

Convertisseurs de longueurs d'onde à fibres à cœur liquide pour la biophotonique

Des convertisseurs de longueurs d'onde utilisant la diffusion Raman stimulée dans des fibres à cristal photonique à cœur creux remplies de liquides constituent le composant essentiel permettant de développer une nouvelle gamme de sources laser. À partir d'une seule source de pompe il est possible d'atteindre de nombreuses longueurs d'onde de façon très efficace en changeant uniquement le convertisseur. L'un des domaines d'applications visés concerne les sciences de la vie et la médecine. Les méthodes optiques peuvent en effet aider à l'identification *in vivo* des tissus malins lors de la chirurgie opératoire oncologique. L'excitation par des longueurs d'onde adaptées aux différents fluorophores endogènes ou exogènes des cellules atteintes est une voie prometteuse pour améliorer précision et efficacité du geste opératoire. Toutefois, lorsqu'ils existent, les lasers couvrant ces besoins sont onéreux, encombrants et d'utilisation difficile. La nouvelle gamme de sources laser basée sur ces convertisseurs de longueurs d'onde à fibres à cœur liquide contournera ces limitations.

>> **Sylvie LEBRUN**
Laboratoire Charles Fabry
Institut d'optique Graduate School
sylvie.lebrun@institutoptique.fr

Guidage dans les fibres HC-PCF remplies de liquides

Les effets optiques non linéaires sont souvent utilisés pour générer de nouvelles longueurs d'onde à partir d'une source de pompe. La réalisation d'effets optiques non linéaires est particulièrement efficace dans les fibres optiques, grâce à leur cœur de petite dimension et leur grande longueur d'interaction. Les fibres à cristal photonique inventées il y a une quinzaine d'années ont révélé des propriétés originales de propagation de la lumière qui les rendent particulièrement intéressantes pour l'optique non linéaire [1]. Dans ces fibres, le cœur de silice entouré d'une gaine micro-structurée remplie de trous d'air peut être de très petite dimension (de 1 à 2 microns de diamètre), ce qui permet d'augmenter les non linéarités en diminuant l'aire effective de l'interaction. De nombreux travaux en optique non linéaire ont été réalisés avec de telles fibres, comme la réalisation de supercontinuum pour la

spectroscopie et la biophotonique ou les sources de paires de photons corrélés pour l'optique quantique [2,3,4].

Pour les applications visées ici, l'objectif est de produire de façon très efficace un grand nombre de longueurs d'onde discrètes dans le visible, correspondant à des maxima d'absorption de fluorophores. Dans les fibres à cristal photonique à cœur de silice, la gamme de longueurs d'onde que l'on peut atteindre est limitée par ce matériau unique. Afin de pouvoir augmenter le gain non linéaire et la variété des matériaux non linéaires possibles, une idée naturelle est d'utiliser des capillaires à cœur creux et de remplir le cœur par un liquide fortement non linéaire. Cette solution impose cependant de fortes contraintes sur le liquide, notamment d'avoir un indice supérieur à l'indice de la silice : le choix des liquides possibles est donc très limité. Les fibres à cristal photonique à cœur creux (appelées HC-PCF, pour *Hollow Core Photonic Crystal Fibres* dans la suite) permettent de résoudre ce problème de propagation [5]. Dans ces fibres, le cœur central creux est entouré d'une gaine percée de trous d'air en motifs périodiques (figure 1). Dans les HC-PCF remplies d'un liquide d'indice inférieur à celui de la silice, deux types de guidage sont possibles. D'une part, lorsque seul le cœur de la fibre est rempli de liquide, l'indice

effectif de la gaine peut être abaissé sous l'indice du liquide grâce à la structuration des trous d'air de la gaine. Dans ce cas, il peut y avoir guidage de la lumière par réflexion totale interne modifiée. D'autre part, lorsque la fibre est entièrement remplie de liquide ou de gaz, le guidage de la lumière peut se faire par le mécanisme appelé guidage par bande interdite photonique. La gaine micro-structurée agit comme un miroir de Bragg en réfléchissant certaines longueurs d'onde qui sont alors confinées dans le cœur et transmises lors de la propagation dans la fibre, tandis que les longueurs d'onde qui ne sont pas réfléchies par le miroir de Bragg sont perdues dans la gaine. Les bandes de transmission des fibres HC-PCF sont donc des filtres en

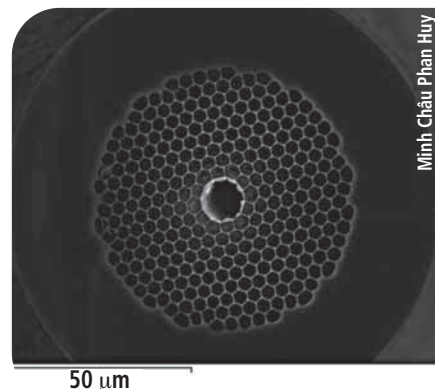


Figure 1. Photo au microscope électronique à balayage d'une fibre HC-PCF guidant à 1550 nm dans l'air.

longueur d'onde et peuvent ainsi être utilisées pour favoriser ou au contraire pour empêcher l'apparition d'un effet optique non linéaire donné.

Diffusion Raman spontanée et stimulée

La diffusion Raman stimulée dans des liquides est l'effet non linéaire qui permet d'avoir les plus grands décalages en longueur d'onde, de quelques nanomètres à une centaine de nanomètres dans le visible, selon le liquide utilisé. Cet effet non linéaire du troisième ordre résulte de l'interaction de la lumière avec les modes de vibration des molécules. Lorsqu'on éclaire un matériau avec un faisceau pompe à la fréquence ω_p , le faisceau diffusé contient des raies de fréquences plus petites que la fréquence ω_p appelées raies Stokes et des raies de fréquences plus grandes appelées raies anti-Stokes (figure 2). Une fois créées, ces raies peuvent être amplifiées efficacement par diffusion Raman stimulée. La position de ces raies ne dépend que du matériau étudié et plus précisément du décalage Raman associé au mode de vibration considéré dans le matériau. Par exemple, le décalage Raman lié au mode de vibration d'élongation de la liaison C-H dans l'éthanol est 2928 cm^{-1} .

Ainsi, lorsqu'on pompe de l'éthanol à 532 nm, le premier ordre Stokes associé à ce décalage Raman se situe à 630 nm. Une raie Stokes peut également être



Figure 2. Diffusion Raman Stokes et anti-Stokes.

diffusée par effet Raman produisant ainsi une cascade de Stokes d'ordres supérieurs. En régime de diffusion stimulée, l'écart en fréquence entre deux ordres Stokes successifs est constant et égal au décalage Raman.

Lorsque l'intensité du 1^{er} ordre Stokes devient suffisamment élevée, cet ordre peut à son tour devenir une pompe et générer le second ordre Stokes (figure 3). Il est alors possible d'observer une cascade Raman d'ordres Stokes (une cascade d'ordres anti Stokes est aussi possible mais moins efficace). Cette cascade Raman limite le transfert d'énergie de la pompe vers un ordre Stokes donné : les simulations numériques de la figure 3 montrent par exemple que lorsque le second ordre Stokes apparaît, l'intensité du 1^{er} ordre Stokes décroît rapidement. À partir d'une certaine puissance de pompe, la puissance du premier ordre Stokes s'effondrera, ce qui est un problème dans le cas des convertisseurs décrits ici.

Une solution pour contourner ce problème consiste à introduire des pertes

sur les ordres supérieurs dont on désire empêcher l'apparition. La figure 3b, qui reprend des paramètres identiques aux paramètres ayant servi à tracer la figure 3a, mais en introduisant des pertes sur le second Stokes, illustre bien l'efficacité du procédé pour arrêter la cascade Raman.

Contrôle des bandes de transmission

Pour introduire ces pertes sélectives sur certains ordres, il est possible d'utiliser la bande de transmission d'une fibre HC-PCF pour stopper la cascade Raman à un ordre Stokes souhaité et transférer ainsi l'énergie de la pompe vers cet unique ordre Stokes, sans perte vers les ordres supérieurs. On joue pour cela sur le contrôle de la position des bandes de transmission par l'indice du liquide qui remplit la fibre. En effet, lorsque l'on remplit une HC-PCF avec un liquide, la bande de transmission de la fibre est décalée vers les courtes longueurs d'onde (figure 4).

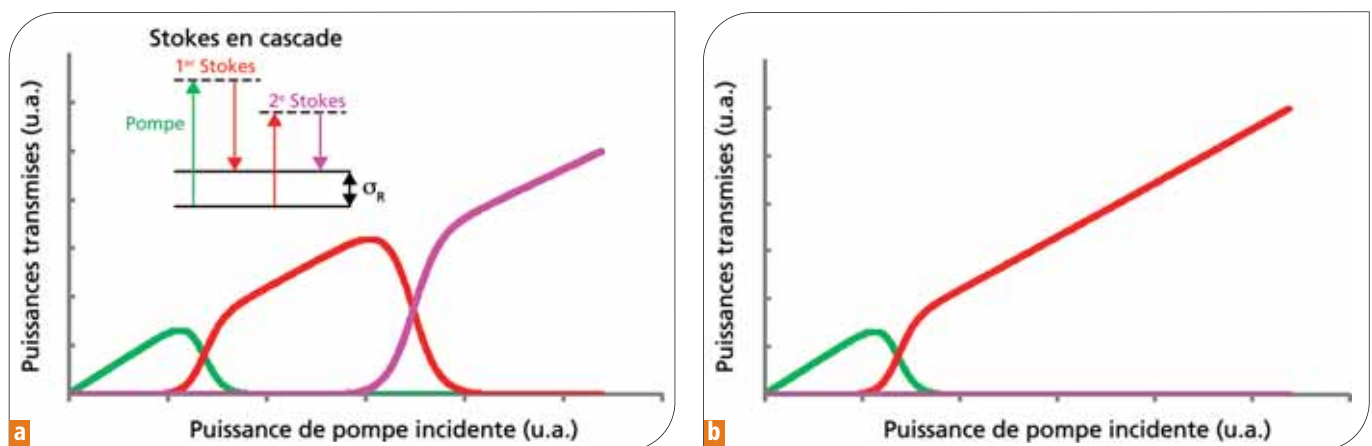


Figure 3. a. Simulations illustrant la cascade Raman en montrant les puissances transmises de la pompe, du 1^{er} Stokes et du 2^e Stokes en fonction de la puissance de pompe incidente. Le principe de la cascade Raman est en insert. b. Simulations montrant l'arrêt de la cascade Raman en introduisant des pertes sur le second Stokes.

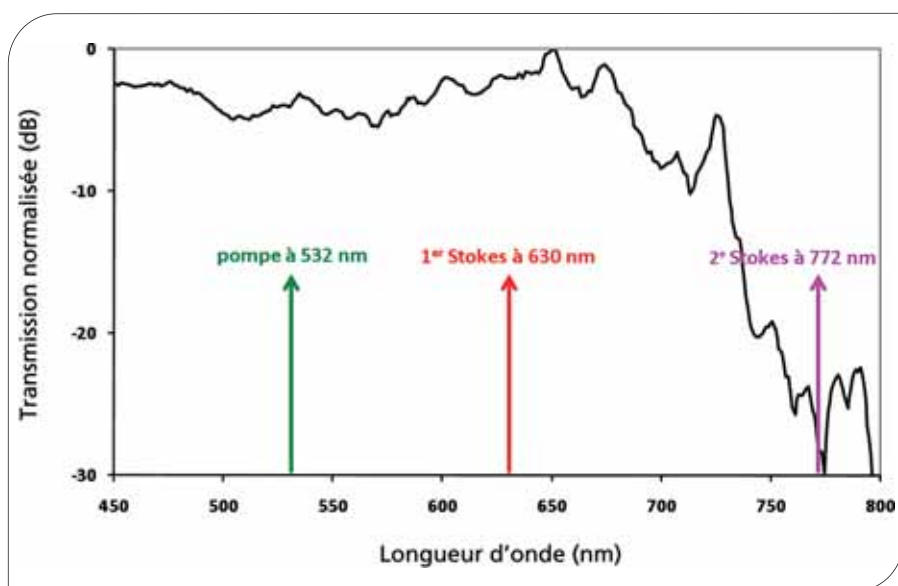


Figure 4. Spectre de transmission d'une fibre HC-PCF remplie d'éthanol mesuré à l'aide d'une source blanche. Lorsqu'elle est remplie d'air, cette fibre guide par bande interdite photonique autour de 1060 nm. Lorsqu'elle est entièrement remplie d'éthanol dont l'indice est 1,36, la bande de transmission est décalée vers le visible et permet de filtrer le 2^e Stokes à 772 nm.

Réalisation de convertisseurs Raman

Remplissage de la fibre

Dans les expériences décrites ci-dessous, le pompage est effectué en régime nanoseconde avec un microlaser Nd:YAG doublé en fréquence pour une émission à 532 nm, la fréquence de répétition est de 6 kHz et la puissance crête maximale est de 1,8 kW. Le convertisseur Raman est une fibre HC-PCF remplie d'un liquide (figure 5). Une des extrémités de la fibre est plongée dans le liquide qui entre par capillarité dans les trous de la fibre. Deux montages différents peuvent être mis en œuvre (figures 5 et 6), dans l'un d'eux il est possible d'appliquer une

pression sur le liquide afin d'accélérer le remplissage (un exemple de cuve est montré en figure 6). Une fois la fibre entièrement remplie de liquide, on plonge la seconde extrémité dans le liquide. Ce processus permet d'éviter la présence de bulles d'air dans la fibre. Il faut compter entre quelques dizaines de minutes et quelques dizaines d'heures (en fonction de la viscosité du liquide) pour remplir un mètre de fibre, les petits capillaires de la gaine de deux microns de diamètre se remplissant moins vite que le capillaire central (10 µm de diamètre). Le faisceau de pompe est focalisé dans le convertisseur avec un objectif de microscope. En sortie du convertisseur, plusieurs dispositifs de mesure (puissance

des différentes raies, profil du faisceau en sortie de fibre, champ lointain, spectre, mesures temporelles) permettent de caractériser le système ainsi réalisé.

Conversion de 532 à 630 nm

Dans un premier temps, le liquide utilisé était de l'éthanol et la cascade Stokes a été stoppée au 1^{er} ordre [7]. L'éthanol possède un indice de réfraction de 1,36, inférieur à celui de la silice. Le décalage Raman de l'éthanol étant de 2928 cm^{-1} , le 1^{er} ordre Stokes est alors à 630 nm et le 2^e ordre Stokes à 772 nm. La fibre utilisée est une fibre HC-PCF achetée dans le commerce. Lorsque la fibre n'est pas remplie de liquide sa bande de transmission est centrée autour de 1060 nm avec une largeur d'environ 100 nm. Le remplissage total de la fibre (cœur et trous de la gaine) par un liquide d'indice 1,36 déplace théoriquement la bande de transmission autour de 530 nm. Après avoir injecté une source laser supercontinuum dans la fibre HC-PCF remplie d'éthanol, le spectre transmis a été mesuré grâce à un analyseur de spectre. Il a été ainsi possible de vérifier que le premier ordre Stokes de l'éthanol à 630 nm se situe bien dans la bande de transmission ainsi qu'illustré sur la figure 4. En revanche, le second ordre Stokes à 772 nm est en dehors de cette bande et subira donc des pertes trop importantes pour être généré efficacement. Comme prévu, la conversion Raman s'effectue uniquement vers le premier ordre Stokes à 630 nm, l'efficacité de conversion interne étant de 79% en nombre de photons avec une longueur de fibre de 35 cm seulement. Cette efficacité est limitée par le profil temporel gaussien de l'impulsion. Des simulations numériques ont permis de montrer qu'une impulsion de forme carrée permettrait d'obtenir une efficacité de conversion encore plus élevée [8]. Un autre point important est que le faisceau obtenu dans le mode fondamental de la fibre à 630 nm est quasi gaussien, ce qui rend ce convertisseur Raman compatible avec les composants fibrés standard (figure 5). Enfin, les mesures de stabilité de puissance à court et moyen termes (respectivement une seconde et une

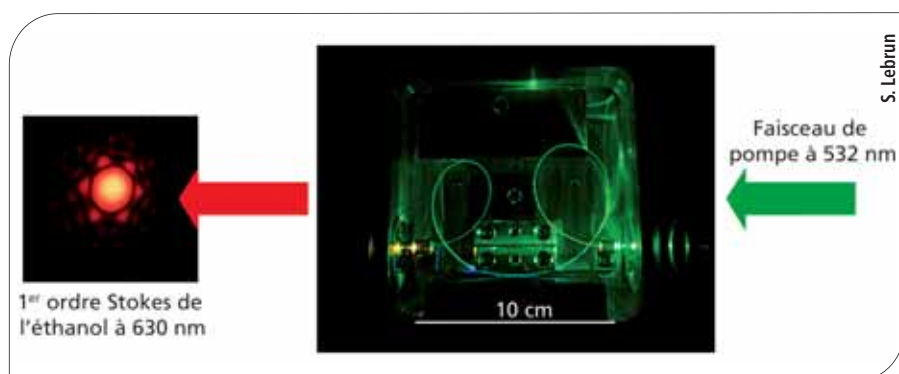
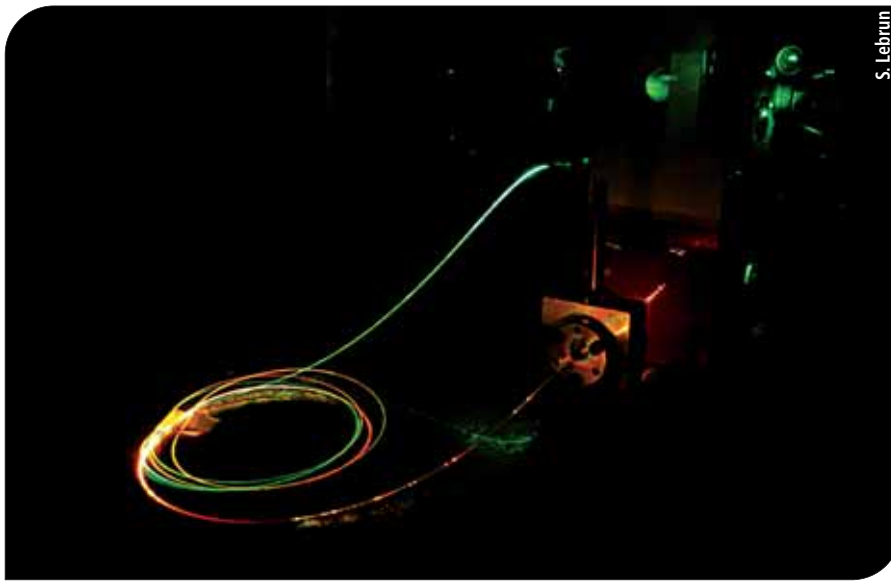


Figure 5. Convertisseur Raman placé dans une cuve remplie d'éthanol en pompage à 532 nm. À gauche, on voit la structure spatiale du 1^{er} ordre Stokes de l'éthanol en sortie de cuve.



S. Lebrun

Figure 6. Convertisseur Raman en pompage à 532 nm émettant à 595 nm.

heure) ont montré que le convertisseur Raman n'introduit pas d'instabilité et que le système est limité par la stabilité de la source de pompe.

Conversion « à la demande »

Dans un second temps, les expériences ont montré que l'on pouvait stopper la cascade Raman à un ordre supérieur afin d'atteindre une longueur d'onde « à la demande ». Les premiers travaux ont consisté à générer la longueur d'onde de 595 nm [9]. Cette longueur d'onde est très recherchée en biologie car elle correspond à un pic d'absorption de protéines fluorescentes et de l'hémoglobine. Le but est donc de décaler la longueur

d'onde de la source de pompe (532 nm) à 595 nm en utilisant un liquide Raman. Ce décalage correspond au second ordre Stokes d'un milieu possédant un décalage Raman d'environ 1000 cm^{-1} , qui est typiquement le décalage Raman des composés aromatiques. Parmi ces composés, le liquide choisi a été le toluène. La fibre HC-PCF utilisée est encore une fibre commerciale qui possède une bande de transmission autour de 1550 nm. Sa longueur est de 80 cm. Afin de décaler la bande de transmission vers 595 nm, il est nécessaire de la remplir avec un liquide d'indice 1,42. L'indice du toluène étant de 1,49, il faut le diluer dans les bonnes proportions avec un liquide bas indice.

Le projet RAMBIO

Les convertisseurs réalisés ont montré qu'il est possible de produire de façon très efficace des longueurs d'onde « à la demande » en contrôlant la bande de transmission d'une fibre HC-PCF par l'indice du liquide ou du mélange de liquides remplissant la fibre. Le principe est transposable à d'autres longueurs d'onde de pompe. Ces convertisseurs constituent le point de départ d'une nouvelle gamme de sources laser très compactes émettant à des longueurs d'onde à la demande.

Ces travaux ont été conduits dans le cadre du projet RAMBIO (sources laser RAMan pour la BIOlogie) dont l'un des objectifs est de proposer des longueurs

d'onde pour l'excitation de fluorophores endogènes ou exogènes pour la détection de cancers *in vivo* :

www.lcf.institutoptique.fr/rambio

Ce projet est développé avec le soutien du Conseil général de l'Essonne. Il bénéficie du support du Triangle de la Physique et est mené en collaboration avec l'unité Imagerie et Modélisation en Neurobiologie et Cancérologie d'Orsay et la société Opton Laser International. Il a reçu le prix Fibre de l'Innovation catégorie recherche décerné le 1^{er} février 2011 lors de la journée « De l'innovation à l'emploi industriel » organisée par OpticsValley et le Conseil régional d'Île-de-France.

Le solvant utilisé a été le méthanol dont l'indice est de 1,33. Après remplissage de la fibre, le spectre de transmission contient comme attendu la raie de la pompe à 532 nm, le 1^{er} ordre Stokes à 561 nm et le 2^e ordre Stokes à 595 nm. Le 3^e ordre Stokes à 632 nm est en bord de la bande et ne sera donc pas produit efficacement. Le convertisseur Raman ainsi réalisé a émis sur le 2^e ordre Stokes du toluène à 595 nm avec une efficacité de conversion interne de 44 % en nombre de photons de la pompe vers le 2^e ordre Stokes (figure 6). Ici encore, la forme temporelle gaussienne de l'impulsion limite l'efficacité de conversion. ■

Références :

- [1] P.St.J. Russell, Photonic-Crystal Fibers, J. Light-Wave Tech. 24, pp. 4729-4749 (2006).
- [2] O. Alibart, J. Fulconis, G.K.L. Wong, S.G. Murdoch, W.J. Wadsworth and J.G. Rarity, Photon pair generation using four-wave mixing in a microstructured fibre: theory versus experiment, New J. Phys. 8, p. 67 (2006).
- [3] J.M. Dudley, G. Genty, S. Coen, Supercontinuum Generation in Photonic Crystal Fiber, Rev. Mod. Phys. 78, pp. 1135-1184 (2006).
- [4] M. Laroche, P. Leproux, V. Couderc, C. Lesvigne, H. Gilles and S. Girard, Compact sub-nanosecond wide-band laser source for biological applications, Appl. Physics B: Lasers Opt. 86(4), pp. 601-604 (2007).
- [5] R.F. Cregan, B.J. Mangan, J.C. Knight, T.A. Birks, P.St.J. Russell, P.J. Roberts, D.C. Allan, Single-mode photonic band gap guidance of light in air, Science 285, p. 1537 (1999).
- [6] G. Antonopoulos, F. Benabid, T.A. Birks, D.M. Bird, J.C. Knight, and P.St.J. Russell, Experimental demonstration of the frequency shift of bandgaps in photonic crystal fibers due to refractive index scaling, Opt. Express 14, pp. 3000-3006 (2006).
- [7] S. Lebrun, P. Delaye, R. Frey and G. Roosen, High-efficiency single-mode Raman generation in a liquid-filled photonic bandgap fiber, Opt. Lett. 32, pp. 337-339 (2007).
- [8] S. Lebrun, C. Buy, P. Delaye, R. Frey, G. Pauliat, and G. Roosen, Optical characterizations of a Raman generator based on a hollow core photonic crystal fiber filled with a liquid, J. Nonlinear Optical Phys. Mater., 19(1), pp. 101-109 (2010).
- [9] S. Lebrun, C. Buy, P. Delaye, R. Frey, and G. Pauliat, Efficient Raman converter emitting in the orange range on the second Stokes order of toluene, Communication orale, EOS Annual meeting EOS Topical meeting on Nonlinear Optics and Photonics, Paris, 26-29 octobre, 3290 (2010).