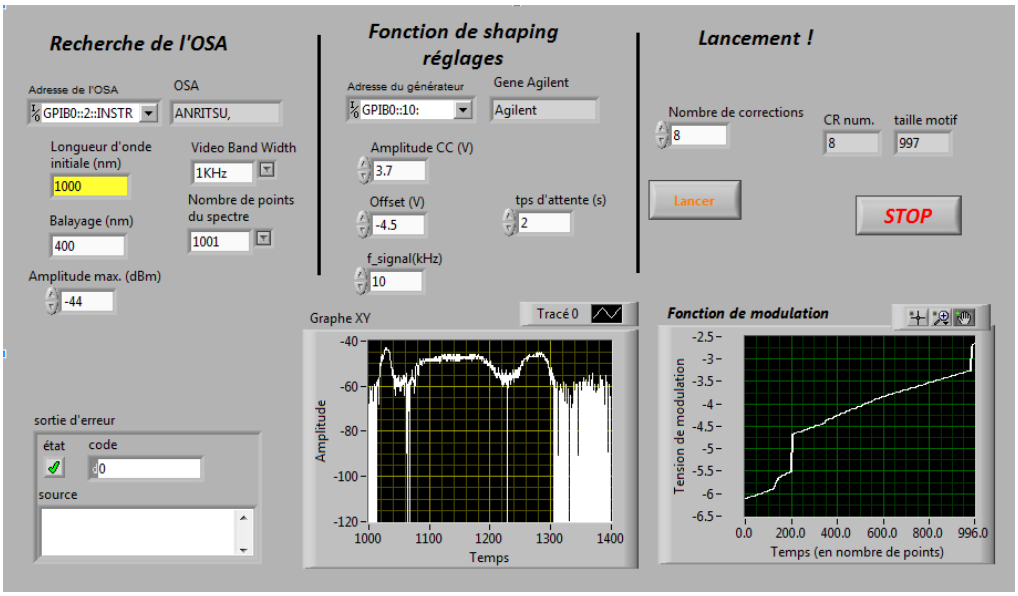


Figure 3-16 : Face avant du logiciel de shaping, qui expose le spectre acquis et la fonction de modulation après 8 itérations de la boucle de contre-réaction.

Le quasi-supercontinuum est une manière d'organiser, dans le temps, l'amplitude et le décalage spectral des solitons générés par SSFS. Cette organisation permet la génération d'une grande richesse de spectres en termes de forme et d'amplitude. Ainsi, des spectres plats, gaussiens, de 100 ou 200 nm de large ont par exemple été générés. L'intérêt de ce type de signal a déjà été démontré en OCT. Il peut également présenter un intérêt pour les applications en demande de sources variant rapidement (microseconde) en longueur d'onde.

Conclusion du chapitre

Ce chapitre a présenté deux applications du SSFS, illustrant ainsi la richesse des possibilités que ce phénomène offre.

La première application est l'amplification de faibles fluctuations relatives d'amplitude d'un train d'impulsions afin de mieux les détecter et les caractériser. Si les précautions nécessaires sont prises, ce système conserve la distribution statistique des fluctuations du train d'impulsions initial et peut ainsi constituer un outil puissant pour l'analyse de ces distributions.

La seconde application est le contrôle fin, dans le temps, des propriétés des solitons décalés qui permet de constituer une entité appelée quasi-supercontinuum. L'intérêt de cette entité est d'être "vue", par les milieux biologiques, comme un supercontinuum.

On souligne enfin qu'un degré de contrôle supplémentaire, la phase de ces solitons décalés, n'a pas été mis en œuvre. L'emploi de ce degré de contrôle a notamment mené aux techniques de spectral focusing (chapitre 1) et ne fait que renforcer plus encore l'idée du SSFS comme outil "multi-usage" en imagerie.

4 Compression spectrale non-linéaire des impulsions pompe

En imagerie CARS, la résolution spectrale repose, entre autres, sur des excitations pompe et sonde présentant une largeur spectrale de l'ordre de la largeur des résonances des vibrations étudiées (partie 1.2.2.3). Ces largeurs, dans le cas de milieux biologiques, sont de l'ordre de 5 à 10 cm^{-1}, ce qui correspond à des impulsions en limite de Fourier d'environ 2 à 5 ps aux longueurs d'onde de travail (700-1350 nm). Dans le dispositif actuel, les impulsions pompe sont directement issues de l'oscillateur utilisé, délivrant des impulsions de 180 fs, qui correspondent à une largeur spectrale à mi-hauteur d'environ 80 cm^{-1}. Il est donc nécessaire de diminuer la largeur spectrale de ces impulsions, à une largeur inférieure ou égale au nanomètre (dans le cas de l'oscillateur utilisé). Une technique de choix existe afin de réduire la largeur spectrale tout en évitant un filtrage qui aboutirait à une perte rédhibitoire d'énergie, d'autant plus importante que la largeur spectrale nécessaire est faible. Il s'agit de la compression spectrale [R.H. Stolen, 1978, S.A. Planas, 1993], qui a déjà prouvé son efficacité en imagerie CARS [E.R. Andresen, 2005a]. Ce chapitre présente l'application de cette technique au dispositif actuel.

4.1 Principe et dispositif expérimental

4.1.1 Principe

Le principe de la compression spectrale non-linéaire est représenté en Figure 4-1 (a), qui repose sur la configuration la plus rencontrée dans la littérature dédiée à l'optique fibrée. Dans cette configuration, la compression spectrale utilise un effet non-linéaire, l'auto-modulation de phase (ou ***SPM***, pour "Self-Phase Modulation", voir la partie 1.3) comme "convertisseur de fréquences" afin

que le chirp qu'elle induit (repère n°2) compense un chirp (repère n°1) initialement imposé à l'impulsion à comprimer. Cette méthode de compression est donc différente de la technique plus récente de compression dans une fibre à dispersion croissante [A.B. Fedotov, 2009b, H.-P. Chuang, 2011, H.-P. Chuang, 2012]. En effet, celle-ci utilise l'élargissement temporel progressif d'une impulsion du fait de la dispersion croissante, qui va se traduire par une diminution en conséquence de la largeur spectrale. Cette méthode n'a pas été employée car une dispersion importante et croissante à la longueur d'onde de l'oscillateur (1033 nm) impose l'emploi de fibres microstructurées qui limitent l'énergie des impulsions comprimées.

Concernant le dispositif employé, le chirp de la SPM étant positif au centre de l'impulsion, le chirp initial doit être négatif. L'objectif est ainsi de "regrouper" les différentes composantes spectrales de l'impulsion autour de sa fréquence optique centrale. La forme du chirp résultant est représentée dans le repère n°3. Il est nul sur une certaine partie de l'impulsion, ce qui signifie qu'une grande partie des fréquences de l'impulsion initiale a bien été convertie vers la fréquence centrale. L'impulsion tend alors vers la limite de Fourier. Cette propriété est un indicateur intéressant car elle permet d'estimer rapidement la largeur temporelle (et donc le chirp initial) à imposer pour obtenir la largeur spectrale souhaitée. On remarque également que le chirp induit par la SPM ne permet pas de compenser totalement le chirp initial, qui est linéaire. Cette non-compensation totale aboutit à un chirp final très marqué aux extrémités de l'impulsion, qui se traduira en piédestaux dans le profil d'intensité spectrale. La conséquence immédiate est que dans ce cas, la limite de Fourier ne peut pas être strictement atteinte, mais on cherchera toujours à s'en approcher le plus possible. Cet aspect est détaillé par la suite.

Ce processus de compression spectrale est analysé, en Figure 4-1 (b), à partir d'une simulation de propagation d'une impulsion gaussienne de 190 fs élargie à 3.45 ps et possédant ainsi un chirp de -3.6 THz/ps et une puissance crête de 585 W. Le milieu utilisé pour induire la SPM est une fibre optique classique, monomode à la longueur d'onde de travail (soit 1034 nm), la fibre SM-980. La simulation a été effectuée à partir de la GNLSE (partie 2.1).

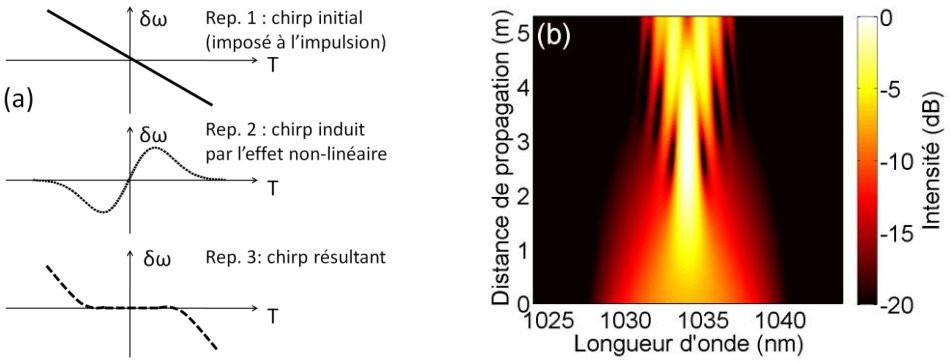


Figure 4-1 : Principe de la compression spectrale. (a) Processus de compensation des chirps. (b) Evolution du spectre de l'impulsion au cours de la propagation.

On constate que pour une distance de propagation inférieure à 3 mètres, la largeur spectrale de l'impulsion diminue, et la puissance de la fréquence centrale de l'impulsion augmente, de 6 à 7 dB dans le cas présent. Il y a bien « regroupement », par SPM, des composantes spectrales autour de la fréquence centrale, et donc compression spectrale. Au-delà de cette longueur, la SPM continue d'agir sur l'impulsion qui présente un chirp nul en son centre, et de fait la réélargit spectralement selon l'évolution bien connue ([Agrawal, 2007]). Afin d'étudier plus en détail le point de compression maximale, la Figure 4-2 compare les profils d'intensité temporel (figure (a)) et spectral (figure (b)), et

les chirps, de l'impulsion avant propagation non-linéaire et à compression maximale. Les spectres sont normalisés à l'amplitude du spectre initial.

La forme du chirp final concorde avec celle du chirp final de la Figure 4-1 (a) (repère n°3). La comparaison des spectres initial et final permet de retrouver ce phénomène de « regroupement de fréquences sans pertes » par l'augmentation de la puissance crête de la fréquence centrale. Le chirp est légèrement négatif au point de compression maximale. Le chirp initial imposé à l'impulsion avant le processus de compression permet de négliger les effets dispersifs au profit des effets non-linéaires. Cette observation est appuyée par la comparaison de la longueur de dispersion (185 m, partie 1.3), nettement supérieure à la longueur non-linéaire (0.23 m). On constate toutefois que le profil temporel final est différent du profil initial. Cette observation a été effectuée lors d'autres démonstrations [B.R. Washburn, 2000, J. Limpert, 2002] mais cependant aucune interprétation n'a été effectuée.

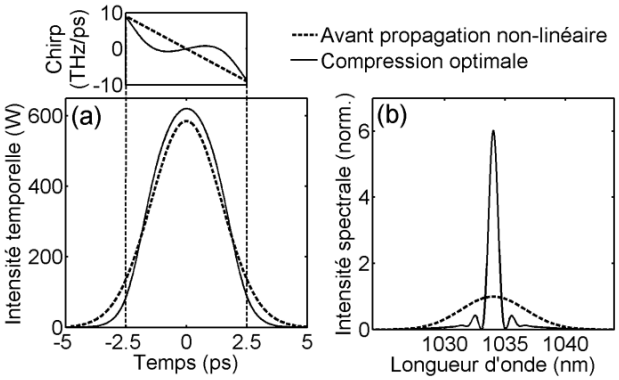


Figure 4-2 : Analyse de l'impulsion à compression maximale (lignes continues) par comparaison avec l'impulsion initiale (tirets). (a) Profils d'intensité temporel et chirps. (b) Profils d'intensité spectraux.

Un retour sur la Figure 4-1 (b) montre que la compression spectrale est maximale entre 2.5 et 4 m de propagation, longueur de propagation pour laquelle le chirp varie autour de sa position d'équilibre (nul). Etant donné que dans cet intervalle de propagation, les lobes secondaires du spectre évoluent, il vient la question naturelle de la longueur de propagation précise pour maximiser l'énergie dans le lobe principal.

La Figure 4-3 fournit des éléments de réponse à cette question en proposant une étude « multi-paramètres » du point de compression optimale. En effet, cette figure représente l'évolution, au cours de la propagation, de caractéristiques « clefs » de l'impulsion.

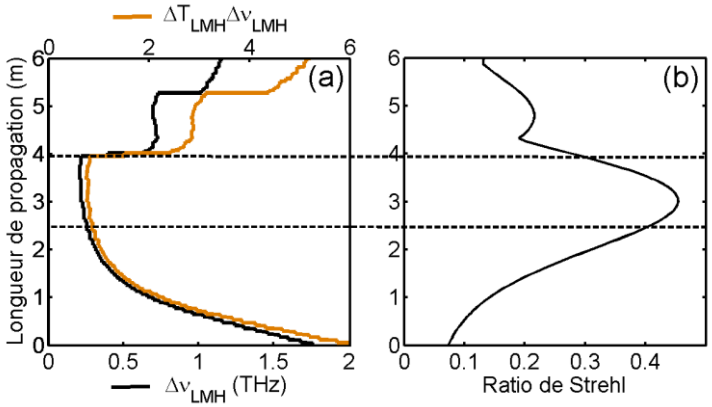


Figure 4-3 : Analyse de la "qualité » de compression spectrale. Les lignes pointillées délimitent la zone de compression spectrale maximale. (a) Largeur à mi-hauteur du profil d'intensité spectrale (ligne noire) et produit des largeurs à mi-hauteur des profils d'intensité temporelle et spectrale (ligne orange). (b) Evolution du ratio de Strehl.

Les deux premiers paramètres, représentés en figure (a), sont la largeur spectrale à mi-hauteur et le produit des largeurs à mi-hauteur temporelle et spectrale (ou TBP : Time Bandwidth Product). L'évolution de la largeur spectrale permet de quantifier plus simplement l'évolution observée en Figure 4-1 (b). On retrouve cette « zone optimale » d'environ 1.5 m, comprise entre les deux lignes pointillées. Le TBP suit l'évolution de la largeur spectrale, et est dans le cas présent de 0.79 à compression optimale, soit 1.8 fois la limite de Fourier. Cette valeur augmente avec le chirp imposé à l'impulsion [E.R. Andresen, 2005a]. Ce produit est important car on rappelle que la « limite de Fourier » (voir la partie 2.1) correspond à la largeur temporelle minimale que peut atteindre une impulsion d'une largeur spectrale donnée. Il permet notamment de déterminer si une impulsion est chirpée ou non. Dans le cas présent, il amène le calcul suivant :

$$\begin{cases} \dfrac{\Delta T \Delta \nu}{\Delta T_{TL} \Delta \nu_{TL}} = 1.8 \\ \Delta \nu = \Delta \nu_{cible} = \Delta \nu_{TL} \end{cases} \quad \rightarrow \quad \Delta T_{initial} = 1.8 * \Delta T_{TL} \approx 2 * \Delta T_{TL}$$

avec ΔT et Δν les largeurs temporelle et spectrale de l'impulsion comprimée et ΔT_{TL} et $\Delta \nu_{TL}$ les largeurs d'une impulsion en limite de Fourier. Le dimensionnement du système (partie 4.2) considérera donc un facteur 2 pour le calcul de la largeur temporelle initiale nécessaire.

Cependant, mis à part cette « règle de dimensionnement », le TPB n'apporte pas d'information supplémentaire par rapport à la largeur spectrale. Aussi, expérimentalement, on ne considère généralement que cette dernière pour déterminer dans un premier temps la zone de compression maximale.

Dans un second temps, on s'intéresse ainsi à l'évolution du ratio de Strehl. Ce ratio est défini comme $P_c/P_c(TL)$, avec P_c la puissance spectrale crête de l'impulsion, et $P_c(TL)$ la puissance spectrale crête l'une impulsion en limite de Fourier de même largeur temporelle. Ce ratio a déjà été utilisé pour définir la qualité d'une compression temporelle [Y. Zaouter, 2007]. Il est couramment utilisé en conception de systèmes optiques et a de plus déjà été utilisé dans une étude de compression spectrale aux longueurs d'ondes des télécommunications optiques [J. Fatome, 2012].

La figure (b) montre donc l'évolution de ce ratio. On voit ainsi qu'on a un maximum nettement plus localisé, autour de 3 m. ***Ce paramètre est ainsi l'indicateur idéal pour le suivi de la compression et sera utilisé pour le dimensionnement du système par simulations.***

En pratique, le suivi de ce ratio nécessiterait l'emploi de la méthode dite de "cut-back", où on considère différentes longueurs de fibre pour une puissance injectée donnée. Cependant, il est courant de chercher à optimiser la compression spectrale pour une longueur de fibre donnée en faisant varier la puissance injectée. Dans ce cas, on cherche surtout à diminuer au maximum la puissance présente dans les lobes secondaires du spectre de l'impulsion, ce qui revient à optimiser la puissance crête et donc à maximiser le ratio de Strehl.

On signale qu'il est possible de s'approcher plus encore de la limite de Fourier par un contrôle précis de la dispersion d'ordre 3 du chirp initial imposé à l'impulsion [B.R. Washburn, 2000]. Cependant, un tel contrôle peut s'avérer complexe à mettre en place (mise en forme temporelle initiale plus complexe). Dans le cas présent, il n'est donc pas mis en place, et on cherchera simplement à optimiser la largeur spectrale et la puissance crête, aux dépends de la limite de Fourier.

On signale enfin que les simulations présentées précédemment ont été effectuées en utilisant l'ESNLG. On peut cependant utiliser un développement théorique simplifié [E.R. Andresen, 2011a] pour décrire ce processus de compression. En effet, on a évoqué précédemment que les effets dispersifs de la fibre employée pour générer l'effet de SPM pouvaient être négligés lors de l'étape de propagation non-linéaire. Le chirp initial imposé à l'impulsion réduit fortement la puissance crête (d'un facteur 20 dans le cas présent) et permet de négliger l'effet Raman intra-impulsion (chapitre 2) devant la SPM. Les seuls paramètres à prendre en compte sont ainsi le chirp initial et la SPM. Dans ce cadre, on modélise une impulsion gaussienne chirpée comme :

$$E(t) = \sqrt{I_0}\exp\left(-\frac{2ln2t^2}{\tau^2} + i\alpha t^2\right) \tag{4.1}$$

avec I_0 l'intensité temporelle crête de l'impulsion, τ la durée caractéristique et α le paramètre de chirp linéaire, qui sera négatif. Cette impulsion subit uniquement la SPM, modélisée par

$$E(t,L) = e^{-i\gamma|E(t,0)|^2 L}E(t,0) = e^{-i\gamma I_0\left(1-\frac{2t^2}{\tau^2}\right)L+i\alpha t^2}|E(t,0)| \tag{4.2}$$

avec γ le paramètre non-linéaire. Après la longueur de fibre L, la fréquence instantanée de l'impulsion est donc

$$\frac{d}{dt}\phi(t) = \frac{8\ln 2\gamma I_0 Lt}{\tau^2}e^{-\frac{4ln2t^2}{\tau^2}} + 2\alpha t \tag{4.3}$$

De cette relation, on peut extraire le fait qu'un chirp linéaire ne peut pas annuler la phase instantanée sur tout le profil temporel de l'impulsion. Elle peut être au mieux minimisée par l'adoption d'un chirp négatif. On retrouve donc les observations des simulations et de l'étude de principe en Figure 4-1 (a).

Les bases de la compression spectrale sont posées. Il faut rechercher l'élément induisant le chirp initial, qui est généralement un élément dispersif. Le paragraphe suivant présente les éléments dispersifs possibles.

4.1.2 Elément dispersif

Cet élément doit imposer une dispersion anormale afin d'étirer temporellement l'impulsion tout en imposant le chirp adéquat. Il est bien connu des chaînes laser haute puissance, reposant souvent sur l'amplification à dérive de fréquence, dite CPA (Chirped Pulse Amplification) [D. Strickland, 1985]. En effet dans ce type de système, les impulsions sont tout d'abord étirées temporellement afin d'abaisser leur puissance crête pour ne pas endommager le milieu amplificateur. Elles sont ensuite comprimées par un autre élément à dispersion opposée pour retrouver des durées de quelques dizaines à centaines de femtosecondes. L'étireur présentant généralement une dispersion normale, on ne s'intéresse qu'au compresseur qui, de fait, impose une dispersion anormale. Cette partie repose fortement sur la thèse d'Arnaud Cotel [Cotel, 2007]. Elle ne présente qu'une vue d'ensemble des dispositifs existants.

Matériaux dispersifs : Ces matériaux, tels que les verres de silice ou de borosilicates (BK7) ont pu être utilisés pour la compression d'impulsions dans les dispositifs CPA [D.M. Gaudiosi, 2004]. Cependant, ces matériaux présentant une dispersion normale, la compression s'effectue car l'étireur impose aux impulsions une dispersion anormale. Ils ne sont donc pas adaptés aux impulsions initiales du montage, qui ne sont pas chirpées.

Paire de prismes : Les prismes fonctionnent sur le principe que la dispersion chromatique imposée par le matériau les constituant induit une dispersion spatiale. Un montage utilisant une paire de prismes (Figure 4-4) transforme cette dispersion spatiale en dispersion temporelle du fait des chemins optiques de longueurs différentes pour chaque composante spectrale qui se propage. Un miroir est inséré après le second prisme et fait subir une rétro-réflexion au faisceau incident. Cette rétro-réflexion corrige l'élargissement spatial induit et permet de doubler l'élargissement temporel et de minimiser l'encombrement du dispositif.

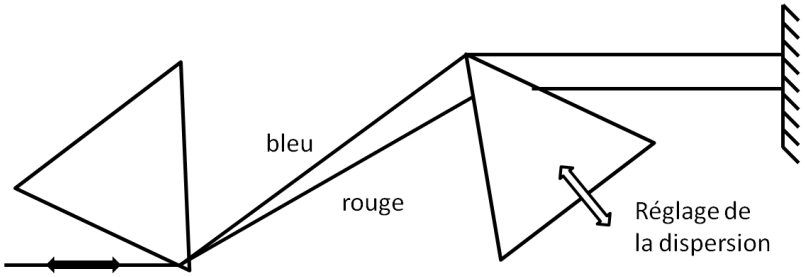


Figure 4-4 : Utilisation d'une paire de prismes pour induire un chirp négatif.

La dispersion totale est la somme de la dispersion géométrique (anormale) et de la dispersion induite par le matériau composant les prismes (normale). Elle est fixée par translation du second prisme, qui fait varier l'épaisseur de ce prisme traversée par le faisceau. La dispersion "matériau" est généralement inférieure à la dispersion géométrique, ce qui permet d'obtenir la dispersion anormale recherchée.

Cette configuration présente l'avantage d'un haut rendement, supérieur à 80 %. Cependant, à encombrement spatial identique, la dispersion induite est inférieure à celle utilisant des réseaux de diffraction.

Paire de réseaux de diffraction : Un réseau de diffraction est un ensemble d'éléments diffractants espacés de l'ordre de la longueur d'onde. Le champ total ainsi diffracté est constitué d'une somme de champs qui interfèrent entre eux, ne permettant une interférence constructive que dans certaines directions de l'espace. Il s'agit d'un élément permettant d'analyser et de contrôler simplement les ondes électro-magnétiques. Les premiers réseaux utilisables, apparus au 19^{e} siècle, étaient des réseaux gravés. La mise au point de procédés de réplication fiables a rendu ces éléments omniprésents en spectroscopie et de fait dans tous les champs d'applications ayant des besoins d'analyse du spectre électromagnétique [C. Palmer, 2005]. Depuis, un grand nombre de réseaux sont apparus, tant en transmission qu'en réflexion : réseaux gravés, holographiques, photo-induits, réseaux volumiques photo-inscrits, à multi-couches diélectriques...

L'équation générale reliant les angles d'incidence et de diffraction est :

$$\sin(\alpha) + \sin(\beta) = \frac{m\lambda}{\mathrm{d}} \tag{4.4}$$

avec α et β les angles d'incidence et de diffraction, m l'ordre de diffraction, λ la longueur d'onde considérée et d le pas du réseau. Elle est obtenue simplement en utilisant l'approche géométrique représentée en Figure 4-5 (a), utilisée pour le calcul de la différence de marche entre deux rayons incidents.

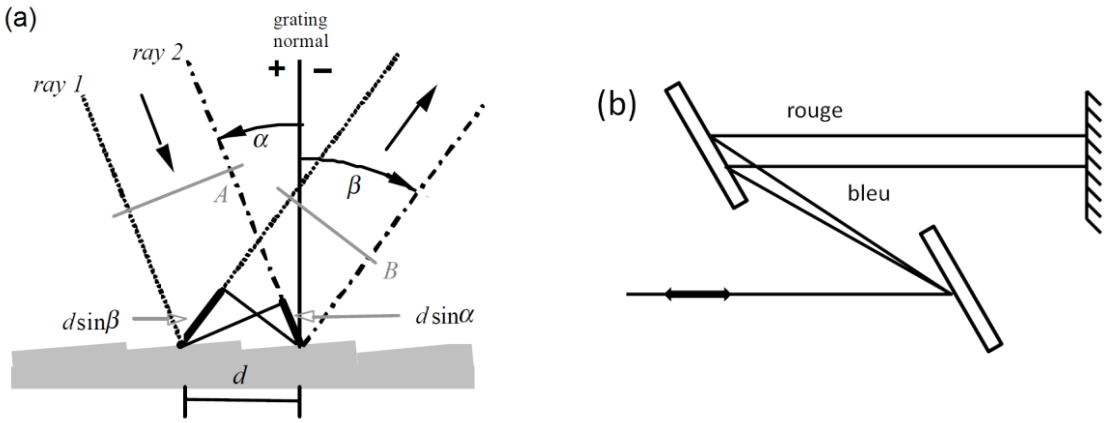


Figure 4-5 : Principe d'un réseau de diffraction et d'un dispositif de compression d'impulsions à réseaux. (a) Schéma permettant d'obtenir l'équation des réseaux (d'après [C. Palmer, 2005]). (b) Schéma de principe d'un dispositif de compression d'impulsions.

La Figure 4-5 (b) montre la configuration classique employée. Le chirp négatif (dispersion anormale) est induit par la dispersion angulaire du premier réseau. Le second réseau, parallèle au premier, permet de collimater le faisceau diffracté. A l'instar de l'utilisation de prismes, un miroir peut être inséré après le second réseau pour corriger l'élargissement spatial et doubler le chirp induit.

Cette configuration peut induire des dispersions élevées. Ainsi, la compression d'impulsions de 10 ns à 100 fs a pu être réalisée.

Paire de Grisms : Le mot *grism* est un néologisme formé des mots *grating* et *prism*. Il s'agit donc d'un système combinant un prisme et un réseau de diffraction [Tournois, 1993]. Il peut être utilisé en transmission (cas de la Figure 4-6) ou en réflexion.

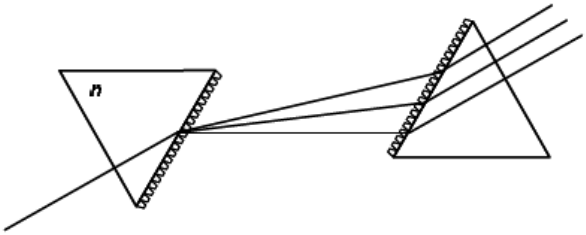


Figure 4-6 : Schéma de principe d'une paire de grisms (d'après [Cotel, 2007]).

L'intérêt des grisms est de combiner le grand pouvoir diffractant des réseaux avec le contrôle de la dispersion cubique des prismes [S. Kane, 2006]. Cette propriété a été utilisée pour améliorer l'acheminement d'impulsions ultracourtes par fibres [C. Lefort, 2010], en pré-compensant la dispersion forte introduite par ces dernières. L'inconvénient est que le faisceau doit toujours traverser une épaisseur de prisme, induisant d'éventuels effets non-linéaires non souhaités.

Fibre optique : Les propriétés dispersives des fibres ont été présentées en partie 1.3. Celles-ci nécessitent une conception particulière (la microstructure ou l'étirement) pour bénéficier d'une dispersion anormale à la longueur d'onde de l'oscillateur. Bien que cette dispersion puisse être déterminée de manière fine, cette conception entraine une diminution du diamètre du mode guidé et augmente les effets non-linéaires, qui dégraderont le spectre de l'impulsion avant que la dispersion ne puisse agir. A titre d'exemple, la fibre microstructurée NL-1.8-710 ($\Upsilon = 80\ W^{-1}.km^{-1}$, $\beta_2 = -90\ ps^2/km$ @ 1033 nm) présentera, pour une puissance injectée de 250 mW (hypothèse plausible), des longueurs caractéristiques L_D = 13 cm et L_{NL} = 0.5 mm, qui permettent de constater que ce support n'est pas adapté.

Les fibres considérées sont cependant des fibres à cœur plein. Un support fibré adapté à ces longueurs d'onde semble être la fibre à cœur creux [R.E. Kennedy, 2006, M. Rusu, 2006], qui présentent néanmoins des difficultés en terme de dispersion d'ordre 3 (distorsion du profil temporel menant à une distorsion du spectre) et de connexion à l'élément non-linéaire suivant. Cette piste est néanmoins étudiée dans la partie 4.5.

On peut enfin signaler que les fibres à cœur plein ont cependant été mises à profit pour réaliser une compression spectrale "adiabatique", évoquée en partie 4.1.1. Ce principe consiste à utiliser une fibre à dispersion croissante. Il peut s'agir de fibres microstructurées [A.B. Fedotov, 2009b], de fibres "composites" constituées de longueurs variables de tronçons de dispersions différentes [N. Nishizawa, 2010] ou encore de fibres issues d'un étirage spécial [H.-P. Chuang, 2011]. Cette compression "adiabatique" a récemment permis un taux de compression record de 28.4 [H.-P. Chuang, 2012] et représente l'une des seules démonstrations ayant fait l'objet d'un dépôt de brevet [N. Nishizawa, 2011].

Interféromètre de Gires-Tournois : Cet interféromètre, de type Pérot-Fabry, est composé d'un miroir de haute réflectivité et d'un miroir de faible réflectivité, entourant un matériau d'un indice supérieur [F. Gires, 1964]. Ce matériau induit une dispersion chromatique, et est souvent composé de couches d'indices différents qui introduisent un certain chirp [J. Kuhl, 1986] (voir l'élément suivant : le miroir chirpé). La dispersion induite peut être normale ou anormale selon les paramètres de l'interféromètre. Le principe général est représenté en Figure 4-7, qui représente (figure (a)) le principe général et (figure (b)) la structure multi-couches du matériau d'indice différent.

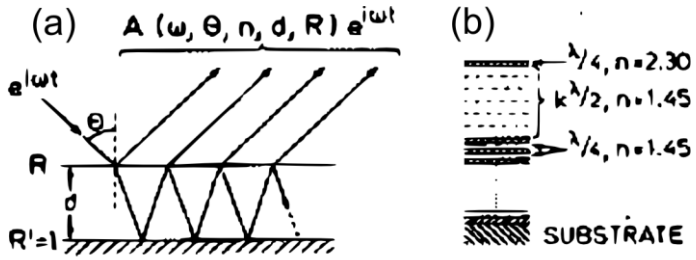


Figure 4-7 : Structure d'un interféromètre de Gires-Tournois (d'après [J. Kuhl, 1986]). (a) Principe de fonctionnement. (b) Structure multi-couches possible pour le matériau dispersif.

Son intérêt est sa compacité et son haut rendement en puissance. Son inconvénient est le chirp très faible induit par une simple réflexion et qui nécessite ainsi de multiples réflexions pour aboutir à une dispersion significative.

Miroirs chirpés : Ces miroirs sont composés d'un empilement de couches de différents indices, dont l'épaisseur du quart de la longueur d'onde de travail permet d'obtenir une réflexion totale par interférences constructives [R. Szipöcs, 1997]. Une haute réflectivité (99.5 %) peut ainsi être atteinte. En faisant varier l'épaisseur de ces couches, les grandes longueurs d'onde sont réfléchies plus profondément dans l'empilement que les longueurs d'onde plus courtes, créant ainsi un chirp négatif (donc une dispersion anormale).



Figure 4-8 : Schéma de principe du miroir chirpé.

Il est désormais possible de contrôler les dispersions d'ordre supérieur. De plus, des miroirs chirpés à la longueur d'onde de travail (1033 nm) existent. Le grand avantage de ces miroirs est leur grande bande passante qui les rendent utilisables pour des impulsions inférieures à 30 fs. Leur inconvénient est leur dispersion qui reste limitée (≈ 100 fs², comparée aux ≈ $3{,}6.10^5$ fs² de la paire de réseaux utilisée par la suite).

Réseau de Bragg en volume : Ces réseaux reposent sur le même principe que les miroirs chirpés, à savoir l'alternance de zones d'indices hauts et bas induisant des interférences constructives par réflexion. Cette alternance est réalisée par l'irradiation d'une pièce de verre par rayonnement UV suivi d'un échauffement [L.B. Glebov, 2002]. La société OptiGrate commercialise des réseaux de Bragg volumiques [Optigrate, 2011] chirpés pouvant présenter une dispersion normale ou anormale, selon la face d'incidence du faisceau laser sur le réseau. Les dispersions proposées sont très importantes (6 à 60 ps/nm, pour un étirement de 200 fs à 300 ps) et des réseaux existent pour la longueur d'onde de l'oscillateur (1034 nm). Ce type de réseau est tout à fait adapté aux dispositifs CPA. L'avantage majeur de ces réseaux est leur dispersion très importante (≈ 10^6 fs²). L'inonvénient est leur dispersion fixée qui empêche d'éventuels ajustments de chirp ultérieurs.

Réseau de Bragg Fibré : (ou FBG, Fiber Bragg Grating) [Erdogan, 1997, K.O. Hill, 1997, Agrawal, 2001]. Ces réseaux reposent également sur le même principe que les miroirs chirpés. L'empilement de couches d'indices différents est remplacé par l'insolation UV dans une fibre dopée au germanium. La technique la plus courante, l'emploi d'un masque avec irradiation latérale, créé un réseau et donc des interfaces d'indices différents qui permettent la réflexion des ondes incidentes. L'intérêt du masque est de pouvoir créer des réseaux de différentes formes. Ainsi, la Figure 4-9 représente des caractéristiques « type » de certains réseaux. La figure (a) représente la fonction de transfert en longueur d'onde d'un réseau non-chirpé, ainsi que le retard introduit hors de la bande de réflexion maximale. La figure (b) montre la courbe de dispersion d'un réseau chirpé, avec la courbe de retard induite.

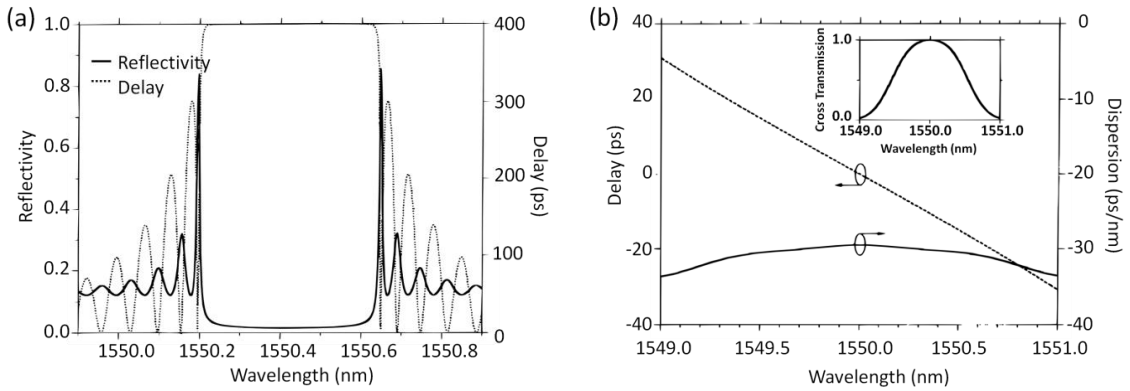


Figure 4-9 : Exemples de caractéristiques de FBG (d'après [Erdogan, 1997]). (a) Taux de réflexion et délai de groupe pour un exemple de FBG uniforme. (b) Délai de groupe et dispersion pour un FBG chirpé.

Ces réseaux sont largement utilisés en configuration non-chirpée (figure (a)) en tant que filtre passe-bande en télécom [F. Bilodeau, 1994] et ont montré leur efficacité, en configuration chirpée (figure (b)), dans les dispositifs CPA [G. Imeshev, 2004]. Un avantage important de ces réseaux est que leurs propriétés (longueur d'onde de travail, chirp, largeur à mi-hauteur...) sont entièrement contrôlées par l'organisation du réseau. Ainsi, par exemple, la société Teraxion propose des FBG avec une grande richesse de réglages [Teraxion, 2009]. L'inconvénient est celui de tout système fibré qui va induire des effets non-linéaires importants lors de la propagation d'impulsions femtoseconde.

La paire de réseaux en réflexion est un élément simple, connu, répandu et bon marché, permettant d'induire des dispersions négatives parmi les plus importantes pour un coût et un encombrement restreins. Il sera donc employé, malgré son rendement plus faible (environ 70 % par diffraction, soit 50 % pour un passage simple dans le dispositif).

4.1.3 Dispositif expérimental retenu

Le processus de compression spectrale nécessite donc un élément dispersif qui impose un chirp initial et un élément non-linéaire qui induit la SPM. Ces éléments sont décrits en Figure 4-10.

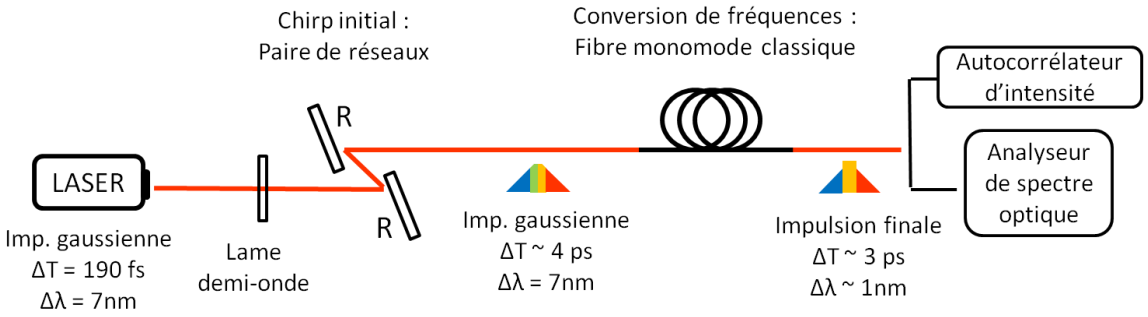


Figure 4-10: Montage expérimental. R : réseau, ΔT, Δλ : largeurs temporelle et spectrale à mi-hauteur.

Le chirp initial, qui doit être négatif, est donc imposé par une paire de réseaux en réflexion. Il peut ainsi être réglé par le chemin optique entre ces derniers. Ce sont des réseaux gravés (qui présentent une efficacité meilleure que les réseaux holographiques), comportant 1200 traits/mm, utilisés dans l'ordre -1 et possédant une efficacité de 75 % à 1033 nm en polarisation verticale. Une lame demi-onde est insérée avant la paire de réseaux et contrôle la puissance de sortie par le

contrôle de la polarisation incidente. Des stoppeurs de faisceaux sont placés sur le trajet des autres ordres de diffraction.

Ce chirp est ensuite compensé par la propagation non-linéaire de l'impulsion dans une fibre "classique" à saut d'indice. Il s'agit en effet de l'élément non-linéaire rencontré dans la quasi totalité des démonstrations. Il présente de plus l'avantage d'être simplement connectable à la ligne à retard fibrée utilisée pour la synchronisation des impulsions pompe et Stokes. Cette fibre peut être soit une fibre monomode classique [S.A. Planas, 1993, M. Oberthaler, 1993], soit une fibre microstructurée [E.R. Andresen, 2006, D.A. Sidorov-Biryukov, 2008]. La fibre mirostructurée présente, dans ces démonstrations, un coefficient non-linéaire nettement plus élevé que les autres fibres (d'un facteur 100 environ). Ce coefficient permet de diminuer la longueur de propagation nécessaire, mais ce type de fibre peut s'avérer difficile à intégrer par soudure ou connecteurs dans un système entièrement fibré.

Deux fibres différentes ont été testées, la fibre SMF-28 et la fibre SM-980. Contrairement à la SM-980, la SMF-28 n'est pas monomode à la longueur d'onde de l'oscillateur mais a été la première fibre disponible et donc la première fibre employée. Le spectre et l'intensité temporelle sont analysés à l'aide de l'analyseur de spectre optique et de l'autocorrélateur présentés au chapitre 2.

4.2 Dimensionnement du montage

4.2.1 Réglage du chirp initial

D'après la partie 1.2, il est nécessaire d'obtenir une largeur spectrale inférieure à 10 cm^{-1}. La Figure 4-11 (a) représente, pour une impulsion gaussienne en limite de Fourier, la largeur spectrale en fonction de la largeur temporelle. Cette figure montre que de telles largeurs spectrales sont obtenues pour des impulsions (de longueur d'onde centrale 1033 nm) supérieures à 1.5 ps. Selon la partie 4.1.1, il est nécessaire de posséder une largeur temporelle deux fois supérieure à ces largeurs pour obtenir la largeur spectrale nécessaire. Il est donc décidé de configurer la paire de réseaux de manière à obtenir une largeur temporelle des impulsions chirpées de 3.5 ps environ.

L'obtention de cette largeur se fait par le dimensionnement de la paire de réseaux, dont la théorie est largement développée [S. Backus, 1998, Chanteloup, 1998, Agrawal, 2001]. Le schéma représentatif des réseaux est donné en Figure 4-11 (b).

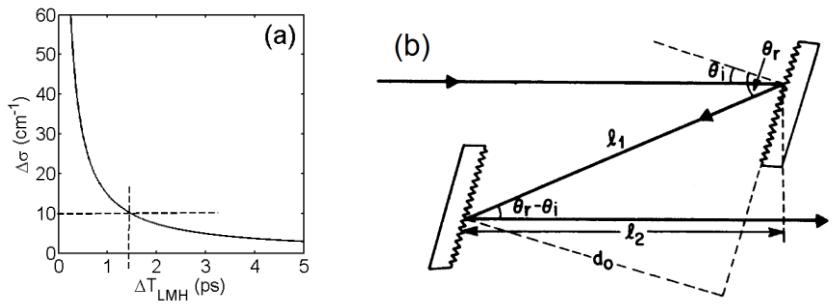


Figure 4-11 : Dimensionnement de la paire de réseaux. (a) largeur spectrale d'une impulsion gaussienne en limite de Fourier, de longueur d'onde centrale 1033 nm, en fonction de sa largeur temporelle. (b) Configuration de la paire de réseaux (d'après [Agrawal, 2001], p.267). θ_i : angle d'incidence, θ_r : angle de réflexion, $l_{1,2}$: portions de chemin optique subissant l'effet de chirp de la paire de réseaux, d_0 : distance inter-réseaux.

Les angles sont donnés par rapport à la normale du réseau. La distance d_0 est la distance, dans le plan d'incidence, entre les tangentes des réseaux (qui sont parallèles). Le chirp et donc l'élargissement temporel sont obtenus à partir de la phase acquise par un rayon se propageant dans la paire de réseaux :

$$\phi_g(\omega) = \frac{\omega l_p(\omega)}{c} \tag{4.5}$$

avec ω la fréquence optique considérée, $l_p(\omega)$ le chemin optique et c la vitesse de la lumière. Le chemin optique est défini par

$$l_p(\omega) = l_1 + l_2 = d_0 sec\theta_r[1 + \cos(\theta_r - \theta_i)] \tag{4.6}$$

avec l_1 et l_2 les longueurs composant le chemin optique, θ_i et θ_r les angles d'incidence et de réflexion par rapport à la normale du réseau et d_0 l'espacement entre les réseaux. Si on considère l'ordre -1 de diffraction et une largeur spectrale de l'impulsion très inférieure à la fréquence optique ($\Delta\omega << \omega_0$), on peut effectuer un développement de Taylor de la phase autour de la fréquence optique de travail. On obtient:

$$\phi_g(\omega) = \phi_0 + \phi_1(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\phi_2(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\phi_3(\omega - \omega_0)^3 + \cdots \tag{4.7}$$

Seuls les termes ϕ_2 et ϕ_3 modélisent les effets de dispersion. Ils sont exprimés en dérivant la phase par rapport à la fréquence optique comme:

$$\phi_2 = -\frac{8\pi^2 c d_0}{\omega_0^3 \Lambda^2 \cos^2\theta_{r0}}, \qquad \phi_3 = \frac{24\pi^2 c d_0 (1 + sin\theta_i sin\theta_{r0})}{\omega_0^4 \Lambda^2 \cos^4\theta_{r0}} \tag{4.8}$$

avec θ_{r0} l'angle de diffraction à ω_0, $d_g = d_0 sec\theta_{r0}$ la distance entre les points d'incidence des réseaux et Λ le pas du réseau. Le terme d'ordre 3 est pour le moment négligé du fait de $\Delta\omega << \omega_0$. Le terme d'ordre 2 est négatif et montre que la paire de réseaux induit un chirp négatif. On introduit également un coefficient de dispersion effectif et une longueur de dispersion effective, pour être cohérent avec les grandeurs utilisées en optique fibrée :

$$\beta_2^{eff} = \frac{\phi_2}{d_g} = -\frac{\lambda_0^3}{\pi c^2 \Lambda^2 cos\theta_{r0}}, \qquad L_D^{eff} = T_0^2 / |\beta_2^{eff}| \tag{4.9}$$

avec T_0 la largeur caractéristique de l'impulsion (partie 2.1). Ces grandeurs permettent d'utiliser la formule d'élargissement d'une impulsion gaussienne soumise à dispersion, et de fait à l'expression de l'écartement des réseaux en fonction de la durée finale souhaitée :

$$T(x) = T_0 \sqrt{1 + \left(\frac{d_g}{L_D^{eff}}\right)^2} \rightarrow d_0 = cos\theta_r . \frac{(T_0^{LMH})^2}{4\ln(2)\beta_2^{eff}} \sqrt{\left(\frac{T_f^{LMH}}{T_0^{LMH}}\right)^2 - 1} \tag{4.10}$$

Les angles θ_i et θ_r sont fixés par l'angle incident d'efficacité maximale des réseaux (≈ -21° par rapport à la normale au réseau, qui fixe θ_i) et par l'ordre de diffraction (m = -1) qui fixe θ_r = -61.8°. Le pas du réseau est de 830 nm. Ces données permettent de déduire l'écartement entre les réseaux, représenté en Figure 4-12, pour différentes largeurs temporelles finales.

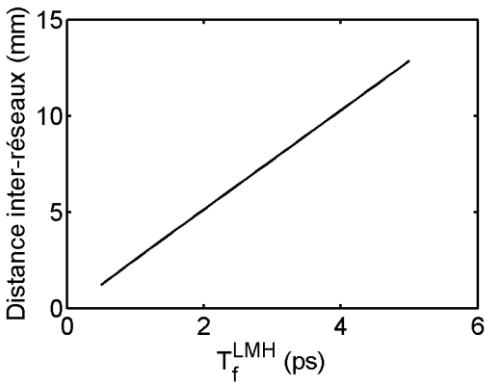


Figure 4-12 : Calcul de l'écartement entre les réseaux en fonction de la largeur temporelle finale souhaitée.

Ainsi, pour une largeur temporelle cible de 3.5 ps, la distance inter-réseau est de 9 mm. Cette distance permet d'obtenir d_g = 19 mm et β_2^{eff} = -11.9 ps^2/m. Ces données sont vérifiées par résolution de la GNLSE (partie 2.1) par simulation numérique, dans laquelle une impulsion de 180 fs et de 400 mW moyen se propage dans un milieu linéaire présentant les caractéristiques de transmission et de dispersion des réseaux utilisés.

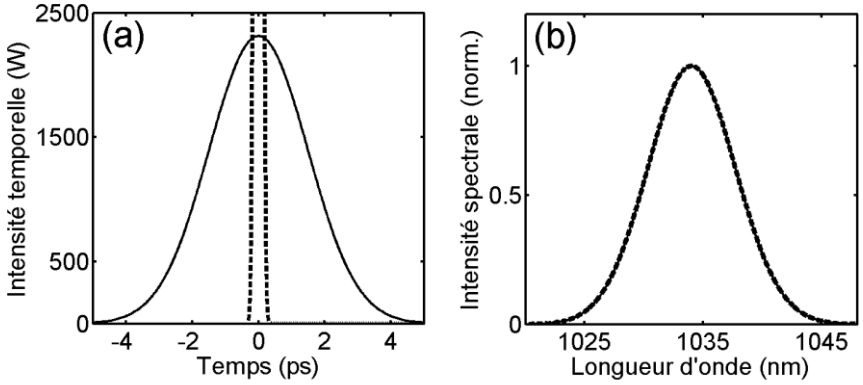


Figure 4-13 : Vérification des calculs de réseau par simulation numérique. (a) Profils d'intensité temporelle initial (tirets noirs) et final (trait noir plein). (b) Profils d'intensité spectrale initial (tirets noirs) et final (trait noir plein).

La contrepartie de la paire de réseaux est leur efficacité qui reste faible et qui amène un rendement global de 59 % environ pour un simple passage. Compte-tenu de la puissance initialement disponible dans ce bras de compression (environ 550 mW de puissance moyenne) et le taux d'injection dans la fibre, la puissance injectée maximale sera de 160 mW environ. Il est donc choisi de n'effectuer qu'un seul passage dans la paire de réseaux, même si ce choix amène également un élargissement spatial.

4.2.2 Optimisation du couple puissance-longueur de fibre

Des simulations sont effectuées pour différentes puissances d'entrée et longueurs de fibre. Ceci afin de déterminer le couple longueur de fibre-puissance d'entrée optimal, respectant les conditions suivantes :

- ***compression optimale*** (en termes de largeur spectrale et de puissance crête).
- ***égalisation des chemins optiques des impulsions pompe et Stokes*** *(pour une synchronisation plus aisée)*, qui impose, dans le montage actuel, la condition $L_{fibreComp.} = L_{PCF} + T_{LASER}.\frac{c}{n_{verre}} \approx L_{PCF} + 4.15\ (m)$ avec L_{PCF} la longueur de la fibre microstructurée utilisée pour le SSFS (chapitre 2). Dans ce cas, l'impulsion pompe sera synchronisée avec l'impulsion Stokes suivante dans le train d'impulsions. On souligne que cette longueur est donc plus une longueur de convenance expérimentale qu'une longueur absolument nécessaire à une compression optimale. En effet les simulations et mesures suivantes montrent que cette dernière peut avoir lieu pour une grande diversité de longueurs de fibre et de puissance injectée. La longueur de fibre microstructurée étant de 1 à 2.5 m, celle-ci impose donc $L_{fibreComp.} \in$ [5.15-6.65] m.
- ***puissance maximale limitée*** à 160 mW de puissance injectée.

La fibre choisie est la SMF-28, initialement disponible. Le ratio de Strehl est extrait de ces simulations. La Figure 4-14 représente l'évolution de ce ratio, sur 10 m de propagation, pour des puissances injectées de 100, 120, 140 et 160 mW.

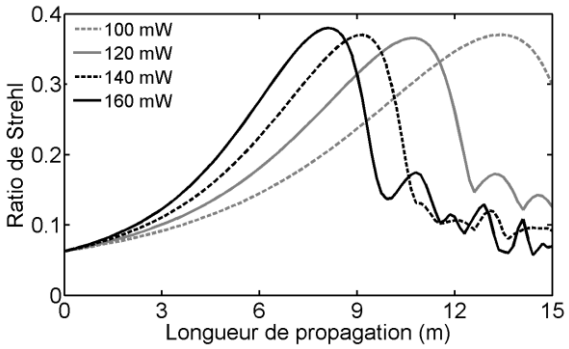


Figure 4-14 : Evolution du ratio de Strehl pour une propagation sur une longueur de 10 m, pour des puissances injectées de 100 (tirets gris), 120 (ligne continue grise), 140 (tirets noirs) et 160 (ligne continue noire) mW.

On constate immédiatement qu'une longueur d'environ 6 m n'est pas suffisante pour obtenir une compression optimale. Il est donc nécessaire d'utiliser une longueur de fibre de 10 m environ, pour laquelle l'impulsion pompe sera synchronisée avec l'impulsion Stokes bi-suivante dans le train d'impulsions. Dans ce cas, on constate sur la Figure 4-14 que des puissances de 140 à 160 mW seront nécessaires. Ce résultat indique ainsi qu'il faut ***privilégier une puissance injectée importante et le choix d'un simple passage dans les réseaux se justifie.***

4.3 Expériences

La configuration expérimentale impose une distance inter-réseaux de 1 cm. L'angle d'incidence est de 21° et l'angle de diffraction est de 58°. Cette configuration permet d'élargir l'impulsion à 3.45 ps (mesure réalisée avec l'autocorrélateur d'intensité utilisé au chapitre 2). L'autocorrélation résultante est représentée en Figure 4-15 (a) par la ligne continue. On constate que la forme gaussienne de l'impulsion est conservée.

On cherche tout d'abord à valider de manière expérimentale les prédictions des simulations. Ainsi, la Figure 4-15 (b) présente, les spectres de sortie de la fibre en fonction de la puissance injectée, pour une longueur de fibre de 10.3 m. Cette longueur doit assurer une compression optimale pour les puissances disponibles. Ces spectres sont tous normalisés à leur puissance crête.

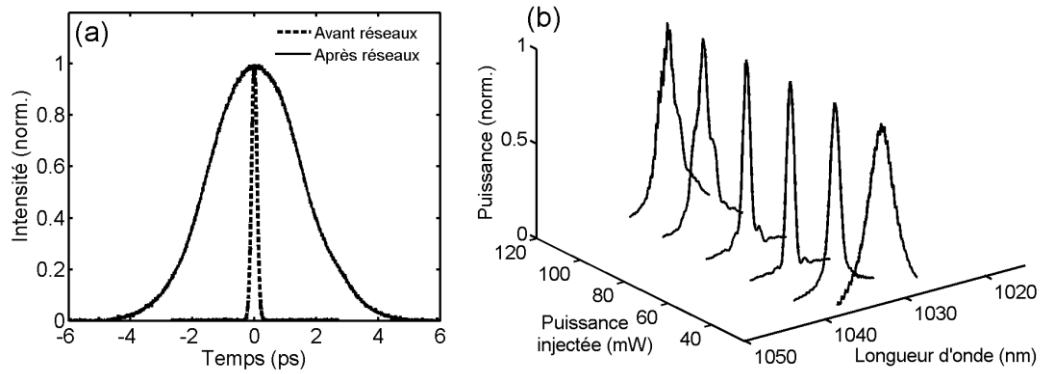


Figure 4-15 : (a) Autocorrélations d'intensité des impulsions issues de l'oscillateur avant leur traversée de la paire de réseaux (tirets) et après (ligne continue). (b) Evolution du spectre de sortie d'une fibre SMF-28 de 10.3 m pour différentes puissances injectées.

Cette figure permet d'observer et de valider, expérimentalement, le processus de compression spectrale. En effet, on constate bien une diminution de la largeur spectrale, qui aboutit à la forme spectrale présente en Figure 4-2 (b), puis un réélargissement. Le taux d'injection est constant avec la puissance injectée. Cependant, on constate que la compression maximale se produit pour une puissance d'environ 60 mW, soit deux fois moins que les prédictions des simulations. De plus, un examen attentif montre que la largeur spectrale à faible puissance injectée (donc sans processus de compression) est de 5 nm environ. Cette largeur témoigne de la limitation du simple passage dans les réseaux qui induit l'élargissement spatial. L'optique de focalisation et la fibre vont alors couper spatialement le faisceau, ce qui se traduit par une troncature spectrale. Cet effet est discuté plus loin.

Comme évoqué en partie 4.1.1, l'évolution du ratio de Strehl n'est pas déterminée en pratique. En effet elle nécessite un contrôle précis de la puissance injectée dans l'analyseur de spectre optique. On effectue donc uniquement une étude simplifiée et on cherchera, pour l'optimisation de la compression à longueur de fibre donnée, à réduire le plus possible les piédestaux visibles sur le spectre. Etant donné la faible puissance nécessaire à une bonne compression pour une longueur de fibre de 10 m, la compression spectrale doit être possible pour des longueurs plus faibles et est étudiée pour des longueurs de 5, 6 et 7 m. Son évolution pour différentes puissances injectées est représentée en Figure 4-16 (a). Un paramètre important pour la source développée, la densité spectrale d'énergie (DSE), est également représentée en Figure 4-16 (b) pour les longueurs de fibre de 6 et 7 m.

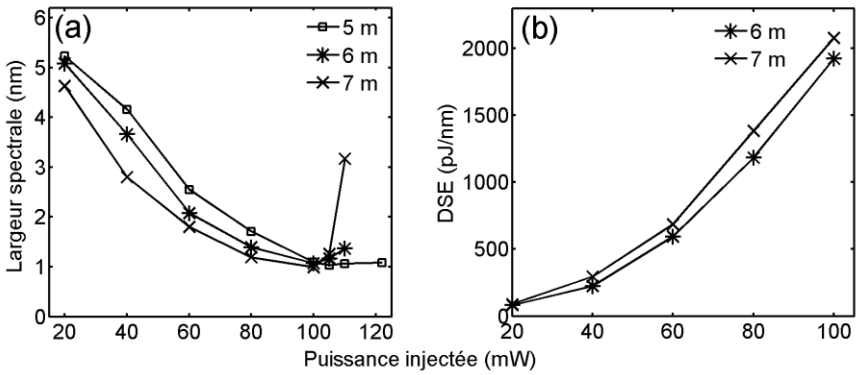


Figure 4-16 : Etude expérimentale de la compression spectrale, en fonction de la puissance injectée, pour des longueurs de fibre de 5 m (carrés), 6 m (étoiles) et 7 m (croix). (a) Largeur spectrale. (b) DSE

La figure (a) confirme l'hypothèse précédente (longueur nécessaire plus faible) et montre qu'une largeur spectrale d'environ 1 nm est obtenue pour une grande variété de couples puissance-longueur de fibre. Les longueurs de 6 et 7 m permettent, de plus de répondre au cahier des charges initial en permettant l'égalisation des chemins optiques des impulsions pompe et Stokes.

La figure (b) confirme la pertinence de ces impulsions pour l'imagerie CARS en montrant une DSE très importante, de l'ordre de 1.5 nJ/nm, soit environ 200 fois plus importante que la DSE obtenue par SSFS (partie 2.2). On souligne que ces valeurs de DSE sont typiques des impulsions picosecondes employées dans les dispositifs simplex CARS.

Ces premières mesures ont permis de valider expérimentalement le processus de compression spectrale, tant au niveau du comportement expérimental que du cahier des charges requis pour l'imagerie CARS multiplex. Cependant, la fibre utilisée (modèle SMF-28) présente une longueur d'onde de coupure de 1260 nm, ce qui signifie que la puissance des impulsions est peut-être répartie sur plusieurs modes différents. Cette répartition peut être source d'instabilité et de dégradation de la qualité du faisceau. Afin de s'assurer de l'aspect monomode du faisceau de sortie, la partie suivante présente une étude employant une fibre monomode à 1033 nm, la fibre SM980.

4.4 Configuration finale

4.4.1 Fibre choisie

Une fibre monomode classique à cette longueur d'onde, la SM-980, est donc testée. Le caractère monomode de cette fibre impose un diamètre de cœur plus faible qui nécessite de recalculer le profil de dispersion et le paramètre non-linéaire de cette fibre.

Profil de dispersion : Ce profil ne sera influencé que par la dispersion du guide, la variation de la dispersion matériau étant négligeable. Pour des indices de cœur et de gaine constants, l'influence du rayon du cœur est représentée par la Figure 4-17 (a). L'approximation de Marcuse [Marcuse, 1978] reliant le diamètre du mode au rayon ainsi que certaines spécifications permettent d'estimer un rayon de cœur de 2.5 µm.

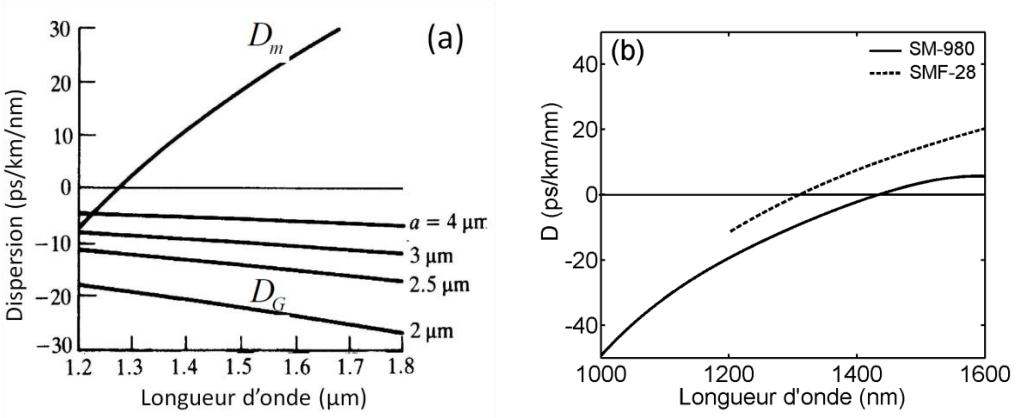


Figure 4-17 : (a) Influence du rayon du cœur sur la dispersion chromatique de la fibre, d'après [Gowar, 1993]. (b) Comparaison des profils de dispersion pour la SM-980 (trait pleins, monomode à 1033 nm) et a SMF-28 (tirets, monomode à 1260 nm).

L'extrapolation de la dispersion du guide à 1000 nm à partir de la Figure 4-17 (a) permet de calculer la courbe de dispersion pour cette fibre, représentée en Figure 4-17 (b). Cette courbe est comparée à la courbe de dispersion de la SMF-28. Elle permet de calculer une valeur de dispersion $\beta_2 = 24.1$ ps^2/km et de déduire une longueur de dispersion de 183 m (@ $T_{LMH} = 3.5$ ps). Les effets dispersifs peuvent donc toujours être négligés.

Paramètre non-linéaire : On estime l'aire effective à $A_{eff} = \pi W^2$ avec W le rayon du mode guidé. On obtient donc

$$A_{eff} = \pi W^2 = 28.3\mu m^2 \rightarrow \gamma = \frac{2n_2}{W^2\lambda_0} = 5.6 * 10^{-3} W^{-1} m^{-1}$$

avec $n_2 = 2.6*10^{-20}$ m^2/W et $\lambda_0 = 1034$ nm. On note que ce paramètre est 4 à 5 fois plus élevé que celui de la SMF-28 à 1550 nm.

Simulations de compression spectrale : Une comparaison de compression spectrale est réalisée par simulation entre 10 m des deux fibres testées. L'impulsion initiale a été élargie à 3.5 ps de largeur temporelle à mi-hauteur par l'introduction préalable d'un chirp de -3.6 THz/ps.

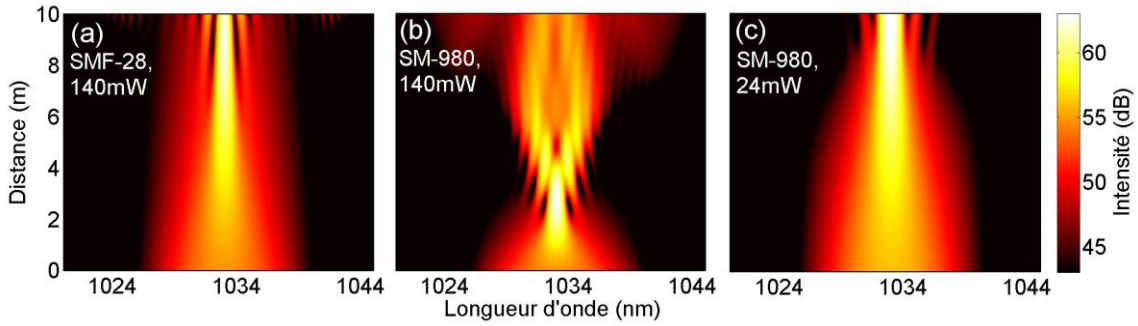


Figure 4-18 : Comparaison des deux fibres pour le processus de compression spectrale. (a) Fibre SMF-28, Pmoy = 140 mW. (b) Fibre SM-980, Pmoy = 140 mW. (c) Fibre SM-980, Pmoy = 24 mW.

Les simulations Figure 4-18 (a,b) comparent le comportement des deux fibres, pour une puissance injectée menant à la compression optimale pour la SMF-28. On constate clairement que la compression optimale, obtenue pour 10 m de SMF, se produit pour environ 3 m de SM-980. Ce

résultat est la conséquence de l'aire effective plus faible, qui se traduit par un coefficient non-linéaire plus élevé et donc par une puissance nécessaire, à longueur de fibre constante, nettement plus faible. La Figure 4-17 (c) montre que le comportement de la SMF-28 est reproduit par la SM-980 pour une puissance injectée environ 7 fois plus faible et confirme la possibilité d'une compression de qualité avec cette fibre.

Cette importance du coefficient non-linéaire est pris en compte par la suite. Il est ainsi décidé de conserver, pour les besoins expérimentaux, une longueur de fibre d'environ 6 mètres, et de baisser la puissance injectée. Les mesures sont décrites dans la partie suivante.

4.4.2 Mesures et comparaison au design

Des tests de compression spectrale sont donc effectués à puissance plus faible. La longueur de la fibre est de 6.2 m pour satisfaire aux conditions de synchronisation. Les simulations indiquent qu'une compression optimale est obtenue pour une puissance moyenne de 45 mW. Une largeur spectrale optimale de 0.9 à 1 nm est obtenue. Plusieurs remarques sont toutefois à formuler :

- La compression optimale expérimentale est obtenue pour des puissances d'environ 8 mW.
- Le spectre présente des "pics satellites" extrêmement marqués (Figure 4-19 (a)).
- A puissance injectée très faible, le spectre est encore plus étroit que dans le cas de la SMF.

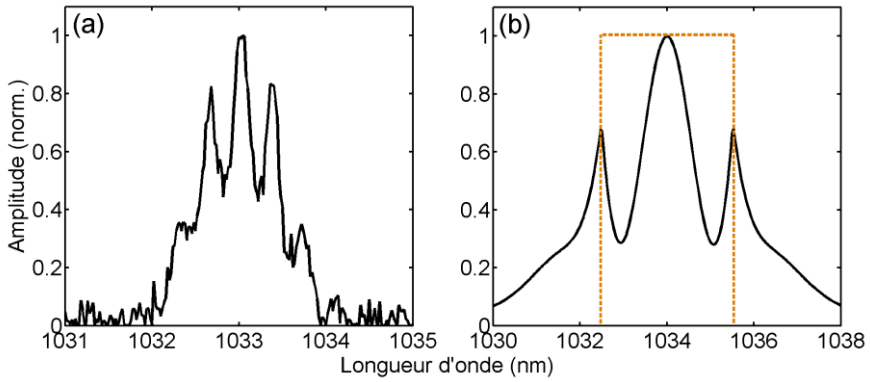


Figure 4-19 : Analyse de la troncature spectrale imposée par la fibre. (a) Spectre expérimental typique de l'emploi de la fibre SM-980. (b) Simulation de compression (ligne continue noire), dont le spectre initial a été coupé par une fonction porte (tirets orange).

Tous ces points indiquent que la fibre SM-980 effectue, sur le faisceau injecté, un filtrage spatial encore plus important que la SMF-28. Le processus de compression spectrale est néanmoins toujours nécessaire pour aboutir à la largeur spectrale souhaitée. La faible puissance mise en jeu permet d'envisager un double-passage dans les réseaux afin de supprimer ce filtrage spatial. Il n'a cependant pas été mis en oeuvre car les impulsions générées (voir la fin du paragraphe) permettent la validation du dispositif.

Ce comportement a été modélisé par des simulations de compression dans lesquelles le spectre est filtré par une fonction porte de 2.5 nm de large (représentée par les tirets orange en Figure 4-19 (b)), pour reproduire la largeur spectrale expérimentale « initiale », c'est-à-dire à puissance injectée très faible. Il serait nécessaire d'affiner cette modélisation car l'écart entre les pics satellites n'est pas reproduit correctement. On souligne que la forme du spectre expérimental peut

être également obtenue, par simulation, pour une puissance initiale trop importante, qui aboutit à un réélargissement spectral par SPM. L'écart entre les pics satellites et le pic central est une fois encore trop important, et la puissance nécessaire, 50 % plus importante, écarte les erreurs de manipulation.

Les caractéristiques des impulsions obtenues permettent de calculer une DSE de 160 pJ/nm pour une largeur spectrale de 10 cm^{-1}. Bien qu'inférieure d'un ordre de grandeur à la DSE calculée dans le cas d'une SMF, elle reste très importante. Ces impulsions remplissent donc le cahier des charges et sont retenues pour la démonstration d'imagerie CARS. Cependant, il serait intéressant d'améliorer leurs performances et leur qualité, toujours dans une optique d'imagerie biologique rapide. Les pistes d'amélioration font l'objet de la partie 4.5.

Le dernier point à vérifier est leur stabilité à court-terme, à l'instar des impulsions Stokes, afin de confirmer que leur synchronisation est possible.

4.4.3 Mesures de gigues

Des mesures de gigues sont effectuées en sortie de bras de compression pour savoir si le processus introduit du bruit et s'il ne compromet pas la synchronisation des impulsions. La chaîne de mesure et les réglages de l'analyseur de spectre électrique sont identiques à ceux de la partie 2.3. La Figure 4-20 présente les gigues d'amplitude (figure (a)) et temporelle (figure (b), pour l'harmonique n°40) extraites de ces spectres (lignes continues orange), comparées aux gigues de l'oscillateur seul (lignes continues noires).

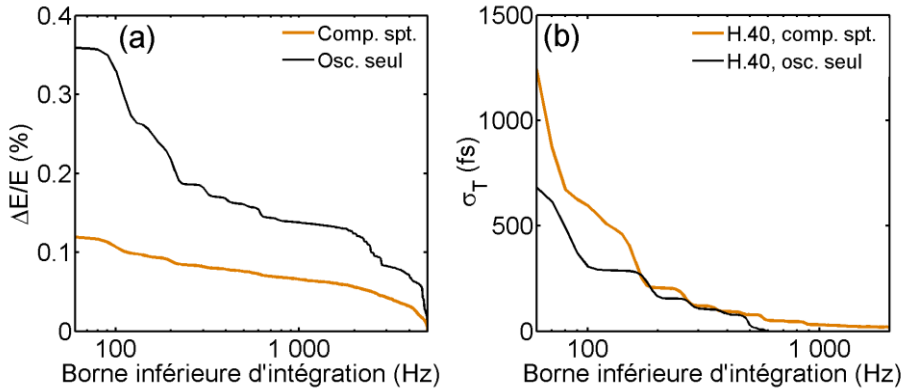


Figure 4-20 : Comparaison des gigues d'amplitude (figure (a)) et temporelle (figure (b)) des impulsions comprimées (courbes oranges) et de l'oscillateur seul (courbes noires).

Les gigues calculées sont du même ordre de grandeur que celles de l'oscillateur seul. Cependant, une fois encore, la gigue d'amplitude est inférieure à celui-ci. Ce résultat, identique à ceux obtenus pour le processus de SSFS (qui fournit les impulsions Stokes), soulève des interrogations sur la bonne attribution des gigues relevées sur le laser aux gigues d'amplitude et temporelle. En effet, il est probable que sa gigue d'amplitude soit moins importante. Cette baisse se répercuterait sur la gigue temporelle et aurait pour effet de l'augmenter (voir la relation 2.21 en partie 2.3) et de lui conférer une chute moins brusque et un niveau plus proche de ceux calculés pour les impulsions pompe et Stokes.

Ainsi, l'information qu'on peut retirer de ces mesures est que globalement, le processus de compression spectrale introduit peu ou pas de gigue supplémentaire, et que pour les raisons exposées au chapitre 2, les impulsions sont synchronisables.

Les impulsions générées remplissent donc le cahier des charges et permettent la synchronisation des deux faisceaux. Dans l'optique d'une source plus robuste et performante, la partie suivante explore plusieurs voies d'améliorations possibles.

4.5 Améliorations possibles

4.5.1 Evolution vers un dispositif entièrement fibré

Utilisation d'un Réseau de Bragg fibré : Une première voie d'amélioration consiste à augmenter la robustesse de la source face aux contraintes environnementales de type vibrations mécaniques ou fluctuations thermiques. Dans ce cadre, les dispositifs fibrés présentent un avantage réel, ne serait-ce que parce que le problème de la stabilité mécanique nécessaire à une injection stable ne se pose pas.

La première étape du processus de compression spectrale est d'imposer un chirp négatif à l'impulsion. Ce chirp est actuellement imposé par une paire de réseaux en réflexion. Il a été étudié la possibilité de remplacer cette paire de réseaux par un réseau de Bragg fibré (ou FBG). En effet, la société Teraxion [Teraxion, 2012] propose des FBG répondant au cahier des charges fixé (λ_0 = 1033 nm, $\Delta\lambda$ = 10 nm, ϕ_2 = 0.36 ps^2). Cependant, leur utilisation présente les limitations suivantes :

- les impulsions employées (180 fs) induiraient, lors de leur propagation dans les fibres de connexion au réseau, des effets dispersifs et non-linéaires qui la dégraderaient considérablement. Ce constat est clairement mis en lumière par le calcul des longueurs de dispersion (54 cm) et non-linéaire (Figure 4-21, calculée pour différentes puissances moyenne d'entrée). Le spectre serait ainsi significativement modifié pour des longueurs de quelques centimètres.

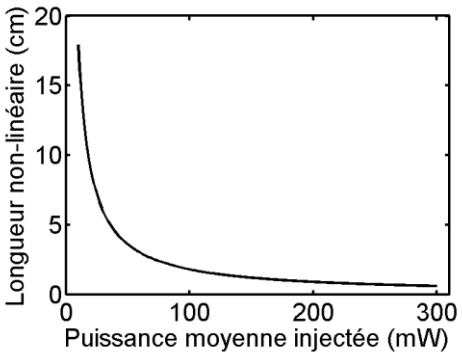


Figure 4-21 : Calcul de la longueur de non-linéarité de la fibre SM-980 en fonction de la puissance moyenne injectée, pour les impulsions issues de l'oscillateur utilisé.

Cette dégradation rend très difficilement possible l'utilisation de tels réseaux. Une mise en forme préalable pour compenser ces effets peut être envisagée [C. Lefort, 2010] mais ajoute une complexité non nécessaire pour une démonstration de principe.

- la réflectivité maximale disponible est de 40 % aux longueurs d'ondes et puissances souhaitées, ce qui est suffisant pour l'utilisation d'une fibre SM-980 mais qui pourrait s'avérer insuffisante dans le cadre d'une montée en puissance éventuelle. Ce point fait l'objet de la partie suivante.

Utilisation d'une fibre à cœur creux : L'utilisation d'une fibre à cœur creux a été évoquée en partie 4.1.2, car elle a déjà prouvé son efficacité. Dans le cas présent, si on considère une fibre de type HC1060 de NKT Photonics, avec β_2 = -51 ps²/km @ 1033 nm, une longueur de 4.5 m serait nécessaire à l'obtention d'impulsions de 3,5 ps. Cette longueur pourrait être intégrée simplement par le réglage du couple longueur de fibre de compression-puissance injectée. Une difficulté technique peut résider dans sa connexion à la fibre induisant la SPM, car il sera nécessaire d'adapter les diamètres des modes des fibres utilisées. Cette solution est présentée comme une alternative technique pour un coût plus élevé (≈ 200 €/m, soit environ 1000 €) que celui des réseaux (≈ 110 € la paire) mais toutefois raisonnable.

4.5.2 Augmentation de la puissance de sortie :

Augmentation de l'aire effective : A l'instar du SSFS (chapitre 2), le gain en puissance peut passer par une aire effective plus importante, qui aura tendance à diminuer le coefficient non-linéaire. Des simulations sont ainsi effectuées pour différentes fibres présentant une aire effective plus importante que celle de la SM-980, tout en restant monomode à 1033 nm. Le calcul du coefficient non-linéaire résultant inclut uniquement les aires effectives différentes et l'indice n_2 est gardé constant. Il est ainsi décidé de déterminer la puissance nécessaire à une compression optimale pour une longueur de 6.2 m de fibre, longueur actuelle présente sur le montage. Les résultats sont résumés dans le Tableau 4-1 ci-dessous :

Fibre	***Type***	***$Ø_{mode}$ (µm, @1033nm)***	***A_{eff} (µm²)***	***$\gamma(10^{-3}W^{-1}m^{-1})$***	***P_m (mW)***
SM-980	SM	6	28.3	6.2	45
PM980-XP	PM	6.8	36.4	4.4	75
P-10/125DC	LMA	10	78.5	2	140

Tableau 4-1 : Comparaison des puissances moyennes nécessaires à une compression optimale pour différentes fibres. Stratégie d'augmentation de l'aire modale.

Ce tableau montre clairement l'augmentation de la puissance nécessaire en fonction de l'augmentation de l'aire effective. Un avantage supplémentaire est l'augmentation probable du rendement en puisance injectée grâce à une coupure spatiale moins importante (voir la partie 4.4.2 à ce sujet).

Diminution de la longueur de fibre : Une deuxième stratégie consiste à diminuer la longueur de fibre afin d'augmenter la puissance nécessaire. Cette diminution peut être rendue possible soit en augmentant la puissance injectée, soit en augmentant le coefficient non-linéaire de la fibre utilisée, soit en utilisant simultanément ces deux choix. Dans ce cadre, la configuration actuelle (fibre SM980, 6.2 m) est comparée à la même fibre et à une fibre microstructurée (NL-1.8-710). On choisit de chercher la longueur de fibre optimale pour une puissance maximale injectée de 95 mW. Cette puissance correspond à la puissance maximale disponible dans le cas d'un double-passage dans la paire de réseaux afin d'éviter l'élargissement spatial évoqué en partie 4.2.

Fibre	*Type*	$Ø_{mode}$ *(µm, @1033nm)*	A_{eff} *(µm²)*	$\gamma(W^{-1}m^{-1})$	$P_{inj.}$ *(mW)*	L_{fibre} *(m)*
SM-980	SM	6	28.3	6.2	57	6.2
SM-980	SM	6	28.3	6.2	95	3.2
NL-1.8-710	PCF	1.2	1.13	88	95	0.22

Tableau 4-2 : Comparaison des puissances moyennes nécessaires à une compression optimale pour différentes fibres. Stratégie de diminution de la longueur de fibre.

Ce tableau montre qu'une fibre de type microstructurée peut présenter un intérêt dans le cadre d'une étude de miniaturisation. La longueur de dispersion (136 m) montre qu'elle peut toujours être négligée.

Ces deux tableaux mettent en valeur les nombreuses possibilités d'augmentation de la puissance injectée. Elles n'ont pas été exploitées dans le cadre de ce travail de thèse car la longueur de fibre employée est conditionnée par la synchronisation des impulsions générées avec les impulsions spectralement décalées (voir l'introduction de la partie 4.2.2).

Amplification simultanée : Une troisième stratégie est d'augmenter non pas la puissance initiale, mais d'utiliser, en tant que fibre assurant la conversion de fréquence non-linéaire, une fibre dopée. Cette fibre permet de réaliser une amplification simultanément au processus de compression [J. Limpert, 2002, J. Limpert, 2005]. Cette stratégie est pleinement compatible avec l'oscillateur utilisé (les démonstrations reposent sur l'emploi d'oscillateur à 1033 et 1064 nm) et les longueurs de fibre employées (environ 1.5 m) sont également compatibles avec la problématique de synchronisation des impulsions.

4.5.3 Amélioration de la qualité des impulsions : mise en forme parabolique

On a constaté précédemment que dans la configuration expérimentale actuelle, les impulsions comprimées présentent des piédestaux assez importants, dus à l'effet de la SPM sur une impulsion gaussienne qui impose un chirp non monotone. Bien qu'il soit possible d'améliorer la qualité de la compression en optimisant la dispersion d'ordre 3 [B.R. Washburn, 2000], il peut sembler plus élégant d'utiliser un autre type d'impulsion, dont le chirp induit par SPM est monotone. Ce type d'impulsion est une impulsion parabolique. En effet, le chirp induit par la SPM, pour ce type d'impulsion, ne présente pas de point d'inflexion [C. Finot, 2006, C. Finot, 2007, E.R. Andresen,

2011a, J. Fatome, 2012]. Une comparaison de compression spectrale entre une impulsion gaussienne, une impulsion sécante hyperbolique, et une impulsion parabolique est donnée en Figure 4-22.

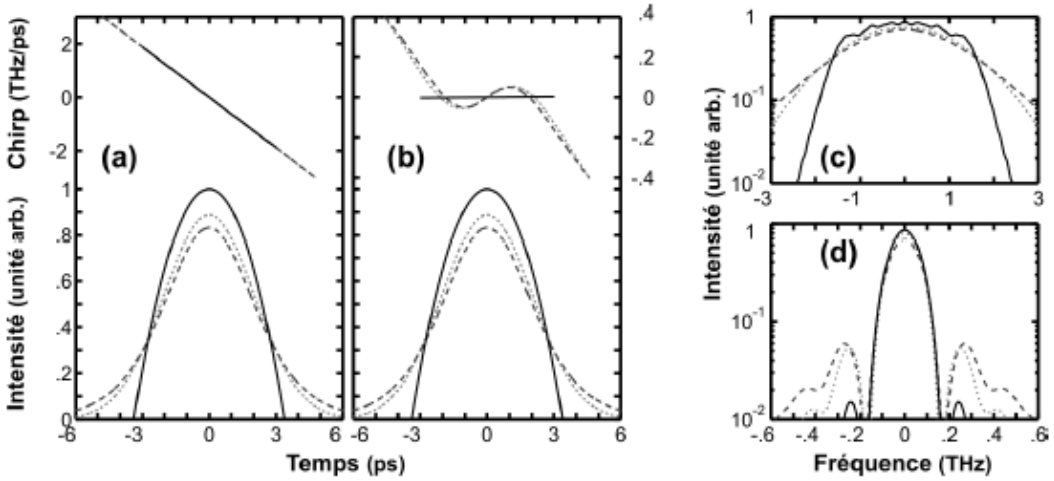


Figure 4-22 : Apport des impulsions paraboliques à la compression spectrale, d'après [C. Finot, 2007]. Comparaison d'une impulsion parabolique (ligne continue) à des impulsions gaussienne (points) et sécante hyperbolique (tirets). (a,b) Profils d'intensité temporelle avant et après compression. (c,d) spectres normalisés avant et après compression.

Les figures (a) et (b) représentent les profils d'intensité temporelle et les figures (c) et (d) les profils d'intensité spectraux, initiaux et après compression. On constate clairement l'apport des impulsions paraboliques. Cette observation est assez simplement modélisée en considérant le profil temporel une impulsion parabolique :

$$E(t) = \begin{cases} \sqrt{I_0}\sqrt{1-\frac{2t^2}{\tau^2}}\,e^{i\alpha t^2}\,, -\sqrt{2} \le \frac{t}{\tau} \le \sqrt{2} \\ \\ 0, \qquad\qquad sinon \end{cases} \tag{4.11}$$

I_0 l'intensité temporelle crête de l'impulsion, τ la durée caractéristique et α le paramètre de chirp linéaire, qui sera négatif. Cette impulsion subit donc la SPM ce qui aboutit à

$$E(t,L) = e^{-i\gamma|E(t,0)|^2 L}E(t,0) = e^{-i\gamma I_0\left(1-\frac{2t^2}{\tau^2}\right)L+i\alpha t^2}|E(t,0)| \tag{4.12}$$

avec γ le paramètre non-linéaire. Après la longueur de fibre L, la phase instantanée de l'impulsion est donc

$$\frac{d}{dt}\phi(\mathrm{t}) = \frac{4\gamma \mathrm{I}_0 \mathrm{t}}{\tau^2}L + 2\alpha t \tag{4.13}$$

qui montre clairement qu'elle peut être annulée sur tout le profil temporel de l'impulsion. Cet effet est représenté par le chirp nul en Figure 4-22 (b).

Une compression optimale impose donc un profil d'intensité parabolique et ainsi une mise en forme préalable des impulsions de l'oscillateur. Ce type de dispositif a déjà été démontré en utilisant un oscillateur proche de celui utilisé dans cette thèse et une mise en forme par façonneur d'impulsions acousto-optique [E.R. Andresen, 2011a]. Les résultats démontraient une largeur

spectrale de l'ordre de 10 cm^{-1} avec forte réduction des piédestaux pour des énergies de l'ordre du nanoJoule, qui correspondent tout à fait à l'application visée. Le façonneur acousto-optique imposait cependant de travailler avec des "portes temporelles" de 5 µs à une fréquence de travail de 25 kHz. Ce régime de fonctionnement aboutissait à un "train de trains d'impulsions" dont l'efficacité en microscopie à cadence vidéo reste à prouver.

Conclusion du chapitre

Ce chapitre a présenté l'apport de la compression spectrale à l'imagerie biophotonique. Ce processus a permis d'obtenir des impulsions de 1 nm de largeur spectrale à 1033 nm (soit 10 cm^{-1}), avec une densité spectrale d'énergie de 160 pJ/nm environ. Ces impulsions remplissent pleinement le cahier des charges pour des tests d'imagerie CARS.

Devant les limitations en puissance de ce montage, des alternatives et pistes d'amélioration simples ont été proposées, comme le double passage dans un réseau ou l'emploi d'autres types de fibres que la fibre choisie.

Enfin, parmi les pistes d'améliorations proposées, l'évolution du montage vers un montage entièrement fibré, plus robuste, ne semble pas possible actuellement. Cependant, cette piste peut être gardée à l'esprit dans le cadre d'autres montages (voir le chapitre 5).

5 Validation du dispositif

Les chapitres précédents ont traité en détail des composantes pompe et Stokes fondamentales d'une expérience de CARS. Le dispositif présente ainsi

- un ***faisceau pompe***, à 1033 nm, de largeur spectrale 1 nm et d'environ 8 mW (≈ 160 pJ/nm)
- un ***faisceau Stokes***, de longueur d'onde centrale variable de 1033 à 1350 nm délivrant une puissance de 1 à 4 mW (≈ 6-8 pJ/nm).

L'expérience de spectroscopie CARS doit donc permettre de confirmer la pertinence et les performances de ces choix, effectués dans les parties 2 et 4, et également de mettre en place une expérience de ce type, la première à Dijon. La configuration expérimentale et matérielle choisie permet donc une expérience de principe, qui permet de valider le système dans un cas simple par la production d'un signal CARS. Elle est présentée en première partie. La seconde partie traite de la synchronisation des impulsions pompe et Stokes par un moyen simple et compact : l'absorption à deux photons au sein d'une photodiode. Cette partie traite notamment d'une problématique capitale pour ce système, à savoir la relation entre le retard de l'impulsion Stokes et sa longueur d'onde de décalage. La synchronisation des impulsions étant maîtrisée, la troisième partie présente les spectres CARS acquis. Les quatrième et cinquième parties traitent ensuite de pistes d'évolution du dispositif actuel vers un prototype plus simple d'utilisation et vers une plateforme d'imagerie multimodale. Enfin, la sixième partie propose une alternative au dispositif actuel, entièrement fibrée, et reposant sur les concepts développés au cours des chapitres 2 et 4 (décalage Raman des solitons et compression spectrale).

5.1 Dispositif expérimental

5.1.1 Configuration CARS adoptée

Selon les configurations possibles détaillées en partie 1.2, la configuration choisie est une configuration en faisceaux colinéaires, à forte focalisation ("tight focusing") avec une récupération du signal CARS diffusé vers l'avant (ou F-CARS).

On rappelle que la configuration colinéaire est choisie car elle est moins complexe à mettre en œuvre qu'une configuration "BOXCARS" et que la résolution spatiale est meilleure. La forte focalisation permet de maximiser le signal CARS généré grâce à sa longueur focale plus proche de la longueur de cohérence du processus CARS et également grâce aux cônes de focalisation qui permettent de satisfaire systématiquement l'accord de phase. Enfin, la récupération du signal vers l'avant permet de récupérer un signal quel que soit le type de milieu analysé (sous condition d'absorption suffisamment faible). La gamme spectrale de travail est la gamme [1033-1350] nm (pour une gamme spectrale cible [1033-1500] nm). Elle permet de diminuer la composante non-résonnante et de minimiser l'échauffement des échantillons tout en permettant une profondeur de pénétration maximale (1.2.2.2). Les faisceaux sont polarisés parallèlement car on cherche dans un premier temps à maximiser le signal CARS obtenu, qu'il soit résonnant ou non.

5.1.2 Choix matériels

La Figure 5-1 ci-dessous montre le schéma expérimental retenu. La génération des impulsions pompe et Stokes a fait respectivement l'objet des parties 2 et 4 et n'est pas redétaillée ici.

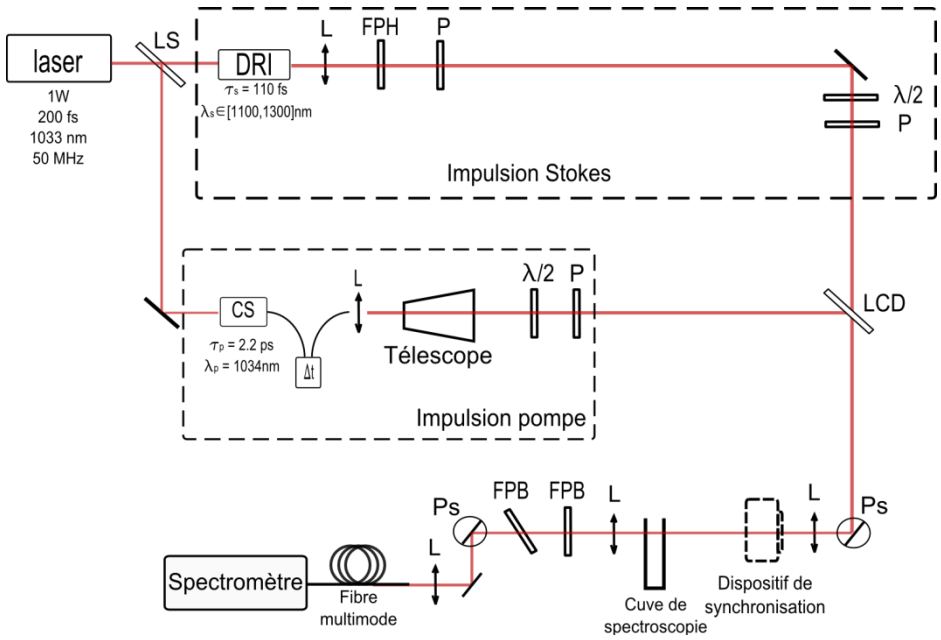


Figure 5-1: Dispositif expérimental total pour l'expérience de spectroscopie CARS. LS : lame séparatrice 50/50, DRI : Décalage Raman Intra-impulsion, CS : Compression Spectrale, ΔT : ligne à retard fibrée, L : lentille, FPH : filtre passe-haut, P : polariseur, λ/2 : lame demi-onde, LCD : lame combinatrice dichroïque, Ps : périscope, FPB : filtre passe-bas.

5.1.2.1 Faisceau pompe

Ce faisceau délivre les impulsions pompe (1033 nm) picosecondes et fines spectralement. Il contient une ligne à retard fibrée qui permet la synchronisation des impulsions pompe et Stokes. Cette ligne à retard est un modèle MDL002 de General Photonics, possédant une résolution de 0.1 fs et une amplitude de retard de 560 ps qui permet ainsi une compensation de chemin optique d'environ 17 cm d'air libre ou de 11.5 cm de fibre. Les fibres de connexion d'entrée et de sortie (fibres HI1060, monomodes à la longueur d'onde pompe) sont prises en compte dans le calcul de la longueur nécessaire à la compression spectrale et à la bonne synchronisation des impulsions. Le faisceau est ensuite collimaté par une lentille asphérique (f = 15.29 mm) et élargi spatialement par un télescope (grandissement de 2 à 5). Ce grandissement permet de couvrir l'ouverture utile de la lentille de focalisation CARS (5 mm) et ainsi de bénéficier de son ouverture numérique maximale. Une lame demi-onde impose une polarisation verticale pour maximiser la puissance réfléchie par la lame de recombinaison des faisceaux. Un polariseur assure qu'elle soit bien rectiligne.

5.1.2.2 Faisceau Stokes

Ce bras délivre, par fibre microstructurée, les impulsions Stokes femtoseconde et ajustables en longueur d'onde (1033-1350 nm). Il est important de remarquer que le waist du faisceau (collimaté en sortie de fibre microstructurée) varie avec cette longueur d'onde. A l'aide du formalisme de l'optique des faisceaux gaussiens, le Tableau 5-1 ci-dessous fournit quelques valeurs de waists obtenus pour une lentille donnée (f = 4.51 mm).

λ_{Stokes} (nm)	1034	1100	1300	1500
W_{fibre} (µm)	0.6	0.6	0.6	0.6
$W_{colli.}$ (mm)	2.5	2.6	3.1	3.6

Tableau 5-1 : Calcul des waists du faisceau Stokes collimaté en fonction de la longueur d'onde du soliton décalé. W_{fibre} : rayon du mode guidé dans la fibre, $W_{colli.}$: waist du faisceau collimaté.

La lentille choisie permet donc d'obtenir des waists de l'ordre du rayon de l'ouverture utile de la lentille de focalisation CARS (2.5 mm). La puissance du soliton décalé augmentant avec la longueur d'onde de décalage, la coupure spatiale du faisceau est compensée par cet apport de puissance.

Un filtre passe-haut (longueur d'onde de coupure de 1100 nm) coupe le résidu de l'impulsion initiale non-décalée afin de ne conserver que le soliton décalé. Comme il sera mentionné en partie 5.5, ce résidu de pompe peut être récupéré soit pour constituer le signal de contre-réaction de l'injection dans la fibre microstructurée, soit pour d'autres configurations expérimentales, comme le CARS résolu en temps (ou T-CARS, voir la partie 1.2).

5.1.2.3 Recombinaison et dispositif de spectroscopie

La recombinaison des deux faisceaux est effectuée par un autre filtre passe-haut, de longueur d'onde de coupure de 1100 nm, agissant en miroir dichroïque. Ce filtre est utilisé en transmission pour le faisceau Stokes et en réflexion pour le faisceau pompe. Cette configuration a l'avantage d'augmenter l'efficacité de rejection du résidu de pompe présent sur le bras Stokes. Pour des raisons

de convenance matérielle, un périscope achemine les deux faisceaux vers l'optique de focalisation CARS. La Figure 5-2 présente un aperçu de cette partie du dispositif.

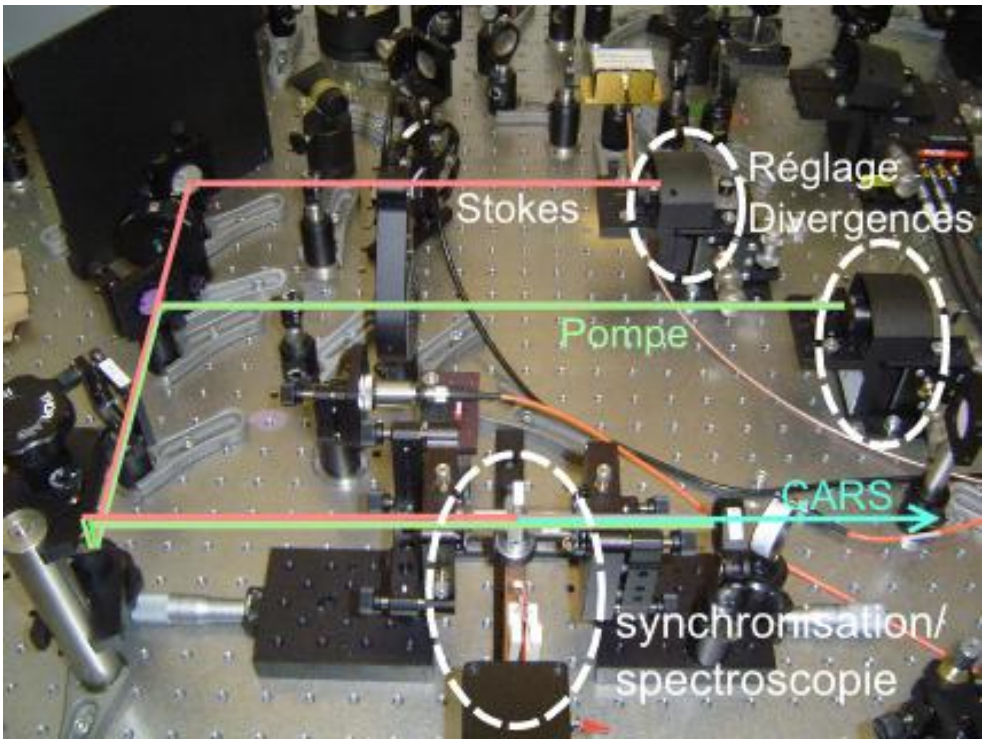


Figure 5-2 : Mise en relief des faisceaux pompe et Stokes collimatés.

Optiques de focalisation/collection : Chaque optique est placée sur une monture optique cinq axes qui assure un placement et une orientation précis dans le plan de focalisation. Cette monture est elle-même placée sur une platine de translation selon l'axe optique. Les optiques utilisées, présentées plus loin, présentent des ouvertures numériques moyennes, de l'ordre de 0.5 à 0.65. Aussi, l'orientation des optiques (en angle) par rapport à l'axe optique s'est révélée moins importante que le placement dans le plan de focalisation (dont la normale est l'axe optique). Cependant, ce type de monture s'avère nécessaire dès lors que des ouvertures numériques importantes (1 à 1.2), typiques des dispositifs de microscopie, sont utilisées.

Deux lentilles de focalisation ont été testées : une lentille asphérique (f = 4.03 mm, O.N. = 0.62, O.U (Ouverture Utile) = 5 mm) et un doublet achromatique (f = 7.5 mm, O.U = 4.4 mm), acquis par la suite. Ces deux lentilles sont comparées en partie 5.5 au travers du spectre CARS d'une résonance de l'éthanol à 884 cm^{-1}. La majorité des spectres a été enregistrée avec la lentille asphérique. Cette lentille a été choisie pour sa grande ouverture numérique (nécessaire à la configuration "tight focusing") et pour sa distance focale effective qui rend possible une focalisation des faisceaux à l'intérieur de la cuve de spectroscopie pour un coût raisonnable (75 €). On remarque que ce coût est nettement plus élevé dans le cas de l'utilisation d'objectifs d'ouverture numérique identique, à grande distance de travail en air libre, et apochromatiques (le plus haut niveau de correction des aberrations chromatiques et sphériques). En effet ce type d'objectif est disponible pour environ 3000 € (prix obtenus chez la société Zeiss).

Cependant, on peut se poser la question du comportement de la lentille asphérique face aux possibles aberrations chromatiques. Ainsi, la modélisation de son comportement est effectuée à l'aide du logiciel Zemax, qui a permis de déterminer la fonction d'étalement du point (ou PSF : Point Spread Function), pour différentes longueurs d'onde, au point de focalisation idéal (assurant un waist minimal) pour la longueur d'onde de 1360 nm (décalage maximal actuel des impulsions Stokes). En effet le point de focalisation varie avec la longueur d'onde. Il est cependant choisi fixe afin de reproduire le comportement expérimental. Ces fonctions d'étalement sont ensuite intégrées sur le rayon des différents faisceaux, afin de déterminer l'évolution de leur énergie en fonction de leur étalement. La Figure 5-3 (a) ci-dessous représente donc ces énergies intégrées pour différentes longueurs d'onde et les comparent aux énergies de faisceaux focalisés « idéaux », c'est-à-dire dépourvus d'aberrations.

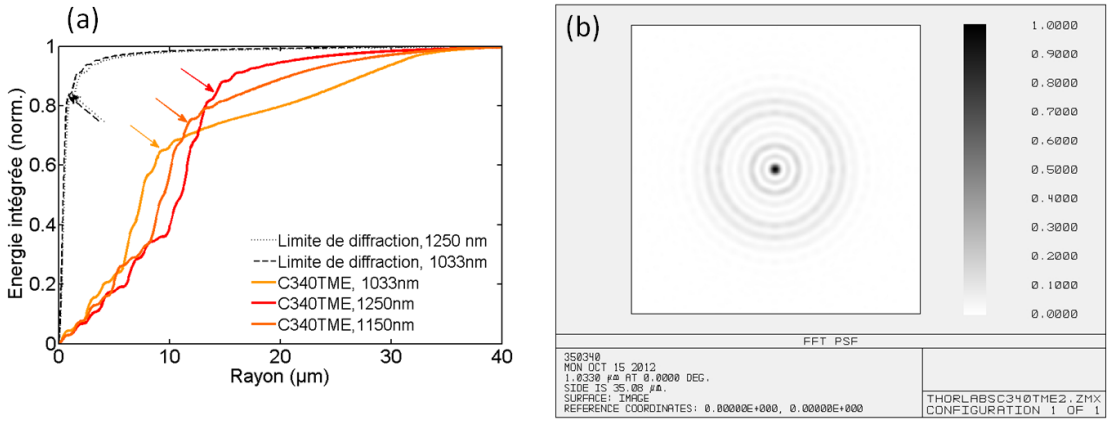


Figure 5-3 : Evolution de l'énergie du faisceau en fonction du rayon. Comparaison d'un faisceau en limite de diffraction à 1033 nm (tirets noirs) et 1250 nm (points noirs) aux faisceaux "réels" à 1033 nm (orange clair), 1150 nm (orange) et 1250 nm (rouge). Simulations effectuées grâce au logiciel Zemax. (b) Exemple de fonction d'étalement pour la longueur d'onde de l'oscillateur, c'est à dire 1033 nm.

Les faisceaux idéaux sont représentés par les courbes noires. Ces faisceaux correspondent en fait à la limite de diffraction, dont l'intensité en fonction du rayon d'intégration est modélisée par une fonction d'Airy. Ces courbes permettent de retrouver cette fonction avec une augmentation rapide de l'énergie et des petites stagnations qui correspondent à une intensité nulle. Si on détermine le waist comme correspondant à la première stagnation, localisée par une flèche pour chaque courbe noire, il est donc pour un faisceau « idéal » de 1 µm environ.

Par la suite, on remarque que les faisceaux "réels" sont loin de la limite de diffraction. Cet écart est clairement visible sur la Figure 5-3 (b), qui représente l'amplitude de la fonction d'étalement dans le plan focal image. On constate la présence de nombreux anneaux périphériques dont l'évolution en amplitude est non-monotone et de fait contraire à l'évolution des anneaux décrits par une fonction d'Airy.

Les waists W_0 de ces faisceaux sont déterminés par le coude que forme chaque courbe (repérés par des flèches) et qui permet de déterminer le rayon dans lequel est concentrée la majorité de l'énergie du faisceau. Ils sont de l'ordre de 8 à 12 µm et augmentent avec la longueur d'onde considérée. Si on modélise le volume de focalisation comme un cylindre de diamètre $2W_0$ et de longueur $2Z_R$, avec $Z_R = \frac{\pi W_0^2}{\lambda}$ la distance de Rayleigh, on obtient

$$\begin{cases} \emptyset = 2W_0 \approx 20\ \mu m \\ Z_R = 24\ \mu m\ (@1033\ nm),\ 30\ \mu m\ (@1250\ nm) \end{cases} \rightarrow V \approx 4800 - 13500\ \mu m^3$$

Ces valeurs sont à comparer à celles du cas de la limite de diffraction :

$$\begin{cases} \emptyset = 2W_0 \approx 2\ \mu m \\ Z_R = 3\mu m\ (@1033\ nm), \qquad 2.5\mu m\ (@1250\ nm) \end{cases} \rightarrow V \approx 32 - 37\ \mu m^3$$

et au volume focal typique de la microscopie, inférieur au µm^3. Ce calcul simple permet d'obtenir un ordre de grandeur du volume dans lequel le signal CARS est généré. Une étude complète de cette problématique de focalisation devrait inclure un calcul de l'intensité CARS générée mais sort du cadre de ce travail de thèse. On souligne que la perte de focalisation est compensée par le gain en longueur d'interaction. De plus, cette dépendance des propriétés de la lentille à la longueur d'onde induit également une variation de la distance focale effective. De ce fait, on cherchera plutôt à optimiser le signal de synchronisation ou le signal CARS obtenu par le réglage de la divergence de chaque faisceau. Cette divergence sera réglée au niveau de la collimation des faisceaux (voir les zones annotées « divergence » sur la Figure 5-2).

La collection du signal CARS a tout d'abord été effectuée par une lentille identique à la première lentille de focalisation, c'est à dire une lentille asphérique de distance focale effective de 4.03 mm. Cependant sa faible distance de travail ne permettait pas de compenser l'encombrement imposé par la cuve de spectroscopie (présentée après) et de récupérer efficacement le signal CARS émis. Elle a ainsi été rapidement remplacée par une lentille d'ouverture numérique plus faible (0.5) mais de distance focale plus grande (8 mm) qui permet une récupération plus efficace du signal. Ce type de configuration est typique de la microscopie classique et se justifie d'autant plus en imagerie CARS que le signal émis vers l'avant est très directionnel et que, dans le cas présent, les échantillons analysés sont peu diffusants [J.-X. Cheng, 2002a].

Synchronisation et spectroscopie : La synchronisation des impulsions est réalisée à l'aide d'une photodiode (partie 5.2), représentée en tirets sur la
Figure 5-1. Cette photodiode, ainsi que la cuve contenant le liquide à analyser, sont solidarisées dans un dispositif représenté Figure 5-4, également visible en bas de la Figure 5-2, entre les optiques de focalisation et de collection. Le placement de la photodiode ou de la cuve de spectroscopie sur l'axe optique est effectué par translation sur le rail représenté au bas du dispositif.
Ce dispositif permet un réglage en hauteur des deux éléments. La distance entre la photodiode et la cuve est fixe. La position sur l'axe optique de la photodiode par rapport à la cuve peut être ajustée. La cuve de spectroscopie est une cuve à faible chemin optique (2mm) en verre de silice (transparence aux longueurs d'ondes de travail et tenue au flux élevée). Ce faible encombrement de la cuve permet la détection du signal diffusé vers l'avant tout en travaillant avec des lentilles de grandes ouvertures numériques.

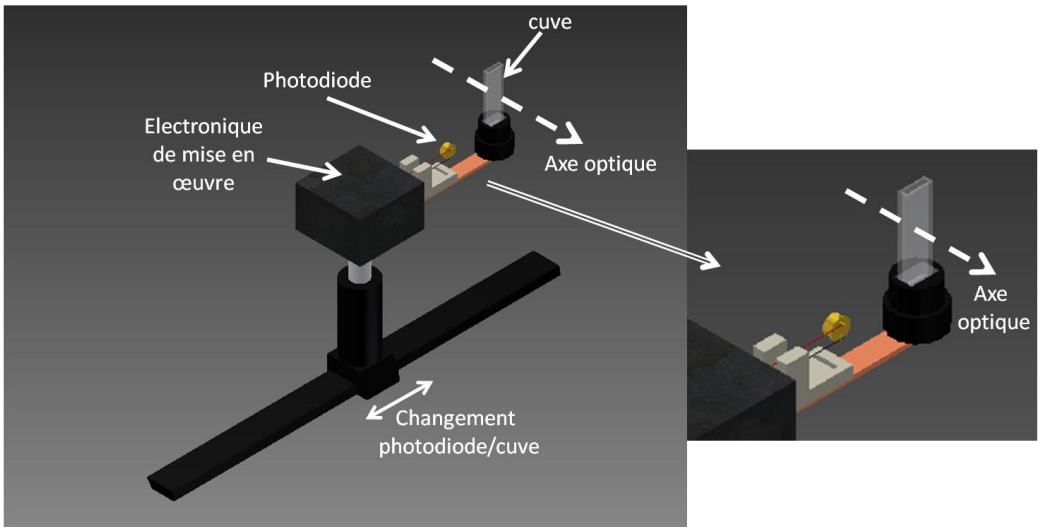


Figure 5-4: Dispositif intégré de synchronisation et de spectroscopie (illustration réalisée à l'aide du logiciel Autodesk Inventor v.2012)

Traitement du signal CARS : Le signal collecté contient le signal CARS, les résidus des faisceaux excitateurs pompe et Stokes et éventuellement d'autres signaux (SHG, fluorescence, etc). Les faisceaux excitateurs sont filtrés au moyen de deux filtres passe-bas à longueur d'onde de coupure de 1000 nm. Le signal ainsi filtré est injecté dans une fibre multimode (diamètre de cœur = 50 µm, O.N. = 0.22) par un objectif de microscope classique (grossissement de 20, O.N. = 0.4).

Un spectromètre de haute sensibilité, possédant une détection par barrette CCD refroidie, analyse ce signal. Ses caractéristiques sont fournies en annexe A2. Une fente d'entrée de 50 µm a été choisie car elle garantit une sensibilité suffisante pour analyser le signal CARS tout en donnant accès à une résolution spectrale suffisante (calculée à 1.32 nm). Cette fente de départ pourrait être remplacée par une fente de 25 µm, qui représente le compromis idéal entre la sensibilité souhaitée et la résolution spectrale (calculée à 1.05 nm). Le réseau de diffraction choisi concilie une bonne résolution avec une gamme spectrale étendue. En effet comme le résume l'annexe A1, l'imagerie de vibrations de fréquences de résonance de 1000 à 3000 cm^{-1} impose une longueur d'onde Stokes de 1150 à 1500 nm environ, et donc une longueur d'onde de signal CARS de 790 à 935 nm.

Le dispositif est désormais complet et comporte deux faisceaux optimisés pour une expérience de spectroscopie CARS. Il est maintenant nécessaire de synchroniser précisément les deux impulsions avant d'acquérir des spectres CARS. Cette étape de synchronisation fait l'objet de la partie suivante.

5.2 Synchronisation des impulsions

5.2.1 Présentation des techniques possibles

Les impulsions utilisées possédant des durées d'environ 100 fs (Stokes) et 2.5 ps (pompe), il est nécessaire de les synchroniser avec une précision inférieure à la moitié de la durée de l'impulsion la plus longue, c'est à dire inférieure à 1.25 ps. Or, les détecteurs optoélectroniques classiques n'offrent pas cette précision, la photodiode adaptée la plus rapide présente au laboratoire possédant un temps de montée de l'ordre de 70 ps et les oscilloscopes les plus rapides du marché un temps de montée d'environ 7.7 ps (modèle LabMaster 9 Zi-A de Lecroy, bande passante de 45 GHz). Les oscilloscopes à échantillonnage optique non-linéaires [S. Diez, 1999] et plus récemment linéaire [C. Dorrer, 2003] offrent des performances nettement meilleures mais toujours insuffisantes ou non adaptées. A titre d'exemple, l'oscilloscope à échantillonnage optique le plus performant du laboratoire, le PSO-100 d'Exfo, possède une grande bande passante (500 GHz) et offre un temps de montée d'environ 700 fs qui serait suffisamment bas mais cet appareil est limité aux longueurs d'onde des télécommunications optiques (bandes C et L des télécom, donc de 1525 à 1608 nm). De plus, ce type d'appareil présente un coût important (environ 80 k€) et est surdimensionné pour les besoins du dispositif actuel.

Ces performances étant très récentes (2003), des techniques de corrélation optique sont utilisées depuis de nombreuses années pour la mesure d'impulsions ultracourtes (picoseconde à femtoseconde) [Armstrong, 1967, T. Kanada, 1986] et peuvent être mises à profit pour le contrôle de la synchronisation [T. Minamikawa, 2006]. Ces méthodes consistent à réaliser optiquement la fonction de corrélation des deux impulsions en les injectant dans un milieu non-linéaire et en relevant la variation du signal non-linéaire généré en fonction de leur décalage temporel relatif. Les milieux non-linéaires couramment rencontrés sont les suivants :

Un cristal non-linéaire comme le béta borate de baryum (BBO) ou l'iodate de lithium ($LiIO_3$, utilisé dans l'autocorrélateur d'intensité présenté en partie 2.2). Il s'agit du milieu non-linéaire le plus fréquemment rencontré pour ce type de mesure. Ce type de cristal présente une non-linéarité d'ordre deux élevée et est orienté afin de satisfaire l'accord de phase nécessaire à la génération efficace d'un signal. Ce dernier rend difficile voire impossible la corrélation croisée entre deux impulsions très éloignées spectralement [J.K. Ranka, 1997] ce qui limite son application à la synchronisation des impulsions employées.

Un fluorophore excité de manière non-linéaire dont l'énergie de transition de l'état fondamental vers le premier état électronique excité est égale à la somme des énergies des ondes incidentes [J.A. Giordmaine, 1967]. Un signal de fluorescence typique de ce procédé de synchronisation est représenté en Figure 5-5. Généralement, l'excitation peut s'effectuer soit avec un photon de chaque faisceau, soit avec deux photons du même faisceau. Le signal de fluorescence généré sera donc composé d'un signal de "fond" composé de la fluorescence générée par chaque faisceau, et d'une augmentation de ce signal lors du recouvrement temporel des deux faisceaux. Ce comportement est typique des mécanismes de génération de signal par absorption à deux photons

et se retrouve, par exemple, dans le cas de la génération de photocourant au sein d'un semi-conducteur.

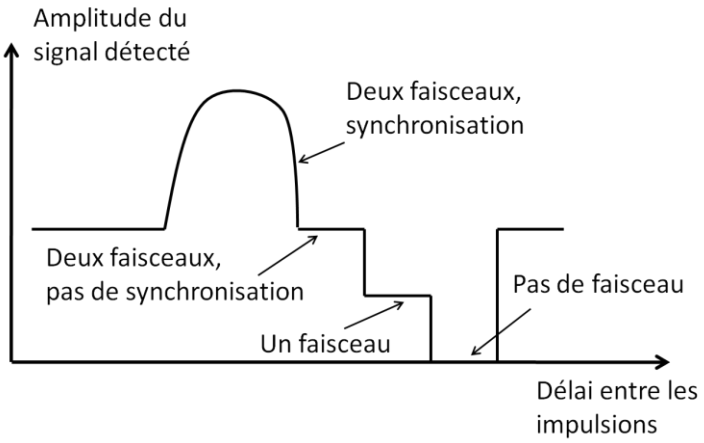


Figure 5-5 : Signal de fluorescence typique d'un mécanisme de synchronisation par absorption à deux photons.

Il est ainsi possible de déterminer le spectre d'absorption nécessaire à la synchronisation par l'expression suivante :

$$E_{abs} = E_p + E_S \rightarrow \lambda_{abs} = \frac{\lambda_p \lambda_S}{\lambda_p + \lambda_S} \quad (5.1)$$

avec E_{abs} l'énergie d'absorption du fluorophore, E_p, E_s, λ_p et λ_s les énergies et longueurs d'ondes respectives des photons pompe et Stokes. De plus, la gamme spectrale d'absorption ne doit pas chevaucher la gamme spectrale excitatrice afin éviter toute absorption linéaire de la molécule, la section efficace d'absorption de deux photons ($\approx 10^{-49}$ cm^4/s) étant nettement inférieure à son homologue mono-photon ($\approx 10^{-16}$ cm^2/s).

Dans le cas des impulsions utilisées, $\lambda_p = 1033$ nm et $\lambda_S \in [1100:1500]$ nm, il vient $\lambda_{abs} \in [532:612]$ nm. Il existe peu de fluorophores simples à mettre en œuvre qui remplissent ces conditions [Mayr, 2012]. De plus, les fluorophores émettant un signal de fluorescence fort doivent être dilués dans des solvants comme le toluène pour être efficaces [Aït-Slimane, 2008] et présentent donc des contraintes spécifiques en termes d'hygiène et de sécurité [VWR, 2005, INRS, 2012]. Il semble donc préférable d'utiliser une méthode plus sécurisée et simple de mise en œuvre.

Un semi-conducteur excité de façon non-linéaire dont le principe de fonctionnement est identique à celui du fluorophore, c'est à dire que le processus non-linéaire d'absorption à deux photons est utilisé [J.K. Ranka, 1997]. Ce processus d'absorption est suivi de la génération d'un électron libre qui participe au photocourant qui est généralement amplifié, converti en tension puis mesuré. Le semiconducteur adapté à la gamme spectrale de travail est le phospho-arséniure de gallium (GaAsP) dont la réponse spectrale est représentée Figure 5-6.

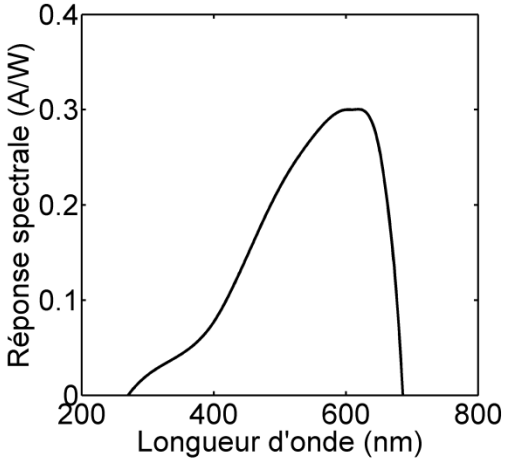


Figure 5-6: Réponse spectrale de la photodiode de phospho-arséniure de gallium (GaAsP) utilisée. Il s'agit du modèle G1116 de Hammamatsu.

On considère dans le cas de ce semi-conducteur une gamme spectrale d'absorption de 450 à 660 nm (qui définit grossièrement la largeur à mi-hauteur de la réponse spectrale). En utilisant la relation 5.1 et en considérant une longueur d'onde de pompe de 1033 nm, la longueur d'onde Stokes peut être comprise entre 800 et 1830 nm. Ce semiconducteur est donc tout à fait adapté à la gamme spectrale utile des impulsions Stokes (de 1152 à 1500 nm). Cette technique a de plus le mérite d'utiliser des composants simples de mise en œuvre et de faible encombrement. Il s'agit de la technique retenue et qui est analysée en partie 5.2.2.

Il faut enfin souligner que la synchronisation des impulsions peut s'effectuer par d'autres moyens, par exemple en recherchant "in-situ" le spectre CARS non-résonnant d'eau, ou encore en observant sur un analyseur de spectre optique les franges d'interférences entre l'impulsion pompe et le résidu de pompe du faisceau Stokes. La première solution n'est pas envisagée car sa mise en œuvre, nécessitant un contrôle parfait de toute la chaîne de mesure, est complexe voire impossible en pratique. La seconde solution n'est pas possible car le résidu de pompe est filtré par le dichroïque de combinaison des deux faisceaux. De plus, il sera constaté plus loin que ce résidu présente un retard temporel par rapport aux solitons décalés qui rend cette méthode approximative.

5.2.2 Mesures de synchronisation

Bien que tout à fait possibles, les expériences de corrélation croisée au sein d'un semiconducteur employant des impulsions de caractéristiques différentes en termes de durée et longueur d'onde ne sont peu ou pas démontrées. En effet, les rares démonstrations portent sur des impulsions de longueurs d'onde différentes mais de durées proches. On peut ainsi citer Ozeki *et al.* [Y. Ozeki, 2010] qui ont effectué la synchronisation d'impulsions de 300 fs issues d'un oscillateur titane:saphir (790 nm) et d'un oscillateur ytterbium fibré (1028 nm). La seule démonstration à ce sujet est très récente [Y. Ozeki, 2012] et peu documentée. C'est pourquoi le processus de synchronisation est présenté en détail par la suite.

5.2.2.1 Mesures préliminaires

Le photocourant généré par absorption à deux photons dans un semiconducteur a été modélisé en 1994 [F.R. Laughton, 1994]. Il est calculé, pour un profil temporel d'intensité gaussien, par la relation suivante (voir l'annexe A3 pour le détail du calcul) :

$$J = \frac{\sqrt{\ln(2)}}{2\pi\sqrt{\pi}} \frac{ep\beta T_{laser}}{hc\omega_0^2} \eta_n \frac{\lambda {P_m}^2}{T_{LMH}} = K\eta_n \frac{\lambda {P_m}^2}{T_{LMH}} \quad (5.2)$$

avec J le photocourant généré, e la charge de l'électron, p la profondeur de pénétration du faisceau incident, β le coefficient d'absorption à deux photons, T_{laser} la période de répétition des impulsions laser, h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide, ω_0 le rayon du faisceau à la surface du semiconducteur, η_n la réponse spectrale normalisée, λ la longueur d'onde centrale de l'impulsion laser, P_m^2 la puissance moyenne du faisceau laser et T_{LMH} la largeur temporelle à mi-hauteur de l'impulsion laser. Certains paramètres comme la profondeur de pénétration ou le coefficient d'absorption à deux photons ne sont pas connus avec précision. Il sera toutefois possible de rechercher un accord en comportement et ordre de grandeur entre les courants calculés et mesurés, moyennant quelques approximations.

Le montage utilisé est celui décrit dans la partie 5.2.2, où la photodiode est placée au point de focalisation des faisceaux pompe et Stokes. Un objectif à faible grandissement (10 x/ O.N. = 0.25) est utilisé et la photodiode est reliée à un voltmètre d'impédance d'entrée de 10 MΩ dont on relève la tension. La haute impédance d'entrée de ce voltmètre joue le rôle de convertisseur courant tension et permet également d'aboutir à des niveaux de tension mesurables. Selon les précisions de l'annexe A4, le circuit électronique de mise en œuvre de la photodiode impose une constante de temps de quelques millisecondes qui est très supérieure à la période du train d'impulsions laser (20.2 ns). Le dispositif se comporte donc en intégrateur et le photocourant généré est ainsi considéré comme étant continu et correspond à la moyenne d'un grand nombre de périodes laser.

La relation 5.2 montre qu'un photocourant peut être généré par un faisceau laser seul, l'absorption à deux photons se réalisant grâce à deux photons de cette même impulsion laser. Ainsi, conformément aux démonstrations d'autocorrélations antérieures [F.R. Laughton, 1994, J.K. Ranka, 1997], le premier test de fonctionnement consiste à mesurer le photocourant généré pour un seul faisceau laser (pompe ou Stokes). Les caractéristiques différentes de ces faisceaux permettent de tester la dépendance du photocourant en longueur d'onde, puissance moyenne et durée d'impulsion. Il faut souligner que l'anisotropie de la susceptibilité d'ordre 3, responsable de l'absorption à deux photons, fait varier le courant généré d'environ 30 %. La Figure 5-7 représente les photocourants obtenus, à puissances moyennes égales, pour des durées d'impulsions différentes (figure (a)) et à durée d'impulsion constante et puissances moyennes égales, pour des longueurs d'onde différentes (figure (b)).

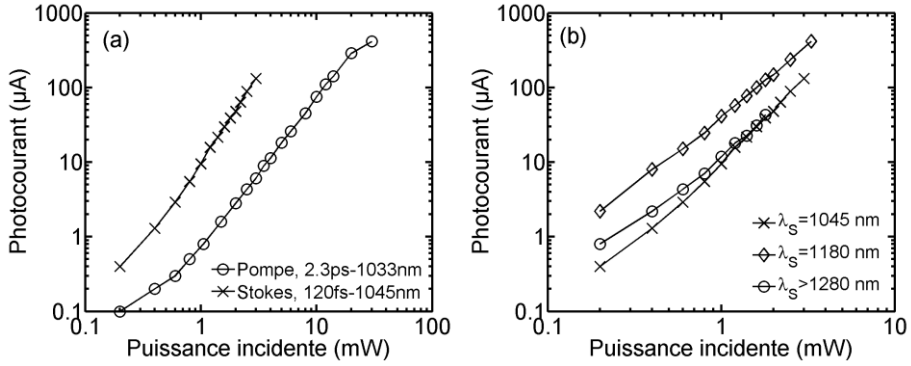


Figure 5-7 : Mesures de photocourant généré pour des faisceaux laser de caractéristiques différentes. (a) Influence de la durée de l'impulsion : impulsions pompe de 2.3 ps à 1033 nm (cercles) et Stokes de 120 fs à 1045 nm (croix). (b) Influence de la longueur d'onde de l'impulsion : impulsions Stokes à 1045 nm (croix), 1180 nm (diamants) et 1280 nm (cercles).

Le photocourant est obtenu par simple application de la loi d'Ohm en divisant la tension lue par l'impédance d'entrée du voltmètre. Ce choix est motivé par la comparaison avec des mesures similaires effectuées par Ranka *et al*. (impulsions d'un laser titane-Saphir à 800 nm, 100 fs et 80 MHz) [J.K. Ranka, 1997] qui permettent de valider en premier lieu l'ordre de grandeur du courant généré qui est de l'ordre du microampère. On constate que pour toutes les conditions expérimentales, on a bien une dépendance quadratique à la puissance moyenne. En effet on constate pour la pompe sur la Figure 5-7 (a) un passage de 1 à 100 µA pour une variation de puissance de 1 à 10 mW. On vérifie également d'autres paramètres :

- le photocourant généré est plus important pour des impulsions plus courtes (Figure 5-7 (a)),
- le photocourant généré suit la même dépendance en longueur d'onde que la réponse de la photodiode (Figure 5-7 (b)).

Ces mesures sont également comparées au calcul théorique suivant la formule (5.2) et sont proportionnelles aux valeurs calculées mais sont inférieures d'environ un facteur 10. Ce rapport s'explique par les nombreuses approximations de calcul et surtout par les aberrations de l'objectif de focalisation.

Le fonctionnement de la photodiode est ainsi validé et les puissances des faisceaux incidents génèrent un photocourant suffisamment important pour pouvoir être détecté et mesuré. Il est donc possible de réaliser des tests de synchronisation.

5.2.2.2 Premières mesures de synchronisation

Les deux faisceaux sont tout d'abord synchronisés grossièrement en maximisant l'amplitude du signal d'une photodiode InGaAs (temps de montée de 70 ps), branchée à un oscilloscope, par variation du retard induit sur le bras de l'impulsion pompe. Cette étape permet une synchronisation à environ 300 ps près. La photodiode InGaAs est ensuite remplacée par une lentille et la photodiode GaAsP, dont on égalise les photocourants générés par les deux faisceaux. Les puissances moyennes sont réglées de manière à obtenir un bon rapport signal/bruit tout en évitant une saturation du photocourant lors de la synchronisation. La longueur d'onde Stokes est de 1150 nm car elle correspond à une très bonne réponse non-linéaire de la photodiode.

On constate une augmentation de la tension mesurée de 1.2 V à 1.95 V pour un retard précis induit par la ligne à retard, soit une augmentation de 80 %. Cette augmentation est typique des mesures effectuées et le retard de l'impulsion pompe permettant la synchronisation s'est révélé très stable au cours des semaines de manipulation.

5.2.2.3 Influence de la longueur d'onde des impulsions Stokes

Cette étape de synchronisation est effectuée pour différentes longueurs d'onde des impulsions Stokes. On remarque que le délai absolu relevé sur la ligne à retard augmente avec celle-ci. En effet comme expliqué en partie 2.1, l'auto-décalage Raman des solitons nécessite une dispersion anormale qui doit être de préférence élevée. Cette dispersion élevée induit de fortes variations de vitesse de groupe et par conséquent les impulsions qui se décalent en longueur d'onde accumulent un retard optique par rapport à la longueur d'onde pompe qui peut être mesuré. Ces mesures sont comparées à des simulations numériques pour déterminer si les délais induits suivent une relation simple et stable en fonction du décalage et s'ils sont donc prédictibles et paramétrables dans un logiciel de contrôle général du système. En effet cette problématique est un des éléments critiques du

fonctionnement général du système. Elle est donc également critique pour la phase d'automatisation du dispositif qui, rappelons le, est destiné à des utilisateurs non spécialistes en optique. Les délais absolus lus à la ligne à retard sont ainsi convertis en délais relatifs par rapport au décalage Stokes le plus faible. Ensuite, un "délai zéro" est extrapolé pour la longueur d'onde laser. La comparaison avec les simulations numériques est donnée en Figure 5-8.

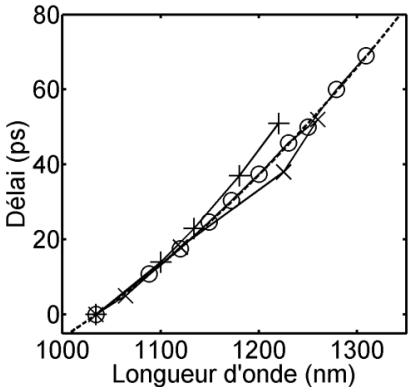


Figure 5-8 : Comparaison entre les délais relatifs issus de différentes séries de mesures (croix droites et inclinées) et les délais simulés (cercles et courbe interpolée en tirets).

On constate que le comportement décrit par les simulations reproduit le comportement expérimental. Les écarts sont majoritairement attribués à une connaissance imparfaite des propriétés de la fibre et notamment une erreur d'extrapolation du "délai zéro". On remarque par ailleurs que la variation de ce "délai zéro" se traduit par une translation de la courbe de mesures le long de l'axe des ordonnées et ne change donc pas sa forme générale.

Les retards donnés par les simulations sont pris en référence. La courbe décrite par ces retards est correctement modélisée par un polynôme d'ordre 2. En effet la somme des résidus de la méthode des moindres carrés utilisée évolue de moins de 10 % pour des polynômes d'ordres supérieurs. La pente de cette courbe varie d'environ 0.2 à 0.28 ps/nm pour l'intervalle spectral [1033 : 1300] nm et permet d'extraire plusieurs informations :

- La longueur de fibre microstructurée étant de 1.7 m, il est possible de ramener la pente à la longueur de fibre. On obtient une valeur variant de 117 à 165 ps/nm/km qui est inférieure mais proche de la valeur de dispersion fournie par le constructeur. Cette valeur de dispersion ayant varié au cours du décalage en fréquence du soliton, on ne peut évidemment pas obtenir la valeur exacte à la longueur d'onde finale de décalage. Cette comparaison est cependant pertinente surtout pour les décalages faibles pour lesquels l'évolution de la dispersion est relativement linéaire.
- Des simulations numériques de retard de l'impulsion Stokes en fonction de la longueur d'onde de décalage ont été réalisées pour un profil de dispersion possédant un second zéro de dispersion vers 1300 nm. On constate que la dérivée de la courbe obtenue permet de suivre les variations de ce profil et éventuellement de prédire l'existence d'un second zéro de dispersion.
- La configuration expérimentale choisie est dite "multiplex CARS" (M-CARS, décrite en partie 1.2). Il peut sembler intéressant pour augmenter la largeur spectrale de l'impulsion Stokes de mettre en œuvre un quasi-supercontinuum évoqué en partie 3.2, la condition à respecter étant que l'impulsion Stokes reste synchronisée à l'impulsion pompe et doit donc subir un retard inférieur à 2.5 ps. La pente calculée précédemment montre que pour respecter ce retard, l'impulsion Stokes ne peut se déplacer que de ± 3.75 nm ce qui

correspond à un gain en largeur d'environ 50 cm^{-1}. Cependant ce balayage répartit l'énergie de l'impulsion Stokes sur un intervalle spectral plus important et va donc diminuer le niveau moyen de signal CARS. Des tests poussés sont à effectuer pour déterminer si l'apport est pertinent, les tests effectués jusqu'à présent ne s'étant pas révélés concluants.

5.2.3 Reconstruction temporelle des impulsions pompe

Etant donné que l'impulsion pompe est environ 20 fois plus longue que l'impulsion Stokes, cette dernière peut être assimilée en première approximation à une fonction de Dirac pour l'opération de corrélation [Kaiser, 1993]. Le signal de corrélation croisée enregistré en fonction du délai entre les deux impulsions doit ainsi permettre de reconstruire directement le profil d'intensité temporel de l'impulsion pompe. Cette hypothèse est validée par une mesure de corrélation croisée représentée à la Figure 5-9. Pour effectuer ce type de mesure, la photodiode est branchée à un oscilloscope dont on règle l'impédance d'entrée à 1 MΩ. L'oscilloscope utilisé est le modèle décrit en partie 3.1 (B.P. = 500 MHz, fréquence d'échantillonnage de 5.10^9 échantillons/seconde). La base de temps est réglée à 4 s/div et la vitesse de la ligne à retard à 0.25 ps/s ce qui permet d'obtenir un affichage équivalent de 1 ps/div. L'affichage total comporte 500 points et aboutit donc à une résolution 20 fs par point, qui est suffisante pour ce type de mesure ($\approx T_{LMH}$(pompe)/100).

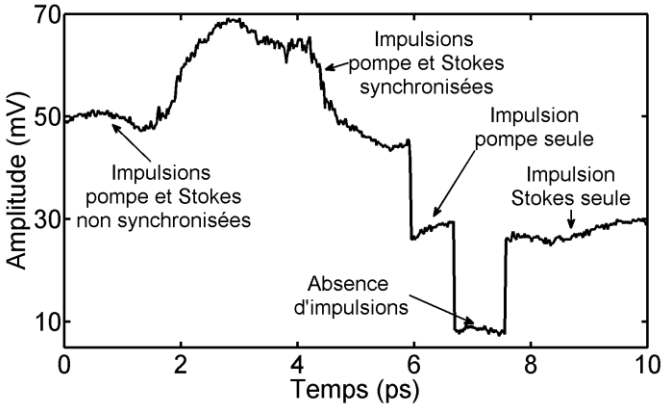


Figure 5-9 : Première mesure de corrélation croisée.

La largeur à mi-hauteur de l'impulsion pompe est estimée à 2.5 ps, qui est en accord avec les mesures d'autocorrélations effectuées plus loin. On distingue également les trois composantes principales du signal caractéristiques de mesures de corrélation par absorption à deux photons : 2 composantes impliquant 2 photons de chaque faisceau, indiquées par les mentions "Impulsion pompe seule" et "Impulsion Stokes seule", et une composante impliquant un photon de chaque faisceau lors de leur recouvrement temporel. La Figure 5-9 montre également de légères oscillations, visibles où pointe la flèche "Impulsions pompe et Stokes non synchronisées". Ces oscillations sont induites par un bruit mécanique interne à la ligne à retard qui se traduit en oscillation de la puissance de sortie du faisceau pompe. En effet, la ligne à retard étant fibrée, le pointé de sortie est fixe, et ces oscillations ne peuvent pas provenir de ce pointé. Pour éviter d'éventuels effets d'hystérésis mécaniques possibles, les mesures sont toujours effectuées pour le même sens de balayage de la ligne à retard.

La qualité de cette reconstruction est ensuite analysée. Pour ce faire, une série de 10 corrélations croisées sont d'abord enregistrées, corrigées de l'oscillation caractéristique de la ligne à retard et normalisées. On en effectue la moyenne (représentée Figure 5-10 (a)), puis l'autocorrélation (Figure 5-10 (b)), qui est comparée à l'autocorrélation normalisée du signal pompe enregistrée à l'aide de l'autocorrélateur présenté en partie 2.2.

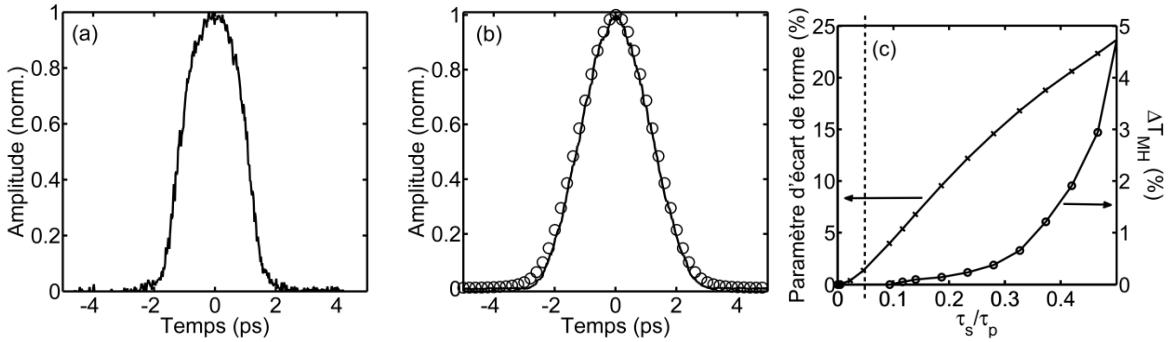


Figure 5-10: Etude de la reconstruction temporelle : (a) reconstruction de l'impulsion picoseconde par l'impulsion femtoseconde. (b) Comparaison de l'autocorrélation (trait plein) de l'impulsion picoseconde à l'auto-corrélation du signal reconstruit (cercles). (c) analyse numérique de l'influence du rapport des durées des impulsions utilisées pour les corrélations croisées. Ecart relatif entre la largeur à mi-hauteur du signal de corrélation croisée et l'impulsion picoseconde (cercles, axe de droite) et paramètre d'écart de forme (croix, axe de gauche). La ligne en tirets indique le rapport des impulsions utilisées en manipulation.

La qualité de la reconstruction est excellente, avec un écart de largeur à mi-hauteur inférieur à 10 %. Des simulations de corrélation croisée entre l'impulsion pompe et des impulsions gaussiennes de 1 ps à 10 fs permettent de valider ces résultats avec le calcul de deux paramètres significatifs : l'écart relatif entre la largeur du signal de corrélation croisée et la largeur de l'impulsion pompe, et le paramètre d'écart de forme [C. Finot, 2006]. Ces paramètres sont représentés en Figure 5-10 (c) en fonction du rapport des largeurs des impulsions pompe (τ_p) et Stokes (τ_S).

Le premier paramètre, l'écart en largeur temporelle, est inférieur à 5 % pour une impulsion Stokes de durée inférieure à la moitié de celle de l'impulsion pompe et pour un paramètre d'écart de forme d'environ 20 %. Il n'est donc pas pertinent pour juger de la qualité de la corrélation croisée. Le second paramètre, l'écart de forme, est défini comme

$$M^2 = \int [I(t) - X(t)]^2 dt \Big/ \int I(t)^2 dt \qquad (5.3)$$

avec I(t) le profil d'intensité temporelle de l'impulsion pompe et X(t) le profil d'intensité de la corrélation croisée. On constate que ce paramètre est nettement plus sensible à la largeur de l'impulsion d'échantillonnage. Ainsi, des impulsions de durées inférieures à $\tau_p/10$ sont nécessaires à une reconstruction de qualité (définie arbitrairement par un écart de forme inférieur à 5 %). Les impulsions Stokes sont donc tout à fait pertinentes car elles ont une durée de $\tau_p/20$. L'aspect "large-bande" a été également testé par des mesures de durées de corrélation croisée pour différentes longueurs d'onde des impulsions Stokes, représentées en Figure 5-11.

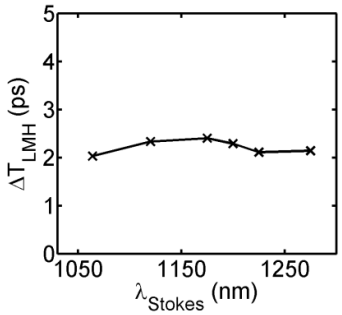


Figure 5-11 : Influence de la longueur d'onde centrale de l'impulsion Stokes sur la mesure de la largeur temporelle à mi-hauteur de l'impulsion pompe.

La largeur temporelle à mi-hauteur des impulsions pompe est quasiment constante pour toutes les longueurs d'onde Stokes considérées, avec un écart-type inférieur à 10 % de la moyenne des largeurs calculées. On souligne que cette méthode de mesure est pour le moment limitée à des longueurs d'onde Stokes inférieures à 1350 nm par les pertes OH de la fibre utilisée pour le décalage. Cependant, la réponse spectrale de la photodiode permet de déduire que ce système peut fonctionner pour des longueurs d'onde maximales de 1800 nm.

Une dernière expérience permet de préparer l'adaptation de la source aux caractéristiques de l'imagerie T-CARS (spectroscopie CARS résolue en temps, voir la partie 1.2). En effet ce type d'imagerie nécessite une impulsion sonde retardée par rapport aux impulsions pompe et Stokes synchronisées. Il est donc nécessaire de gérer trois impulsions différentes. Dans le dispositif proposé, ces trois impulsions sont fournies par l'impulsion Stokes et par l'introduction d'un dispositif Mach-Zehnder avant la recombinaison qui créé une "double impulsion" pompe. Le schéma de principe est représenté en Figure 5-12 (a). Le retard entre les deux composantes de cette "double-impulsion", nécessaire à l'imagerie T-CARS, est produit par le fait que seule une des deux impulsions traverse les deux lames nécessaires à la construction de ce dispositif. Ce retard peut être simplement estimé en calculant la différence de marche produite par la traversée de ces deux lames :

$$\Delta t = \frac{\delta_{verre} - \delta_{air}}{c} \approx \frac{e_{verre}}{c}(n_{verre} - n_{air}) \approx 9.5 \text{ ps}$$

On souligne qu'un dispositif complet nécessiterait également l'introduction, sur un des deux bras, d'une ligne à retard afin de gérer le retard de l'impulsion sonde par rapport aux impulsions pompe et Stokes.

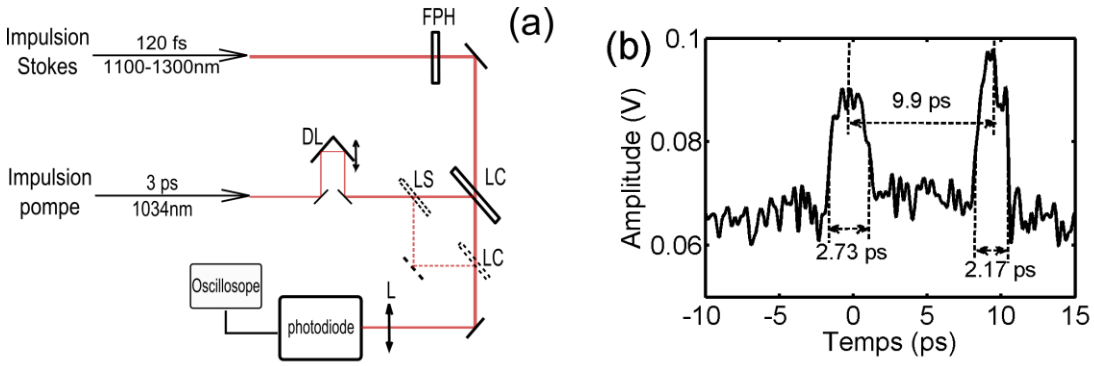


Figure 5-12 : Reconstruction de l'impulsion pompe dédoublée temporellement : (a) montage expérimental. FPH : filtre passe-haut, LS : lame séparatrice, LC : lame combinatrice, L : lentille. (b) Mesure de corrélation croisée non retraitée

La partie du dispositif ajoutée au montage classique pour construire le dispositif Mach-Zehnder apparait en tirets sur la Figure 5-12 (a). Une densité variable sur le bras décalé permet de régler les puissances relatives des deux bras. L'alignement spatial des deux bras du Mach-Zehnder est effectué grâce à l'autocorrélateur d'intensité qui permet de plus de confirmer le calcul précédent avec un retard de 9.9 ps entre ces deux bras. Le faisceau Stokes est ensuite aligné sur ce même autocorrélateur. La reconstruction aboutit au profil visible en Figure 5-12 (b). Ce profil permet de mesurer un délai de 9.9 ps entre les deux impulsions et des largeurs d'environ 2.5 ps, grandeurs qui sont toutes en très bon accord avec les mesures et délais attendus.

5.2.4 Stabilité du signal synchronisé

La stabilité des faisceaux pompe et Stokes a été mesurée et discutée dans les parties 4.4 et 2.3. Les gigues temporelles mesurées, d'environ quelques centaines de femtosecondes, semblaient suffisamment faibles pour permettre la synchronisation des impulsions et des expériences de spectroscopie CARS. Cette hypothèse a été confirmée par la synchronisation des deux faisceaux. Cependant il peut sembler intéressant de mesurer ou de contrôler "directement" la stabilité et la qualité de cette synchronisation.

5.2.4.1 Utilisation d'une photodiode non-linéaire

Ozeki *et al.* ont démontré récemment le contrôle de synchronisation par absorption à deux photons dans une photodiode dont le signal servait de contre-réaction pour l'asservissement de la cavité d'un des deux lasers employés [Y. Ozeki, 2010]. Les oscillateurs utilisés étaient un oscillateur titane-saphir (790 nm/76 MHz/300 fs) et un oscillateur Ytterbium fibré (1028 nm/38 MHz/300 fs). Ce principe a récemment été appliqué sur les mêmes lasers, le laser titane-saphir fonctionnant cette fois en régime picoseconde [Y. Ozeki, 2012]. On peut ainsi imaginer une application de cette méthode en asservissant la ligne à retard sur le signal de la photodiode GaAsP. Ce type de dispositif, facilement intégrable, serait prometteur pour un contrôle actif de la synchronisation des deux faisceaux.

5.2.4.2 Utilisation de deux photodiodes linéaires

Il est également possible de mesurer la gigue temporelle relative des impulsions pompe par rapport aux impulsions Stokes, et d'en extraire les gigues temporelle et d'amplitude pour chaque train, par un montage utilisant deux photodiodes linéaires proposé par Paschotta *et al.* [R. Paschotta, **2005**]. Cette "double chaîne de mesure" permet de s'affranchir des bruits extérieurs et des appareils par compensation dans un montage de type potentiométrique [Asch, 1991]. Un schéma explicatif est représenté Figure 5-13.

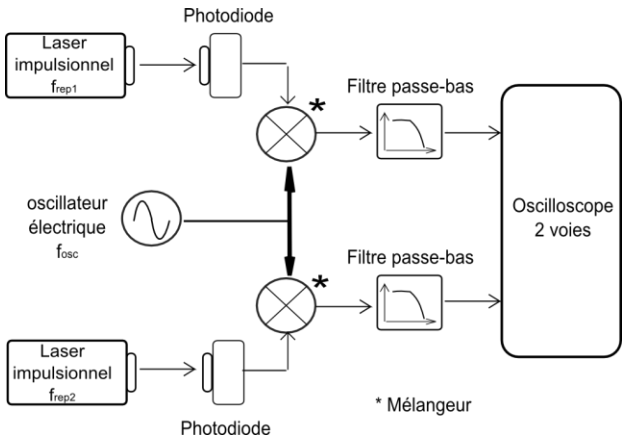


Figure 5-13: Montage de principe de mesure de gigues relatives. f_{rep1} : taux de répétition du premier laser, f_{rep2} : taux de répétition du second laser, f_{osc} : fréquence du signal délivré par l'oscillateur de référence.

Chaque train d'impulsions laser est converti en un signal électrique par une photodiode rapide. Ces photodiodes sont reliées chacune sur un mélangeur en fréquence dont l'entrée « oscillateur local » est reliée à un oscillateur électronique qui délivre un signal sinusoïdal de fréquence (f_{osc}). La sortie de ces mélangeurs contient le signal à la fréquence différence, soit f_{rep1}-$f_{osc.}$ ou f_{rep2}-$f_{osc.}$. Les deux signaux sont enregistrés par un oscilloscope digital deux voies ou une carte d'acquisition, qui enregistre N mesures sur un temps δt à une fréquence d'échantillonnage ($f_{éch}$). On obtient ainsi deux « canaux » à traiter. La différence de fréquence entre l'oscillateur électronique et le taux de répétition du laser détermine la fréquence maximale (f_{max}) de mesure des gigues. La fréquence minimale (f_{min}) est quant à elle déterminée par la durée d'acquisition δt et le nombre de points N. Les relations suivantes permettent ainsi de dimensionner le système d'acquisition :

$$\begin{cases} f_{osc} < f_{rep1,2} - f_{max} \\ f_{éch} > 2\left(f_{rep1,2} - f_{osc}\right) + f_{max} \\ N > 2\dfrac{f_{éch}}{f_{min}} \end{cases}$$

Par la suite, la transformée de Fourier de chaque canal fournit un signal complexe, dont le module correspond à la gigue d'intensité du train d'impulsion. Sa phase correspond à la différence des phases temporelles du train d'impulsions et de l'oscillateur. Enfin, la différence des phases des deux canaux permet d'aboutir à la phase relative des deux trains d'impulsions (pompe et Stokes) qui n'est ainsi pas influencée par le bruit de phase de l'oscillateur local ou des autres composants de la chaîne de mesure.

Cette expérience peut être mise en place sur le montage en considérant les faisceaux pompe et Stokes comme deux lasers différents. La capacité d'échantillonnage des oscilloscopes ou des cartes d'acquisition présents au laboratoire, qui déterminent la bande passante de mesure des gigues, permettrait des mesures dans la bande de fréquence [0:100] kHz qui pourraient ainsi être comparées aux mesures déjà effectuées sur chaque bras. Les mélangeurs fonctionnant dans les bandes de fréquences requises (≈ 50 MHz en entrée, de 0 à 10 MHz en sortie) sont répandus et il est donc aisé de s'en procurer. On signale également qu'une mesure de gigue « entre impulsions » nécessite une fréquence d'échantillonnage de l'ordre du taux de répétition de l'oscillateur qui est hors de portée des cartes d'acquisition actuelles mais qui peut être effectuée par un oscilloscope haut de gamme.

Dans ce cas, il faut vérifier les performances de la conversion analogique/numérique qui peut être limitante.

Les impulsions pompe et Stokes ont donc pu être synchronisées pour différentes longueurs d'onde Stokes. Un résultat primordial est que le retard à induire sur l'impulsion pompe dépend de cette longueur d'onde et que ce retard est stable avec des variations inférieures à la picoseconde. Il est donc possible de procéder à des enregistrements de spectres CARS.

5.3 Mesure de spectres CARS

Une fois les impulsions pompe et Stokes synchronisées, les étapes suivantes sont de placer le milieu à analyser au point de focalisation, de collecter le signal CARS généré puis de l'analyser.

5.3.1 Considérations théoriques et expérimentales

Focalisation des faisceaux excitateurs : Le signal CARS est optimisé, dans une première étape, en optimisant le signal de synchronisation (partie 5.2). En effet la photodiode est placée, sur le chemin optique, au milieu du chemin optique intra-cuve. Elle est ensuite remplacée par la cuve de spectroscopie et les puissances pompe et Stokes sont réglées à leur maximum (lors de l'étape de synchronisation, elles sont inférieures au milliwatt afin de ne pas saturer la photodiode).

Collection du signal CARS généré : La configuration expérimentale choisie (faisceaux excitateurs colinéaires et collection du signal émis vers l'avant) optimise automatiquement la collection du signal CARS si celle des faisceaux pompe et Stokes est optimisée. Aussi, avant de placer les filtres passe-bas nécessaires à la rejection des faisceaux excitateurs résiduels, la puissance en sortie de fibre de collection permet d'optimiser la récupération des faisceaux pompe et Stokes résiduels. Dans une deuxième étape, les filtres passe-bas sont introduits et la fibre de collection est connectée au spectromètre. Ces filtres passe-bas ne coupent pas entièrement le faisceau pompe résiduel et sa puissance restante, visible au spectromètre, est optimisée pour corriger l'effet d'insertion des filtres. Ce protocole a permis de collecter un signal CARS suffisamment intense pour enregistrer des spectres en quelques secondes. Dans le cadre d'une première démonstration de principe, il ne s'est pas avéré nécessaire de l'optimiser plus encore.

Méthode de normalisation: Comme évoqué en partie 1.2, la grandeur mesurée est l'intensité spectrale du signal CARS. Etant donné qu'on dispose au minimum d'une impulsion de grande largeur spectrale, à savoir l'impulsion Stokes, le mode d'imagerie CARS est le mode Multiplex, et le spectre enregistré est le "spectre CARS intrinsèque" de l'échantillon convolué par le spectre de l'impulsion Stokes. Il s'agit donc de mettre en œuvre une méthode de traitement des spectres qui permette de s'affranchir de la forme du spectre de l'impulsion Stokes.

La méthode choisie, déjà mise en œuvre dans d'autres groupes [E.R. E.R. **Andresen, 2007**a, M. Müller, **2002**], est de diviser le spectre obtenu par un spectre purement non-résonnant, dont la

forme correspond strictement à la forme du spectre de l'impulsion Stokes. En effet, selon la partie 1.2, le spectre CARS peut être représenté de la manière suivante :

$$I_{CARS} = \left(\chi_r^{(3)} + \chi_{nr}^{(3)}\right)^2 I_p^2 I_s(\omega) = \left|\chi_r^{(3)}\right|^2 I_p^2 I_s(\omega) + 2\chi_{nr}^{(3)} Re\left(\chi_r^{(3)}\right) I_p^2 I_s(\omega) + {\chi_{nr}^{(3)}}^2 I_p^2 I_s(\omega) \quad (5.4)$$

$$I_{CARS} = I_{CARS}^r + I_{CARS}^{mix} + I_{CARS}^{nr} \quad (5.5)$$

avec (I_{CARS}^r) la partie purement résonnante, (I_{CARS}^{nr}) la partie purement non résonnante et (I_{CARS}^{mix}) le terme d'interférences entre les signaux résonnant et non-résonnant. On s'affranchit ainsi de la forme du spectre Stokes par la normalisation suivante :

$$I_{CARS}^{norma} = \frac{I_{CARS} - I_{CARS}^{nr}}{I_{CARS}^{nr}} = \frac{\left|\chi_r^{(3)}\right|^2}{{\chi_{nr}^{(3)}}^2} + 2\frac{Re(\chi_r^{(3)})}{\chi_{nr}^{(3)}} \quad (5.6)$$

La partie réelle du signal résonnant est toujours présente et cette normalisation ne permet donc pas de s'affranchir du terme d'interférence I_{CARS}^{mix}, qui déformera toujours les spectres normalisés. On constate de plus que le spectre normalisé est proportionnel à $\chi_r^{(3)}/\chi_{nr}^{(3)}$, donc à $\chi_r^{(3)}$car on rappelle que $\chi_{nr}^{(3)}$ est une valeur réelle et constante loin des résonances électroniques, ce qui est le cas pour les longueurs d'onde mises en jeu. ***Ce rapport*** est intéressant car il ***permet de quantifier l'importance du signal non-résonnant par rapport au signal résonnant et éventuellement de relier cette information à la force des résonances relevées en spectroscopie Raman spontané.*** Cet aspect sera étudié de manière qualitative sur les spectres CARS acquis par la suite.

Pour obtenir un spectre CARS normalisé, il faut donc enregistrer deux spectres. Le spectre CARS de la liaison d'intérêt et le spectre CARS d'un milieu non-résonnant quelconque à la longueur d'onde d'intérêt. Ce milieu est l'eau déminéralisée, qui peut être utilisée pour une grande gamme spectrale (500-2500 cm^{-1}) en évitant une faible résonance vers 1630 cm^{-1}. Il est préférable d'utiliser un matériau réellement non-résonnant plutôt que d'enregistrer un spectre CARS non-résonnant du matériau étudié pour être sûr qu'on n'enregistre pas une autre résonance et pour travailler avec des caractéristiques d'impulsions Stokes constantes. En effet la valeur de la susceptibilité non-résonnante est relativement indépendante du matériau considéré, comme le montre le Tableau 5-2 ci-dessous [Boyd, 2008] :

Matériau	Eau	Ethanol	Méthanol	Acétone	Verre amorphe
$\chi_{nr}^{(3)}$ ***(10^{-21} m^2/V^2)***	0.25	0.5	0.43	1.5	0.25

Tableau 5-2: Susceptibilité non-linéaire d'ordre 3 de différents matériaux, loin des résonances.

Des spectres de l'eau pour différents décalages Stokes sont représentés Figure 5-14 (a). On constate qu'ils sont assez bien modélisés par une sécante hyperbolique pour toutes les longueurs d'onde CARS considérées. Par la suite, le spectre non-résonnant sera donc ajusté par une sécante hyperbolique.

La méthode de normalisation est illustrée par la Figure 5-14 (b) et (c) à partir de la liaison C-O à 1037 cm^{-1} du méthanol. Cette liaison est intéressante car son spectre Raman spontané présente un pic de diffusion Raman nettement plus fin (≈ 25 cm^{-1}, tirets gris) que la largeur à mi-hauteur de l'impulsion Stokes (≈ 100 cm^{-1}, ligne continue simple noire). Ainsi on voit que le spectre CARS possède des pieds plus larges que la largeur de la liaison. Ces pieds sont utilisés pour modéliser le

fond non-résonnant. Un corolaire immédiat est que cette méthode ne peut pas être employée pour des zones spectrales présentant de nombreuses résonances, à l'image de la zone spectrale, très dense en imagerie cellulaire, située vers 3000 cm^{-1} caractéristique des liaisons CH_3. On constate également que cette méthode ne sera valide que dans une zone spectrale restreinte autour de la résonance dans laquelle le rapport signal/bruit est suffisant.

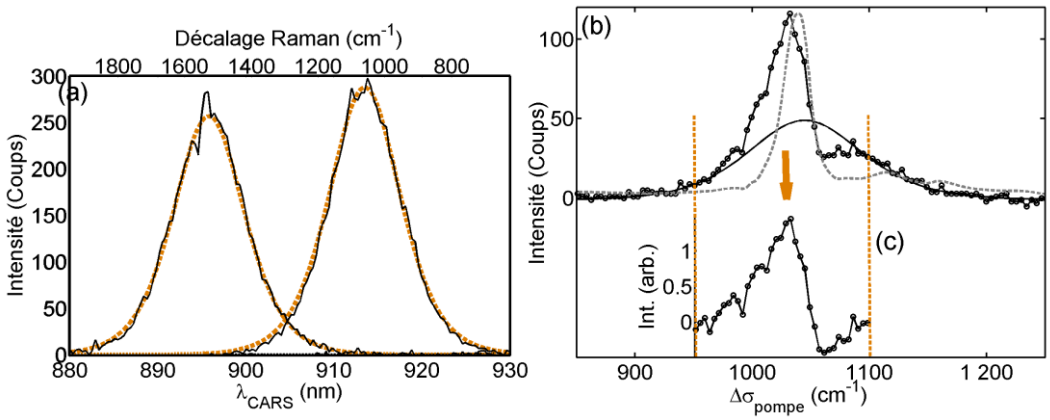


Figure 5-14: Différentes étapes de normalisation d'un spectre. (a) Spectres CARS d'eau déminéralisée (ligne continue noire) pour différents décalages et comparaison à un ajustement par sécante hyperbolique (tirets orange) (b) Comparaison du spectre CARS "brut" de la liaison C-O du méthanol à 1037 cm^{-1} (cercles) et de la modélisation du fond non-résonnant (ligne continue simple) avec le spectre Raman spontané (tirets gris) (c) Spectre CARS normalisé (cercles).

Il faut noter qu'il existe d'autres méthodes de normalisation, comme la méthode de l'entropie maximale ("maximum entropy method") [H.A. Rinia, 2007]. Ces méthodes sont cependant plus complexes à utiliser et ne sont pas pertinentes dans le cadre de cette démonstration de principe.

5.3.2 Mesure de spectres

5.3.2.1 Mise en place des mesures et première vérification

Il faut tout d'abord connaître la longueur d'onde Stokes correspondant à une vibration Raman. Cette longueur d'onde Stokes est donnée par la relation suivante :

$$\sigma_{vib} = \sigma_p - \sigma_s = (\frac{1}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s}) \tag{5.7}$$

avec σ_{vib}, σ_p et σ_s les nombres d'onde des vibration, impulsion pompe et impulsion Stokes. Selon la partie 0, cette longueur d'onde Stokes conditionne également le délai à imposer aux impulsions pompe afin de réaliser la synchronisation. Il est ensuite possible de déterminer la longueur d'onde anti-Stokes correspondant à cette vibration (qui sera la longueur d'onde donnée sur le spectre CARS):

$$\omega_{as} = 2\omega_p - \omega_s \rightarrow \frac{1}{\lambda_{as}} = \frac{2}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s} \text{ , ce qui amène } \lambda_{as} = \frac{\lambda_p \lambda_s}{2\lambda_s - \lambda_p}. \tag{5.8}$$

La Figure 5-15 représente la longueur d'onde anti-Stokes et la fréquence de vibration pour une longueur d'onde de pompe de 1033 nm. Une table de correspondance entre ces valeurs est également présente en annexe A1.

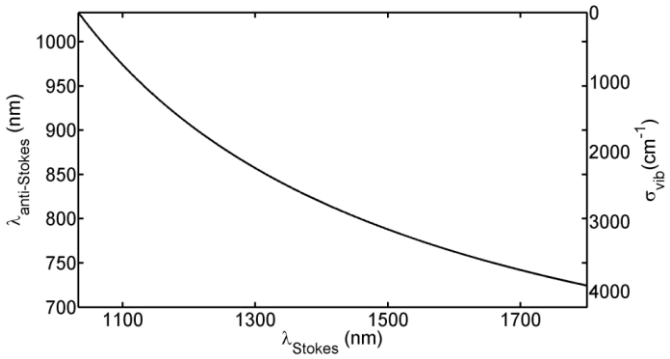


Figure 5-15 : Correspondance entre les longueurs d'onde Stokes et anti-Stokes et les fréquences de vibration scannées

Cette correspondance est testée sur la liaison à C-H à 1460 cm^{-1} de l'éthanol pur. La puissance pompe est de 2.4 mW, la puissance Stokes de 1.7 mW et sa longueur d'onde de 1217 nm. Le temps d'intégration du spectromètre est de 2 secondes et une moyenne sur 2 spectres est effectuée. Le spectre obtenu est représenté en Figure 5-16 (a). Afin de vérifier si ce spectre est réellement un spectre CARS, les tests suivants sont effectués:

- absence de signal en l'absence de faisceau pompe ou Stokes,
- absence de signal en l'absence de synchronisation,
- pic en intensité à la longueur d'onde attendue,
- dépendance quadratique en puissance pompe et linéaire en puissance Stokes, étudiée au moyen des courbes de l'intensité CARS en fonction des puissances pompe (triangles inversés) et Stokes (cercles) présentes en figure (c). Cette intensité a été estimée par ajustement gaussien de différents spectres. Une estimation par la valeur crête de ces spectres a fourni des résultats similaires. Ces courbes ont ensuite été ajustées par des droites. Les pentes de ces droites sont relativement proches des valeurs attendues (soit 2 pour la dépendance à la puissance pompe et 1 pour la dépendance à la puissance Stokes). La valeur de 2.66 pour la dépendance à la puissance pompe peut être expliquée par des éventuelles variations de collection du signal CARS.

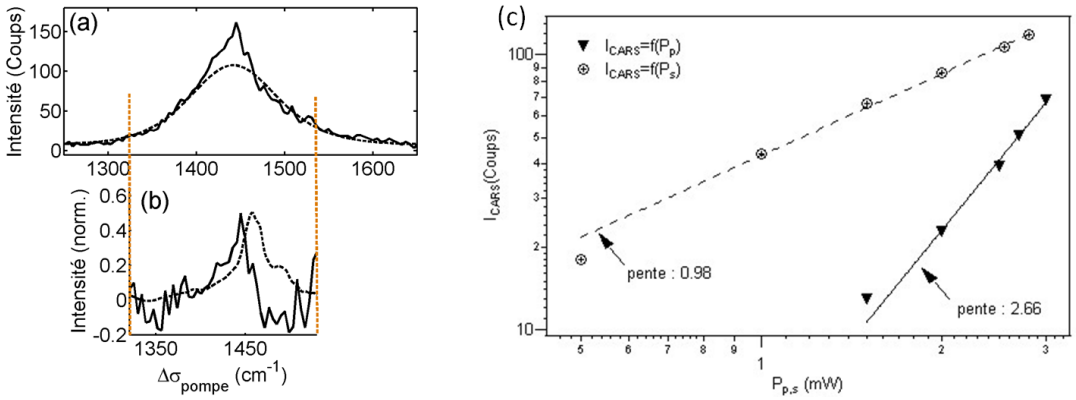


Figure 5-16: Spectres CARS de la liaison C-H à 1460cm^{-1} de l'éthanol. (a) Spectre brut pour les puissances d'impulsions maximales (ligne continue) et modélisation de la partie non-résonnante (tirets). (b) Spectre normalisé (ligne continue) et spectre Raman spontané (tirets). Les tirets orange délimitent la zone de normalisation et indiquent le pic CARS. (c) Etude de la dépendance du signal CARS aux puissances pompe et Stokes P_S = 2.55 mW, P_p = 3.8 mW.

Toutes les vérifications effectuées concordent avec les caractéristiques d'un signal CARS. De plus, le spectre normalisé (Figure 5-16 (b)) montre un décalage vers les faibles fréquences, caractéristique de l'influence du fond non-résonnant présent au sein des spectres CARS (partie 1.2). ***Dorénavant, on ne représentera que les spectres normalisés et comparés aux spectres Raman spontané [AIST, 2012] qui seront normalisés à l'amplitude du pic CARS.***

Les spectres CARS acquis par la suite permettent de tester le système pour la spectroscopie de résonances de différentes formes et forces. Comme évoqué dans la méthode de normalisation des spectres, on cherchera notamment, de manière sommaire, à comparer la force relative des signaux résonnants les uns par rapport aux autres avec leurs homologues Raman spontané. Les échantillons peuvent présenter des spectres plus ou moins complexes (éthanol, polystyrène solide issu d'une paroi de cuve de spectroscopie) et éventuellement des spectres plus ou moins "certains" (mélange éthanol/acétone).

Concernant le spectre de l'éthanol présenté précédemment, un retour sur la Figure 5-16 (b) montre que le signal résonnant est peu important par rapport au signal non-résonnant (amplitude inférieure à 1). Cette observation concorde avec la faible intensité du spectre Raman spontané correspondant. On cherche donc dans un premier temps à comparer la force de ce signal résonnant avec celle d'autres résonances.

5.3.2.2 Spectres de l'éthanol

De fait, la Figure 5-17 représente les spectres CARS normalisés de résonances vers 1070 cm^{-1} (1053 et 1097 cm^{-1}, figure (a)) et 884 cm^{-1} (figure (b)). On peut également voir le spectre Raman spontané de la zone d'étude en figure (c), qui est issu du spectre Raman spontané total présent en annexe A5.

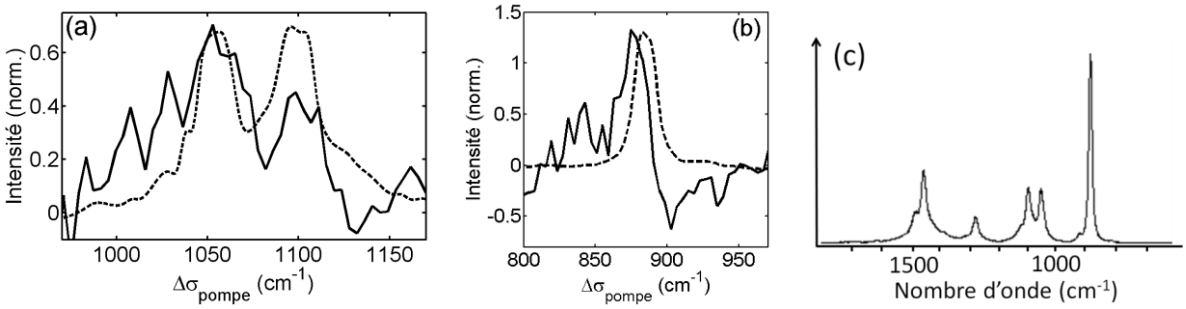


Figure 5-17 : Spectres CARS normalisés (lignes continues) comparés aux spectres Raman spontané (tirets) de l'éthanol. (a) Liaison C-O vers 1070 cm^{-1}. (b) Liaison C_2O à 884 cm^{-1}. (c) Spectre Raman spontané de la zone d'étude.

La figure (a) montre une fois encore un signal résonnant faible par rapport au signal non-résonnant (amplitude du signal normalisé inférieure à 1) et permet de confirmer que l'intensité du spectre Raman spontané d'une résonance se retrouve logiquement dans son spectre CARS. Il est également intéressant de constater que le double pic est peu évident mais visible sur le spectre CARS. Ce spectre a été enregistré en utilisant le doublet achromatique qui a donné de meilleurs résultats que la lentille asphérique habituelle. Cet aspect est discuté en partie 5.5.1. Le spectre de la liaison C_2O (884 cm^{-1}, Figure 5-17 (b)) montre un signal résonnant plus fort (amplitude du signal normalisé supérieure à 1) ce qui est de nouveau en accord avec le spectre Raman spontané.

Concernant les forces relatives des pics les uns par rapport aux autres, le Tableau 5-3 ci-dessous compare les rapports entre les intensités pic des spectres CARS et Raman spontané. Ces rapports ne sont pas en accord quantitatif, une cause probable étant la faible force des résonances à

1050 et 1500 cm^{-1} qui rend approximatifs ces rapports. On peut seulement en dégager de manière qualitative l'importance de la résonance à 884 cm^{-1} par rapport aux autres résonances et un même ordre de grandeur pour les intensités des deux autres résonances. Ainsi, on gardera pour la suite une approche qualitative.

	Raman spontané	***CARS***
$I_{(1500cm-1)}/I_{(1075cm-1)}$	1.3	0.7
$I_{(1500cm-1)}/I_{(870cm-1)}$	0.41	0.38
$I_{(1075cm-1)}/I_{(870cm-1)}$	0.31	0.54

Tableau 5-3 : Rapports entre les intensités pic des différetnes résonances. Comparaison entre les spectres Raman spontané et les spectres CARS.

5.3.2.3 Spectres de l'acétone

Toujours afin de tester le montage, des spectres des liaisons C-C (787 cm^{-1}) et C=O (1708 cm^{-1}) sont enregistrés et visibles Figure 5-18. Une fois encore, la figure (c) représente le spectre Raman spontané correspondant à la zone spectrale de travail. Là encore la force des signaux résonnants est en accord avec les niveaux des spectres Raman spontané. Dans le cas présent, la force des signaux résonnants permet d'effectuer une analyse quantitative plus pertinente et on remarque que le rapport entre les pics CARS normalisés (3.29) concorde avec celui des pics Raman spontané (3.50, soit un écart d'environ 10 %).

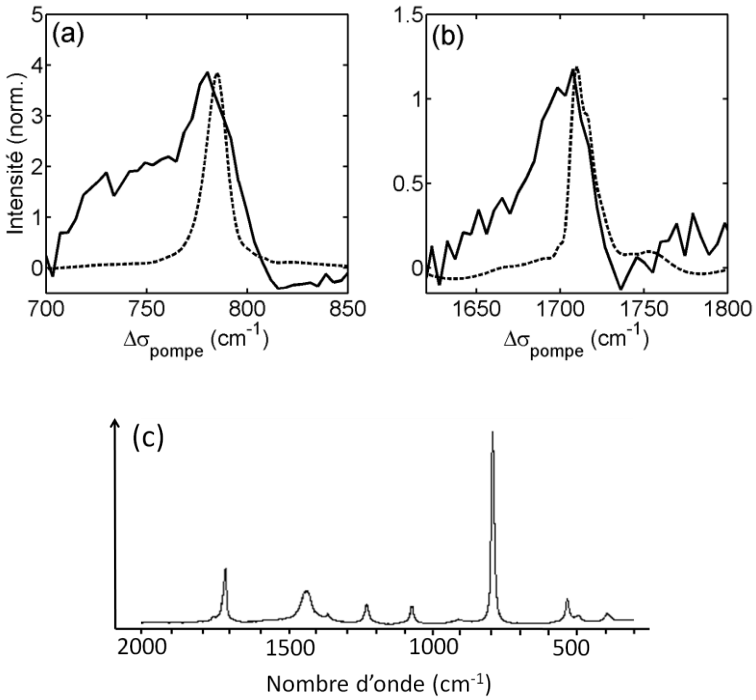


Figure 5-18: CARS normalisés (lignes continues) comparés aux spectres Raman spontané (tirets) de la cuve de l'acétone. (a) Liaison C-C à 787 cm^{-1}. (b) Liaison C=O à 1708 cm^{-1}. (c) Spectre Raman spontané de la zone d'étude.

5.3.2.4 Spectres du polystyrène

Le but est, cette fois, d'acquérir des spectres d'un matériau plus complexe qu'un simple solvant. Le matériau testé est du polystyrène constituant une paroi d'une cuve de spectroscopie classique. Les spectres correspondant à des résonances spécifiques au cycle benzénique (1003 cm^{-1}) et à la liaison C=C (1603 cm^{-1}) sont représentés Figure 5-19 (a) et (b) respectivement. Une fois encore, la figure (c) représente le spectre Raman spontané correspondant à la zone spectrale de travail.

Ces spectres sont également comparés à des spectres acquis par une configuration CARS simplex, employant deux impulsions de 3 ps chacune, acquis par Nadia Djaker [Djaker-Oudjhara, 2006] pour la résonance à 1603 cm^{-1} et par David Gachet [Gachet, 2007] pour la résonance à 1003 cm^{-1}. Ces derniers spectres sont représentés en gris. Les impulsions employées en configuration simplex étant fines spectralement, leurs largeurs spectrales n'influencent peu voire pas les spectres acquis et la comparaison entre ces spectres et les spectres multiplex normalisés se justifie.

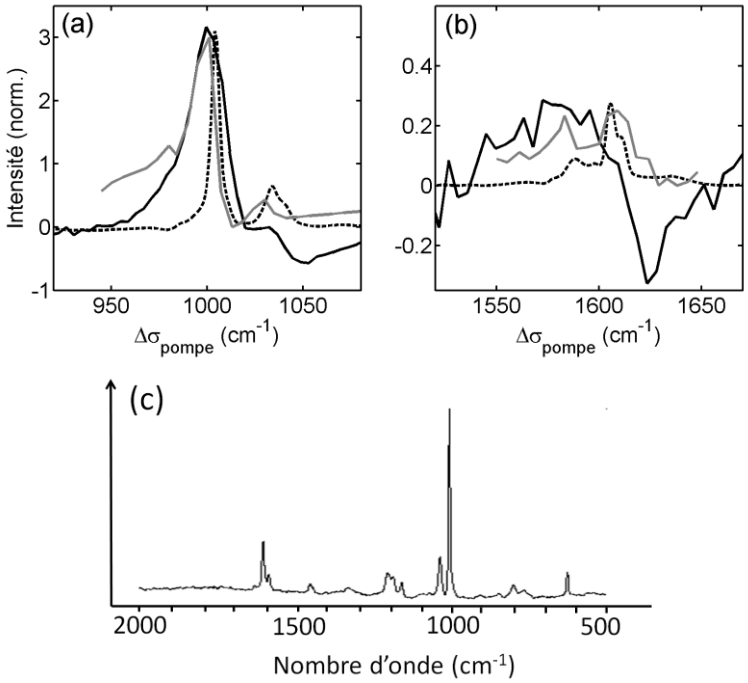


Figure 5-19: spectres CARS normalisés (lignes continues) comparés aux spectres Raman spontané (tirets) de la cuve de polystyrène (a) Résonance spécifique au cycle benzénique à 1003 cm^{-1}. (b) Résonance spécifique à la liaison C=C à 1603 cm^{-1}. Ces spectres sont comparés à des spectres acquis par une configuration simplex employant des impulsions de 3 ps chacune (spectres gris). (c) Spectre Raman spontané de la zone d'étude.

La figure (a) confirme une fois encore la qualité du dispositif mis en œuvre par un très bon accord entre les intensités des différents spectres acquis et les intensités du spectre Raman spontané (on rappelle que ce spectre est également présent en annexe A5). En effet la résonance à 1000 cm^{-1} montre un signal résonnant très important qui est en accord avec l'intensité du spectre Raman spontané. On retrouve le même type d'observation pour la résonance à 1600 cm^{-1}.

En revanche, des mesures plus précises, en utilisant notamment le doublet achromatique, sont à effectuer pour discerner les pics à 1034 et 1590 cm^{-1}, nettement moins intenses que les pics principaux et qui ne sont pas détectés. Ces pics peuvent également souffrir d'une résolution insuffisante de la part du spectromètre utilisé, limitation qui peut être simplement résolue par le

remplacement de la fente d'entrée (voir l'annexe A2 à ce sujet). Cette limitation est également mise en relief par la comparaison des spectres acquis aux spectres CARS simplex.

5.3.2.5 Spectres d'un mélange éthanol/acétone

Le but est de vérifier s'il est possible de détecter des pics sans en connaître a priori les fréquences de vibration. En effet dans un tel mélange on peut s'attendre à ce que les fréquences de résonance caractéristiques de chaque solvant soient modifiées par la présence de l'autre solvant. Ce test est réalisé sur une largeur spectrale (≈ 900 cm^{-1}) nettement plus importante que la largeur des impulsions Stokes (≈ 100 cm^{-1}), pour lequel les paramètres expérimentaux sont ajustés "à l'aveugle". En effet la synchronisation est ajustée non plus au moyen de la photodiode, mais en recherchant et en maximisant le signal CARS après changement de la longueur d'onde Stokes.

Le solvant analysé est une solution d'éthanol et d'acétone, présents à 50 % chacun en volume. Une relation simple et bien connue permet d'accéder à la concentration de chacun des éléments :

$$[X](mol/l) = \frac{n}{V} = \frac{\rho}{M} \tag{5.9}$$

avec [X] la concentration de l'élément, n le nombre de moles présent, V le volume, ρ la masse volumique et M la masse molaire. On obtient ainsi

	Ethanol	***Acétone***
ρ (g/l) (@ 20°C)	790	790
M (g/mol)	46	58
[X] (mol/l)	17.2	13.6

et on constate que la différence d'environ 25 % des concentrations devrait permettre une observation de résonances caractéristiques des deux constituants. Les spectres CARS normalisés sont représentés Figure 5-20.

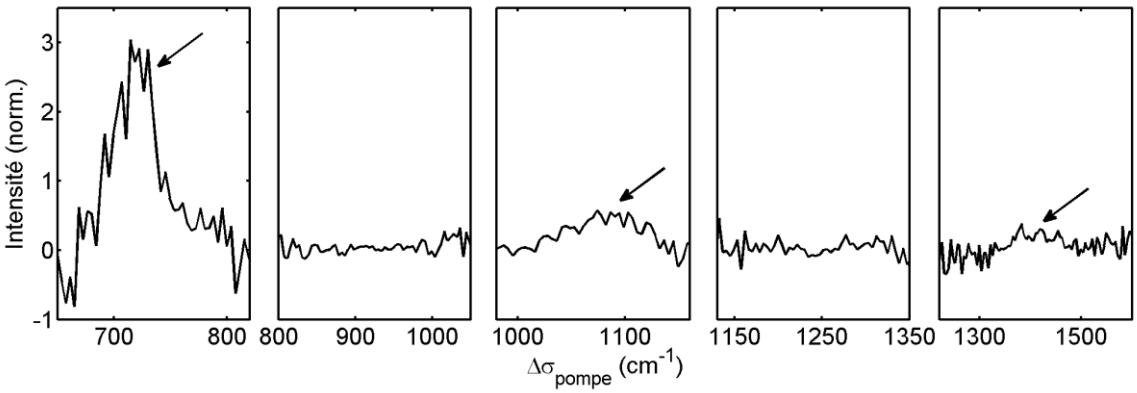


Figure 5-20 : Spectres d'un mélange éthanol-acétone, 50/50.

Plusieurs observations peuvent être faites. La première observation est que l'on retrouve des résonances caractéristiques des deux constituants. En effet on retrouve les résonances vers 750 cm^{-1} pour l'acétone et vers 1400 cm^{-1} pour l'éthanol. La première (750 cm^{-1}) apparaît fortement décalée par rapport à la fréquence caractéristique de l'acétone pur (787 cm^{-1}). La résonance vers 1100 cm^{-1} peut être attribuée aux deux constituants.

La seconde observation est que d'autres expériences et une étude chimique poussée, notamment par spectroscopie Raman spontanée classique, seraient nécessaires afin de confirmer ces

spectres, car il peut sembler anormal de ne pas détecter la résonance à 884 cm^{-1} de l'éthanol, dont la concentration est de plus la plus importante.

Enfin, l'observation la plus importante est la qualité du dispositif, suffisante pour permettre l'obtention d'un signal CARS de produits inconnus ou incertains, sur un intervalle spectral large avec une procédure de fonctionnement "simplifiée".

5.3.2.6 Possibilités de la source pour l'imagerie en microscopie

La validation de cette source dans une configuration de microscopie nécessite un matériel conséquent (microscope, objectifs adaptés, système de balayage des faisceaux...) et coûteux qui n'a pas été acquis lors de ce travail de thèse. Il est néanmois possible d'étudier la littérature pour en dégager des démonstrations d'imagerie utilisant des sources aux caractéristiques similaires à celle développée. Dans ce cadre, le Tableau 5-4 fournit les caractéristiques des impulsions utilisées pour quelques démonstrations d'imagerie CARS/SRS.

Référence	***Pompe***	***Stokes***	***Imagerie***	***Echantillon***
[E.R. Andresen, 2011b]	1033nm, 14 mW, 280 pJ, 33 pJ/nm, 1.9 ps	1156 nm, 1 mW, 20 pJ, 1 pJ/nm, 3.8 ps	CARS/SRS, t.pose 20 ms	Billes de polystyrène
[X. Nan, 2006a]	711 nm, 1.5 mW, 187 pJ, 500 pJ/nm, 2 ps	892 nm, 0.5 mW, 62.5 pJ, 108pJ/nm, 2 ps	CARS/TPF	Cellules infectées d'un ARN d'hépatite C
[S. Murugkar, 2007]	810 nm, 15 mW, 200 pJ, 13.3pJ/nm, 15 nm	1045 nm, 0.5 mW, 6 pJ, 0.1 pJ/nm, 53 nm	CARS, t.pose 84 µs	cellule nerveuse de rat, cellule adipocyte
[Y. Ozeki, 2010]	790 nm, 300 fs, 2 mW, 26 pJ, 3.3 pJ/nm	1028 nm, 300 fs, 1.5 mW, 39 pJ, 2.6 pJ/nm	SRS, t. pose 0.2 ms	Cellule de tabac

Tableau 5-4 : Démonstrations d'imagerie CARS/SRS utilisant des caractéristiques d'impulsions similaires ou proches de celles produites lors de ce travail de thèse.

Ce tableau permet de supposer que la source développée peut être employée à des fins d'imagerie. Il montre également l'importance primordiale d'un dispositif de détection de quélité. En effet, les démonstrations qu'il regroupe proposent des temps de pose par pixel de l'ordre de ceux proposés dans le Tableau 1-4, voire inférieurs, pour des énergies et DSE par impulsions du même ordre, voire inférieures.

Les possibilités de spectroscopie CARS de la source sont démontrées. Il peut être intéressant d'automatiser le fonctionnement général afin de doter le laboratoire d'une plateforme d'imagerie flexible qui soit également une base pour le développement d'un prototype de source. La partie suivante présente une méthode de développement possible.

5.4 Prototypage : une vision utilisateur

5.4.1 Problématique et méthode de traitement

Le dispositif, qui répond à la fonction technique d'imagerie vibrationnelle, ne possède toujours pas les attributs qui le rend utilisable par des non-spécialistes de la photonique, ce qui est pourtant son but final. Il manque ainsi une interface entre ce type d'utilisateur et le dispositif, c'est à dire un système qui traduise le langage de l'utilisateur (quelle fréquence de vibration souhaite-t-on imager?) en langage du dispositif (Quelle puissance injecter dans le bras Stokes pour obtenir la longueur d'onde correspondante ? Quel retard imposer pour avoir la synchronisation des impulsions ? etc).

Il est important de souligner que la réalisation de telles interfaces comme la conception de tout produit doit être le fruit d'une longue réflexion pour s'assurer qu'il réponde bien aux besoins de l'utilisateur [Bachelet, 2011]. Ce type de réalisation est quasiment toujours encadré par une série d'outils comme l'analyse fonctionnelle ou le diagramme FAST. L'analyse fonctionnelle, selon l'AFNOR, "*consiste à rechercher et à caractériser les fonctions offertes par un produit pour satisfaire les besoins de son utilisateur*". Cette analyse comprend différentes étapes (définition du besoin, du produit, des fonctions que ce produit doit remplir...) et aboutit à un Cahier des Charges Fonctionnel (CDCF) qui recense ces fonctions à remplir avec leurs critères de satisfaction. Ensuite, le diagramme FAST (*Functional Analysis System Technique*) découpe chaque fonction en solutions techniques, elles-mêmes découpées pour arriver à une solution matérielle "finale" [AFNOR, 2000]. Cette réflexion a été menée en partie pour l'automatisation du système. Quelques exemples et points de repères sont présentés.

5.4.2 Mise en place du cahier des charges fonctionnel

La première étape de la conception est la définition du besoin (étape de l'analyse fonctionnelle). Elle est généralement menée avec un outil appelé "la bête à cornes" qui permet de répondre aux trois questions suivantes :

- à qui le produit rend-il service ?
- sur quoi agit-il ?
- dans quel but ?

Cette étape conduit à la définition du besoin. Dans le cas de l'interface à réaliser, la définition proposée est la suivante : "L'interface agit sur le système optique à contrôler dans le but de simplifier l'utilisation des techniques d'imagerie possibles par l'utilisateur final". Le besoin n'est donc pas simplement d'agir sur un élément du système, ou d'acquérir un spectre CARS. Simplifier demande d'envisager les moyens d'action et de contrôle de tous les éléments du dispositif.

Il faut ensuite rechercher les fonctions que le système doit remplir pour répondre au besoin. Cette analyse sera effectuée en envisageant une utilisation isolée de chaque élément du dispositif qui correspond au mode de fonctionnement le plus robuste (l'utilisateur peut agir à chaque étape du processus d'imagerie). Elle aboutit à une liste de fonctions principales ("Les raisons pour lesquelles le produit a été créé") et contraintes ("limitation à la liberté de choix du concepteur réalisateur d'un

produit"). Dans le cas de l'interface, cette étape peut aboutir (sans envisager de fonctions contraintes) aux deux fonctions principales suivantes :

- "l'interface doit permettre à l'utilisateur de contrôler le système optique"
- "l'interface doit permettre à l'utilisateur de surveiller le système optique"

Il faut donc envisager pour chaque élément contrôlé un moyen d'action et un moyen de contrôle. Finalement, pour chaque fonction, des solutions techniques sont détaillées via le diagramme FAST. Pour envisager les solutions, il est bon de reprendre un schéma du dispositif, donné en Figure 5-21, et de lister les éléments sur lesquels agir :

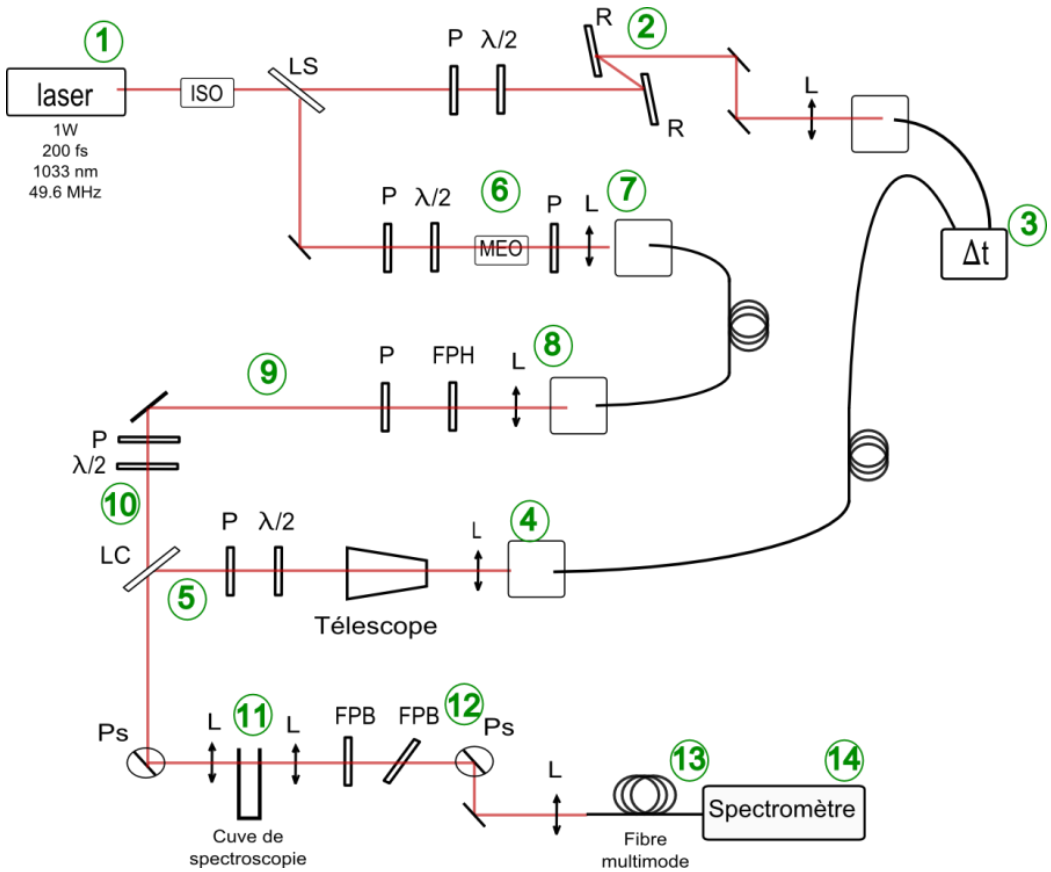


Figure 5-21 : Points de contrôle possibles du montage.

On constate que le nombre d'éléments sur lesquels agir est élevé. Le choix est fait de se concentrer sur l'implémentation de fonctions de base permettant un fonctionnement *a minima* afin d'assurer le fonctionnement de base du système. Ces fonctions sont :

- réglage de la longueur d'onde des impulsions Stokes (action sur les points 6 à 8)
- synchronisation des impulsions (action sur les points 3 et 11)
- lancement du logiciel de contrôle du spectromètre (action sur le point 14)

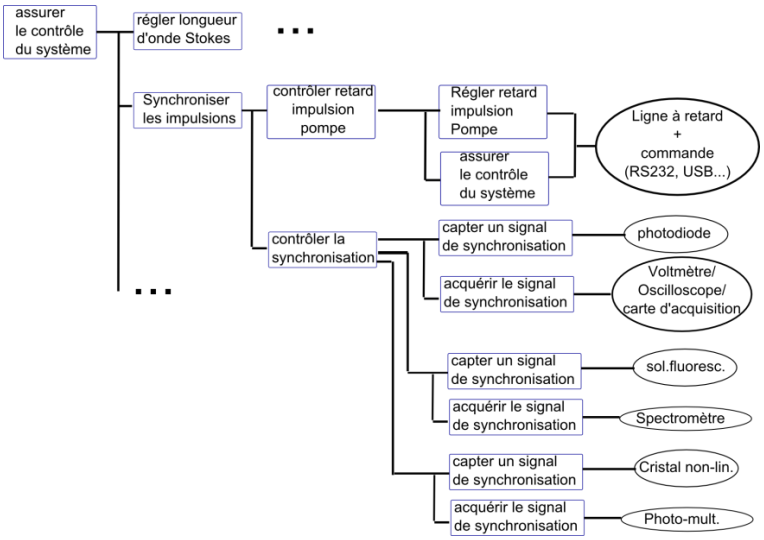


Figure 5-22: Extrait d'un diagramme FAST possible.

L'extrait du diagramme FAST représenté Figure 5-22 n'est relatif qu'à la synchronisation des impulsions pompe et Stokes et montre plusieurs solutions possibles pour le contrôle de la synchronisation. La solution retenue utilise la photodiode à 2 photons. Cette approche permet de formaliser la réflexion de la partie 5.2 et peut s'appliquer à tout choix technique.

5.4.3 Mise en œuvre des fonctions : architecture logicielle

L'extrait du diagramme FAST précédent a montré qu'il était possible d'automatiser la synchronisation des impulsions pompe et Stokes. La Figure 5-23 illustre cette solution en représentant l'algorithme de synchronisation (a) et la structure du programme LabVIEW de commande (b).

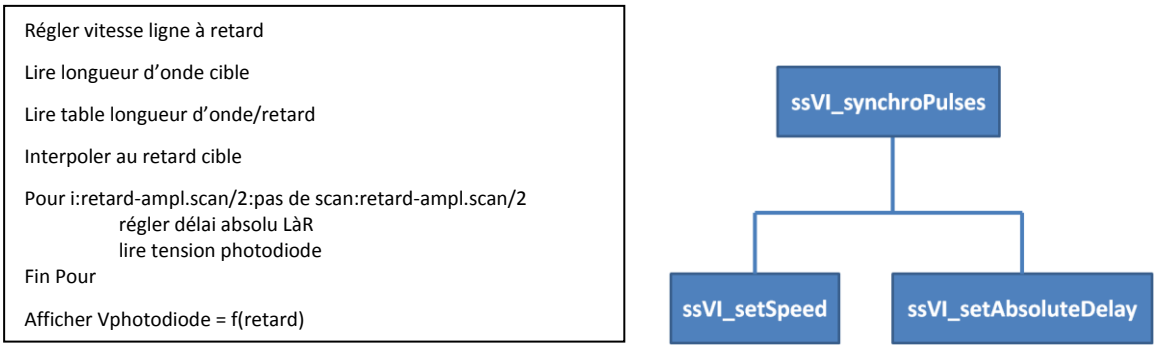


Figure 5-23: Structure du programme de contrôle de la synchronisation. (a) Algotithme général. LàR : ligne à retard. (b) Structure du programme LabVIEW.

Chaque fonction élémentaire est effectuée par un sous-VI différent (par exemple, ssVI_setSpeed pour le réglage de la vitesse de la ligne à retard). Un VI (pour "Virtual Instrument") est un programme créé à l'aide de LabVIEW. Des VI d'ordres supérieurs utilisent des combinaisons de ces sous-VI pour certaines autres tâches. Cette organisation est répétée pour toutes les fonctions basiques, et sont finalement orchestrées par un "super-VI", un VI contenant l'interface finale et appelant ces sous-VI soit séparément, soit dans un ordre défini.

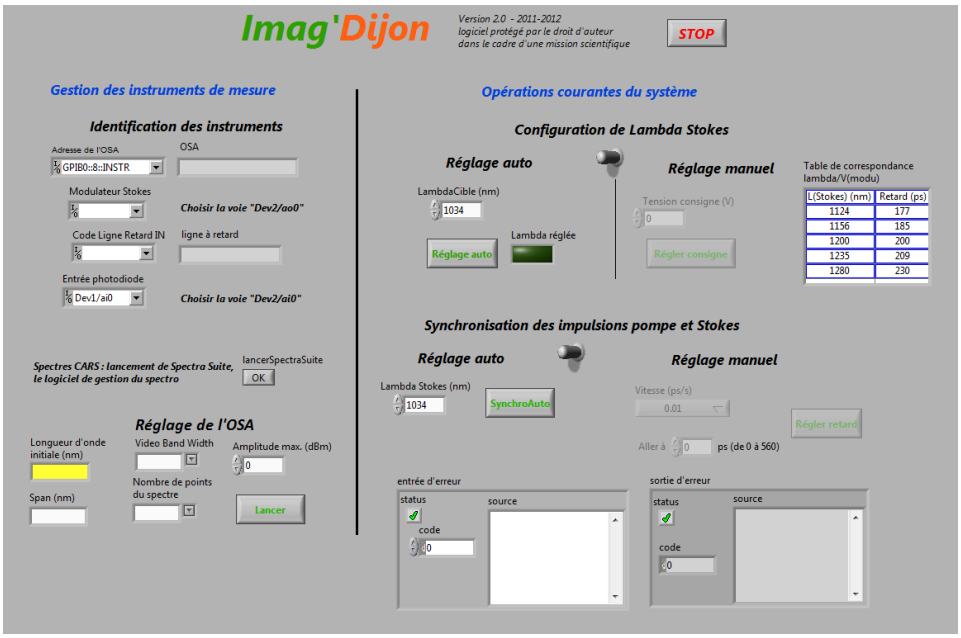


Figure 5-24: interface du logiciel de pilotage du dispositif CARS. Version 1.0.

L'interface propose un réglage automatique ou manuel de certaines fonctions. On peut imaginer un fonctionnement "intégré" dans lequel les fonctions s'enchaînent automatiquement avec des "alertes utilisateur" pour effectuer les opérations manuelles restantes (placement de la photodiode pour la synchronisation, etc.

Il existe maintenant une base de système d'analyse CARS multiplex complet, avec un montage optique testé et une interface de travail. La phase finale du travail est de chercher les optimisations et évolutions possibles du système en lui-même, en ayant pour objectif son évolution vers un système d'imagerie multimodale.

5.5 Améliorations et extensions

5.5.1 Améliorations possibles

Les pistes d'améliorations portant sur la génération des impulsions pompe et Stokes ont été discutées en parties 2 et 4. Les améliorations principales peuvent porter sur le montage post-collimation des faisceaux pompe et Stokes. En effet de nombreux points sont à améliorer pour augmenter le niveau de signal récupéré et traité, ainsi que la qualité des faisceaux.

Collimation et transport des faisceaux : L'élément à améliorer significativement est le dimensionnement des faisceaux pour les adapter correctement à l'optique de focalisation du système d'imagerie. Ainsi, un télescope peut être introduit sur le faisceau Stokes afin de régler simplement son waist tout en le gardant collimaté.

Optiques de focalisation : Des optiques adaptées sur toute la gamme spectrale de travail (soit de 1 à 1.5 µm environ) sont critiques en microscopie qui nécessite des ouvertures numériques très importantes [S. Brustlein, 2011]. Les spectres obtenus en partie 5.3 l'ont été avec une lentille asphérique qui ne corrige pas les aberrations chromatiques. Celles-ci sont cependant acceptables du fait de l'ouverture numérique « modérée » (0.62) et de l'écart spectral qui n'est pas trop important. Cependant, à titre de comparaison, des mesures de spectres ont été effectuées avec un doublet achromatique conçu autour de trois longueurs d'onde différentes (1016, 1330 et 1550 nm). Des spectres de l'éthanol enregistrés avec cet achromat sont représentés en Figure 5-25. Il possède une distance focale plus grande que la lentille asphérique utilisée mais cette perte de focalisation devrait être compensée par un volume focal plus important et surtout par la suppression des aberrations chromatiques.

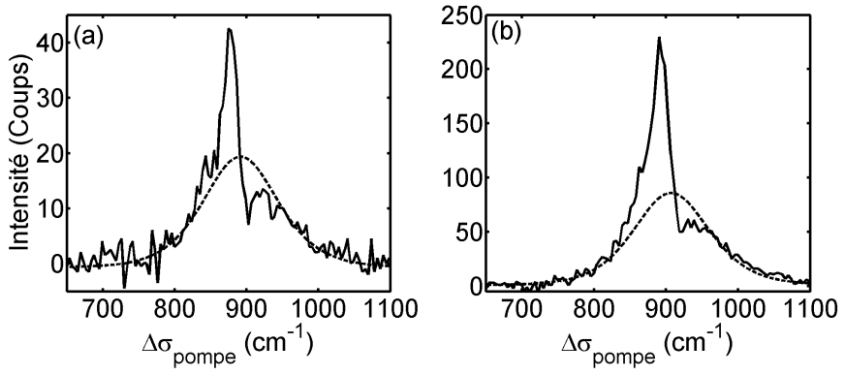


Figure 5-25: spectres CARS « brut » de l'éthanol, liaison à 884 cm^{-1}. Comparaison des spectres enregistrés (a) avec la lentille asphérique C-340-TME-C et (b) avec l'achromat AC-050-008-C-ML.

On constate sur la Figure 5-25 que pour des spectres similaires, le niveau de signal "brut" est plus élevé (d'un facteur 6 environ) avec l'emploi de l'achromat qu'avec l'emploi de la lentille asphérique. Ce niveau de signal peut être expliqué : la focalisation est de meilleure qualité et la focale plus longue impose une ouverture numérique plus faible que la lentille de collection, qui proportionnellement récupère plus de signal.

5.5.2 Vers une imagerie multimodale

Il a été présenté dans la partie 1 des techniques d'imagerie qui complètent le CARS, comme la SHG. Aussi, combiner ces techniques peut s'avérer intéressant et a vu récemment le développement de systèmes dits multimodaux [J.-X. Cheng, 2002a, Y. Fu, 2007, Y.-H. Zhai, 2011, H. Chen, 2009, S. Brustlein, 2011, H. Segawa, 2012, S. Murugkar, 2010] dans lesquels l'imagerie CARS est couplée à d'autres types d'imagerie comme la SHG. De tels systèmes combinant plusieurs techniques ont été mis en œuvre plus tôt [J. Sun, 2004] mais ils n'intégraient pas l'imagerie CARS.

Etant donné que l'imagerie CARS contient en elle-même de nombreuses variantes, il est décidé de commencer par présenter la mise en œuvre de ces variantes, pour continuer par la mise en œuvre de l'imagerie par SRS pour finir par d'autres techniques actuelles. Cette partie reprend donc les notions exposées dans les parties 1.1 et 1.2.

5.5.2.1 Autres configurations d'imagerie CARS

Comme expliqué en partie 1.2, le but des différentes configurations est très souvent de s'affranchir du fond non-résonnant qui limite les mesures de spectres. Il n'est exposé ici que les moyens de mise en œuvre de ces techniques, dont les schémas représentatifs sont présents dans cette même partie.

E-CARS : Epi-CARS, ou CARS diffusé vers l'arrière. Le signal CARS diffusé vers l'arrière est récupéré et recolimaté par l'optique de focalisation des faisceaux excitateurs. Deux configurations peuvent être employées pour collecter le signal CARS. Soit un filtre passe-bas est utilisé pour transmettre le signal E-CARS et réfléchir les faisceaux excitateurs [J.-X. Cheng, 2003], ce qui peut être fait en insérant un tel filtre à la place du premier périscope. Celui-ci peut être déplacé et ne réalisera plus que la fonction de changement d'altitude des signaux. Soit un filtre passe-haut peut être inséré avant ce premier périscope pour transmettre les faisceaux excitateurs et réfléchir le signal E-CARS. Il s'agit de la solution la plus simple à mettre en œuvre dans la configuration actuelle. Cependant le spectromètre actuel ne sera peut être pas suffisamment sensible pour détecter ce signal nettement moins important (10^2 à 10^4 fois moins) que le signal émis vers l'avant. Généralement, cette configuration est employée en simplex CARS et emploie une photodiode à avalanche pour la détection.

C-CARS : CARS avec faisceaux pompe et Stokes contra-propagatifs, il serait nécessaire de réorganiser la collimation du faisceau pompe pour le renvoyer ensuite sur le second périscope. La récupération du signal CARS pourrait s'effectuer de la même manière que pour le signal E-CARS et en filtrant correctement le faisceau pompe accompagnant le signal CARS [J.-X. Cheng, 2002b]. En effet dans ce cas le signal CARS émis "vers l'arrière" (c'est à dire dans le sens de propagation du faisceau Stokes) est très faible et donc peu intéressant.

P-CARS : CARS analysé en polarisation [J.-X. Cheng, 2001b]. La configuration actuelle est tout à fait adaptée à ce type d'imagerie. En effet il est simplement nécessaire d'ajouter un polariseur après la lentille de collection du signal F-CARS. Cependant cette méthode filtre une grande partie du signal résonnant et la question d'une détection suffisamment sensible se pose toujours pour acquérir un spectre en un temps raisonnable.

T-CARS : L'imagerie CARS résolue en temps est très pratiquée en spectroscopie et l'est moins en microscopie. Elle impose trois faisceaux dont deux sont synchronisés temporellement et un troisième décalé de quelques centaines de femtosecondes et idéalement d'une longueur d'onde différente des deux faisceaux incidents pour éviter les phénomènes d'interférence [A. Volkmer, 2002]. ***La configuration actuelle n'est donc pas adaptée***. Cependant les sources de production du faisceau sonde sont multiples : dédoublement du faisceau pompe, signal pompe résiduel du faisceau Stokes ou encore second soliton décalé par effet Raman intra-impulsion. L'emploi d'un SLM sur le faisceau pompe non comprimé spectralement peut être également envisagé afin de créer un "doublet" pompe-sonde.

CS-CARS : CARS auto-corrélé. Il s'agit plutôt d'une méthode de traitement de l'information que d'une configuration à proprement parler. ***Le système actuel n'est pas adapté*** car une configuration simplex est requise, le signal CARS récupéré étant enregistré par une photodiode à avalanche et un corrélateur automatique [J.-X. Cheng, 2002].

I-CARS : CARS par détection hétérodyne. ***La configuration actuelle n'est pas adaptée*** étant donné qu'il faut créer un signal CARS qui interfère avec le signal émis par l'échantillon analysé. Pour ce faire, il serait nécessaire d'introduire une lame séparatrice à la suite du dichroïque de recombinaison des faisceaux excitateurs pour les diriger vers un « bras CARS » auxiliaire.

5.5.2.2 Imagerie par SRS

Une des premières démonstrations de SRS a utilisé deux faisceaux femtoseconde, donc larges spectralement, avec une détection par spectromètre et l'emploi de fortes puissances, incompatibles avec l'imagerie cellulaire [E. Ploetz, 2007]. La démonstration en imagerie cellulaire par Freudiger *et al*. en 2008 [C.W. Freudiger, 2008] a posé les bases de la configuration la plus courante, à savoir l'emploi de deux faisceaux picoseconde (7 ps, donc fins spectralement : environ 3 cm^{-1}) et d'une détection hétérodyne employant une photodiode à grande surface active. Cette détection impose de moduler en intensité le faisceau Stokes (ou pompe) à un taux de quelques mégahertz, où le bruit laser est faible. De ce fait, ***le montage actuel n'est pas adapté et doit évoluer***. Plusieurs solutions sont possibles :

- ***Comprimer spectralement l'impulsion Stokes***, qui impose un rendement d'environ 30 à 35 % en puissance ce qui est très faible au vu de la puissance du Stokes. Il peut sembler pertinent d'utiliser toute la puissance des fibres microstructurées, étirées ou non, pour contrôler le couple dispersion-non-linéarité afin de produire une compression spectrale simultanée au décalage en fréquence [A.B. Fedotov, 2009b]. De plus, les paramètres requis (dispersion forte et non-linéarité faible) sont cohérents avec l'obtention d'impulsions de grande densité spectrale d'énergie. Cependant, la démonstration évoquée ([A.B. Fedotov, 2009b]) produit des impulsions de largeur spectrale supérieure d'un ordre de grandeur à la largeur nécessaire. Une étude approfondie est ainsi nécessaire pour vérifier le bien fondé de cette technique.
- ***Etirer temporellement les impulsions Stokes*** pour que le recouvrement temporel de cette impulsion avec l'impulsion pompe aboutisse à un recouvrement spectral de l'ordre du nanomètre. Ce principe est représenté en Figure 5-26 ci-dessous.

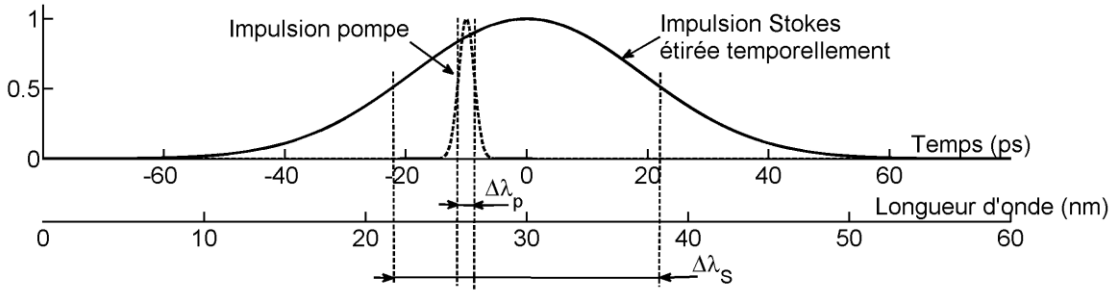


Figure 5-26 : Principe de l'étirement temporel de l'impulsion Stokes (ligne continue) pour aboutir à une résolution spectrale acceptable. L'impulsion pompe est représentée en tirets.

On rappelle que l'impulsion pompe présente des largeurs temporelle et spectrale de 3 ps et de 1 nm environ. Les impulsions Stokes présentant une largeur spectrale de 15 nm environ, il faut ainsi les étirer jusque 3 ps*15nm/1nm = 45 ps. Si on considère une dispersion de base de 3 ps/nm (ordre de grandeur de la durée de l'impulsion pompe) pour avoir une résolution correcte, la distance entre les réseaux doit être de 9.3 cm avec le modèle de réseau utilisé pour la compression. Cette distance peut être réduite par un double passage, ce qui impose également un rendement de 35 à 50 %.

- Mettre en œuvre la technique de "***spectral focusing***" [E.R. Andresen, 2011b] exposée en partie 1.2. Cette technique emploie deux impulsions femtoseconde étirées temporellement par réseaux pour obtenir des chirps identiques. L'impulsion Stokes peut être facilement étirée par une paire de réseaux. Cependant, il serait nécessaire soit de supprimer le processus de compression spectrale de l'impulsion pompe et de lui imposer également un chirp, soit de mettre en œuvre la technique évoquée au point précédent (étirement unique de l'impulsion Stokes).
- ***« Inverser » les largeurs spectrales des faisceaux excitateurs***. Une extension serait de mettre en œuvre la technique dite de SRS par excitation spectrale sur-mesure (ou "Spectrally Tailored Excitation" (STE) SRS). Cette méthode, proposée par Freudiger *et al.* [C.W. Freudiger, 2011], emploie une impulsion Stokes fine spectralement et façonne le spectre large d'une impulsion pompe par SLM afin de n'exciter que certaines vibrations spécifiques à une espèce chimique dans une région spectrale encombrée. Cette méthode, bien qu'élégante, nécessite cependant de repenser tout le dispositif.

Enfin, une détection vers l'avant peut être envisagée avec une photodiode InGaAs classique (qui possède un niveau de bruit faible et un temps de réponse très intéressant). Il semble envisageable d'utiliser le modulateur électro-optique contrôlant le décalage en longueur d'onde du faisceau Stokes en sortie du Stokes, qui peut délivrer une modulation propre à une fréquence maximale d'environ 100 kHz et qui est adaptée à la gamme de travail d'une détection hétérodyne présente au laboratoire (modèle 7280 DSP Lock-in, Signal Recovery). Les puissances disponibles sont de plus tout à fait compatibles avec les démonstrations précédentes [E.R. Andresen, 2011b, Y. Ozeki, 2010, Y. Ozeki, 2012].

5.5.2.3 Autres types d'imageries

Imagerie par SHG/THG/TPFE : Plusieurs démonstrations utilisent des impulsions de même type et de mêmes puissances que le montage de cette thèse. Ainsi, Chen et al. [H. Chen, 2009] réalisent une imagerie CARS/SHG/THG/TPF avec des impulsions femtoseconde de 790 à 1290 nm, 130 à 400 fs et de 2.2 à 20 mW, pour imager la liaison C-H de membranes lipidiques. Les différentes démonstrations montrent notamment qu'un signal de THG peut être généré à partir d'un intervalle spectral important (1064 nm ([H. Segawa, 2012], 1290 nm [H. Chen, 2009]). Cependant dans ce cas les puissances mises en jeu sont assez importantes (15 à 20 mW d'impulsions de 200 fs) car la THG génère un signal très faible et de plus peu adapté à l'instrumentation générale d'un système multimodal [H. Segawa, 2012]. Aussi de l'imagerie par THG en utilisant la longueur d'onde pompe semble possible, soit en optimisant la puissance du faisceau pompe (la durée des impulsions pompe baisse l'efficacité du processus), soit en récupérant la partie de l'impulsion pompe non convertie en soliton Stokes décalé qui aura une durée d'environ 180 fs. Le matériel utilisé pour le traitement du

signal généré (filtrage et détection) emploie souvent des filtres de haute qualité et des photo-multiplicateurs. Il est donc obligatoire de faire évoluer le matériel existant.

L'imagerie par TPFE est possible mais nécessiterait des énergies un peu plus importantes que les énergies actuelles (nanoJoule [D. Kobat, 2011]). Dans ce contexte, la partie 5.6 expose un montage reposant sur l'emploi des longueurs d'onde des télécommunications optiques qui pourrait palier à cet inconvénient.

Imagerie par OCT (ou Tomographie en Cohérence Optique) : La partie 3.2 a décrit le balayage rapide sur un certain intervalle spectral de la longueur d'onde centrale des solitons décalés. Ce type de balayage a été récemment utilisé par Sumimura *et al.* [K. Sumimura, 2008, K. Sumimura, 2010] pour créer une source large-bande alternative aux sources existantes en TD-OCT (OCT « temporelle » avec balayage du miroir de référence). Le signal produit est dans ce cas employé dans une configuration en détection double classique de l'OCT [A. Kowalevicz, 2002].

Le point important de ce type de système est de disposer d'une source large bande avec un profil d'intensité spectral gaussien. En effet aucune mention n'est faite par Sumimura *et al.* d'une dégradation du profil temporel des solitons après passage dans le dispositif fibré d'OCT. Il en est de même pour Kovalewicz *et al.* [A. Kowalevicz, 2002] qui utilise une source large-bande sans mentionner l'aspect temporel de ses impulsions. De plus, les puissances nécessaires sont faibles (quelques mW à µW) ce qui est tout à fait compatible avec le montage existant. La limitation principale de ce montage est la faible fréquence de balayage en longueur d'onde (quelques kHz) qui limite la fréquence de balayage de l'échantillon. Une amélioration serait ainsi de choisir un modulateur électro ou acousto-optique qui permettrait une fréquence de balayage plus élevée, de l'ordre du MHz, tout en s'assurant que le taux de répétition de l'oscillateur utilisé (50 MHz) n'est pas limitant. En effet les articles existants n'évoquent pas ce type de limitation alors que les ordres de grandeur sont les mêmes (taux de répétition de 73 MHz, fréquence de modulation du modulateur acousto-optique de 1.3 MHz). Une évolution supplémentaire serait d'envisager une compression spectrale des impulsions décalées pour créer une source balayée en fréquence caractéristique de la SS-OCT (OCT à balayage spectral) [R. Huber, 2006].

5.6 Extension du système général : une source entièrement fibrée

Une étude rapide de la source développée dans cette thèse montre une utilisation élevée des fibres optiques, avec des possibilités d'évolution vers un système plus fibré encore. Cependant, il peut sembler difficile de faire tendre cette source vers une source entièrement fibrée, étant donné que les impulsions de départ, femtoseconde, posent de nombreux problèmes de transport par fibre. Il faut alors revenir aux conditions nécessaires à l'obtention d'une source lumineuse répondant au cahier des charges :

- une impulsion pompe fine spectralement
- il faut une impulsion Stokes large spectralement, pour imager une grande bande CARS

- une des 2 impulsions (au minimum) qui soit réglable en longueur d'onde
- une gamme spectrale de travail : 800-1100 nm

Dans ce cadre, les thématiques développées dans l'équipe Solitons, Lasers et Communications Optiques au sein de laquelle est réalisée cette thèse présente une conjonction unique d'activités permettant de répondre à ce cahier des charges. En effet, les thématiques de décalage spectral de solitons et de compression spectral peuvent être alliées à l'optique fibrée aux longueurs des télécommunications (1550 nm), et au travail développé dans l'équipe au niveau des impulsions paraboliques et des similaritons [Finot, 2005]. On se propose ainsi d'étudier la configuration expérimentale suivante :

- longueur d'onde pompe fixée à 775 nm (doublage d'impulsions à 1550 nm)
- longueur d'onde Stokes réglable de 1550 à 2100 nm, puis doublage pour obtenir une longueur d'onde de 775 à 1050 nm

La Figure 5-27 représente cette approche sans toutefois proposer des solutions techniques strictes. En effet la littérature considérable de l'optique fibrée permet d'envisager de nombreuses solutions techniques.

Le décalage en fréquence, démontré par Wang *et al.* [K. Wang, 2011b], peut être effectué par des impulsions puissances (≈ 400 nJ, 400 fs) dans une fibre à large mode (LMA). De plus, le doublage d'impulsions décalées par SSFS a été récemment démontré par Lanin *et al.* [A.A. Lanin, 2012] au moyen de cristaux de LBO, dont l'épaisseur conditionnait l'efficacité de doublage et la largeur spectrale des impulsions doublées. Ces impulsions peuvent être obtenues par amplification parabolique suivie d'une mise en forme du chirp. A défaut, un laser fibré puissant peut délivrer les impulsions souhaitées.

Les impulsions pompe, également, peuvent bénéficier de l'amplification parabolique suivie d'un contrôle du chirp pour aboutir à un chirp négatif. Ces impulsions peuvent alors subir la compression spectrale [S. Boscolo, 2012] et être ensuite ramenées à l'intervalle spectral d'intérêt par doublage de fréquences.

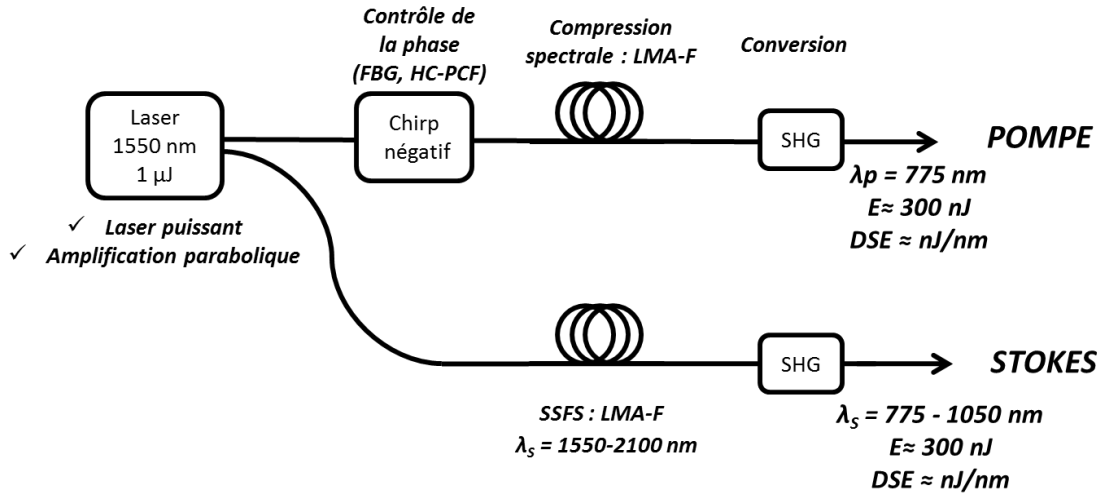


Figure 5-27: Schéma de principe de l'approche proposée pour une source entièrement fibrée. FBG : réseau de Bragg fibré, H-PCF : fibre microstructurée à coeur creux, LMA-F : fibre à grande aire modale, SSFS : auto-décalage en fréquence d'un soliton, SHG : génération, E : énergie, DSE : densité spectrale d'énergie.

Cette approche présente l'avantage de promettre des impulsions très puissantes, de l'ordre du nanojoule. De plus, l'intervalle spectral des impulsions Stokes avant doublage (1550-2100 nm) peut être intéressant pour les expériences de génération de troisième harmonique, ce qui a également été démontré par Wang *et al.* dans la même publication.

Il semble ainsi possible de faire agir en synergie tous les acquis de ce travail de thèse au travail développé dans l'équipe. Cette approche présente de plus l'avantage de proposer des impulsions à 775 nm qui sont d'intérêt pour la technique très répandue de fluorescence par absorption à deux photons (voir la partie 1.1).

Il est évident qu'un certain nombre de simulations et d'études sont à effectuer pour réellement vérifier la faisabilité de ces approches. Il faut ainsi étudier précisément la possibilité d'action sur la phase d'impulsions très puissantes, par réseau de Bragg fibré par exemple, ou encore se pencher sur la production et l'intégration de cristaux non-linéaires pour le doublage efficace de fréquences optiques supérieures à 1800 nm. Cependant les possibilités extrêmement étendues de l'optique fibrée semblent pouvoir répondre à ces problématiques.

Conclusion du chapitre

Ce chapitre constitue l'aboutissement du travail présenté dans les chapitres précédents. En effet, les spectres CARS obtenus permettent de valider les choix techniques en termes de caractéristiques d'impulsions.

Tout d'abord, le choix de la corrélation croisée par absorption à deux photons a permis d'effectuer la synchronisation des impulsions pompe et Stokes à une précision inférieure à la picoseconde. Cette précision a permis de quantifier le retard de l'impulsion Stokes par rapport à l'impulsion pompe en fonction de sa longueur d'onde de décalage. Ce résultat est très important pour le fonctionnement journalier en système d'imagerie CARS. L'impulsion Stokes présentant une largeur temporelle 20 fois moindre que l'impulsion pompe, l'opération de corrélation croisée a également permis de reconstruire le profil temporel d'intensité de l'impulsion pompe.

Une fois la synchronisation des impulsions effectuée, des spectres CARS de différents milieux de référence (méthanol, éthanol, acétone et polystyrène) ont été acquis pour un intervalle important de résonances (1000-2200 cm^{-1}). Ces spectres, acquis pour des temps d'intégration de l'ordre de la seconde, confirment la qualité des impulsions générées. Le test de différentes optiques de focalisation ont montré que ces durées d'intégration ne sont pas simplement fonction des caractéristiques des impulsions et pourraient être diminués, dans un premier temps, par l'emploi d'optiques plus spécifiques.

Enfin, il a été présenté les nombreuses possibilités d'évolution du système vers une plateforme d'imagerie multimodale, dont certaines techniques ne nécessitent peu voire pas d'adaptations. La robustesse d'une source à l'environnement extérieur étant un aspect primordial de son emploi par les utilisateurs intéressés, il a été émis l'idée d'une évolution du concept même de cette source (deux impulsions synchronisables et de décalage en longueur d'onde réglable) à un système entièrement (ou quasi entièrement) fibré.

Conclusion

Ce mémoire de thèse rapporte ainsi les travaux effectués de décembre 2009 à juin 2012 au sein de l'équipe Solitons, Lasers et Communications Optiques (SLCO), partie du département Optique, Matière et Rayonnement (OMR) et ainsi du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne (LICB). Cette thèse a été réalisée sous la direction du professeur Guy Millot et a bénéficié de l'encadrement du professeur Christophe Finot et du docteur Bertrand Kibler. Elle a poursuivi les travaux menés dans le cadre du projet ANR SOFICARS (Sources Optiques FIbrées pour la microscopie CARS), qui a débuté en 2008, et a pu dans ce cadre bénéficier d'échanges avec l'équipe MOSAIC de l'Institut Fresnel de Marseille. Elle a donc traité du développement d'une source optique fibrée destinée à des applications d'imagerie biomédicale, parmi lesquelles le potentiel de la technique de diffusion Raman anti-Stokes Cohérente (CARS) a joué un rôle central.

L'aspect fortement applicatif et innovant de ce sujet a permis à cette thèse de se dérouler dans le cadre du dispositif JCE (Jeunes Chercheurs Entrepreneurs) mis en place en Région Bourgogne afin de stimuler le tissu économique local par la sensibilisation de doctorants à l'innovation et à l'entreprenariat. Cette sensibilisation a notamment fourni des outils de gestion de projet et de veille technologique, appliqués à cette thèse, indispensables à ces activités.

La technique de CARS joue donc un rôle central mais non exclusif. C'est pourquoi il a été effectué en premier lieu une veille technologique des différentes techniques d'imagerie biologique non-linéaires existantes et d'autres techniques connaissant un développement récent. On a pu ainsi constater qu'une source permettant l'imagerie CARS pouvait également permettre d'autres types d'imageries comme l'imagerie par génération de seconde (SHG) et troisième (THG) harmonique ou encore la Tomographie en Cohérence Optique (OCT). Dans un deuxième temps, un état des lieux théorique, historique et expérimental des techniques de mise en œuvre du processus CARS a été présenté. Cet état des lieux a abouti à un cahier des charges à respecter au niveau des caractéristiques des impulsions. Il a aussi été présenté le verrou technologique important et la raison d'être de ce travail de thèse, à savoir la mise au point d'une source simple délivrant deux impulsions décalées en longueurs d'onde et synchronisées. Ce chapitre a enfin fini par la description des solutions actuelles et des bases d'optique fibrée pour comprendre ces solutions et préparer le travail des chapitres suivants. En effet, les solutions actuelles emploient en grande partie cette optique et un nombre important emploient des fibres microtructurées qui proposent de nombreux degrés de liberté pour la détermination de paramètres clés comme le profil de dispersion chromatique ou encore le coefficient non-linéaire.

Le second chapitre a présenté le travail réalisé sur l'auto-décalage en fréquence d'un soliton (ou SSFS) qui permet de réaliser simplement, à l'aide d'un oscillateur femtoseconde et d'une fibre optique, une source réglable en longueur d'onde. Tout d'abord, une étude simple de la densité spectrale d'énergie (ou DSE) a permis de voir que sa maximisation nécessite des valeurs de dispersion anormale importante et de coefficient non-linéaire faible. Un décalage important nécessite de plus

un pompage loin des longueurs d'onde de dispersion nulle et ainsi une zone de dispersion anormale large. Plusieurs fibres ont été testées. Le premier "lot" provenant de NKT Photonics a permis de confirmer de manière qualitative les prédictions effectuées et a mis en valeur l'importance d'une dispersion anormale large par la présence d'ondes dispersives et la limitation possible du décalage par un pic d'absorption très fort vers 1380 nm. Une fibre intéressante a été identifiée, la NL-1.8-710, et permet un décalage jusque 1360 nm (donc de 2200 cm^{-1} environ) pour une DSE moyenne de 6 pJ/nm. Les impulsions obtenues sont des solitons proches de la forme idéale (produit temps-fréquence de 0.33 environ). Le second lot provenant de la plateforme PERFOS a confirmé l'importance de pertes faibles et a permis des décalages jusque 1700 nm. La piste de l'augmentation de l'aire effective pour augmenter l'énergie et la DSE a également été évoquée. Enfin, la stabilité de la source a été étudiée et a montré des gigues à court terme (≈ milliseconde) d'amplitude (≈ 0.4 %) et temporelle (< 2.5 ps) en accord avec les besoins du dispositif et proches de celles de l'oscillateur de base.

Le troisième chapitre a présenté deux applications du SSFS : l'exacerbation de faibles fluctuations relatives d'énergie et la génération de quasi-supercontinua. La première application a pour but une meilleure détection et une meilleure quantification de ces fluctuations. Le dispositif développé a permis l'exacerbation des fluctuations par un facteur 20 et a également démontré la conservation de leur distribution statistique. Cependant cette distribution peut être fortement déformée par des conditions particulières de travail et aboutir à des distributions faisant penser à l'existence d'évènements extrêmes alors que le système n'en génère pas. La seconde application consiste dans le décalage à haute fréquence (kHz-MHz) de la longueur d'onde centrale des solitons décalés. Ce décalage à haute fréquence est ainsi vu par un milieu biologique comme un supercontinuum, ce qui permet d'améliorer significativement la résolution spatiale en OCT. La forme et la largeur de ces signaux, appelés quasi-supercontinua, peut être contrôlée par la forme de la modulation appliquée. Des spectres de formes triangulaire, gaussienne ou encore carrée, de 200 nm de large, ont ainsi pu être générés.

La résolution spectrale des spectres CARS obtenus dépendant fortement de la largeur spectrale des impulsions pompe, le quatrième chapitre a présenté une alternative élégante au filtrage, nommée compression spectrale. Ce processus consiste en un "regroupement de fréquences sans pertes" au cours duquel une dérive de fréquence (ou chirp) initiale est compensée de manière non-linéaire par le phénomène d'auto-modulation de phase. Ce processus a permis de réduire la largeur spectrale à 1 nm à la longueur d'onde centrale de 1033 nm, soit une largeur spectrale d'environ 10 cm^{-1} pour une DSE de 160 pJ/nm pleinement compatible avec le cahier des charges fixé. Il a également été mis en relief le phénomène de coupure spatiale du faisceau à comprimer par la fibre permettant cette compression. Par la suite, diverses pistes d'améliorations ont été proposées afin d'augmenter l'énergie et la DSE des impulsions générées et de tendre vers un dispositif entièrement fibré.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre a constitué l'aboutissement du travail effectué précédemment par la mise en place de la première expérience de spectroscopie CARS par dispositif fibré au laboratoire. Ce chapitre a tout d'abord vu la mise en place du contrôle de la synchronisation par le phénomène de génération de photocourant par absorption à deux photons au sein d'un semi-conducteur. Ce dispositif a également montré la possibilité de reconstruction du profil temporel de

signaux picoseconde par la corrélation croisée avec les impulsions Stokes, qui sont de 100 fs. L'exploitation totale de ses possibilités n'en est qu'à ses débuts, mais présente des perspectives dans la caractérisation de profils de dispersion ou encore de mesure de waists de faisceaux. Par la suite, des spectres CARS ont été acquis pour différents échantillons de référence possédant des fréquences de résonance différentes, donc des spectres Raman spontané différents, et ont ainsi démontré les performances de la source. Enfin, en accord avec la problématique initiale, les caractéristiques de la source et les principes sur lesquels elle repose (impulsion réglable en longueur d'onde et compression spectrale) ont été appliqués aux études de l'extension de la source vers une source multimodale et vers un dispositif entièrement fibré.

On peut également souligner l'évolution intéressante du développement de ces sources fibrées qui permet de mettre en relief l'aspect fortement concurrentiel de ce champ de recherches et l'accessibilité des fibres microstructurées à la communauté des opticiens. En effet, après une "naissance" en 1996 et un développement sur environ 5 ans, des démonstrations de supercontinua et de SSFS convaincantes sont effectuées en 2000-2002. On peut ainsi s'attendre, avec le développement conjoint de l'imagerie biologique non-linéaire, à voir ces deux champs se rencontrer dans les années qui suivent. Cette observation est confirmée par les premières démonstrations indépendantes en 2003 et 2004. On a ensuite une répartition à peu près égale entre les périodes 2005-2007 et 2010-2012 avec un nombre important d'équipes de recherche travaillant sur cette thématique (≈ 13) et de démonstrations (≈ 20) qui démontre que l'approche d'une source fibrée est largement accessible. Cependant, le peu de sources entièrement fibrées, synchronisées... sur le marché met en relief les difficultés résiduelles.

Le développement important de ce champ technologique de l'optique fibrée, ainsi que les démonstrations récentes de dispositifs partiellement ou totalement fibrés, promettent ainsi la mise au point prochaine d'une source accessible sans compétences particulières pour l'imagerie CARS et certaines autres techniques non-linéaires ou non, et à moyen terme aux techniques de SRS. On aura alors atteint un palier décisif pour la diffusion des techniques non-linéaires et pour les nouvelles techniques d'imagerie en général. De plus, il faudra, dans les années à venir, composer très probablement avec la pertinence de sources optiques fibrées de puissance aux longueurs d'onde des télécommunications optiques, qui comme on l'a vu en fin de chapitre cinq, se situent à la conjonction d'un nombre important de techniques.

Enfin, cette richesse prometteuse de possibilités et perspectives se traduira immanquablement au niveau du marché des sources proposées, au sein duquel une protection efficace en termes de propriété industrielle, de savoir faire, de performances et de rapidité de diffusion vers les utilisateurs ciblés sera primordiale pour la bonne vie "économique" de ces sources. L'alliance de ces caractéristiques, critique pour la diffusion de tout produit hautement technologique, est plus que jamais d'importance dans ce contexte de l'optique fibrée où une technologie ne peut plus être protégée uniquement par un brevet ou un savoir faire.

Liste des abréviations

AFNOR	Association Française de NORmalisation
BBO	Borate de Baryum
BIP	Bande Photonique Interdite *(voir PBG)*
CARS	Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(voir DRASC)*
C-CARS	Counter propagating Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS avec faisceaux contra-propagatifs)*
CDCF	Cahier Des Charges Fonctionnel
CPA	Chirped Pulse Amplification *(ou amplification à dérive de fréquence)*
dB	décibel
DRASC	Diffusion Raman Anti-Stokes Cohérente *(voir CARS)*
DRC	Diffusion Raman Cohérente
DSE	Densité Spectrale d'Energie
E-CARS	Epi Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS avec détection du signal généré vers l'arrière)*
EFL	Effective Focal Length *(ou distance focale effective)*
ESM	Endlessly Single Mode *(ou guide d'onde totalement monomode)*
ESNL	Equation de Schrödinger Non-Linéaire
ESNLG	Equation de Schrödinger Non-Linéaire Généralisée
FAST	Functionnal Analysis System Technique *(ou technique d'analyse fonctionnelle d'un système)*
FBG	Fiber Bragg Grating *(ou réseau de Bragg fibré)*
F-CARS	Forward Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS avec détection du signal généré vers l'avant)*
FCS	Fluorescence Correlation Spectroscopy *(ou spectroscopie par corrélation de fluorescence)*
FLIM	Fluorescence Lifetime Imaging Microscopy (ou imagerie par temps de vie de fluorescence)
FMAS	Fibre Microstructurée Air-Silice
FMS	Fibre Micro-Structurée
FPH	Filtre Passe-Haut
FRAP	Fluorescence Recovery After Photobleaching *(ou recouvrement de fluorescence après photoblanchiement)*
FRET	Förster/Fluorescence Resonance Energy Transfer *(ou transfert d'énergie par résonance de type Förster)*
FWM	Four Wave Mixing *(ou mélange à quatre ondes)*
HC-PCF	Hollow Core Photonic Crystal Fiber *(ou fibre microstructure à cœur creux)*

HNLF	Highly NonLinear Fiber *(ou fibre hautement non-linéaire)*
HNLF-DS	Highly NonLinear Fiber Dispersion Shifted *(ou fibre hautement non-linéaire à dispersion décalée)*
HOMF	Higher Order Mode Fiber *(ou fibre à mode d'ordre supérieur)*
I-CARS	Interferometric Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS avec detection hétérodyne)*
LIBS	Light Induced Breakdown Spectroscopy *(ou spectroscopie par creation de plasma)*
LMA-PCF	Large Mode Area Photonic Crystal Fiber *(ou fibre microstructure à grande aire modale)*
M-CARS	Multiplex Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS "multiplex")*
MEO	Modulateur Electro-Optique
OCT	Optical Coherence Tomography *(ou tomographie en cohérence optique)*
O.N.	Ouverture Numérique
OPO	Optical Parametric Oscillator *(ou oscillateur paramétrique optique)*
OSA	Optical Spectrum analyzer *(ou analyseur de spectre optique)*
O.U.	Ouverture utile, qui est grossièrement égale au diamètre de l'optique considérée
PBG	Photonic BandGap *(ou BIP, Bande Interdite Photonique)*
P-CARS	Polarized Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS avec le contrôle de la polarisation)*
PCF	Photonic Crystal Fiber *(ou fibre micro-structurée, voir FMS)*
PERFOS	Plateforme d'Etude et de Recherche sur les Fibres Optiques Spéciales
PPLN	Periodically Poled Lithium Niobate *(ou niobate de lithium à polarité périodique)*
QSC	Quasi-SuperContinuum
RF	Radio-Fréquence
RTI	Réflexion Totale Interne
SC	SuperContinuum
S-CARS	Simplex Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS "simplex")*
SC-PCF	Solid Core Photonic Crystal Fiber *(ou fibre microstructure à cœur solide)*
SFG	Sum Frequency Generation *(ou génération de fréquence somme)*
SHG	Second Harmonic Generation *(ou génération de seconde harmonique)*
SLM	Spatial Light Modulator *(ou masque de phase)*
SMF	Single Mode Fiber *(ou fibre monomode)*
SMF-PM	Single Mode Fiber polarization maintaining *(ou fibre monomode à maintien de polarisation)*
SPM	Self-Phase Modulation *(ou auto-modulation de phase)*
SRG	Stimulated Raman Gain *(ou gain Raman stimulé)*
SRL	Stimulated Raman Loss *(ou perte Raman stimulée)*
SRS	Stimulated Raman Scattering *(ou diffusion Raman stimulée)*
SSFS	Soliton Self-Frequency Shift *(ou l'auto-décalage en fréquence d'un soliton)*
SD-OCT	Time Domain Optical Coherence Tomography *(ou tomographie en cohérence optique dans le domaine fréquentiel)*
SS-OCT	Time Domain Optical Coherence Tomography *(ou tomographie en cohérence optique par source balayée en fréquence)*

T-CARS	(ou Tr-CARS) Time resolved Coherent Anti-Stokes Raman Scattering *(ou CARS résolu en temps)*
TD-OCT	Time Domain Optical Coherence Tomography *(ou tomographie en cohérence optique dans le domaine temporel)*
TF-PCF	Taper Fiber Photonic Crystal Fiber *(ou fibre microstructurée étirée)*
TF-SMF	Taper Fiber Single Mode Fiber *(ou fibre monomode étirée)*
THG	Third Harmonic Generation *(génération de troisième harmonique)*
TPEF	Two Photon Emission Fluorescence *(ou fluorescence par absorption à deux photons)*
TPF	Two Photon Fluorescence *(voir TPFE)*
ZDW	Zero Dispersion Wavelength, *(ou longueur d'onde de dispersion nulle)*

Annexes

A1. Tableau de correspondance entre les grandeurs Stokes et CARS 174
A2. Caractéristiques du spectromètre d'analyse du signal CARS 175
A3. Calcul du courant généré par absorption à deux photons 176
A4. Caractéristiques de la photodiode de synchronisation "fine" 178
A5. Spectres Raman spontané des échantillons analysés 180

A1. Tableau de correspondance entre les grandeurs Stokes et CARS

λ_{Stokes} (nm)	$\Delta\lambda$ (nm)	$\Delta\nu$ (THz)	$\Delta\sigma$ (cm^{-1})	λ_{CARS} (nm)
1053	20	5,5	183,9	1013,7
1073	40	10,8	360,9	995,9
1093	60	15,9	531,4	979,2
1113	80	20,9	695,8	963,7
1133	100	25,6	854,4	949,2
1153	120	30,2	1007,5	935,6
1173	140	34,7	1155,4	922,9
1193	160	38,9	1298,3	910,8
1213	180	43,1	1436,5	899,5
1233	200	47,1	1570,2	888,8
1253	220	51,0	1699,7	878,7
1273	240	54,8	1825,1	869,1
1293	260	58,4	1946,6	860,1
1313	280	61,9	2064,4	851,4
1333	300	65,4	2178,7	843,2
1353	320	68,7	2289,6	835,4
1373	340	71,9	2397,2	828,0
1393	360	75,1	2501,8	820,9
1413	380	78,1	2603,4	814,1
1433	400	81,1	2702,2	807,6
1453	420	83,9	2798,2	801,4
1473	440	86,8	2891,7	795,4
1493	460	89,5	2982,6	789,7
1513	480	92,1	3071,2	784,2
1533	500	94,7	3157,4	778,9
1553	520	97,2	3241,4	773,9
1573	540	99,7	3323,3	769,0
1593	560	102,1	3403,1	764,3
1613	580	104,4	3480,9	759,8
1633	600	106,7	3556,8	755,4
1653	620	108,9	3630,9	751,2
1673	640	111,1	3703,3	747,2
1693	660	113,2	3773,9	743,3
1713	680	115,3	3842,8	739,5
1733	700	117,3	3910,2	735,8
1753	720	119,3	3976,0	732,2
1773	740	121,21	4040,38	728,8
1793	760	123,1	4103,3	725,5

Formulaire couramment utilisé :

Calcul du nombre d'onde CARS :

$$\sigma_{vib} = \sigma_p - \sigma_s = \frac{1}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s} \qquad \textbf{(A.11)}$$

Calcul de la fréquence du signal CARS :

$$\omega_{as} = 2\omega_p - \omega_s \rightarrow \lambda_{as} = \frac{\lambda_p \lambda_s}{2\lambda_s - \lambda_p} \qquad \textbf{(A.12)}$$

Tableau A1-1 : Correspondance entre la longueur d'onde de l'impulsion Stokes et les caractéristiques du signal CARS généré (longueur d'onde et décalage par rapport à la longueur d'onde pompe). Rappel : λ_{pompe} = 1033 nm. λ_{Stokes} : longueur d'onde centrale de l'impulsion Stokes, $\Delta\lambda$: décalage entre les longueurs d'onde des impulsions pompe et Stokes, $\Delta\nu$: décalage en fréquence correspondant en Hz, $\Delta\sigma$: même décalage exprimé en cm^{-1}, λ_{CARS} : longueur d'onde du signal CARS généré.

A2. Caractéristiques du spectromètre d'analyse du signal CARS

Le spectromètre est un modèle QE65000 de chez Ocean Optics avec un design répandu de type Czerny-Turner [A.B. Shafer, 1964]. Le connecteur d'entrée du spectromètre est composé d'un adaptateur SMA pour la fibre de transmission du signal, d'un filtre (optionnel) et d'une fente d'entrée qui détermine en partie la résolution du spectromètre. Une fente d'entrée de 50 µm a été choisie car elle représente un compromis entre la résolution spectrale (calculée à 1.32 nm) et le niveau de signal collecté qui n'était pas connu *a priori*. Cette fente peut être changée sur demande afin d'améliorer la résolution qui se calcule la manière suivante :

$$\partial\lambda = \frac{\Delta\lambda}{N_{px}}\Delta px \qquad \textbf{(A.21)}$$

avec δλ la résolution, Δλ la gamme spectrale du réseau de diffraction, N_{px} le nombre de pixels actifs du détecteur et Δpx la résolution en nombre de pixels. Cette fente permet de collecter tout le signal à la différence d'une fente plus fine qui ne collectera qu'un "rectangle de lumière" et dont le rendement correspondra au rapport

$$\eta = \frac{S_{fente}}{S_{fibre}} \approx \frac{4\Delta x}{\pi D} \qquad \textbf{(A.22)}$$

avec D le diamètre du mode de la fibre et Δx la largeur de la fente. Le Tableau A2-2 dresse un bilan des performances du spectromètre pour différentes largeurs de fentes d'entrée.

Δx (µm)	50	25	10	5
Δλ (nm)	1.32	1.05	0.885	0.8
η	1.27	0.64	0.25	0.13

Tableau A2-2: Bilan de performances du spectromètre pour différentes fentes d'entrée. Δx : largeur de la fente d'entrée, Δλ : résolution calculée du spectromètre, η : rapport des surfaces.

On s'aperçoit qu'une fente de 25 µm peut amener à une amélioration significative de la résolution (30 %) sans sacrifier le niveau de signal (perte de 50 %), ce qui n'est plus vrai pour des fentes inférieures.

Les calculs ont été effectués en prenant en compte le réseau H14 à 600 traits/mm, avec une gamme spectrale de 410-420 nm, et une longueur d'onde d'arrêt à 1100 nm et une efficacité maximale à 1000 nm. Ce choix a l'avantage de concilier une bonne résolution et une gamme spectrale étendue. En effet les mesures de spectres n'atteignent que 865 nm (longueur d'onde CARS à laquelle un second soliton apparaît) mais une vibration à 4000 cm^{-1} impose un décalage à 1773 nm et donc une longueur d'onde CARS de 728 nm. Il faut signaler la présence du réseau H4 qui possède une réponse plus homogène dans la gamme spectrale de travail.

Les miroirs de collimation et de focalisation ont un revêtement spécial en argent pour améliorer la réflectivité et le détecteur est un détecteur FFT-CCD 7031 d'Hamamatsu.

A3. Calcul du courant généré par absorption à deux photons

L'expression du photocourant généré a été établie par Laughton *et al* en 1994. Elle est donnée, pour un profil temporel d'intensité gaussien, par [F.R. Laughton, 1994]:

$$J = e\Omega\left(\frac{\alpha}{h\nu} I_m + \frac{\beta T_{laser}}{2\sqrt{\pi}h\nu\tau} {I_m}^2\right) \qquad \textbf{(A.31)}$$

avec J le photocourant généré, e la charge de l'électron ($1.6.10^{-19}$ C), Ω le volume dans lequel a lieu la génération, α le coefficient d'absorption linéaire, h la constante de Planck, ν la fréquence optique de l'onde considérée, I_m l'intensité moyenne du faisceau laser, β le coefficient d'absorption à deux photons, T_{laser} la période de répétition des impulsions laser, et τ la durée caractéristique de l'impulsion laser.

L'absorption à 3 photons fait intervenir la susceptibilité d'ordre 5 et n'est pas considérée ici. Il est important de remarquer que la génération de seconde harmonique (SHG) suivie d'une absorption linéaire participe également au photocourant généré. Celle-ci est possible au niveau de la maille primitive de GaAsP où l'isotropie du réseau cristallin disparaît. Même si l'isotropie du matériau à grande échelle empêche une génération efficace de SHG, celle-ci doit être considérée du fait de l'importance de la susceptibilité d'ordre deux par rapport à celle d'ordre trois. Cette SHG peut compter pour 1/6 du photocourant. Cependant elle est proportionnelle aux mêmes paramètres de faisceau, la différence s'effectuant uniquement au niveau du processus (susceptibilités d'ordres différents) [S. Santran, 2004]. Aussi on ne considère ici que le photocourant généré par TPA car il permet une idée du comportement du photocourant. La littérature actuelle ne considère pas d'autre effet pouvant générer un photocourant, comme un effet Raman, une automodulation de phase, un mélange à quatre ondes...

Ce photocourant est donné pour un profil d'intensité gaussien, qui est considéré comme une bonne approximation pour des calculs d'ordres de grandeur. On remarque qu'un coefficient d'absorption linéaire est présent. On suppose α = 0,15 m^{-1}, h = $6,64.10^{-34}$ J.s, ν ≈ 3.10^{14} Hz (@λ = 1 µm) et T_{laser}=$20,2.10^{-9}$ s.

On considère également β=2.10^{-10}m/W [E.W. Van Stryland, 1985, R. DeSalvo, 1993]. Cette valeur est une valeur moyenne car elle dépend du plan cristallographique attaqué par le faisceau laser et de la polarisation incidente. Cette valeur est une valeur issue de mesures sur le GaAs et est considérée comme correcte car le GaAsP est un semiconducteur où les atomes d'arsenic sont remplacés dans une certaine proportion, par les atomes de phosphore. Les deux semiconducteurs présentent par ailleurs le même groupe de symétrie. On obtient les expressions suivantes pour les termes d'absorption à 1 et 2 photons :

$$C_\alpha = {\alpha}/{h\nu} = 0,75.10^{18}.I_m \qquad C_\beta = {\beta T_{laser}}\Big/{2\sqrt{\pi}h\nu\tau} = 5,64.{I_m}^2/\tau, \qquad \textbf{(A.32/33)}$$

soit $\frac{C_\beta}{C_\alpha} = \mathbf{5,64.10^{-18}}\, {I_m}/{\tau}$, avec $I_m = P_m/S$, Pm étant la puissance moyenne du faisceau laser et S la surface définie par le diamètre du faisceau à la surface du semiconducteur.

Si on considère $P_m \approx 5$ mW, $\tau \approx 1$ ps (variant de 0.1 à 2 ps) et $\omega_0 \approx 5$ µm (variant de 4 à 6 µm), on obtient Im ≈ 6,6.10^7 W/m² et $\boldsymbol{C_\beta/C_\alpha \approx 376}$. Dans ces conditions on peut négliger l'absorption linéaire, ce qui est une approximation raisonnable au vu des mesures déjà effectuées [F.R. Laughton, 1994]. L'absorption linéaire étant négligée, il vient :

$$J = \frac{e\Omega}{T_{laser}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\beta}{2h\nu} I^2(t)\, dt = \frac{e\Omega}{T_{laser}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\beta}{2hc} \lambda I_c^2 exp\left(\frac{-4t^2}{\tau_p^2}\right) dt = \frac{e\Omega\beta\lambda}{2hcT_{laser}} I_c^2 \sqrt{\frac{\pi\tau^2}{4}} \qquad \textbf{(A.34)}$$

où la valeur d'une intégrale de Gauss suivante a été utilisée :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} exp(-\alpha t^2)\, dt = \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}} \qquad \textbf{(A.35)}$$

On écrit l'expression en fonction de l'intensité moyenne pour remonter à la puissance moyenne (avec p = profondeur de diffusion des photons, typiquement ≈ 1µm) :

$$J = \frac{ep\omega_0^2\beta\sqrt{\pi}T_{laser}}{2hc} \frac{\lambda {I_m}^2}{\tau} = \frac{ep\omega_0^2\beta\sqrt{\pi}T_{laser}}{2hc} \frac{\lambda}{\tau} \frac{{P_m}^2}{(\pi\omega_0^2)^2} = \frac{ep\beta T_{laser}}{2\pi\sqrt{\pi}hc\omega_0^2} \frac{\lambda {P_m}^2}{\tau} \qquad \textbf{(A.36)}$$

Finalement, il vient $J = \frac{\sqrt{\ln(2)}}{2\pi\sqrt{\pi}} \frac{ep\beta T_{laser}}{hc\omega_0^2} \frac{\lambda {P_m}^2}{T_{LMH}} = K \frac{\lambda {P_m}^2}{T_{LMH}}$ **(A.37)**

La réponse spectrale normalisée de la photodiode sera appliquée au calcul du courant créé pour tenir compte de la dépendance en énergie de ce courant. En effet bien qu'il soit connu que le coefficient d'absorption à 2 photons dépend de la structure de bande du semiconducteur et donc de la longueur d'onde [D.C. Hutchings, 1994], il est souvent mesuré pour un laser Nd:YAG (1064 nm) et donc pour une seule longueur d'onde. On obtient donc finalement :

$$J = \frac{\sqrt{\ln(2)}}{2\pi\sqrt{\pi}} \frac{ep\beta T_{laser}}{hc\omega_0^2} \eta_n \frac{\lambda {P_m}^2}{T_{LMH}} = K\eta_n \frac{\lambda {P_m}^2}{T_{LMH}} \qquad \textbf{(A.38)}$$

A4. Caractéristiques de la photodiode de synchronisation "fine"

Données fournisseur : modèle G1116 de Hamamatsu

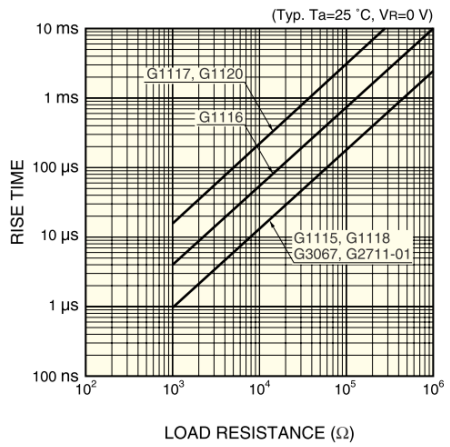
■ General ratings / Absolute maximum ratings

Type No.	Dimensional outline/ Window material *	Package	Active area size (mm)	Effective active area (mm^2)	Absolute maximum ratings: Reverse voltage V_R Max. (V)	Operating temperature Topr (°C)	Storage temperature Tstg (°C)
G1115	①/K	TO-18	1.3 × 1.3	1.66			
G1116	②/K	TO-5	2.7 × 2.7	7.26			
G1117	③/K	TO-8	5.6 × 5.6	29.3			
G1118	④/R	Ceramic	1.3 × 1.3	1.66	5	-30 to +80	-40 to +85

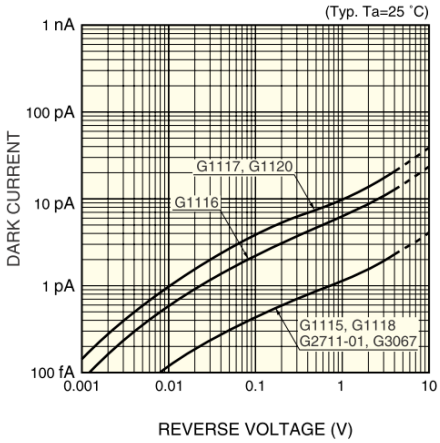
■ Electrical and optical characteristics (Typ. Ta=25 °C, unless otherwise noted)

Type No.	Spectral response range λ (nm)	Peak sensitivity wavelength λp (nm)	Photo sensitivity S (A/W): λp	GaP LED 560 nm	He-Ne laser 633 nm	Short circuit current Isc 100 lx: Min. (μA)	Typ. (μA)	Dark current ID Max.: VR=10 mV (pA)	VR=1 V (pA)	Temp. coefficient of ID TCID (times/°C)	Rise time tr VR=0 V RL=1 kΩ (μs)	Terminal capacitance Ct VR=0 V f=10 kHz (pF)	Shunt resistance Rsh VR=10 mV: Min. (GΩ)	Typ. (GΩ)	NEP ($W/Hz^{1/2}$)
G1115						0.12	0.15	1	10		1	300	10	80	1.5×10^{-15}
G1116						0.45	0.6	2.5	25		4	1400	4	30	2.5×10^{-15}

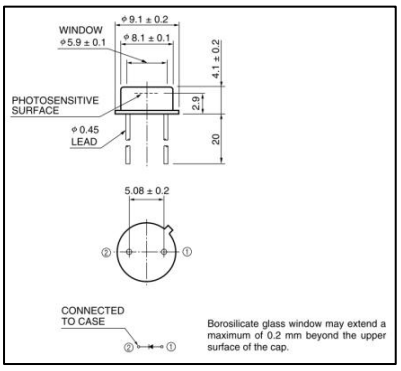
■ Rise time vs. load resistance



■ Dark current vs. reverse voltage



KGPDB0021EA



KGPDB0022EA

Figure A4-1 : Caractéristiques fournisseur.

Schéma électrique de mise en œuvre

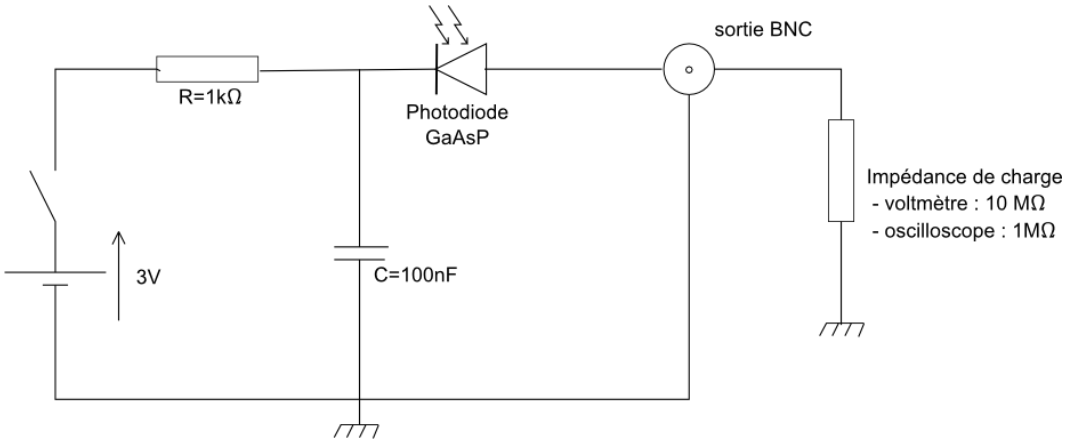


Figure A4-2 : Circuit électronique de mise en œuvre de la photodiode.

Le montage est intégré dans un boitier aluminium peint pour une bonne protection et une isolation électrique. Le capot de la photodiode étant au potentiel positif, il faut l'isoler du boitier. Le temps de montée est défini par

$$\tau_R = 2.2 * C_t * R_{load} \qquad \textbf{(A.41)}$$

avec C_t la capacité de la jonction de la photodiode (1400 pF) et R_{load} la résistance de charge (1 MΩ pour l'oscilloscope). On aboutit à un temps de montée de 3,1 ms. Le temps de montée constructeur pour la même résistance de charge qui est de 10 ms sans tension de polarisation. On détermine donc $\boldsymbol{\tau_R \approx 5\ ms}$, soit un temps intermédiaire entre le calcul et la donnée constructeur.

A5. Spectres Raman spontané des échantillons analysés

Ces spectres proviennent du site web suivant [AIST, 2012] : Spectral Database for Organic Compounds, éditée par l'Institut National des Sciences et Technologies industrielles Avancées du Japon (ou AIST).

Spectre de l'eau

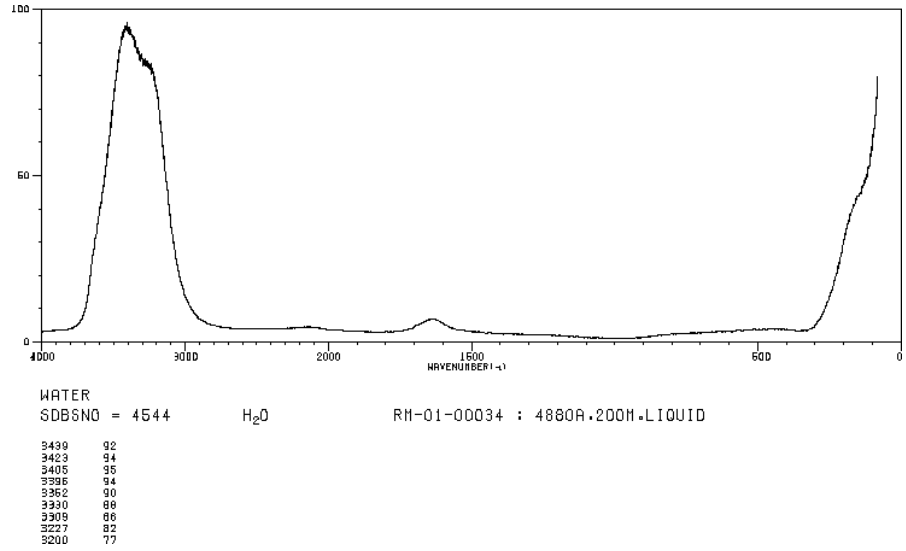


Figure A5-1 : Spectre Raman spontané de l'eau.

Spectre du méthanol

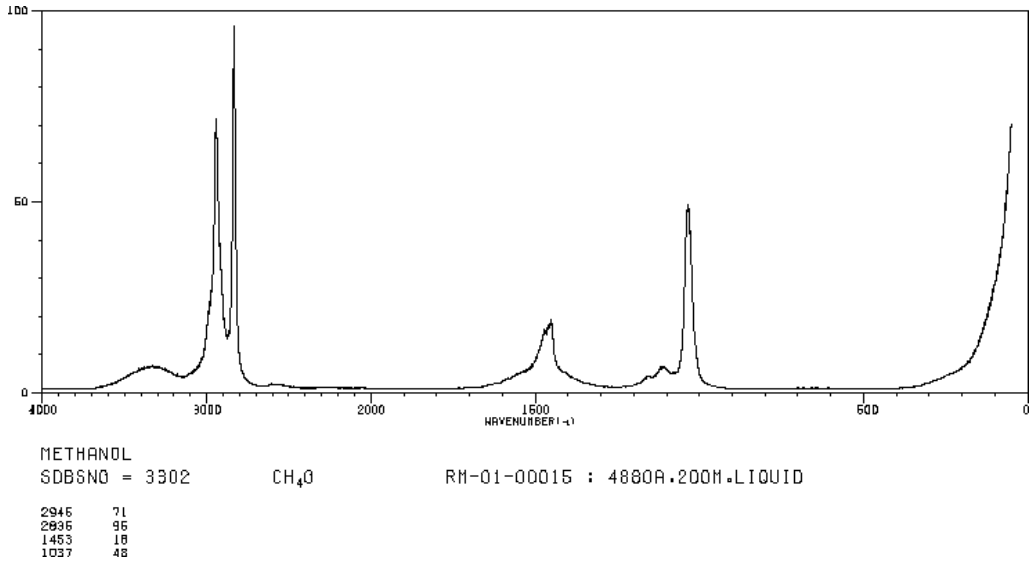
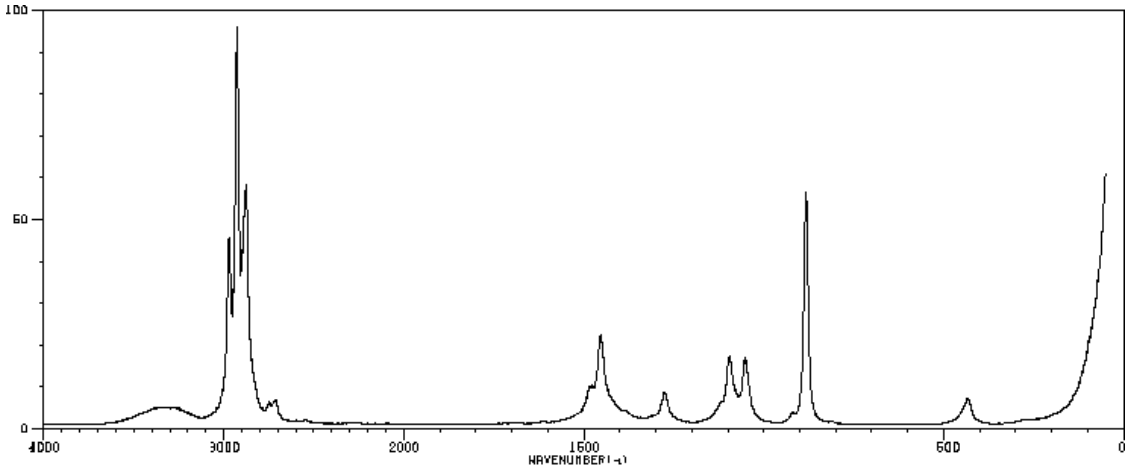


Figure A5-2 : Spectre Raman spontané du méthanol.

Spectre de l'éthanol

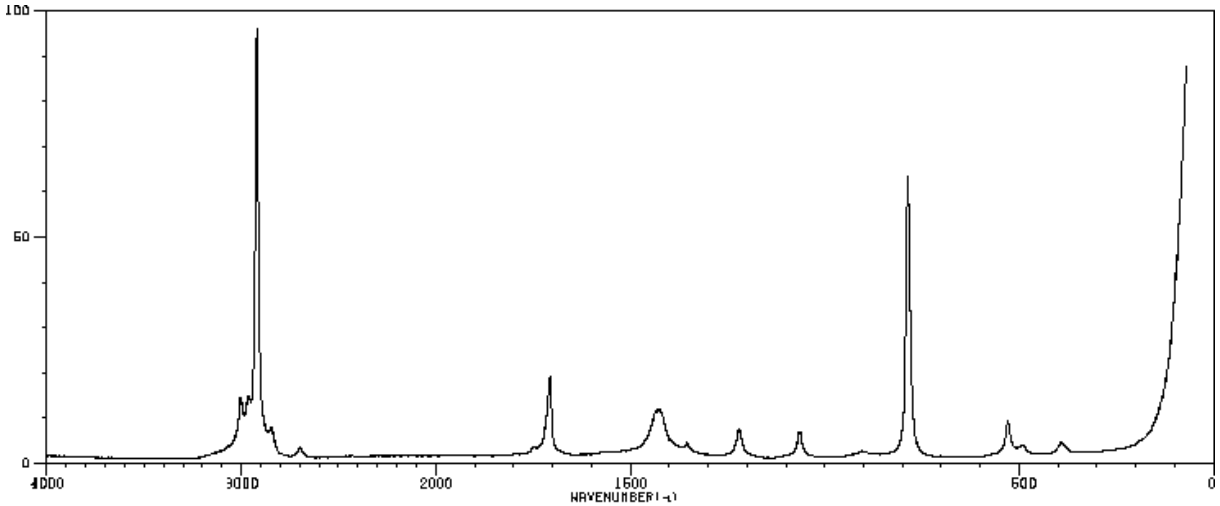


ETHYL ALCOHOL
SDBSNO = 1300 C_2H_6O RM-01-00016 : 488OA.200M.LIQUID

2973	45
2927	95
2676	57
1455	22
1097	16
1053	16
884	55

Figure A5-3 : Spectre Raman spontané de l'éthanol.

Spectre de l'acétone

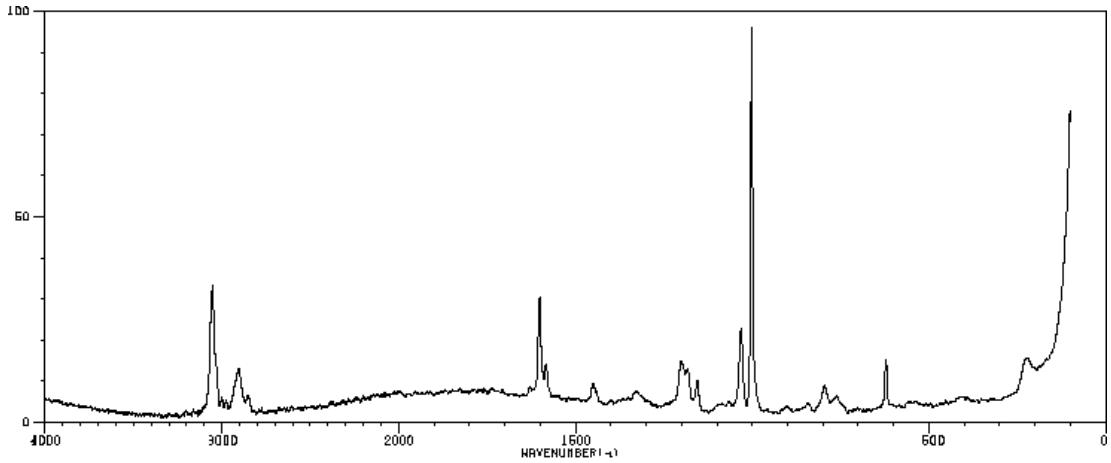


ACETONE
SDBSNO = 319 C_3H_6O RM-01-00011 : 488OA.100M.LIQUID

2921	94
1708	18
787	83

Figure A5-4 : Spectre Raman spontané de l'acétone.

Spectre du polystyrène



POLYSTYRENE
SDBSNO = 1957 (C_8H_8) RM-01-00002 : 4579A.200M.GRAIN(NBS 706)

3066	33
1603	30
1585	13
1185	12
1157	10
1034	22
1003	94
623	14

Figure A5-5 : Spectre Raman spontané du polystyrène.

Bibliographie

[an2, 1976] (1976). Understanding and measuring phase noise in the frequency domain. Application Note 207, Hewlett Packard.

[an1, 2006] (2006). Spectrum analysis basics. Application Note 150, Agilent Technologies.

[A. A. Ivanov, 2006] A. A. Ivanov, A.A. Podshivalov, A. Z. (2006). Frequency-shifted megawatt soliton output of a hollow photonic-crystal fiber for time-resolved coherent anti-stokes Raman scattering microspectroscopy. *Optics Letters*, 31(22):3318–3320.

[A. A. Lanin, 2012] A. A. LaninIvanov, A.B. Fedotov, A. M. Z. (2012). Broadly wavelength- and pulse width-tunable high-repetition rate light pulses from soliton self-frequency shifting photonic crystal fiber integrated with a frequency doubling crystal. *Optics Letters*, 37(17):3618–3620.

[A. Bétourné, 2009] A. Bétourné, A. Kudlinski, G. B. O. V. A. M. Y. Q. (2009). Control of supercontinuum generation and soliton self-frequency shift in solid-core photonic bandgap fibers. *Optics Letters*, 34(20):3083–3085.

[A. Cerqueira S. Jr., 2006] A. Cerqueira S. Jr., F. Luan, C. M. B. C. A. K. G. J. C. K. (2006). Hybrid photonic crystal fiber. *Optics Express*, 14(2):926–931.

[A. Efimov, 2004] A. Efimov, A.J. Taylor, F. O. E. V. (2004). Adaptive control of femtosecond soliton self-frequency shift in fibers. *Optics Letters*, 29(3):271–273.

[A. Finch, 1990] A. Finch, X. Zhu, P. K. W. S. (1990). Noise characterization of mode-locked color-center laser sources. *Journal of Quantum Electronics*, 26(6):1115–1123.

[A. Hasegawa, 1973] A. Hasegawa, F. T. (1973). Transmission of stationary nonlinear optical pulses in dispersive dielectric fibers. i. anomalous dispersion. *Applied Physics Letters*, 23(3):142–144.

[A. Hassani, 2006] A. Hassani, M. S. (2006). Design of the microstructured optical fiber-based surface plasmon resonance sensors with enhanced microfluidics. *Optics Express*, 14(24):11616–11621.

[A. Kowalevicz, 2002] A. Kowalevicz, T. Ko, I. H. J. F. M. P. R. S. (2002). Ultrahigh resolution optical coherence tomography using a superluminescent light source. *Optics Express*, 10(7):349–353.

[A. Mussot, 2009] A. Mussot, A. Kudlinski, M. K. E. L. M. D. M. T. (2009). Observation of extreme temporal events?in cw-pumped supercontinuum. *Optics Express*, 17(19):17010–17015.

[A. Ortigosa-Blanch, 2002] A. Ortigosa-Blanch, J.C. Knight, P. R. (2002). Pulse breaking and supercontinuum generation with 200-fs pump pulses in photonic crystal fibers. *Journal of the Optical Society of America B*, 19(11):2567–2572.

[A. Podlipensky, 2007] A. Podlipensky, P. Szarniak, N. J. C. P. P. S. R. (2007). Bound soliton pairs in photonic crystal fiber. *Optics Express*, 15(4):1653–1662.

[A. S. Dekker, 2011] A. S. Dekker, A. C. Judge, R. P. L. G.-S. J. K. C. d. S. B. E. (2011). Highly-efficient, octave spanning soliton self-frequency shift using a specialized photonic crystal fiber with low oh loss. *Optics Express*, 19(18):17766–17773.

[A. Volkmer, 2001] A. Volkmer, J.-X. Cheng, X. X. (2001). Vibrational imaging with high sensitivity via epidetected coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Physical Review Letters*, 87(2):023901–1/3.

[A. Volkmer, 2002] A. Volkmer, L.D. Book, X. X. (2002). Time-resolved coherent anti-stokes Raman scattering microscopy: Imaging based on Raman free induction decay. *Applied Physics Letters*, 80(9):1505–1508.

[A. Zumbusch, 1999] A. Zumbusch, G. R. Holtom, X.-S. X. (1999). Three-dimensional vibrational imaging by coherent anti-stokes Raman scattering. *Physics Review Letters*, 82:4142–4145.

[A.B. Fedotov, 2009a] A.B. Fedotov, A.A. Voronin, I. F.-A. I. A. Z. (2009a). Powerful wavelength-tunable ultrashort solitons in a solid-core photonic-crystal fiber. *Optics Letters*, 34(6):851–853.

[A.B. Fedotov, 2009b] A.B. Fedotov, A.A. Voronin, I. F.-A. I. A. Z. (2009b). Spectral compression of frequency-shifting solitons in a photonic-crystal fiber. *Optics Letters*, 34(5):662–664.

[A.B. Shafer, 1964] A.B. Shafer, L.R. Megill, L. D. (1964). Optimization of the czerny-turner spectrometer. *Journal of the Optical Society America*, 54(7):879–886.

[A.C. Judge, 2009] A.C. Judge, O. Bang, B. E.-B. K. E. M.-R. P. C. d. S. (2009). Optimization of the soliton self-frequency shift in a tapered photonic crystal fiber. *Journal of the Optical Society of America B*, 26(11):2064–2071.

[A.C. Judge, 2010] A.C. Judge, S.A. Dekker, R. P.-C. d. S. B. E. (2010). Soliton self-frequency shift performance in as_2s_3 waveguides. *Optics Express*, 18(14):14960–14968.

[A.F. Pegoraro, 2009a] A.F. Pegoraro, A. Ridsdale, D. M.-J. P. B. T. L. F. L. D. M. F. A. S. (2009a). All-fiber cars microscopy of live cells. *Optics Express*, 17(23):20700–20706.

[A.F. Pegoraro, 2009b] A.F. Pegoraro, A. Ridsdale, D. M.-Y. J. J. P. A. S. (2009b). Optimally chirped multimodal cars microscopy based on a single ti:sapphireoscillator. *Optics Express*, 17(4):2984–2996.

[Agrawal, 2001] Agrawal, G. (2001). *Applications of Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press (Elsevier).

[Agrawal, 2007] Agrawal, G. (2007). *Nonlinear Fiber Optics, Fourth Edition*. Academic Press (Elsevier).

[AIST, 2012] National Institute of Advanced Industrial Science (AIST). (2012). Spectral database for organic compounds. http://riodb01.ibase.aist.go.jp/sdbs/cgi-bin/direct_frame_top.cgi

[A.M. Al-Kadry, 2012] A.M. Al-Kadry, M. R. (2012). Mid-infrared sources based on the soliton self-frequency shift. *Journal of the Optical Society of America B*, 29(6):1347–1355.

[Armstrong, 1967] Armstrong, J. (1967). Measurement of picosecond laser pulse widths. *Applied Physics Letters*, 10(1):16–18.

[Asch, 1991] Asch, G. (1991). *Les capteurs en instrumentation industrielle*. Dunod, 4 edition.

[Aït-Slimane, 2008] Aït-Slimane, T. (2008). Principe physique de la fluorescence. Cours. Université Pierre et Marie Curie. http://www.edu.upmc.fr/sdv/docs_sdvbmc/Master/ue/MV426/fluo89.pdf

[B. Barviau, 2011] B. Barviau, O. Vanvincq, A. M.-Y. Q. G. M. A. K. (2011). Enhanced soliton self-frequency shift and cw supercontinuum generation in geo2-doped core photonic crystal fibers. *Journal of the Optical Society of America B*, 28(5):1152–1160.

[B. Bouma, 1995] B. Bouma, G. J. Tearney, S. A. B. M. R. H. M. E. B. J. G. F. (1995). High-resolution optical coherence tomographic imaging using a mode-locked ti:al2o3 laser source. *Optics Letters*, 20(13):1486–1488.

[B. Ferguson, 2002] B. Ferguson, X.-C. Z. (2002). Materials for terahertz science and technology. *Nature Materials*, 1(1):26–33.

[B. Kibler, 2008] B. Kibler, C. Finot, G. G. G. M. J. W. M. S. W. U. (2008). Second zero dispersion wavelength measurement through soliton self-frequency shift compensation in suspended core fibre. *Electronics Letters*, 44(23):1370–1371.

[B. von Vacano, 2006] B. von Vacano, W. Wohlleben, M. M. (2006). Actively shaped supercontinuum from a photonic crystal fiber for nonlinear coherent microspectroscopy. *Optics Letters*, 31(3):413–415.

[Bachelet, 2011] Bachelet, R. (2011). Cours d'analyse fonctionnelle. *Ecole Centrale de Lille*.

[B.G. Saar, 2011] B.G. Saar, R.S. Johnston, C. F. X. X. E. S. (2011). Coherent Raman scanning fiber endoscopy. *Optics Letters*, 36(13):2396–2398.

[B.H. Chapman, 2010] B.H. Chapman, J.C. Travers, S. P. A. M. A. K. (2010). Long wavelength extension of cw-pumped supercontinuum throughsoliton-dispersive wave interactions. *Optics Express*, 18(24):24729–24734.

[Bjorklund, 1975] Bjorklund, G. (1975). Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media. *Journal of Quantum Electronics*, 11(6):287–296.

[Boyd, 2008] Boyd, R. (2008). *Nonlinear Optics, Third Edition*. Academic Press (Elsevier).

[B.R. Washburn, 2001] B.R. Washburn, S.E. Ralph, P. L. J. D. W. R. R. W. S. C. (2001). Tunable near-infrared femtosecond soliton generation in photonic crystal fibres. *Electronics Letters*, 37(25):1510–1512.

[B.R. Washburn, 2000] B.R. Washburn, J.A. Buck, S. R. (2000). Transform-limited spectral compression due to self-phase modulation in fibers. *Optics Letters*, 25(7):445–447.

[Brasselet, 2011] Brasselet, S. (2011). Polarization-resolved nonlinear microscopy: application to structural molecular and biological imaging. *Advances in Optics and Photonics*, 3:205–271.

[C. Dorrer, 2003] C. Dorrer, D. C. Kilper, H. R. S. G. R. M. R. (2003). Linear optical sampling. *Photonics Technology Letters*, 15(12):1746–1748.

[C. Finot, 2010] C. Finot, J. F. (2010). All-optical fiber-based ultrafast amplitude jitter magnifier. *Opt. Express*, 18(18):18697–18702.

[C. Finot, 2011] C. Finot, J. F. (2011). Device and method for processing an optical signal, brevet WO 2011/121213 a1.

[C. Finot, 2007] C. Finot, A. Guenot, P. D. (2007). Apport des similaritons optiques à la recompression spectrale dans une fibre optique. *COlloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ)*.

[C. Finot, 2006] C. Finot, F. Parmigiani, P. P. D. J. R. (2006). Parabolic pulse evolution in normally dispersive fiber amplifiers preceding the similariton formation regime. *Optics Express*, 14(8):3161–3170.

[C. Krafft, 2012] C. Krafft, B. Dietzek, M. S. J. P. (2012). Raman and coherent anti-stokes Raman scattering microspectroscopy for biomedical applications. *Journal of Biomedical Optics*, 17(4):040801–1/15.

[C. Lefort, 2010] C. Lefort, T. Mansuryan, F. L. A. B. (2010). Acheminement d'impulsions femtoseconde par fibre optique standard. *Résumés des Journées Nationales d'optique Guidée (JNOG)*.

[C. Palmer, 2005] C. Palmer, E. L. (2005). *Diffraction grating handbook*. Newport Corporation.

[Cerqueira, 2010] Cerqueira, A. (2010). Recent progress and novel applications of photonic crystal fibers. *Reports on Progress in Physics*, 73:024401–1/21.

[Chanteloup, 1998] Chanteloup, J.-C. (1998). *Contrôle et mise en forme des fronts de phase et d'énergie d'impulsions laser brèves ultra-intenses*. PhD thesis, Physique, Ecole Polytechnique.

[C.L. Evans, 2005] C.L. Evans, E.O. Potma, M. P. D. C. C. L. X. X. (2005). Chemical imaging of tissue in vivo with video-rate coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 102(46):16807–16812.

[C.L. Evans, 2004] C.L. Evans, E.O. Potma, X. X. (2004). Coherent anti-stokes Raman scattering spectral interferometry: determinationof the real and imaginary components of nonlinear susceptibility $\chi(3)$ for vibrationalmicroscopy. *Optics Letters*, 29(24):2923–2925.

[C.M.B. Cordeiro, 2006] C.M.B. Cordeiro, E.M. dos Santos, C. B. C. C. d. M. D. F. (2006). Lateral access to the holes of photonic crystal fibers - selective filling and sensing applications. *Optics Express*, 14(18):8403–8412.

[Corning, 2012] Corning (2012). Corning smf-28 optical fiber, product information.

[Cotel, 2007] Cotel, A. (2007). *Réseaux de diffraction à multicouches diélectriques pour la compression d'impulsions laser Petawatt par mosaïques de réseaux.* PhD thesis, Optique et Physique des Laser, Ecole Polytechnique.

[C.S. Ponseca Jr., 2008] C.S. Ponseca Jr., R. Pobre, E. E. N. S. A. A. M. L. M. v. E. (2008). Transmission of terahertz radiation using a microstructured polymer optical fiber. *Optics Letters*, 33(9):902–904.

[C.W. Freudiger, 2008] C.W. Freudiger, W. Min, B. S. S. L. G. H. C. H. J. T. J. K. X. X. (2008). Label-free biomedical imaging with high sensitivity by stimulated Raman scattering microscopy. *Science*, 322(5909):1857–1861.

[C.W. Freudiger, 2011] C.W. Freudiger, W. Min, G. H. B. X. M. D. X. X. (2011). Highly specific label-free molecular imaging with spectrally tailored excitation-stimulated Raman scattering (ste-srs) microscopy. *Nature Photonics*, 5:103–109.

[D. A. Chestnut, 2003] D. A. Chestnut, J. R. T. (2003). Soliton self-frequency shift in highly nonlinear fiber with extension by external Raman pumping. *Optics Letters*, 28(24):2512–2514.

[D. Huang, 1991] D. Huang, E.A. Swanson, C. L. J. S. W. S. W. C. M. H. T. F. K. G.-C. P. J. F. (1991). Optical coherence tomography. *Science*, 254(5035):1178–1181.

[D.-I. Yeom, 2008] D.-I. Yeom, E.C. Mägi, M. L. M. R. L. F. B. E. (2008). Low-threshold supercontinuum generation in highly nonlinear chalcogenide nanowires. *Optics Letters*, 33(7):660–662.

[D. Kobat, 2011] D. Kobat, N.G. Horton, C. X. (2011). *In vivo* two-photon microscopy to 1.6-mm depth in mouse cortex. *Journal of Biomedical Optics*, 16(10):106014 1-4.

[D. Strickland, 1985] D. Strickland, G. M. (1985). Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3):219–221.

[D. V. Skryabin, 2003] D. V. Skryabin, F. Luan, J. C. K. P. S. J. R. (2003). Soliton self-frequency shift cancellation in photonic crystal fibers. *Science*, 301:1705–1708.

[D.A. Sidorov-Biryukov, 2008]D.A. Sidorov-Biryukov, A. Fernandez, L. Z. A. P. E. S. A. B. A. M. Z. (2008). Spectral narrowing of chirp-free light pulses in anomalously dispersive, highly nonlinear photonic-crystal fibers. *Optics Express*, 16(4):2502–2507.

[D.C. Hutchings, 1994] D.C. Hutchings, B. W. (1994). Theory of anisotropy of two-photon absorption in zinc-blende semiconductors. *Physical Review B*, 49(4):2418–2427.

[AFNOR, 2000] Agence Française de normalisation (AFNOR), A. F. (2000). Management par la valeur et analyse fonctionnelle - afnor x50h. NF-EN-12973:2000-06.

[CNAM, 2000] Conservatoire des Arts et Métiers (CNAM), C. N. (2000). La fibre optique, cours b11 - transmission des telecommunications - partie 2 - chapitre 5.

[D.G. Ouzounov, 2003] D.G. Ouzounov, F.R. Ahmad, D. M. N. V. M. G. M. T. J. S. K. K. A. G. (2003). Generation of megawatt optical solitons in hollow-core photonic band-gap fibers. *Science*, 301:1702–1704.

[Djaker-Oudjhara, 2006] Djaker-Oudjhara, N. (2006). *Microscopie par diffusion cohérente Raman CARS : Application à l'imagerie des milieux biologiques*. PhD thesis, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, Spécialité : Optique électromagnétique et image. Ecole Doctorale : Physique et Sciences de la Matière.

[D.M. Gaudiosi, 2004] D.M. Gaudiosi, A.L. Lytle, P. K. M. M. H. K. S. B. (2004). 11-w average power ti:sapphire amplifier system using downchirpedpulse amplification. *Optics Letters*, 29(22):2665–2667.

[J.M. Dudley, 2008] Dudley, J. M. and Goery Genty, B. E. (2008). Harnessing and control of optical rogue waves insupercontinuum generation. *Optics Express*, 16(6):3644–3651.

[D.W. Hahn, 2010] D.W. Hahn, N. O. (2010). Laser-induced breakdown spectroscopy (libs), part i: Review of basic diagnostics and plasma–particle interactions: Still-challenging issues within the analytical plasma community. *Applied Spectroscopy*, 64(12):335A–366A.

[E. A. Swanson, 1993] E. A. Swanson, J. A. Izatt, M. R. H. D. H. C. P. L. J. S. S. C. A. P. J. G. F. (1993). In vivo retinal imaging by optical coherence tomography. *Optics Letters*, 18(21):1864–1866.

[E. Ploetz, 2007] E. Ploetz, S. Laimgruber, S. B. W. Z. P. G. (2007). Femtosecond stimulated Raman microscopy. *Applied Physics B*, 87:389–393.

[El-Diasty, 2010] El-Diasty, F. (2010). Coherent anti-stokes Raman scattering: Spectroscopy and microscopy. *Vibrationnal spectroscopy*, 55:1–37.

[E.M. Dianov, 1985] E.M. Dianov, A.Ya. Karasik, P. M. A. P. V. S. M. S. A. F. (1985). Stimulated Raman conversion of multi-soliton pulses in quartz optical fibers. *JETP Letters*, 41(6):294–297.

[E.O. Potma, 2006]E.O. Potma, C.L. Evans, X. X. (2006). Heterodyne coherent anti-stokes Raman scattering (cars) imaging. *Optics Letters*, 31(2):241–243.

[E.R. Andresen, 2007a] E.R. Andresen (2007). *Fiber-based Implementations of Coherent anti-Stokes Raman Scattering Microspectroscopy and Microscopy*. PhD thesis, Department of Physics and Astronomy, University of Aarhus, Denmark.

[E.R. Andresen, 2011a] E.R. Andresen, J.M. Dudley, D. O. C. F. H. R. (2011a). Transform-limited spectral compression by self-phase modulation of amplitude-shaped pulses with negative chirp. *Optics Letters*, 36(5):707–709.

[E.R. Andresen, 2011b] E.R. Andresen, P. Berto, H. R. (2011b). Stimulated Raman scattering microscopy by spectral focusing and fiber-generated soliton as stokes pulse. *Optics Letters*, 36(13):2387–2389.

[E.R. Andresen, 2007] E.R. Andresen, C.K. Nielsen, J. T. S. K. (2007). Fiber laser-based light source for coherent anti-stokes Raman scattering microspectroscopy. *Optics Express*, 15(8):4848–4856.

[E.R. Andresen, 2006] E.R. Andresen, V. Birkedal, J. T. S. K. (2006). Tunable light source for coherent anti-stokes Raman scattering microspectroscopy based on the soliton self-frequency shift. *Optics Letters*, 31(9):1328–1330.

[E.R. Andresen, 2005a] E.R. Andresen, J. Thøgersen, S. K. (2005a). Spectral compression of femtosecond pulses in photonic crystal fibers. *Optics Letters*, 30(15):2025–2027.

[E.R. Andresen, 2005b] E.R. Andresen, H.N. Paulsen, V. B. J. T. S. K. (2005b). Broadband multiplex coherent anti-stokes Raman scattering microscopy employing photonic-crystal fibers. *Journal of the Optical Society of America B*, 22(9):1934–1938.

[E.R. Andresen, 2006a] E.R. Andresen, S.R. Keiding, E. O. P. (2006). Picosecond anti-Stokes generation in a photonic-crystal fiber for interferometric CARS microscopy. *Optics Express*, 14(16):7246-7251.

[Erdogan, 1997] Erdogan, T. (1997). Fiber grating spectra. *journal of Lightwave Technology*, 15(8):1277–1294.

[E.W. Van Stryland, 1985] E.W. Van Stryland, M.A. Woodall, H. V. M. S. (1985). Energy band-gap dependence of two-photon absorption. *Optics Letters*, 10(10):490–492.

[F. Benabid, 2005] F. Benabid, F. Couny, J. K. T. B. P. J. R. (2005). Compact, stable and efficient all-fibre gas cells using hollow-core photonic crystal fibres. *Nature*, 434:488–491.

[F. Bilodeau, 1994] F. Bilodeau, K.O. Hill, B. M. D. J. J. A. (1994). High-return-loss narrowband all-fiber bandpass bragg transmission filter. *Photonics Technology Letters*, 6(1):80–82.

[F. Gires, 1964] F. Gires, P. T. (1964). Interféromètre utilisable pour la compression d'impulsions lumineuses modulées en fréquence. *Comptes-Rendus de l'Académie des Sciences*, 258:6112–6115.

[F. Luan, 2006] F. Luan, D. V. Skryabin, A. V. Y. J. C. K. (2006). Energy exchange between colliding solitons in photonic crystal fibers. *Optics Express*, 14(21):9844–9853.

[F. M. Mitschke, 1986] F. M. Mitschke, L. F. M. (1986). Discovery of the soliton self-frequency shift. *Optics Letters*, 11(10):659–661.

[Falco, 2012] Falco (2012). Site web de la plateforme. *Falco Systems*. http://www.falco-systems.com/high_voltage_amplifiers.html

[Finot, 2005] Finot, C. (2005). *Similaritons dans les amplificateurs Raman à fibre optique*. PhD thesis, Ecole Doctorale Carnot.

[F.R. Laughton, 1994] F.R. Laughton, J.H. Marsh, D. B. E. P. (1994). The two-photon absorption semiconductor waveguide autocorrelator. *Journal of Quantum Electronics*, 30(3):838–845.

[Fuss, 1994] Fuss, I. (1994). An interpretation of the spectral measurement of optical pulse train noise. *Journal of Quantum Electronics*, 30(11):2707–2710.

[G. Bergner, 2011] G. Bergner, D. Akimov, S. S. H. B. B. D. J. P. (2011). Tunable optical setup with high flexibility for spectrally resolved coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Laser Physics Letters*.

[G. Imeshev, 2004] G. Imeshev, I. Hartl, M. F. (2004). Chirped pulse amplification with a nonlinearly chirped fiber bragggrating matched to the treacy compressor. *Optics Letters*, 29(7):679–681.

[Gachet, 2007] Gachet, D. (2007). *Microscopie CARS (Coherent anti-Stokes Raman scattering). Génération du signal au voisinage d'interfaces et à l'intérieur d'une cavité Fabry-Perot.* PhD thesis, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, Spécialité : Optique électromagnétique et image. Ecole Doctorale : Physique et Sciences de la Matière.

[Gaeta, 2002] Gaeta, A. (2002). Nonlinear propagation and continuum generation in microstructured optical fibers. *Optics Letters*, 27(11):924–926.

[G.I. Petrov, 2005] G.I. Petrov, V. Y. (2005). Enhancing red-shifted white-light continuum generation in optical fibers for applications in nonlinear Raman microscopy. *Optics Express*, 13(4):1299–1306.

[Gordon, 1986] Gordon, J. (1986). Theory of the soliton self-frequency shift. *Optics Letters*, 11(10):662–664.

[Gouveia-Neto, 1992] Gouveia-Neto, A. (1992). Modulation instability and soliton-Raman generation in p2o5 doped silica fiber. *Journal of Lightwave Technology*, 10(11):1536–1539.

[Gowar, 1993] Gowar, J. (1993). *Optical communication systems, 2nd Edition*. Pearson Education.

[Gross, 2003] Gross, M. (2003). *High-Rate, Short Pulses Sources : Jitter and Pedestal Level in Optical Time-Division Multiplexing*. PhD thesis, School of Electrical and Computer Engineering, Georgia Institute of Technology.

[G.S. Qin, 2011] G.S. Qin, X. Yan, C. K. M. L. T. S. A. M. Y. O. (2011). Widely tunable narrowband soliton source generation in tellurite microstructured fibers. *Laser Physics*, 21(8):1404–1409.

[Guiot, 2001] Guiot, E. (2001). *Microscopie de fluorescence sous excitation à deux photons : applications à des études de corrélations et de déclins de fluorescence en milieu biologique*. PhD thesis, Université Paris XI, UFR Scientifique d'Orsay.

[H. Chen, 2009] H. Chen, H. Wang, M. S. Y. J. Y. S. J. Z. K. B. J.-X. C. (2009). A multimodal platform for nonlinear optical microscopy and microspectroscopy. *Optics Express*, 17(3):1282–1290.

[H. Ebendorff-Heidepriem, 2004] H. Ebendorff-Heidepriem, P. Petropoulos, S. A. V. F. R. M. K. F. F. K.-D. R. T. M. (2004). Bismuth glass holey fibers with high nonlinearity. *Optics Express*, 12(21):5082–5087.

[H. Hatami-Hanza, 1997] H. Hatami-Hanza, J. Hong, A. A. P. M. J. C. (1997). Demonstration of all-optical demultiplexing of a multilevel soliton signal employing soliton decomposition and self-frequency shift. *Photonics Technology Letters*, 9(6):833–835.

[H. Kano, 2005] H. Kano, H. H. (2005). Ultrabroadband (>2500 cm −1) multiplex coherent anti-stokes Raman scattering microspectroscopy using a supercontinuum generated from a photonic crystal fiber. *Applied Physics Letters*, 86:121213/1–3.

[H.-P. Chuang, 2011] H.-P. Chuang, C.-B. H. (2011). Wavelength-tunable spectral compression in a dispersion-increasing fiber. *Optics Letters*, 36(15):2848–2850.

[H.-P. Chuang, 2012] H.-P. Chuang, C.-B. H. (2012). Large-scale laser spectral compression using a true dispersion-increasing fiber. In OSA, editor, *Conference Paper, Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS)*.

[H. Rigneault, 2005] H. Rigneault, J.-M. Lourtioz, C. D. A. L. (2005). *La nanophotonique*. Collection scientifique et technique des télécommunications, Lavoisier

[H. Segawa, 2012] H. Segawa, M. Okuno, H. K. P. L. V. C. H. H. (2012). Label-free tetra-modal molecular imaging of living cells with CARS, SHG, THG and TSFG (coherent anti-stokes Raman scattering, second harmonic generation, third harmonic generation and third-order sum frequency generation). *Optics Express*, 20(9):9551–9557.

[H. Wang, 2005] H. Wang, Y. Fu, P. Z. R. S. J.-X. C. (2005). Coherent anti-stokes Raman scattering imaging of axonal myelin in live spinal tissues. *Biophysical Journal*, 89(1):581–591.

[H.A . Haus, 1993] H.A . Haus, A. M. (1993). Noise of mode-loked lasers. *Journal of Quantum Electronics*, 29(3):983–996.

[H.A. Rinia, 2006] H.A. Rinia, M. Bonn, E. V. C. S. M. M. (2006). Spectroscopic analysis of the oxygenation state of hemoglobin using coherent anti-stokes Raman scattering. *Journal of Biomedical Optics Letters*, 11(5):050502–1/3.

[H.A. Rinia, 2007] H.A. Rinia, M. Bonn, M. M. E. V. (2007). Quantitative cars spectroscopy using the maximum entropy method: the main lipid phase transition. *ChemPhysChem*, 8(2):279–287.

[Hammani, 2011] Hammani, K. (2011). *Ondes scélérates et statistiques extrêmes dans les systèmes optiques fibrés*. PhD thesis, Université de Bourgogne.

[H.N. Paulsen, 2003] H.N. Paulsen, K.M. Hilligsoe, J. T. S. K. J. L. (2003). Coherent anti-stokes Raman scattering microscopy with a photonic crystal fiber based light source. *Optics Letters*, 28(13):1123–1125.

[I. Hartl, 2001] I. Hartl, X.D. Li, C. C. R. G. T. K. J. F. (2001). Ultrahigh-resolution optical coherence tomography using continuum generation in an air–silica microstructure optical fiber. *Optics Letters*, 26(9):608–610.

[I.G. Cormack, 2002] I.G. Cormack, D.T. Ried, W. W. J. K. P. S. J. R. (2002). Observation of soliton self-frequency shift in photonic crystal fibre. *Electronics Letters*, 38(4):167–169.

[I.M. Vellekoop, 2007] I.M. Vellekoop, A. M. (2007). Focusing coherent light through opaque strongly scattering media. *Optics Letters*, 32(16):2309–2311.

[INRS, 2012] Institut national de recherche et de sécurité pour la prévention des accidents du travail et des maladies professionnelles (INRS) (2012). Fiche toxicologique du toluène. INRS website. http://www.inrs.fr/

[J. Fatome, 2012] J. Fatome, B. Kibler, E. A. H. R. C. F. (2012). All-fiber spectral compression of picosecond pulses at telecommunication wavelength enhanced by amplitude shaping. *Applied Optics*.

[J. Fatome, 2008] J. Fatome, J. Garnier, S. P. M. P. G. M. M. G. B. C. L. B. J.-C. S. (2008). All-optical measurements of background, amplitude, and timing jitters for high speed pulse trains or prbs sequences using autocorrelation function. *Optical Fiber Technology*, 14:84–91.

[J. Herrmann, 1994] J. Herrmann, A. N. (1994). Soliton self-frequency shift for pulses with a duration less than the period of molecular oscillations. *Optics Letters*, 19(24):2065–2067.

[J. Kuhl, 1986] J. Kuhl, J. H. (1986). Compression of femtosecond optical pulses with dielectric multilayer interferometers. *Journal of Quantum Electronics*, 22(1):182–185.

[J.-L. Auguste, 2005] J.-L. Auguste, P. Roy, J.-M. B. (2005). La fibre optique microstructurée air-silice. *Techniques de l'Ingénieur*, RE43.

[J. Limpert, 2002] J. Limpert, T. Gabler, A. L.-H. Z. A. T. (2002). Spm-induced spectral compression of picosecond pulses in a single-mode yb-doped fiber amplifier. *Applied Physics B*, 74:191–195.

[J. Limpert, 2005] J. Limpert, N. Deguil-Robin, I. M.-H. F. S. T. S. A. L. F. R. H. Z. A. T. A. C. C. H. E. M. (2005). High-power picosecond fiber amplifier based on nonlinear spectral compression. *Optics Letters*, 30(7):714–716.

[J. Rehbinder, 2010] J. Rehbinder, C. Pohling, T. B. M. M. (2010). Multiplex coherent anti-stokes Raman microspectroscopy with tailored stokes spectrum. *Optics Letters*, 35(22):3721–3723.

[J. Satsuma, 1974] J. Satsuma, N. Y. (1974). Initial value problems of one-dimensional self-modulation of nonlinear waves in dispersive media. *Supplement of the Progress of Theoretical Physics*, (55):284–306.

[J. Son, 1992] J. Son, J.V. Rudd, J. W. (1992). Noise characterization of a self-mode-locked ti:sapphire laser. *Optics Letters*, 17(10):733–735.

[J. Sun, 2004] J. Sun, T. Shilagard, B. B. M. M. G. V. (2004). In vivo multimodal nonlinear optical imaging of mucosal tissue. *Optics Express*, 12(11):2478–2486.

[J. Takayanagi, 2006] J. Takayanagi, T. Sugiura, M. Y. N. N. (2006). 1.0–1.7-μm wavelength-tunable ultrashort-pulse generation using femtosecond yb-doped fiber laser and photonic crystal fiber. *Photonics Technology Letters*, 18(21):2284–2286.

[J. Troles, 2010] J. Troles, Q. Coulombier, G. C. M. D. W. R. P. T. L. C. G. R. F. S. M. E. A. J. A. T. C. D. M. L. B. (2010). Low loss microstructured chalcogenide fibers for large non linear effects at 1995 nm. *Optics Express*, 18(25):26647–26654.

[J. van Howe, 2007] J. van Howe, J.H. Lee, S. Z. F. W. C. X. (2007). Demonstration of soliton self-frequency shift below 1300 nm in higher-order mode, solid silica-based fiber. *Optics Letters*, 32(4):340–342.

[J.-X. Cheng, 2002] J.-X. Cheng, E.O. Potma, S. X. (2002). Coherent anti-stokes Raman scattering correlation spectroscopy: Probing dynamical processes with chemical selectivity. *Journal of Physical Chemistry A*, 106:8561–8568.

[J.-X. Cheng, 2002a] J.-X. Cheng, Y.K. Jia, G. Z. X. X. (2002a). Laser-scanning coherent anti-stokes Raman scattering microscopy and applications to cell biology. *Biophysical Journal*, 83:502–509.

[J.-X. Cheng, 2001a] J.-X. Cheng, A. Volkmer, L. B. X. S. X. (2001a). An epi-detected coherent anti-stokes Raman scattering (e-cars) microscope with high spectral resolution and high sensitivity. *Journal of Physical Chemistry B*, 105(7):1277–1280.

[J.-X. Cheng, 2010] J.-X. Cheng, H. Chen, M. S. H. W. (2010). A multimodal platform for nonlinear optical miroscopy and microspectroscopy. Patent no WO 2010/071682 A2.

[J.-X. Cheng, 2003] J.-X. Cheng, X. X. (2003). Coherent anti-stokes Raman scattering microscopy: Instrumentation, theory, and applications. *Journal of Physical Chemistry B*, 108:827–840.

[J.-X. Cheng, 2002b] J.-X. Cheng, A. Volkmer, X. X. (2002b). Theoretical and experimental characterization of coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Journal of the Optical Society of America B*, 19(6):1363–1375.

[J.-X. Cheng, 2001b] J.-X. Cheng, L.D. Book, X. X. (2001b). Polarization coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Optics Letters*, 26(17):1341–1343.

[J.A. Giordmaine, 1967] J.A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. S. K. W. W. (1967). Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses. *Applied Physics Letters*, 11(7):216–218.

[J.A. Shirley, 1980] J.A. Shirley, R.J. Hall, A. E. (1980). Folded boxcars for rotational Raman studies. *Optics Letters*, 5(9):380–382.

[J.Baillou, 2012] J.Baillou, J.P.Chemla, B. G. M. (2012). Cours de systèmes asservis. Site web de la plateforme de cours en ligne. auto.polytech.univ-tours.fr

[J.C. Knight, 1996] J.C. Knight, T.A. Birks, P. J. R. D. M. A. (1996). All-silica single-mode optical fiber with photonic crystal cladding. *Optics Letters*, 21(19):1547–1549.

[J.C. Knight, 1997] J.C. Knight, T.A. Birks, P. R. D. A. (1997). All-silica single-mode optical fiber with photonic crystal cladding: errata. *Optics Letters*, 22(7):484–485.

[J.H. Lee, 2008] J.H. Lee, J. van Howe, C. X. X. L. (2008). Soliton self-frequency shift: Experimental demonstrations and applications. *Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 14(3):713–723.

[J.K. Ranka, 1997] J.K. Ranka, A.L. Gaeta, A. B. M. P. D. W. (1997). Autocorrelation measurement of 6-fs pulses based on the two-photon-induced photocurrent in a gaasp photodiode. *Optics Letters*, 22(17):1344–1346.

[J.M. Dudley, 2001] J.M. Dudley, A.C. Peacock, G. M. (2001). The cancellation of nonlinear and dispersive phase components on the fundamental optical fiber soliton : a pedagogical note. *Optics Communications*, 193:253–259.

[J.M. Dudley, 2006] J.M. Dudley, G. Genty, S. C. (2006). Supercontinuum generation in photonic crystal fiber. *Reviews of Modern Physics*, 28(4):1135–1184.

[J.P. Gordon, 1986] J.P. Gordon, H. H. (1986). Random walk of coherently amplified solitons in optical fiber transmission. *Optics Letters*, 11(10):665–667.

[J.W. Walewski, 2004] J.W. Walewski, M.R. Borden, S. S. (2004). Wavelength-agile laser system based on soliton self-shift and its application for broadband spectroscopy. *Applied Physics B*, 79:937–940.

[K. Hammani, 2009] K. Hammani, C. Finot, G. M. (2009). Emergence of extreme events in fiber-based parametric processes driven by a partially incoherent pump wave. *Optics Letters*, 34(8):1138–1140.

[K. Hammani, 2008] K. Hammani, C. Finot, J. D. G. M. (2008). Optical rogue-wave-like extreme value fluctuations in fiber Raman amplifiers. *Optics Express*, 16(21):16467–16474.

[K. Konig, 1999] K. Konig, T.W. Becker, P. F. I. R. K.-J. H. (1999). Pulse-length dependence of cellular response to intense near-infrared laser pulses in multiphoton microscopes. *Optics Letters*, 24(2):113–115.

[K. Kurokawa, 2009] K. Kurokawa, K. Nakajima, K. T. T. Y. K. T. (2009). Ultra-wideband transmission over low loss pcf. *Journal of Lightwave Technology*, 27(11):1653–1662.

[K. Lin, 2008] K. Lin, Y. Lu, J. C. R. Z. P. W. H. M. (2008). Surface plasmon resonance hydrogen sensor based on metallic grating with high sensitivity. *Optics Express*, 16(23):18599–18604.

[K. Shi, 2007] K. Shi, P. Li, Z. L. (2007). Broadband coherent anti-stokes Raman scattering spectroscopy in supercontinuum optical trap. *Applied Physics Letters*, 90(14):141116–1/3.

[K. Sumimura, 2008] K. Sumimura, T. Ohta, N. N. (2008). Quasi-super-continuum generation using ultrahigh-speed wavelength-tunable soliton pulses. *Optics Letters*, 33(24):2892–2894.

[K. Sumimura, 2010] K. Sumimura, Y. Genda, T. O. K. I. N. N. (2010). Quasi-supercontinuum generation using 1.06μm ultrashort-pulse laser system for ultrahigh-resolution optical-coherence tomography. *Optics Letters*, 35(21):3631–3633.

[K. Tada, 2009] K. Tada, N. K. (2009). Broadband coherent anti-stokes Raman scattering spectroscopy using soliton pulse trains from a photonic crystal fiber. *Optics Communications*, 282:3948–3952.

[K. Tai, 1988] K. Tai, A. Hasegawa, N. B. (1988). Fission of optical solitons induced by stimulated Raman effect. *Optics Letters*, 13(5):392–394.

[K. Wang, 2011a] K. Wang, C. X. (2011a). Fiber-delivered picosecond source for coherent Raman scattering imaging. *Optics Letters*, 36(21):4233–4235.

[K. Wang, 2011b] K. Wang, C. X. (2011b). Tunable high-energy soliton pulse generation from a large-mode-area fiber and its application to third harmonic generation microscopy. *Applied Physics Letters*, 99:071112–1/3.

[Kaiser, 1993] Kaiser, W., editor (1993). *Ultrashort Laser Pulses, Generation and Applications*. Springer-Verlag.

[Kano, 2010] Kano, H. (2010). Molecular spectroscopic imaging using a white-light laser source. *Bulletin of the Chemical Society of Japan*, 83(7):735–743.

[Kibler, 2007] Kibler, B. (2007). *Propagation non-linéaire d'impulsions ultracourtes dans les fibres optiques de nouvelle génération*. Spécialité sciences pour l'ingénieur, École Doctorale Sciences Physiques pour l'Ingénieur et Microtechniques.

[K.J. Kingma, 1994] K.J. Kingma, R. H. (1994). Raman spectroscopic study of microcrystalline silica. *American Mineralogist*, 79:269–273.

[K.O. Hill, 1997] K.O. Hill, G. M. (1997). Fiber bragg grating technology : Fundamentals and overview. *Journal of Lightwave Technology*, 15(8):1263–1276.

[Labonté, 2005] Labonté, L. (2005). *Analyse théorique et expérimentale des principales caractéristiques du mode fondamental dans les fibres optiques microstructurées air/silice*. PhD thesis, École Doctorale Sciences, Technologie, Santé, Institut de Recherche en Communications Optiques et Microondes.

[L.B. Glebov, 2002] L.B. Glebov (2002). Volume Hologram Recording in Inorganic Glasses. *Glass Science and Technology, Proceedings of the First International Workshop on Glasses and the Photonics Revolution*, 75(C1):73-90.

[L.F. Mollenauer, 1980] L.F. Mollenauer, R.H. Stolen, J. G. (1980). Experimental observation of picosecond pulse narrowing and solitons in optical fibers. *Pysical Review Letters*, 45(13):1095–1097.

[M.-A. Brun, 2010] M.-A. Brun, F. Formanek, A. Y. M. S. N. A. Y. E. (2010). Terahertz imaging applied to cancer diagnosis. *Physics in Medicine and Biology*, 55(16):4615.

[M. Baumgartl, 2012a] M. Baumgartl, M. Chemnitz, C. J. T. M. B. D. J. P. J. L. A. T. (2012a). All-fiber laser source for cars microscopy based on fiber optical parametric frequency conversion. *Optics Express*, 20(4):4484–4493.

[M. Baumgartl, 2012b] M. Baumgartl, T. Gottschall, J. A.-A. A. D. T. M. B. D. M. R. J. P. J. L. A. T. (2012b). Alignment-free, all-spliced fiber laser source for cars microscopy based on four-wave-mixing. *Optics Express*, 20(19):21010–21018.

[M. Braun, 2008] M. Braun, P. Gilch, W. Z., editor (2008). *Ultrashort Laser Pulses in Biology and Medicine*. Springer.

[M. Chemnitz, 2012] M. Chemnitz, M. Baumgartl, T. M.-C. J. B. D. J. P. J. L. A. T. (2012). Widely tuneable fiber optical parametric amplifier for coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Optics Express*, 20(24):26583–26595.

[M. Erkintalo, 2010] M. Erkintalo, G. Genty, J. D. (2010). On the statistical interpretation of optical rogue waves. *The European Physical Journal, Special Topics*, 185:135–144.

[M. Erkintalo, 2009] M. Erkintalo, G. Genty, J. M. D. (2009). Rogue-wave-like characteristics in femtosecond supercontinuum generation. *Optics Letters*, 34(16):2468–2470.

[M. Marangoni, 2009a] M. Marangoni, A. Gambetta, C. M. V. K. R. R. G. C. (2009a). Fiber-format cars spectroscopy by spectral compression of femtosecond pulses from a single laser oscillator. *Optics Letters*, 34(21):3262–3264.

[M. Marangoni, 2009b] M. Marangoni, D. Brida, M. C. A. C. C. M. F. B. G. N. C. D. A. R. R. G. C. (2009b). Synthesis of picosecond pulses by spectral compression and shaping of femtosecond pulses in engineered quadratic nonlinear media. *Optics Letters*, 34(3):241–243.

[M. Merman, 2011] M. Merman, D. Y. (2011). Dispersion management for controlling image plane in fourier-domain spectrally encoded endoscopy. *Optics Express*, 19(5):4777–4785.

[M. Müller, 2002] M. Müller, J. S. (2002). Imaging the thermodynamic state of lipid membranes with multiplex cars microscopy. *Journal of Physical Chemistry B*, 106:3715–3723.

[M. Oberthaler, 1993] M. Oberthaler, R. H. (1993). Special narrowing of ultrashort laser pulses by self-phase modulation in optical fibers. *Applied Physics Letters*, 63(8):1017–1019.

[M. Okuno, 2007] M. Okuno, H. Kano, P. L. V. C. H. H. (2007). Ultrabroadband (>2000 cm1) multiplex coherent anti-stokes Raman scattering spectroscopy using a subnanosecond supercontinuum light source. *Optics Letters*, 32(20):3050–3052.

[M. Okuno, 2008] M. Okuno, H. Kano, P. L. V. C. H. H. (2008). Ultrabroadband multiplex cars microspectroscopy and imaging using a subnanosecond supercontinuum light source in the deep near infrared. *Optics Letters*, 33(9):923–925.

[M. Okuno, 2012] M. Okuno, H. Kano, P. L. V. C. H. H. (2012). Quantitative coherent anti-stokes Raman scattering microspectroscopy using a nanosecond supercontinuum light source. *Optical Fiber Technology*.

[M. Perrin, 2007] M. Perrin, Y. Quiquempois, G. B. M. D. (2007). Coexistence of total internal reflexion and bandgap modes in solid core photonic bandgap fibre with intersticial air holes. *Optics Express*, 15(21):13783–13795.

[M. Rusu, 2006] M. Rusu, O. G. O. (2006). All-fiber picosecond laser source based on nonlinear spectral compression. *Applied Physics Letters*, 89(9):091118–1/3.

[M. Xu, 2006] M. Xu, L. W. (2006). Photoacoustic imaging in biomedicine. *Review of Scientific Instruments*, 77:041101–1/22.

[Marcuse, 1978] Marcuse, D. (1978). Gaussian approximation of the fundamental modes of graded-index fibers. *Journal of the Optical Society of America (JOSA)*, 68(1):103–109.

[Matousek, 2010] Matousek, P. and Morris, M., editors (2010). *Emerging Raman Applications and Techniques in Biomedical and Pharmaceutical Fields*. Springer.

[Mayr, 2012] Mayr, T. (2012). *Database edited by the Istitute of Analytical Chemistry, Austria*. www.fluorophores.tugraz.at.

[M.B.J. Roeffaers, 2011] M.B.J. Roeffaers, X. Zhang, C. W. F. B. G. S. M. v. R. G. v. D. C. X. X. S. X. (2011). Label-fre imaging of biomolecules in food products using stimulated Raman microscopy. *Journal of Biomedical Optics*, 16(2):021118-1/6.

[M.C. Gross, 2002] M.C. Gross, M. Hanna, K. P. S. R. (2002). Spectral method for the simultaneous determination of uncorrelated and correlated amplitude and timing jitter. *Applied Physics Letters*, 80(20):3694–3696.

[M.D. Duncan, 1982] M.D. Duncan, J. Reintjes, T. M. (1982). Scanning coherent anti-stokes Raman microscope. *Optics Letters*, 7(8):350–352.

[Miller, 1998] Miller, G. (1998). *Periodically poled lithium niobate : modeling, fabrication and nonlinear-optical performance*. PhD thesis, Departement of electrical engineering, Stanford University.

[M.J.W. Rodwell, 1989] M.J.W. Rodwell, D.M. Bloom, K. . W. (1989). Subpicosecond laser timing stabilization. *Journal of Quantum Electronics*, 25(4):817–827.

[Mounaix, 2010] Mounaix, P. (2010). Spectro-imagerie térahertz - voir autrement. *Techniques de l'Ingénieur*, RE143.

[N. Akhmediev, 1995] N. Akhmediev, M. K. (1995). Cherenkov radiation emitted by solitons in optical fibers. *Physical Review A*, 51(3):2602–2604.

[N. Djaker, 2007] N. Djaker, P.-F. Lenne, D. M. A. C. C. H. H. R. (2007). Coherent anti-stokes Raman scattering microscopy (cars): Instrumentation and applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 571:177–181.

[N. Karasawa, 2001] N. Karasawa, S. Nakamura, N. N. M. S. R. M. H. S. M. Y. (2001). Comparison between theory and experiment of nonlinear propagation for a-few-cycle and ultrabroadband optical pulses in a fused-silica fiber. *Journal of Quantum Electronics*, 37(3):398–404.

[N. Nishizawa, 2011] N. Nishizawa, Y. Ozeki, K. I. (2011). Spectral width narrowing method, optical element and light source device. Patent WO2011/136220 A1.

[N. Nishizawa, 1999] N. Nishizawa, R. Okamura, T. G. (1999). Simultaneous generation of wavelength tunable two-colored femtosecond soliton pulses using optical fibers. *Photonics Technology Letters*, 11(4):421–423.

[N. Nishizawa, 2010] N. Nishizawa, K. Takahashi, Y. O. K. I. (2010). Wideband spectral compression of wavelength-tunable ultrashort soliton pulse using comb-profile fiber. *Optics Express*, 18(11):11700–11706.

[OFS, 2012] OFS (2012). HNLF standard highly non-linear fiber module. http://ofscatalog.specialtyphotonics.com/viewitems/non-standard-optical-fibers/highly-non-linear-fiber-modules

[Optigrate, 2011] Optigrate Corp. (2011). BragGrate™-Pulse, Ultra-short pulse stretcher\compressor datasheet http://www.optigrate.com/BragGrate_Pulse.html.

[P. Adany, 2011] P. Adany, D.C. Arnett, C. J. R. H. (2011). Tunable excitation source for coherent Raman spectroscopy based on a single fiber laser. *Applied Physics Letters*, 99(18):181112.

[P. Colman, 2012] P. Colman, S. Combrié, S. T. A. D. R. (2012). Raman-free soliton self frequency shift in photonic crystal waveguides. In *Quantum Electronics and Laser Sciene Conference (QELS)*. OSA.

[P. Groß, 2010] P. Groß, L. Kleinschmidt, S. B. C. C. C. F. (2010). Single-laser light source for cars microscopy based on soliton self-frequency shift in a microstructured fiber. *Applied Physics B*.

[Paschotta, 2004a] Paschotta, R. (2004a). Noise of mode-locked lasers (part i): numerical model. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 79:153–162.

[Paschotta, 2004b] Paschotta, R. (2004b). Noise of mode-locked lasers (part ii): timing jitter and other fluctuations. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 79:163–173.

[P.D. Maker, 1965] P.D. Maker, R. T. (1965). Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electric field strength. *Physical Review*, 137(3A):801–818.

[PERFOS, 2012] Plateforme d'Etude et de Recherche sur les Fibres Optiques Spéciales (PERFOS) (2012). Site web de la plateforme. http://photonics-bretagne.com/-PERFOS-

[P.V. Kaiser, 1974] P.V. Kaiser, H. A. (1974). Low-loss single material fibers made from pure fused silica. *Bell System Technology Journal*, 53(6):1021–1039.

[Q. Lin, 2006] Q. Lin, G. A. (2006). Raman response function for silica fibers. *Optics Letters*, 31(21):3086–3088.

[Q. Lin, 2007] Q. Lin, O.J. Painter, G. A. (2007). Nonlinear optical phenomena in silicon waveguides: modeling and applications. *Optics Express*, 15(25):16604–16644.

[R. DeSalvo, 1993] R. DeSalvo, M. Sheik-Bahae, A. S. D. H. E. V. S. (1993). Z-scan measurements of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals. *Optics Letters*, 18(3):194–196.

[R. Huber, 2006] R. Huber, D.C. Adler, J. F. (2006). Buffered fourier domain mode locking: unidirectional swept laser sources for optical coherence tomography imaging at 370,000 lines/s. *Optics Letters*, 31(20):2975–2977.

[R. Pant, 2010] R. Pant, A.C. Judge, E. M. B. K. M. d. S. B. E. (2010). Characterization and optimization of photonic crystal fibers for enhanced soliton self-frequency shift. *Journal of the Optical Society of America B (JOSAB)*, 27(9):1894–1901.

[R. Paschotta, 2005] R. Paschotta, B. Rudin, A. S. G. S. L. K. S. Z. N. H. H. T. U. K. (2005). Relative timing jitter measurements with an indirect phase comparison method. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 80:185–192.

[R. Selm, 2010] R. Selm, M. Winterhalder, A. Z. G. K. T. H. A. S. A. L. (2010). Ultrabroadband background-free coherent anti-stokes Raman scattering microscopy based on a compact er:fiber laser system. *Optics Letters*, 35(19):3282–3284.

[R. Szipöcs, 1997] R. Szipöcs, A.-K. (1997). Theory and design of chirped dielectric laser mirrors. *Applied Physics B*, 65:115–135.

[R.E. Kennedy, 2006] R.E. Kennedy, B.A. Cumberland, S. P. J. R. T. (2006). Aircore fiber based spectral compression of an all fiber integrated ultrashort pulse source. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, page CMC3. Optical Society of America.

[R.H. Stolen, 1978] R.H. Stolen, C. L. (1978). Self-phase-modulation in silica optical fibers. *Physical Review A*, 17(4):1448–1453.

[R.H. Stolen, 1984] R.H. Stolen, C. Lee, R. J. (1984). Development of the stimulated Raman spectrum in single-mode silica fibers. *Journal of the Optical Society of America B*, 1(4):652–657.

[R.H. Stolen, 1989] R.H. Stolen, J.P. Gordon, W. T. H. A. H. (1989). Raman response function of silica-core fibers. *Journal of the Optical Society of America B*, 6(6):1159–1167.

[R.J. Jones, 2001] R.J. Jones, J.-C. D. (2001). Stabilization of femtosecond lasers for optical frequency metrology and direct optical to radio frequency synthesis. *Physical Review Letters*, 86(15):3288–3291.

[Russel, 2006] Russel, P. (2006). Photonic-crystal fibers. *Journal of Lightwave Technology*, 24(12):4729–4749.

[S. Backus, 1998] S. Backus, C.G. Durfee III, M. M. H. K. (1998). High power ultrafast lasers. *Review of Scientific Instruments*, 69(3):1207–1223.

[S. Boscolo, 2012] S. Boscolo, S.K. Turitsyn, C. F. (2012). Amplifier similariton fibre laser with nonlinear spectral compression. In *European Conference and Exhibition on Optical Communication*, page P7.03. Optical Society of America.

[S. Brustlein, 2011] S. Brustlein, P. Ferrand, N. W. S. B. H. R. C. B. D. M. (2011). Optical parametric oscillator-based light source for coherent Raman scattering microscopy: practical overview. *Journal of Biomedical Optics*, 16(2).

[S. Diez, 1999] S. Diez, R. Ludwig, C. S. U. F. H. W. (1999). 160-gb/s optical sampling by gain-transparent four-wave mixing in a semiconductor optical amplifier. *Photonics Technology Letters*, 11(11):1402–1404.

[S. Kane, 2006] S. Kane, R. Huff, J. S. E. G. R. J. C. D. F. T. H. D. B. T. (2006). Design and fabrication of efficient reflection grisms for pulse compression and dispersion compensation. *Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*.

[S. Lefrancois, 2012] S. Lefrancois, D. Fu, G. R. H. L. K. W. W. P. S. R. H. A. Z. X. X. F. W. (2012). Fiber four-wave mixing source for coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Optics Letters*, 37(10):1652–1654.

[S. Michel, 2011] S. Michel, H. Rigneault, A. C. E. M. C. F. J. D. (2011). Polarized multiplex coherent anti-stokes Raman scattering using a picosecond laser and a fiber supercontinuum. *Journal of Biomedical Optics*, 16(2):021108–1/5.

[S. Murugkar, 2007] S. Murugkar, C. Brideau, A. R. M. N. P. S. H. A. (2007). Coherent anti-stokes Raman scattering microscopy using photonic crystal fiber with two closely lying zero dispersion wavelengths. *Optics Express*, 15(21):14028–14037.

[S. Murugkar, 2010] S. Murugkar, B. Smith, P. S. A. M. M. N. C. B. P. S. H. A. (2010). Miniaturized multimodal cars microscope based on mems scanning and a single laser source. *Optics Express*, 18(23):23796–23804.

[S. Oda, 2006] S. Oda, A. M. (2006). All-optical tunable delay line based on soliton self-frequency shift and filtering broadened spectrum due to self-phase modulation. *Optics Express*, 14(17):7895–7902.

[S. Roy, 2010] S. Roy, J.R. Gord, A. P. (2010). Recent advances in coherent anti-stokes Raman scattering spectroscopy: Fundamental developments and applications in reacting flows. *Progress in Energy and Combustion Science*, 36:280–306.

[S. Santran, 2004] S. Santran, M.E. Martínez-Rosas, L. C. L. S. (2004). Characterization of optical nonlinearity in semiconductor photodiodes using cross-polarized autocorrelation. *Journal of Quantum Electronics*, 40(12):1687–1694.

[S.A. Planas, 1993] S.A. Planas, N.L. Pires Mansur, C. B. C. H. L. F. (1993). Spectral narrowing in the propagation of chirped pulses in single-mode fibers. *Optics Letters*, 18(9):699–701.

[Saar et al., 2011] Saar, B. G., Contreras-Rojas, L. R., and Xie, X. Sunney, G. R. H. (2011). Imaging drug delivery to skin with stimulated Raman scattering microscopy. *Molecular Pharmaceutics*, 8(3):969–975.

[Sacchet, 2010] Sacchet, D. (2010). *Tomographie par cohérence optique plein champ linéaire et non linéaire*. PhD thesis, Ecole Doctorale «Sciences et Technologies de l'Information des Télécommunications et des Systèmes».

[Shen, 1984] Shen, Y. (1984). *The Principles of Nonlinear Optics*. J. Wiley.

[S.M. Kobtsev, 2004] S.M. Kobtsev, S.V. Kukarin, N. F. S. S. (2004). Generation of self-frequency-shifted solitons in tapered fibers in the presence of femtosecond pumping. *Laser Physics*, 14(5):748–751.

[Syndenham and Thorn, 2009] Syndenham, P. and Thorn, R., editors (2009). *Handbook of Measuring System Design*. Wiley.

[T. Brabec, 1997] T. Brabec, F. (1997). Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime. *Physical Review Letters*, 78:3282–3285.

[T. Gottschall, 2012] T. Gottschall, M. Baumgartl, A. S. J. R. C. J. J. L. A. T. (2012). Fiber-based source for multiplex-cars microscopy based on degenerate four-wave mixing. *Optics Express*, 20(11):12004–12013.

[T. Hellerer, 2004] T. Hellerer, A.M.K. Enejder, A. Z. (2004). Spectral focusing: High spectral resolution spectroscopy with broadbandwidth laser pulses. *Applied Physics Letters*, 85(1):25–27.

[T. Kanada, 1986] T. Kanada, D. F. (1986). Optical waveform measurement by optical sampling with a mode-locked laser diode. *Optics Letters*, 11(1):4–6.

[T. Konishi, 2002] T. Konishi, K. Tanimura, K. A. Y. O. Y. I. (2002). All-optical analog-to-digital converter by use of self-frequency shifting in fiber and a pulse-shaping technique. *Journal of the Optical Society of America B*, 19(11):2817–2823.

[T. Minamikawa, 2006] T. Minamikawa, N. Tanimoto, M. H. T. A. M. K. K. F. S. K. (2006). Jitter reduction of two synchronized picosecond mode-locked lasers using balanced cross-correlator with two-photon detectors. *Applied Physics Letters*, 89:191101–1/3.

[T. Schröder, 2007] T. Schröder, C. Lemmerz, O. R. M. W. C. W. R. T. (2007). Frequency jitter and spectral width of an injection-seeded q-switched nd:yag laser for a doppler wind lidar. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 87:437–444.

[T.A. Birks, 1997] T.A. Birks, J.C. Knight, P. R. (1997). Endlessly single-mode photonic crystal fiber. *Optics Letters*, 22(13):961–963.

[T.A. Birks, 2000] T.A. Birks, W.J. Wadsworth, P. R. (2000). Supercontinuum generation in tapered fibers. *Optics Letters*, 25(19):1415–1417.

[Teraxion, 2009] Teraxion, I. (2009). Powerspectrum psr - fiber bragg grating datashit.

[Teraxion, 2012] Teraxion Inc. (2012). Site internet de la société Teraxion. http://www.teraxion.com/

[Thorlabs, 2007] Thorlabs, I. (2007). Electro-optic amplitude modulators, operating manual.

[Tournois, 1993] Tournois, P. (1993). New diffraction grating pair with very lienar dispersion for laser pulse compression. *Electronics Letters*, 29(16):1414–1415.

[T.W. Kee, 2004] T.W. Kee, M. C. (2004). Simple approach to one-laser, broadband coherent anti-stokes Ramanscattering microscopy. *Optics Letters*, 29(23):2701–2703.

[U. Keller, 1990] U. Keller, C. E. Soccolich, G. S. M. N. I. M. W. (1990). Noise characterization of femtosecond color-center lasers. *Optics Letters*, 15(17):974–976.

[V. Couderc, 2012] V. Couderc, P. Leproux, G. H. A. D. A. (2012). Méthode et dispositif d'émission laser pour l'analyse spectrosopique d'un échantillon. Brevet WO 2012/052447 A1

[V. E. Zakharov, 1972] V. E. Zakharov, A. S. (1972). Exact theory of two-dimensional self-focusing and one-dimensional self-modulation of waves in nonlinear media. *Soviet Physics JETP*, 34(1):62–69.

[V. Jukna, 2012] V. Jukna, D. Majus, G. V. A. D. (2012). Transformation of the probability density function in an optical parametric amplifier: Application to rogue-wave-like statistics. *Optics Communications*.

[V. Tombelaine, 2005] V. Tombelaine, C. Lesvigne, P. L. L. G. V. C. J.-L. A. J.-M. B. G. H. P.-H. P. (2005). Ultra wide band supercontinuum generation in air-silica holey fibers by SHG-induced modulation instabilities. *Optics Express*, 13(19):7399–7404.

[V.A. Vysloukh, 1983] V.A. Vysloukh, V. S. (1983). Generation of high energy soliton of stimulated Raman radiation in fiber light-guides. *JETP Letters*, 38(4):199–202.

[Vanvincq, 2010] O. Vanvincq, A. Kudlinski, A. B. Y. Q. G. B. (2010). Extreme deceleration of the soliton self-frequency shift by the third-order dispersion in solid-core photonic bandgap fibers. *Journal of the Optical Society of America B*, 27(11):2328–2335.

[Vanvincq, 2011] Vanvincq, O. (2011). *Étude théorique des propriétés optiques linéaires et non-linéaires des fibres à bandes interdites photoniques à coeur solide*. PhD thesis, Sciences de la matière, du rayonnement et de l'environnement.

[Volkmer, 2005] Volkmer, A. (2005). Vibrational imaging and microspectroscopies based on coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 38:R59–581.

[von der Linde, 1986] von der Linde, D. (1986). Characterization of the noise in continuously operating mode-locked lasers. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 39:201–217.

[VWR, 2005] Société VWR international. (2005). Fiche de données sécurité de la rhodamine B. https://fr.vwr.com/app/catalog/Product;jsessionid=gBWo8HAYA9wPppg3Zn3ghg**.node1?article_number=1.07599.0025

[W.-C. Kan, 2010] W.-C. Kan, W.-S. Lee, W.-H. C. V. W.-E. P.-M. (2010). Terahertz pulsed imaging of knee cartilage. *Biomedical Optics Express*, 1(3):967–974.

[W. Drexler, 2008] W. Drexler, J. F. e. a. (2008). *Optical Coherence Tomography, Technology and Applications*. Springer.

[W. Drexler, 2001] W. Drexler, U. Morgner, R. G. F. K. J. S. J. F. (2001). Ultrahigh-resolution ophthalmic optical coherence tomography. *Nature Medicine*, 7:502–507.

[W.D. Gillespie, 1999] W.D. Gillespie, J.W. Hahn, W. B. W. H. G. R. (1999). Broadband d2 coherent anti-stokes Raman spectroscopy for single-shot pressure and temperature determination with a fabry-perot etalon. *Applied Optics*, 38(3):534–544.

[Wojdyla, 2011] Wojdyla, A. (2011). *Polarisation des impulsions térahertz et développement de l'imagerie par réflexion interne totale pour l'étude d'objects d'intérêt biologique*. PhD thesis, Ecole Polytechnique.

[X. Liu, 2001] X. Liu, C. Xu, W. K. J. C. B. E. S. K. R. W. (2001). Soliton self-frequency shift in a short tapered air–silica microstructure fiber. *Optics Letters*, 26(6):358–360.

[X. Nan, 2006a] X. Nan, A.M. Tonary, A. S. X. X. J. P. (2006a). Intracellular imaging of hcv rna and cellular lipids by using simultaneous two-photon fluorescence and coherent anti-stokes Raman scattering microscopies. *ChemBioChem*, 7(12):1895–1897.

[X. Nan, 2006b] X. Nan, E.O. Potma, X. X. (2006b). Nonperturbative chemical imaging of organelle transport in living cells with coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Biophysical Journal*, 91:728–735.

[X. Yan, 2011] X. Yan, G. Qin, M. L. T. S. Y. O. (2011). Transient Raman response effects on the soliton self-frequency shift in tellurite microstructured optical fiber. *Journal of the Optical Society of America B*, 28(8):1831–1836.

[X. Yan, 2012] X. Yan, C. Kito, S. M. M. L. T. S. Y. O. (2012). Raman transient response and enhanced soliton self-frequency shift in zblan fiber. *Journal of the Optical Society of America B*, 29(2):238–243.

[Y. Fu, 2006] Y. Fu, H. Wang, R. S. J.-X. C. (2006). Characterization of photodamage in coherent anti-stokes Raman scattering microscopy. *Optics Express*, 14(9):3942–3951.

[Y. Fu, 2007] Y. Fu, H. Wang, R. S. J.-X. C. (2007). Second harmonic and sum frequency generation imaging of fibrous astroglial filaments in ex vivo spinal tissues. *Biophotonics Journal*, 92:3251–3259.

[Y.-H. Zhai, 2011] Y.-H. Zhai, C. Goulart, J. S.-H. W. S. C. W. T. M. S. D. Z. J.-X. C. (2011). Multimodal coherent anti-stokes Raman spectroscopic imaging with a fiber optical parametric oscillator. *Applied Physics Letters*, 98:191106–1/3.

[Y. Kodama, 1987] Y. Kodama, A. H. (1987). Nonlinear pulse propagation in a monomode dielectric guide. *Journal of Quantum Electronics*, 23(5):510–524.

[Y. Matsuo, 2000] Y. Matsuo, N. Nishizawa, M. M. T. G. (2000). Measurement of timing jitter in wavelength tunable femtosecond soliton pulses. *Optical Review*, 7(4):317–322.

[Y. Ozeki, 2012] Y. Ozeki, W. Umemura, K. S. N. N. K. F. K. I. (2012). Stimulated Raman hyperspectral imaging based on spectral filtering of broadband fiber laser pulses. *Optics Letters*, 37(3):431–433.

[Y. Ozeki, 2010] Y. Ozeki, Y. Kitagawa, K. S. N. N. W. U. S. K. K. F. K. I. (2010). Stimulated Raman scattering microscope with shot noise limited sensitivity using subharmonically synchronized laser pulses. *Optics Express*, 18(13):13708–13719.

[Y. Xiang, 2011] Y. Xiang, X. Dai, S. W. J. G. D. F. (2011). Controllable Raman soliton self-frequency shift in nonlinear metamaterials. *Physical Review A*, 84:033815–1/7.

[Y. Zaouter, 2007] Y. Zaouter, D.N. Papadopoulos, M. H. F. D. E. C. P. G. (2007). Third-order spectral phase compensation in parabolic pulse compression. *Optics Express*, 15(15):9372–9377.

[Yablonovitch, 1993] Yablonovitch, E. (1993). Photonic band-gap structures. *Journal of the Optical Society of America B*, 10(2):283–295.

[Z. Pan, 2010] Z. Pan, C. Yu, A. W. (2010). Optical performance monitoring for the next generation optical communication networks. *Optical Fiber Technology*, 16:20–45.

[Z. Wang, 2011] Z. Wang, Y. Liu, L. G. Y. C. P. L. K. W. S. W. (2011). Use of multimode optical fibers for fiber-based coherent anti-stokes Raman scattering microendoscopy imaging. *Optics Letters*, 36(15):2967–2969.

Communications

Publications dans des revues internationales à comité de lecture

- ***C-H. Hage***, B. Kibler, E. Mottay, H. Rigneault, J.M. Dudley, G. Millot and C. Finot, "Optimization and characterization of a femtosecond tunable light source based on the soliton self-frequency shift in photonic crystal fiber", *Proc. of SPIE*, **8071**(80710I), 2011
- ***C-H. Hage***, B. Kibler and C. Finot, "Fiber-based device for the detection of low-intensity fluctuations of ultrashort pulses", *App. Opt.*, **51**(7), 949-953, 2012
- ***C-H. Hage***, F. Billard, B. Kibler, C. Finot and G. Millot, "Direct temporal reconstruction of a picosecond pulse by cross-correlation in a semiconductor device", *Electron. Lett.*, **48**(13), 778-780, 2012

Communications orales à des colloques à comité de lecture avec actes

- ***C-H. Hage***, B. Kibler, E. Mottay, H. Rigneault, J.M. Dudley, G. Millot and C. Finot, "Optimization and characterization of a femtosecond tunable light source based on the soliton self-frequency shift in photonic crystal fiber", Paper 8071-17, *SPIE Optics-Optoelectronics, Prague, République Tchèque, Avril 2011*
- *P. Morin*, J. Fatome, C. Finot, S. Pitois, **C.-H. Hage**, V. Tissot, R. Claveau et G. Millot, "Double régénéraion tout-optique du profil temporel et de l'état d polarisation d'un signal télécom à 40 GBits/s", *Journées Nationales d'Optique Guidée, Marseille, France, Juillet 2011*
- ***C-H. Hage***, J. Fatome, B. Kibler and C. Finot, "All-optical fiber-based devices for ultrafast amplitude jitter magnification", Paper 8434-36, *SPIE Photonics Europe, Bruxelles, Avril 2012*
- **C-H. Hage**, *J. Fatome*, B. Kibler and C. Finot, "All-optical fiber-based devices for ultrafast amplitude jitter magnification", Paper 1360847, *OSA Nonlinear Photonics, Colorado Springs, Colorado, Juin 2012*

Communications par affiche à des colloques à comité de lecture avec actes

- ***C.-H. Hage***, B. Kibler, E. Mottay, J. Dudley, H. Rigneault et C. Finot, "Optimisation de la densité spectrale d'énergie obtenue par auto-décalage fréquentiel Raman dans une fibre microstructurée", Poster JNOG2010/37, *Journées Nationales d'Optique Guidée, Besançon, France, Octobre 2010*
- ***C.-H. Hage***, B. Kibler, C. Finot, " Dispositif fibré pour la détection de faibles fluctuations d'intensité d'impulsions ultracourtes", Poster P168, *Journées Nationales d'Optique Guidée, Marseille, France, Juillet 2011*
- ***C-H. Hage***, F. Billard, B. Kibler, C. Finot et G. Millot, "Corrélation croisée large-bande à partir d'une photodiode à deux photons", Poster P1, *Journées Nationales d'Optique Guidée, Lyon, France, Juillet 2012*

Rencontres entre doctorants

- ***C.-H. Hage***, "Auto-décalage fréquentiel solitonique Raman dans une fibre optique microstructurée", **Communication par affiche,** *Journées des Ecoles Doctorales (JED), Besançon, France, Mai 2010*
- ***C.-H. Hage***, "Optimisation de l'auto-décalage Raman d'un soliton pour la microscopie CARS ", **Communication orale**, *Journées des Ecoles Doctorales (JED), Dijon, France, Mai 2011 - prix de la meilleure communication orale*
- ***C.-H. Hage***, B. Kibler, E. Mottay, H. Rigneault, J.M. Dudley, G. Millot et C. Finot, "Optimisation de l'auto-décalage Raman d'un soliton pour la microscopie CARS ", **Communication orale**, *Journées de la Photonique (JDP), Dijon, France, Novembre 2011*
- ***C.-H. Hage***, B. Kibler, C. Finot and G. Millot, "The Soliton Self-Frequency Shift : a tool for noise detection and spectral shaping", **Communication par affiche**, *Optics and Photonics Day, Besançon, France, Novembre 2011*
- ***C.-H. Hage***, B. Kibler, E. Mottay, J.M. Dudley, G. Millot, H. Rigneault et C. Finot, "Sources optiques fibrées pour applications biomédicales", **Communication par affiche**, *Journées de la Photonique (JDP), Besançon, France, Novembre 2012*
- ***C-H. Hage***, F. Billard, B. Kibler, C. Finot et G. Millot, "Corrélation croisée large-bande à partir d'une photodiode à deux photons", **Communication orale**, *Journées de la Photonique (JDP), Besançon, France, Novembre 2012*

Résumé

Ce mémoire présente les travaux effectués sur le développement d'une source optique servant à des applications d'imagerie biomédicale en général et de diffusion Raman cohérente en particulier. En effet la diffusion de ces dernières est freinée par le verrou technologique que constitue la nécessité de deux impulsions synchronisées et décalées en longueur d'onde. La praticité et les possibilités de conversions de fréquences offertes par l'optique non-linéaire fibrée sont ainsi utilisées pour adresser ce verrou technologique.

Tout d'abord, une source simplement réglable en longueur d'onde est générée par l'effet d'auto-décalage en fréquence optique d'un soliton par effet Raman. Une étude des principaux paramètres de fibre aboutit à des décalages de 320 à plus de 500 nm, permettant une imagerie des résonances d'intérêt (≈ 1000-4000 cm^{-1}). Deux applications de ce décalage sont présentées. Ensuite, l'autre impulsion voit sa largeur spectrale réduite de 70 à 10 cm^{-1} par compression spectrale, qui consiste en un "regroupement non-linéaire de fréquences sans pertes", afin de bénéficier de la résolution spectrale nécessaire. Enfin, la source développée est validée par l'acquisition de spectres CARS de différents échantillons de référence, pour différentes résonances (850 à 1750 cm^{-1}). Une extension de la source à d'autres types d'imagerie est proposée, ainsi qu'une architecture de source quasiment entièrement fibrée exploitant les principes développés au cours de cette thèse.

Mots-clefs : imagerie multimodale, diffusion Raman cohérente, optique non-linéaire, optique fibrée, fibre microstructurée

Summary

This manuscript presents the work done concerning the development of a light source used for biomedical imaging and more particularly for coherent Raman scattering imaging. In fact an efficient broadcasting of these ones is hampered by the need of two synchronized and wavelength shifted pulses. As so, the handiness and frequency conversion capabilities of nonlinear fiber optics are used to circumvent this technological lock.

First of all, an easy wavelength tunable source is set by the use of the self-shifting in optical frequency of a soliton. A study of the main fiber parameters lead to shifts of 320 to more than 500 nm which allows interesting molecular resonances imaging (≈ 1000-4000 cm^{-1}). Two applications of this shift are also reported. Then, the second pulse sees its spectral width reduced from 70 to 10 cm^{-1} by spectral compression, which consists in a "loss-less frequency regrouping", in order to obtain a proper spectral resolution. Finally, the developed source is validated by acquiring CARS spectra of different reference solvents and for different resonances (850 to 1750 cm^{-1}). An evolution of this source to allow other imaging techniques is proposed, as well as a quasi-all-fibered source exploiting the principles addressed during this thesis work.

Keywords : multimodal imaging, coherent Raman Scattering, nonlinear optics, fiber optics, microstructured fiber