

UNIVERSITE DE LIMOGES
ECOLE DOCTORALE Science – Technologie – Santé
FACULTE DES SCIENCES ET TECHNIQUES
INSTITUT DE RECHERCHE XLIM

Thèse N° 63-2006

Thèse
pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université de LIMOGES

Discipline : “Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique”
Spécialité : “Optique”

présentée et soutenue par
Mickaël LELEK

le 23 Octobre 2006

Caractérisation d'impulsions brèves
Mise en forme temporelle et spectrale pour une
application à l'endomicroscopie bi-photonique

Thèse dirigée par Frédéric Louradour

JURY :

Rapporteurs

John DUDLEY

Professeur au Laboratoire d'Optique P. M. Duffieux,
FEMTO-ST, Besançon

Patrick GEORGES

Directeur de Recherche au Laboratoire Charles Fabry, IOTA,
Orsay

Président

Manuel JOFFRE

Directeur de Recherche au Laboratoire d'Optique et
Biosciences, Ecole Polytechnique, Palaiseau

Examineurs

Alain BARTHLEMY

Directeur de Recherche à XLIM, Limoges

François LACOMBE

Directeur Scientifique de Mauna Kea Technologies, Paris.

Frédéric LOURADOUR

Professeur à XLIM, Limoges

Invité

Jean Paul CHAMBARET

Ingénieur au Laboratoire d'Optique Appliquée, Ecole
Polytechnique, Palaiseau

UNIVERSITE DE LIMOGES
ECOLE DOCTORALE Science – Technologie – Santé
FACULTE DES SCIENCES ET TECHNIQUES
INSTITUT DE RECHERCHE XLIM

Thèse N° 63-2006

Thèse
pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université de LIMOGES

Discipline : “Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique”
Spécialité : “Optique”

présentée et soutenue par
Mickaël LELEK

le 23 Octobre 2006

*Caractérisation d'impulsions brèves
Mise en forme temporelle et spectrale pour une
application à l'endomicroscopie bi-photonique*

Thèse dirigée par Frédéric Louradour

JURY :

Rapporteurs

John DUDLEY

Professeur au Laboratoire d'Optique P. M. Duffieux,
FEMTO-ST, Besançon

Patrick GEORGES

Directeur de Recherche au Laboratoire Charles Fabry, IOTA,
Orsay

Président

Manuel JOFFRE

Directeur de Recherche au Laboratoire d'Optique et
Biosciences, Ecole Polytechnique, Palaiseau

Examineurs

Alain BARTHLEMY

Directeur de Recherche à XLIM, Limoges

François LACOMBE

Directeur Scientifique de Mauna Kea Technologies, Paris.

Frédéric LOURADOUR

Professeur à XLIM, Limoges

Invité

Jean Paul CHAMBARET

Ingénieur au Laboratoire d'Optique Appliquée, Ecole
Polytechnique, Palaiseau

Remerciements

Les travaux qui sont présentés dans ce manuscrit de thèse ont en majeure partie été réalisés à l'Institut de recherche XLIM ; je remercie Monsieur Alain Barthélémy, chef du groupe Photonique de l'Institut de m'avoir accueilli au sein de son équipe et de m'avoir permis de travailler dans de très bonnes conditions. Je lui exprime ma reconnaissance pour ses nombreux et bons conseils et pour les diverses discussions scientifiques que nous avons pu partager.

Je suis particulièrement sensible à l'honneur que me font Messieurs les membres du jury en acceptant de lire et de juger ce mémoire : Monsieur François Lacombe, Astronome et Directeur Scientifique de Mauna Kea Technologies, Monsieur Manuel Joffre, Directeur de Recherche CNRS au Laboratoire d'Optique et Biosciences de Palaiseau, Monsieur Patrick Georges, Directeur de Recherche CNRS à l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée de Palaiseau, Monsieur John Dudley, Professeur à l'Université de Besançon, Monsieur Jean-Paul Chambaret, Ingénieur de recherche CNRS au Laboratoire d'Optique Appliquée de Palaiseau, Monsieur Alain Barthélémy Directeur de Recherche CNRS à l'institut de recherche XLIM à l'Université de Limoges et Monsieur Frédéric Louradour, Professeur à l'Université de Limoges.

J'adresse mes remerciements à Monsieur Patrick Georges et à Monsieur John Dudley pour avoir accepté d'être les deux rapporteurs de mon travail.

Je remercie sincèrement Monsieur Claude Froehly qui, par son enthousiasme, sa rigueur et sa passion pour la physique, a rendu nos nombreuses discussions scientifiques très enrichissantes.

J'exprime ma profonde gratitude à mon directeur de thèse, Monsieur Frédéric Louradour, pour les précieux conseils qu'il a pu m'apporter en encadrant ce travail, pour m'avoir transmis une partie de ses vastes connaissances, pour la patience dont il a fait preuve et pour la confiance qu'il m'a témoignée.

Je tiens également à remercier Messieurs Vincent Couderc et Dominique Pagnoux, Chargés de Recherche CNRS au laboratoire XLIM, pour leur aide et leur disponibilité.

Mes remerciements s'adressent aussi à Messieurs Levon Mouradian et Tigran Mansuryan de l'Université de Yerevan (Arménie) et Messieurs Bertrand Viellerobe et François Lacombe, de la société Mauna Kea Technologies, qui, de par leur collaboration, m'ont permis de mener à bien les travaux ici présentés.

Je remercie également Madame Brigitte Mercier, Messieurs Gilles Chériaux et Jean-Paul Chambaret du Laboratoire d'Optique Appliquée pour avoir mis à ma disposition les installations nécessaires à mes recherches.

Bien sur, il n'est pas question d'oublier dans mes remerciements tous ceux avec qui j'ai partagé des moments de vie : Bertrand, Johan (roi de la gaffe), Paul-Henri, Jérôme, Eric.

Un grand merci à toute ma famille pour son soutien.

Laure, merci pour les heures que tu as passées à me lire et à me corriger. Sans toi, tout cela n'aurait pas été possible.

SOMMAIRE GENERAL

INTRODUCTION GENERALE	7
PARTIE A : CARACTERISATION TEMPORELLE MONOCOUP	10
CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART DES TECHNIQUES D'AUTOCORRELATION MONOCOUP	14
I. Autocorrélation monocoup par génération de seconde harmonique	16
II. Autocorrélation monocoup par fluorescence à deux photons	17
CHAPITRE 2 : AUTOCORRELATEUR A FIBRE OPTIQUE A CŒUR LIQUIDE FLUORESCENT ...	21
I. Fibre à cœur liquide à gaine microstructurée	22
II. Architecture de l'autocorrélateur à fibre à cœur liquide	25
III. Caractérisation d'impulsions courtes	26
IV. Discussion et perspectives.....	27
CHAPITRE 3 : ETAT DE L'ART DES TECHNIQUES DE CARACTERISATION D'IMPULSIONS BREVES PAR INTERFEROMETRIE SPECTRALE	30
I. Interférométrie spectrale avec référence	31
II. Interférométrie spectrale sans référence.....	35
III. Technique SPIDER.....	39
CHAPITRE 4 : INTERFEROMETRIE SPECTRALE A DECALAGE RESOLUE TEMPORELLEMENT : TECHNIQUE SPIRIT	44
I. Principe de SPIRIT	45
II. Expérience numérique.....	48
III. Caractérisation d'un oscillateur femtoseconde.....	58
IV. Caractérisation d'une chaîne femtoseconde basse cadence.....	64
CHAPITRE 5 : INTERFEROMETRIE SPECTRALE A DECALAGE A DEUX DIMENSIONS: SPIRIT 2D	71
I. Présentation de SPIRIT 2D	72
II. Caractérisation d'impulsions femtosecondes récurrentes	75
III. SPIRIT 2D monocoup.....	85
CONCLUSION ET PERSPECTIVES A	95
PARTIE B : DEVELOPPEMENT D'UN ENDOMICROSCOPE NON-LINEAIRE	98
CHAPITRE 6 : NOUVELLES MICROSCOPIES-ÉTAT DE L'ART	102
I. Microscopies non-linéaires	104
II. Microscopie par fibre optique	110
CHAPITRE 7 : ACHEMINEMENT D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES PAR FIBRE OPTIQUE.	115

I.	Effets physiques intervenant lors de la propagation d'une impulsion femtoseconde dans une fibre optique	116
II.	Acheminement d'impulsion femtosecondes par fibre optique sans mise en forme préalable du signal.....	123
III.	Acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique avec mise en forme temporelle du signal.....	127
IV.	Acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique avec mise en forme temporelle et spectrale du signal.....	130

CHAPITRE 8 : CONCEPTION ET OPTIMISATION D'UN ENDOMICROSCOPE BI-PHOTONIQUE

.....		133
I.	Présentation générale de l'endomicroscope bi-photonique.....	134
II.	Evaluation des performances	138
III.	Optimisations possibles.....	145

CHAPITRE 9 : REALISATION D'UN ENDOMICROSCOPE BI-PHOTONIQUE..... 149

I.	Acheminement d'impulsions femtosecondes en bout de guide d'image.....	150
II.	Mise au point de l'endomicroscope bi-photonique	156

CONCLUSION ET PERSPECTIVES B..... 160

CONCLUSION GENERALE..... 162

ANNEXES 165

ANNEXE A : NOTATIONS, CONVENTIONS ET FORMULAIRE..... 166

ANNEXE B : GENERALITES SUR L'AUTOCORRELATION D'ORDRE 2 - LIMITATIONS..... 168

ANNEXE C : METHODES DE RECONSTRUCTION INDIRECTE METTANT EN ŒUVRE UN ALGORITHME ITERATIF 172

ANNEXE D : EVOLUTIONS DE LA TECHNIQUE SPIDER..... 177

ANNEXE E : DISPERSION CHROMATIQUE DE SECOND ORDRE ET AUTOMODULATION DE PHASE..... 178

ANNEXE F : LIGNE TREACY 183

ANNEXE G : INTENSITE DE FLUORESCENCE BI-PHOTONIQUE..... 185

ANNEXE H : DEFINITION DU GUIDE D'IMAGE ADAPTE POUR UNE IMAGERIE A DEUX PHOTONS 188

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES ET NETOGRAPHIE..... 198

Introduction Générale

Le développement de sources lasers femtosecondes a permis la génération d'impulsions lumineuses brèves voire ultra-brèves. Le processus de génération d'impulsions courtes étant aujourd'hui bien maîtrisé, de telles sources sont aujourd'hui commercialisées et peuvent ainsi trouver leur application dans divers domaines : la physique moléculaire, la photochimie (contrôle cohérent), la biologie (imagerie non-linéaire). L'intérêt de ses sources réside dans la durée (10^{-12} - 10^{-15} secondes), la largeur du spectre (plusieurs dizaines de nanomètres) et le fort niveau crête (10^{+3} - 10^{+12} watts) des impulsions générées. Ces caractéristiques sont convoitées pour de nombreuses applications mettant en oeuvre l'interaction entre la lumière et la matière. Par exemple, le domaine de la photochimie utilise ses impulsions pour privilégier une réaction chimique afin de créer de nouveaux produits.

La plupart des applications utilisant ces impulsions brèves dépendent fortement de la brièveté et de la structure temporelle de ces impulsions. En effet, les phénomènes physiques et chimiques étudiés se déroulent sur des échelles de temps courtes (quelques picosecondes ou femtosecondes). Les technologies femtosecondes ont aujourd'hui atteint une certaine maturité, mais il reste encore de nombreuses opportunités d'évolution tant au niveau de la caractérisation des impulsions brèves qu'au niveau de leurs applications. La brièveté des phénomènes empêche d'une part l'utilisation de procédés de mesure directs tels que les détecteurs intégrateurs standard même rapides, ce qui conduit à développer de nouvelles techniques originales et fiables de caractérisation d'impulsions. D'autre part, cette brièveté associée à de forts niveaux d'intensité crête induit la génération de nouveaux phénomènes non-linéaires applicables à de nouveaux domaines de recherche tels que l'imagerie non-linéaire en biologie par exemple.

Ce travail de thèse traite de ces deux sujets : d'une part la caractérisation d'impulsions courtes et d'autre part le développement d'un microscope non-linéaire destiné à l'imagerie endoscopique par fluorescence à deux photons. Je tiens à préciser que les travaux se rapportant à chacun des deux sujets ont été menés en parallèle.

La première partie (Partie A, Chapitres 1-2-3-4-5) de ce mémoire est relative à la caractérisation temporelle d'impulsions lumineuses pico- et femtosecondes uniques. J'ai développé deux techniques originales pour la caractérisation monocoup d'impulsions brèves et ultra-brèves :

- La première technique permet la caractérisation d'impulsions brèves et ultra-brèves grâce à un autocorrélateur monocoup dont l'élément non-linéaire central est une fibre à cœur liquide innovante. L'intercorrélacion non-linéaire entre deux impulsions contra-propagatives répliquées de l'impulsion à caractériser s'appuie sur le processus d'absorption à deux photons dans une solution fluorescente. Cette solution remplit le cœur central d'une fibre microstructurée de nouvelle génération.
- La seconde technique de caractérisation temporelle monocoup qui est présentée dans ce manuscrit se nomme SPIRIT (SPectral Interferometry Resolved In Time). Elle permet la caractérisation cohérente en amplitude et en phase d'impulsions femtosecondes. Cette méthode s'appuie sur le principe de l'interférométrie à décalage appliqué au domaine spectral. L'originalité de la méthode réside dans la procédure de mesure des battements spatio-temporels qui résultent de la superposition de deux répliquées du spectre de l'impulsion à caractériser décalées spectralement et temporellement. Cette procédure de mesure résolue en temps est purement passive. Elle consiste à prélever un échantillon temporel des battements à l'aide d'une porte temporelle non-linéaire entièrement optique déclenchée par une fraction de l'impulsion étudiée. Le résultat de cet échantillonnage temporel est une figure d'interférence spectrale stationnaire unidimensionnelle. La position des maxima et minima d'intensité de ces franges spectrales est directement reliée à la phase spectrale du signal étudié. Un traitement numérique, basé sur les Transformées de Fourier rapides, permet dans une dernière étape de reconstruire le module et la phase du spectre de l'impulsion.

La première configuration de SPIRIT monocoup basée sur l'analyse d'un interférogramme unidimensionnel a par la suite, évoluée vers la technique SPIRIT 2D (SPIRIT deux dimensions). Cette dernière permet l'affichage des battements spatio-temporels non plus suivant la seule dimension spectrale, mais suivant deux dimensions (une dimension temporelle et une dimension spectrale). La calibration de la technique s'en retrouve alors simplifiée et la précision de la reconstruction de l'impulsion est améliorée. Par cette technique, il est possible d'optimiser la durée et la structure des impulsions sans avoir recourt obligatoirement à un algorithme de reconstruction.

La seconde partie (Partie B, Chapitres 6-7-8-9) de ce mémoire est relative à l'emploi de ces impulsions brèves et intenses en imagerie tissulaire non-linéaire. Aujourd'hui, il existe des microscopes non-linéaires qui permettent grâce à leur confocalité naturelle l'imagerie tridimensionnelle haute résolution. L'utilisation d'un rayonnement infrarouge permet d'imager en profondeur les tissus biologiques. Cependant, ces techniques innovantes bien que très efficaces impliquent la biopsie, l'anesthésie ou même la dissection des êtres vivants étudiés. Ces opérations limitent la réactivité des analyses microscopiques. Un intérêt évident s'est alors porté sur les techniques endoscopiques parce qu'elles évitent de prélever et donc de tuer à court terme les cellules prélevées. L'idée est donc d'allier l'endoscopie et la microscopie non-linéaire.

Cette partie présente le développement d'un endomicroscope non-linéaire. Ce travail s'inscrit dans le cadre d'une collaboration entre le laboratoire XLIM et la société Mauna Kea

Technologies qui maîtrise l'endomicroscopie linéaire (commercialisation d'un endomicroscope linéaire nommé "Cell-Vizio"). Grâce au choix d'une architecture adaptée, il a été possible de produire des impulsions femtosecondes en bout de l'endoscope MKT, ce qui a ensuite permis l'enregistrement d'images endoscopiques non-linéaires à faible puissance moyenne déposée sur les tissus.

PARTIE A : CARACTERISATION TEMPORELLE
MONOCOUP

SOMMAIRE : PARTIE A

Partie A : Caractérisation Temporelle Monocoup	10
---	-----------

CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART DES TECHNIQUES D'AUTOCORRELATION MONOCOUP

I. Autocorrélation monocoup par génération de seconde harmonique	16
1) Introduction	16
2) Production d'un retard variable par inclinaison du front d'énergie	16
3) Production d'un retard variable par inclinaison du front d'onde	17
II. Autocorrélation monocoup par fluorescence à deux photons	17

CHAPITRE 2 : AUTOCORRELATEUR A FIBRE OPTIQUE A CŒUR LIQUIDE FLUORESCENT ...

I. Fibre à cœur liquide à gaine microstructurée	22
1) Nécessité de la microstructuration	22
2) Réalisation d'une fibre à coeur liquide à gaine microstructurée	23
a. Caractéristiques opto-géométriques de la fibre	23
b. Préparation de la fibre	23
3) Excitation de la fibre à cœur liquide	24
II. Architecture de l'autocorrélateur à fibre à cœur liquide	25
III. Caractérisation d'impulsions courtes	26
IV. Discussion et perspectives	27

CHAPITRE 3 : ETAT DE L'ART DES TECHNIQUES DE CARACTERISATION D'IMPULSIONS

BREVES PAR INTERFEROMETRIE SPECTRALE

I. Interférométrie spectrale avec référence	31
1) Généralités	31
2) Principe de l'interférométrie spectrale avec impulsion de référence	31
3) Algorithme de reconstruction de la phase spectrale	32
II. Interférométrie spectrale sans référence	35
1) Interférométrie à décalage appliquée au domaine spatial	35
2) Interférométrie à décalage appliquée au domaine spectral	36
III. Technique SPIDER	39
1) Principe de SPIDER	39
2) Production du décalage spectral	40
3) Enregistrement de l'interférogramme à décalage	42
4) Analyse de l'interférogramme SPIDER	43
5) Conclusion	43

CHAPITRE 4 : INTERFEROMETRIE SPECTRALE A DECALAGE RESOLUE

TEMPORELLEMENT : TECHNIQUE SPIRIT

I. Principe de SPIRIT	45
II. Expérience numérique	48

1) Présentation du modèle.....	48
2) Forme des battements spatio-temporels dans des cas simples.....	49
a. $\Delta\omega \neq 0, \tau = 0, \varphi(\omega) = 0$	49
b. $\Delta\omega = 0, \tau \neq 0, \varphi(\omega) = 0$	49
c. $\Delta\omega \neq 0, \tau \neq 0, \varphi(\omega) = 0$	50
d. $\Delta\omega \neq 0, \tau \neq 0, \varphi(\omega) = \alpha.\omega^2$	51
e. $\Delta\omega \neq 0, \tau \neq 0, \varphi(\omega) = \beta.\omega^3$	52
3) Exemples de reconstruction d'impulsion dans des cas complexes.....	52
a. Impulsion présentant une modulation de phase spectrale d'ordre 3	52
b. Impulsion présentant une modulation de phase spectrale d'ordre 2 et d'ordre 3.....	53
c. Impulsion double	54
4) Evaluation des paramètres optimaux.....	55
a. Choix du retard τ	55
b. Evaluation du décalage spectral $\Delta\omega$ optimal	56
III. Caractérisation d'un oscillateur femtoseconde.....	58
1) Présentation du montage expérimental.....	58
2) Calibration de SPIRIT	60
a. Calibration du spectroscopie.....	60
b. Calibration du décalage spectral $\Delta\omega$	60
c. Calibration du retard τ	61
3) Résultats expérimentaux.....	61
a. Mesure des impulsions directement issues de l'oscillateur.....	61
b. Mesure de la phase spectrale ajoutée par un bloc de verre dispersif.....	63
IV. Caractérisation d'une chaîne femtoseconde basse cadence.....	64
1) Caractérisation d'une impulsion unique de durée égale à 100 fs.....	64
a. Reconstruction d'une impulsion laser.....	65
b. Dérèglement de la ligne de recompression de la chaîne amplifiée	65
c. Comparaison entre SPIDER, SPIRIT et un autocorrélateur d'ordre 2.....	66
i. Reconstruction d'une impulsion par la méthode SPIDER et comparaison avec SPIRIT	66
ii. Comparaison des durées fournies par SPIDER, par SPIRIT et par l'autocorrélateur	67
2) Caractérisation d'impulsions de 30fs	68
a. Schéma expérimental.....	68
b. Mesure d'une impulsion	69

CHAPITRE 5 : INTERFEROMETRIE SPECTRALE A DECALAGE A DEUX DIMENSIONS:

SPIRIT 2D..... 71

I. Présentation de SPIRIT 2D.....	72
1) Introduction	72
2) Principe général.....	73

3)	Algorithme de reconstruction	73
II.	Caractérisation d'impulsions femtosecondes récurrentes	75
1)	Présentation du montage expérimental	75
2)	Amplitude de balayage de la porte	77
3)	Calibration des axes de la figure bidimensionnelle	77
4)	Calibration du décalage spectral.....	78
5)	Reconstruction de la phase spectrale ajoutée par un morceau de verre	78
6)	Reconstruction de structures de phase spectrale d'ordre supérieur	80
a.	Masquage de phase spectrale.....	80
b.	Phase spectrale d'ordre 3	81
c.	Phase spectrale d'ordre supérieur	83
III.	SPIRIT 2D monocoup.....	85
1)	Principe.....	85
2)	Dispositif expérimental	86
3)	Exemples d'enregistrements bidimensionnels produits par SPIRIT 2D monocoup	88
4)	Calibrations	89
a.	Calibration de l'axe spectral	89
b.	Calibration de l'axe temporel	89
c.	Calibration du décalage spectral	90
5)	Caractérisation de l'impulsion issue de la chaîne amplifiée	90
6)	Caractérisation d'impulsions dispersées produites par variation du compresseur de la chaîne amplifiée	92
7)	Caractérisation d'une impulsion complexe	93
	CONCLUSION ET PERSPECTIVES A	95

CHAPITRE 1 : Etat de l'art des techniques d'autocorrélation monocoup

L'apparition des sources lasers impulsionnelles délivrant des impulsions courtes et ultracourtes (10^{-12} - 10^{-15} s) a rendu nécessaire le développement de techniques spécifiques de caractérisation temporelle à ces échelles de temps. En effet, lorsque la durée de l'impulsion à caractériser est égale ou inférieure à une picoseconde, la détection directe du signal par un photo-détecteur rapide est impossible. Les temps de réponse des capteurs optoélectroniques les plus rapides sont en effet au mieux égaux voire plutôt supérieurs à la durée du signal à analyser (*).

Il s'est alors avéré nécessaire de développer des techniques indirectes, pour lesquelles le temps de réponse du détecteur n'est plus un paramètre limitant. Le signal optique à caractériser va alors subir des transformations plus ou moins complexes suivant la méthode utilisée. La mesure finale ne porte pas directement sur le profil temporel de l'impulsion mais sur une autre grandeur physique reliée plus ou moins directement à ce profil. Le profil temporel recherché n'est finalement obtenu qu'après une dernière étape qui est dans la plupart des cas une étape numérique.

Un très grand nombre de techniques de caractérisation temporelle d'impulsions brèves a été proposé à ce jour à tel point qu'il semble extrêmement difficile de toutes les présenter dans le cadre d'un manuscrit de thèse. J'ai par conséquent choisi de restreindre le présent état de l'art (ainsi que celui du chapitre 3 intitulé "Etat de l'art des techniques de caractérisation d'impulsions brèves par interférométrie spectrale") aux techniques dites "monocoup" applicables à une impulsion unique car cela correspond au cas des techniques originales que j'ai moi-même développées pendant mes trois années de thèse. J'ai également volontairement limité mon étude au cas des dispositifs passifs et ne nécessitant pas de signal de référence indépendant du signal à mesurer.

Ce premier chapitre est relatif à un rapide état de l'art des techniques d'autocorrélation d'ordre 2 monocoup. Je présenterai ainsi les méthodes d'autocorrélation monocoup par génération de seconde harmonique dans un cristal non-linéaire et par absorption à deux photons dans un colorant laser.

(*) A ce jour, les composants optoélectroniques les plus rapides sont les caméras à balayage de fente et les photodiodes ultra-rapides associées à des oscilloscopes large bande. Les performances des caméras à balayage de fente en terme de résolution temporelle sont typiquement de 200 fs en monocoup (exemple de la FESCA-200 C6138 commercialisée par Hamamatsu). A hautes cadences, la résolution temporelle de ce type de détecteur ne descend pas en dessous de 500 fs.

En ce qui concerne les photodiodes ultra-rapides, la résolution temporelle de ce type de matériel atteint aujourd'hui au mieux une résolution de 7 ps (modèle PX-D7, Newport) sur une bande spectrale assez large (700-1650 nm). Néanmoins, la résolution temporelle de ces photodiodes peut être diminuée mais les performances des oscilloscopes associés limiteront toujours la mesure.

Préambule : La présentation des propriétés usuelles de la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 a été reportée en annexe B. Cette annexe discute également de certaines limitations intrinsèques à la caractérisation d'impulsions par analyse de la trace d'autocorrélation.

I. Autocorrélation monocoup par génération de seconde harmonique

1) Introduction

La mesure de la trace d'autocorrélation d'ordre deux d'impulsions récurrentes haute cadence ne pose pas de problème. Elle est obtenue le plus souvent à l'aide d'un autocorrélateur basé sur une architecture de type Michelson comprenant un cristal doubleur de fréquence et un réflecteur mobile [1]. Ce balayage mécanique impose un retard lentement variable entre les deux bras de l'interféromètre, ce qui conduit à l'affichage au cours du temps de la trace d'autocorrélation à haute cadence.

La mesure de la trace d'autocorrélation sur tir unique est une tâche plus difficile. On ne peut alors plus procéder à l'affichage de la trace d'autocorrélation par balayage mécanique. La disponibilité d'un retard variable nécessaire à la production de la fonction d'autocorrélation passe alors par un dispositif plus complexe. Ce retard est alors codé dans une dimension spatiale supplémentaire rendue disponible par une modification de l'architecture de l'appareil.

2) Production d'un retard variable par inclinaison du front d'énergie

Dans ce but, K. Oba et al. [2] ont repris l'architecture de type Michelson d'un autocorrélateur intensimétrique standard fonctionnant par génération de seconde harmonique. Un réseau de diffraction est alors positionné dans un des bras du Michelson à la place du réflecteur mobile, l'autre bras étant muni de façon traditionnelle d'un réflecteur fixe. Ceci produit une inclinaison du front d'énergie de l'impulsion voyageant dans le bras du Michelson où se trouve le réseau de diffraction. Ceci permet de créer un retard τ fonction de la variable d'espace transverse x perpendiculairement à l'axe optique z .

Note : Cet effet d'inclinaison du front d'énergie pour créer un retard variable spatialement sera rediscuté dans le chapitre 5 lors de la présentation de la technique SPIRIT 2D. Les conditions précises d'utilisation du réseau de diffraction seront alors discutées.

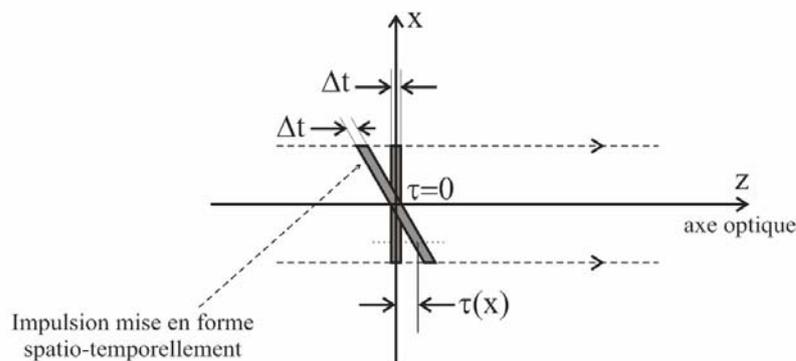


Figure 1 : Schéma de principe de l'autocorrélation monocoup par inclinaison du front d'énergie

Les deux impulsions qui émergent du Michelson sont focalisées dans un cristal non-linéaire doubleur de fréquence. L'impulsion dont le front d'énergie est incliné va alors échantillonner l'impulsion jumelle non mise en forme spatio-temporellement à des instants

différents, fonctions de la position transverse x . Les faisceaux sont préalablement élargis afin de profiter au mieux de cette coordonnée transverse.

La trace d'autocorrélation qui apparaît à la fréquence harmonique est alors détectée transversalement, après filtrage, par imagerie sur une simple caméra CCD ou sur une barrette linéaire.

Note : Une possibilité de simplification de ce dispositif a été proposée en remplaçant le cristal non-linéaire et le détecteur linéaire par un détecteur CCD non-linéaire fonctionnant par absorption à deux photons [3].

3) *Production d'un retard variable par inclinaison du front d'onde*[4-6]

Une autre solution plus simple consiste à incliner fortement les deux faisceaux qui émergent du Michelson sans mise en forme spatio-temporelle préalable. Les faisceaux sont élargis afin de profiter de la coordonnée transverse. L'inclinaison des faisceaux produit là aussi une inclinaison relative des fronts d'énergie. Le principe de mesure de la trace d'autocorrélation est alors identique à celui du paragraphe précédent.

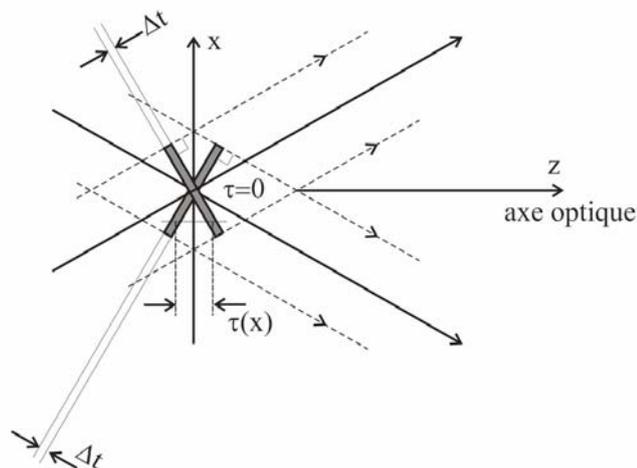


Figure 2 : Schéma de principe de l'autocorrélation monocoup par inclinaison du front d'onde

Cette technique est plus simple à mettre en œuvre que la technique de K. Oba car elle nécessite simplement un élargissement spatial du faisceau incident avant dédoublement. Cependant, il est nécessaire d'avoir des faisceaux de profil transverse régulier (idéalement plat) et de connaître parfaitement l'angle entre les deux faisceaux incidents en interaction.

II. Autocorrélation monocoup par fluorescence à deux photons

Dès 1967, Giordmaine a développé un autocorrélateur monocoup mettant en œuvre l'absorption bi-photonique [7]. Cette technique a longtemps été la seule qui permette de mesurer des impulsions picosecondes. Le principe et la mise en œuvre de cette méthode sont plus simples que ceux des autocorrélateurs monocoups présentés au paragraphe précédent.

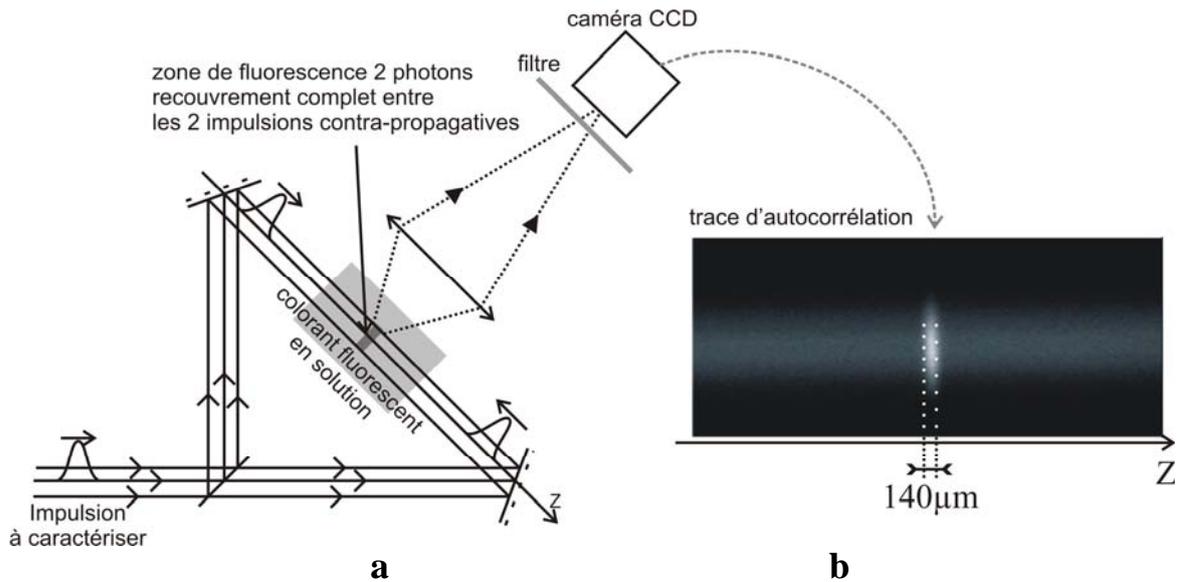


Figure 3 : a. Schéma de principe de l'autocorrélateur par fluorescence à deux photons développé par Giordmaine. b. Surintensité de fluorescence caractéristique de la trace d'autocorrélation.

Cette technique consiste tout d'abord à dédoubler l'impulsion à analyser à l'aide d'un interféromètre de type Sagnac. Une cuve contenant une solution alcoolique fluorescente est placée au centre de cet interféromètre. Cette solution fluoresce par absorption à deux photons (une variante de ce dispositif utilise un milieu non-linéaire gazeux à la place d'un liquide fluorescent [8]). Les deux impulsions contra-propagatives produites par l'interféromètre se croisent dans la cuve. Dans la zone de recouvrement des impulsions (au voisinage de $z=0$ et $t=0$ sur la figure 4), la trace d'autocorrélation de l'impulsion s'affiche alors spatialement le long de l'axe de propagation. Il suffit alors d'enregistrer transversalement l'image de la zone fluorescente. On obtient un maximum de signal de fluorescence à deux photons au centre de la cuve, là où les deux impulsions se recouvrent totalement. La figure 4 schématise la formation de la trace d'autocorrélation en fonction du taux de recouvrement des impulsions contra-propagatives.

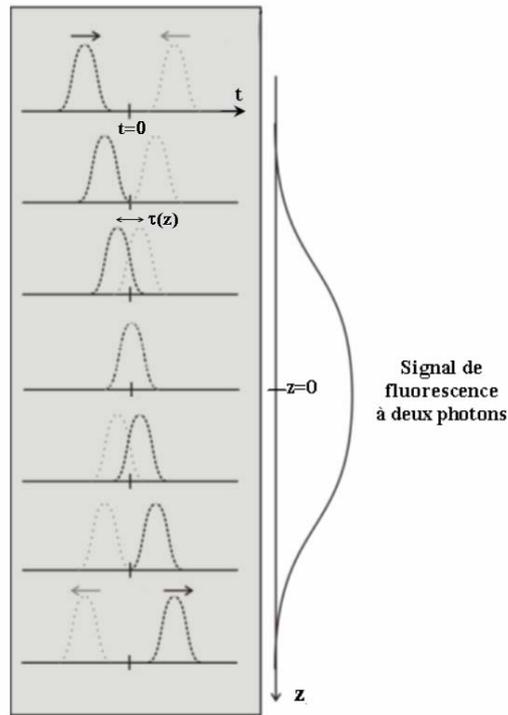


Figure 4 : Principe de l'autocorrélateur développé par Giordmaine. τ représente le retard temporel entre les deux impulsions jumelles. τ est fonction de la position z le long de l'axe optique : $\tau(z)$. Ce retard est nul lorsque les deux impulsions se recouvrent complètement, c'est à dire au centre de la cuve en $z=0$

Le retard entre les impulsions est alors fonction de la variable spatiale longitudinale z :

$$\tau(z) = \frac{2 \cdot n}{c} \cdot z$$

n étant l'indice de groupe de la solution, c la célérité de la lumière dans le vide et z l'abscisse le long de l'axe optique repérée par rapport au point de croisement des impulsions ($z=0$).

Chaque impulsion crée sa propre fluorescence à deux photons même si les impulsions sont éloignées l'une de l'autre. Ceci produit alors un fond continu qui s'ajoute à la trace d'autocorrélation. On montre que le signal mesuré est proportionnel à :

$$S(\tau) \propto 1 + 2 \cdot G^{(2)}(\tau) \quad (1.1)$$

$G^{(2)}(\tau)$ représente la fonction d'autocorrélation recherchée.

Dans cette expression, le chiffre 1 est associé au fond continu créé par chaque impulsion. Le rapport théorique entre le fond continu et le maximum de la trace d'autocorrélation est par conséquent égal à 3.

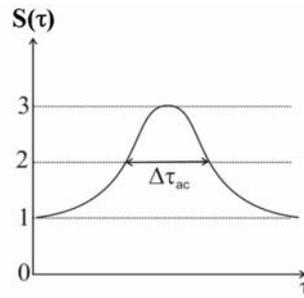


Figure 5 : Allure du signal de fluorescence à deux photons produit par le dispositif proposé par Giordmaine.

Ce dispositif qui ne comprend pas d'élément mobile est applicable pour la mesure d'impulsions récurrentes haute cadence ou en régime monocoup.

La principale difficulté liée à l'utilisation de cette technique est de disposer de deux faisceaux contra-propagatifs parfaitement alignés et confondus au centre de la cuve. Pour faciliter cet alignement, les faisceaux peuvent être spatialement élargis ce qui a tendance à réduire fortement la sensibilité du dispositif. Ceci est d'autant plus pénalisant que les fluorophores bi-photoniques disponibles possèdent des sections efficaces d'absorption à deux photons très faibles (typiquement de l'ordre de 10^{-48} à 10^{-50} cm⁴.s/photon). Pour ces raisons, ce dispositif n'est plus utilisé de nos jours.

Pour contourner les limitations précédentes, partant de l'architecture proposée par Giordmaine, la cuve contenant la solution non-linéaire peut alors être remplacée par une fibre microstructurée dont le cœur central creux a été rempli avec la même solution non-linéaire. Cette configuration innovante que j'ai développée durant ma thèse sera présentée au chapitre suivant. Nous allons voir qu'elle permet effectivement de supprimer le problème de l'alignement et d'accroître fortement la sensibilité du dispositif tout en conservant la simplicité intrinsèque de l'architecture originelle.

CHAPITRE 2 : Autocorrélateur à fibre optique à cœur liquide fluorescent

Dans ce chapitre, je présente un autocorrélateur intensimétrique d'ordre 2 original dont l'élément non-linéaire est une fibre microstructurée à cœur creux rempli d'une solution colorée par un fluorophore bi-photonique. Le principe de l'appareil est identique à celui proposé par Giordmaine en 1967 [7] (voir Chapitre 1, II). La cuve à colorant initialement utilisée est ici remplacée par une fibre optique à cœur liquide de nouvelle génération. L'utilisation de cette fibre permet alors de résoudre les problèmes d'alignement. Le fait de confiner la lumière dans le cœur de la fibre optique permet aussi d'accroître fortement la sensibilité du dispositif.

I. Fibre à cœur liquide à gaine microstructurée

1) Nécessité de la microstructuration

Lors de la réalisation d'une fibre optique à cœur liquide, on peut envisager de partir d'un tube creux standard fait de silice pure et homogène. La paroi en silice du capillaire d'indice proche de 1,45 constitue alors la gaine optique de la fibre. La lumière est guidée dans la partie centrale remplie de liquide. Dans une structure aussi simple, le guidage de la lumière s'effectue par réflexion totale à l'interface gaine silice homogène–cœur liquide. La condition de réflexion totale impose alors de travailler avec un liquide haut indice supérieur à 1,45.

Ainsi, par exemple, partant d'un capillaire creux fait de silice pure et homogène ($n_{\text{gaine}}=1.4606$) de diamètre de cœur $a=7 \mu\text{m}$, sachant que l'on souhaite pour notre application une propagation monomode sur le mode LP_{01} à la longueur d'onde de travail de 800 nm, on montre qu'il faut travailler avec un indice de cœur égal à $n_{\text{cœur}}=1,4613$. Cette valeur correspond à une fréquence normalisée $V = \frac{2 \cdot \pi}{\lambda} \cdot a \cdot \sqrt{n_{\text{cœur}}^2 - n_{\text{gaine}}^2}$ proche de 2,403 ce qui assure alors le caractère monomode de la fibre et évite les problèmes de dispersion intermodale.

Il n'est alors pas possible d'utiliser n'importe quel liquide tel que l'éthanol qui est d'indice bas ($n_{\text{éthanol}}=1,365$). Il faut employer un mélange contenant au moins un liquide haut indice (alcool benzylique d'indice 1,540 par exemple, éthylène glycol, etc ...) afin de régler la valeur de l'indice du mélange à la valeur souhaitée.

J'ai procédé à des essais dans ce sens mais ils se sont révélés infructueux. La fibre alors réalisée présente des pertes linéiques importantes ($\approx 20 \text{ dB/m}$) dues à l'absorption du liquide haut indice. Nous n'avons pas trouvé de liquide transparent à 800 nm et d'indice de réfraction haut supérieur à 1,45 ce qui nous a conduit à abandonner cette architecture basée sur l'emploi d'un capillaire creux standard en silice pure et homogène.

La solution que nous avons adoptée pour résoudre ce problème fut de diminuer l'indice effectif de la gaine optique en utilisant une fibre de nouvelle génération à gaine microstructurée air-silice entourant un cœur creux. La fibre microstructurée que nous avons utilisée présentait un indice effectif de gaine égal à $n_{\text{gaine effectif}} \approx 1,25$ [9] ce qui nous a permis d'utiliser de l'éthanol parfaitement transparent à 800 nm (absorption de l'éthanol à 800 nm $\approx 0.2 \text{ dB/m}$).

2) Réalisation d'une fibre à cœur liquide à gaine microstructurée

Préambule : La fibre qui est présentée ici a été réalisée à XLIM par Pierre Viale, Sébastien Février, Jean-Louis Auguste, Jean- Marc Blondy.

a. Caractéristiques opto-géométriques de la fibre

Cette fibre a été fabriquée à Limoges par une technique d'assemblage et d'étirage. Sur la figure 1.a, une photo de la fibre microstructurée utilisée dans notre application est présentée.

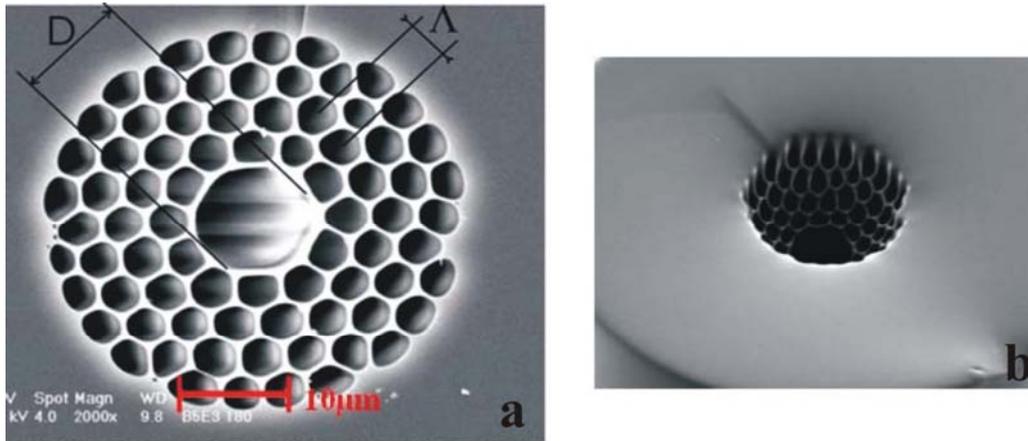


Figure 1 : a. Photographie de la face d'entrée de la fibre microstructurée utilisée $D=11 \mu\text{m}$, $\Lambda = 4 \mu\text{m}$.
b. Extrémité de la fibre microstructurée après chauffage localisé.

La gaine composite optique de cette fibre est constituée de trous d'air et d'interstices de silice. Cette fibre possède un diamètre de cœur de $11 \mu\text{m}$ et un interstice entre les trous périphériques de $4 \mu\text{m}$.

b. Préparation de la fibre

Pour ne remplir que le cœur central de liquide, il est nécessaire de fermer les trous d'air périphériques. A partir d'une soudeuse commerciale, si on chauffe les extrémités de la fibre, en optimisant les paramètres de chauffage, il est possible de dilater le cœur central et de refermer les alvéoles d'air périphériques. Cet échauffement des extrémités de la fibre n'a lieu que sur quelques microns et permet ainsi d'avoir en bout de fibre une sorte d'entonnoir, qui va permettre par la suite de ne remplir que le cœur central de la fibre. Une photo d'une des extrémités de la fibre est présentée sur la figure 1.b.

Pour remplir le cœur de la fibre avec la solution fluorescente, il suffit de tremper une des extrémités préparées dans un récipient contenant la solution de colorant laser (dans notre cas éthanol+coumarine 515) et de laisser l'autre extrémité à l'air libre. Le liquide se met alors à monter par ascension capillaire uniquement dans le cœur de la fibre. Après quelques minutes, lorsque le liquide a complètement rempli le cœur (voir figure 2), l'extrémité restée dans l'air est placée à son tour dans un récipient contenant la solution alcoolique.

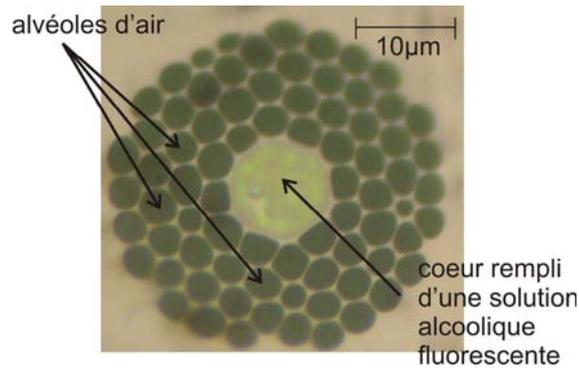


Figure 2 : Photographie obtenue au microscope optique de la fibre microstructurée après remplissage du cœur central uniquement avec la solution alcoolique de colorant laser

L'ascension par capillarité du liquide à l'intérieur du cœur creux de la fibre microstructurée permet d'évacuer l'air présent dans le cœur central de la fibre. Lorsque le liquide a atteint l'autre extrémité de la fibre, il faut évacuer les dernières bulles d'air qui pourraient diminuer l'efficacité d'injection. Pour cela, une simple pression est exercée à l'autre extrémité de la fibre.

3) *Excitation de la fibre à cœur liquide*

Pour exciter cette fibre à cœur liquide, différentes techniques de couplage de la lumière se sont présentées :

- La première est l'excitation directe : la lumière de longueur d'onde 800 nm est injectée directement dans le cœur liquide de la fibre grâce à un objectif ou une lentille d'injection.
- La seconde est indirecte : on injecte la lumière dans une première fibre standard monomode à 800 nm, de 15 cm de long et de diamètre de cœur voisin de 4 µm. Le couplage de la lumière infrarouge dans la fibre à cœur liquide se fait alors par proximité en approchant le cœur de la fibre standard face au cœur de la fibre à cœur liquide.

Dans la première méthode, les extrémités de la fibre liquide sont placées dans des cuves remplies de la même solution que celle qui compose le cœur de la fibre. Les cuves sont fermées hermétiquement par un hublot de qualité optique. A l'aide d'un objectif de microscope, on injecte le faisceau laser dans le cœur de la fibre. Cependant, l'interface air/cuve conduit à des aberrations sphériques qui dégradent l'injection de la lumière. De plus, l'apparition d'un effet thermique résiduel au point focal de l'objectif, malgré la bonne transparence du liquide, pose également le problème de la dégradation de l'injection. A cause de ces deux effets néfastes, il est difficile d'avoir un bon couplage de la lumière dans le cœur de la fibre. Cette solution d'injection a donc été abandonnée au profit de la seconde méthode.

Dans ce cas, le faisceau laser qui est issu d'un oscillateur laser Ti : Saphir est tout d'abord couplé à l'intérieur d'une fibre monomode à 800 nm. L'autre extrémité de la fibre standard est collée sur un support pouvant se déplacer suivant les 3 directions et est plongée dans une cuve non hermétique contenant la solution d'éthanol et de coumarine 515. La fibre à cœur liquide, purgée de toutes bulles d'air, est plongée dans la solution alcoolique, face à l'extrémité immergée de la fibre monomode. Le couplage de la lumière dans la fibre à cœur liquide se fait donc par proximité et permet ainsi d'éviter tout échauffement du liquide et d'éviter toute détérioration de l'extrémité immergée de la fibre microstructurée à cœur creux. Durant une

étape préliminaire consacrée à la caractérisation de la fibre à cœur liquide, l'autre extrémité de cette fibre a été plongée dans un récipient de colorant fermé hermétiquement par une lame couvre objet. Grâce à ce récipient, nous pouvons observer le champ proche du mode guidé dans la fibre étudiée. Une photo du mode guidé par cette structure est représentée sur la figure 3.a :

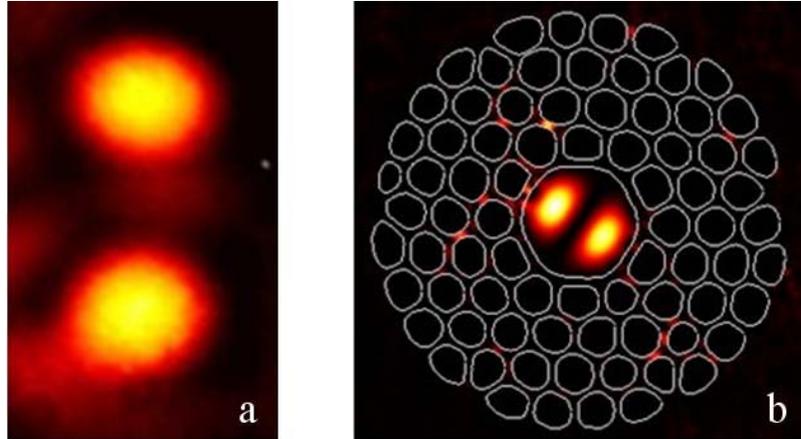


Figure 3 : a. Mode LP₁₁ observé expérimentalement. b. Mode calculé numériquement.

Expérimentalement, on obtient un guidage monomode sur le mode bi-lobé LP₁₁ à 830 nm plutôt que sur le mode gaussien LP₀₁. Ce résultat plutôt surprenant a été confirmé par modélisation numérique (figure 3.b) [9]. L'étude numérique menée par Pierre Viale et Sébastien Février permet d'expliquer pourquoi seul le mode LP₁₁ est guidé. Ce modèle numérique de calcul des modes est basé sur la méthode des éléments finis. Il prend en compte la réflexion totale à l'interface coeur-gaine mais aussi la réflexion de Bragg due à l'effet de bande interdite photonique dans la gaine microstructurée. La prise en compte simultanée de ces deux effets semble pouvoir expliquer pourquoi le mode LP₁₁ est le seul à être guidé dans la fibre, le mode LP₀₁ étant plus à fuite.

II. Architecture de l'autocorrélateur à fibre à cœur liquide

Conformément à l'architecture préconisée par Giordmaine, l'impulsion à caractériser est envoyée dans un interféromètre de type Sagnac qui permet de créer deux impulsions jumelles contra-propagatives :

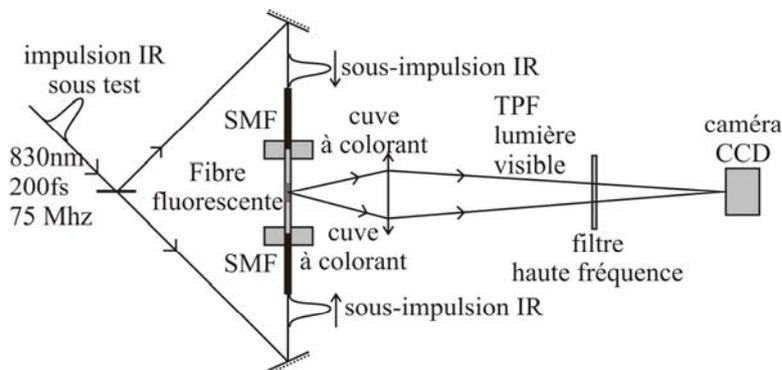


Figure 4 : Montage expérimental de l'autocorrélateur à fibre à cœur liquide. SMF : fibre monomode standard ; TPF : fluorescence à deux photons

Ces impulsions jumelles voyageant dans chacun des bras de l'interféromètre sont couplées dans la fibre à cœur liquide via les fibres standard. La puissance lumineuse sur chacun des bras de l'interféromètre avant injection dans les fibres standard est de 313 mW. La puissance couplée dans ces fibres standard est de 145 mW et la puissance couplée dans 20 cm de fibre à cœur liquide est de seulement 500 μ W. La forte perte d'énergie lors du couplage de l'énergie entre la fibre standard et la fibre à cœur liquide peut s'expliquer par le fait que l'intégrale de recouvrement entre le mode LP_{01} de la fibre standard et le mode LP_{11} de la fibre à cœur liquide est pratiquement nulle.

Lorsque le couplage des impulsions dans la fibre à cœur liquide est réalisé, la solution alcoolique qui compose le cœur se met à fluorescer par absorption à deux photons. Cette fluorescence reste parfaitement stable même après plusieurs heures d'utilisation. Le spectre de fluorescence à deux photons de la coumarine est représenté sur la figure 5.a. La fibre à cœur liquide s'illumine d'une couleur verte centrée sur la longueur d'onde de 500 nm, comme il est montré sur la figure 5.b :

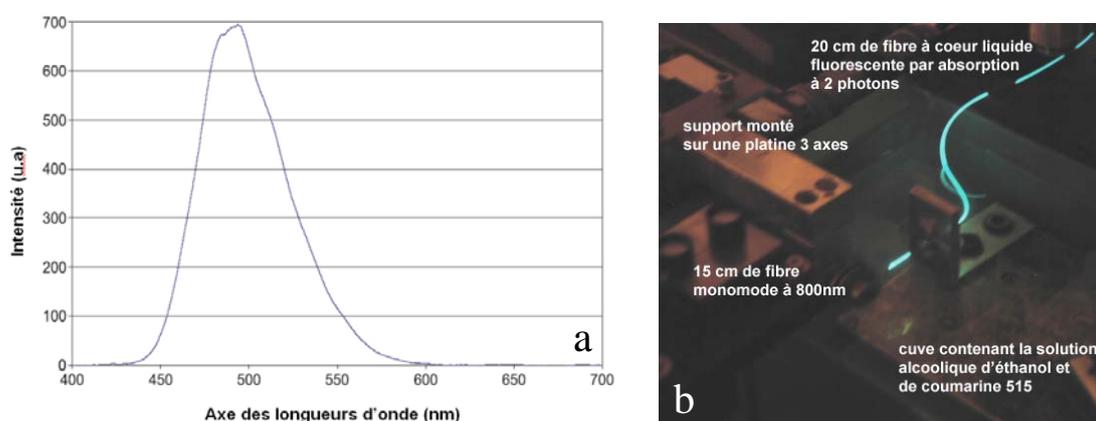


Figure 5 : a. Spectre de fluorescence à deux photons de la coumarine 515. b. Photo de la fibre à cœur liquide excitée par un rayonnement infrarouge. La fluorescence à deux photons reste observable pendant plusieurs heures.

III. Caractérisation d'impulsions courtes

Au centre de la fibre à cœur liquide, à l'endroit où les impulsions contra-propagatives se recouvrent, on voit apparaître une surintensité de fluorescence à deux photons. Cette surintensité non-linéaire est caractéristique de la trace d'autocorrélation. Le rapport observé expérimentalement entre le maximum de signal et le fond continu est proche de 3.

A l'endroit où la trace d'autocorrélation apparaît, la gaine polymère de la fibre est retirée préalablement sur quelques centimètres. Pour limiter le nombre d'interfaces air-verre, un liquide adaptateur d'indice est placé sur la zone dénudée de la fibre à cœur liquide. Perpendiculairement à la trace d'autocorrélation, on place un système d'imagerie sensible à la lumière de fluorescence non-linéaire verte. Ce système est composé d'un objectif à immersion d'ouverture numérique égale à 0,2, plongé dans le liquide adaptateur d'indice. A la suite, on place un filtre réjecteur haute fréquence et une caméra CCD, comme il est montré sur la figure 4.

L'image de la trace d'autocorrélation ainsi obtenue est représentée sur la figure 6.a. La durée de la fonction d'autocorrélation mesurée à mi-hauteur en intensité se déduit de la longueur de la trace de fluorescence bi-photonique de manière identique à ce qui se passerait pour l'autocorrélateur initialement proposé par Giordmaine. Pour obtenir cette information, il

est nécessaire, au préalable, de calibrer le grandissement du système imageur. Connaissant la dimension longitudinale de la trace d'autocorrélation à mi-hauteur en intensité et la vitesse de groupe de la lumière dans la solution alcoolique, on détermine la durée à mi-hauteur en intensité $\Delta\tau_{ac}$ de la fonction d'autocorrélation.

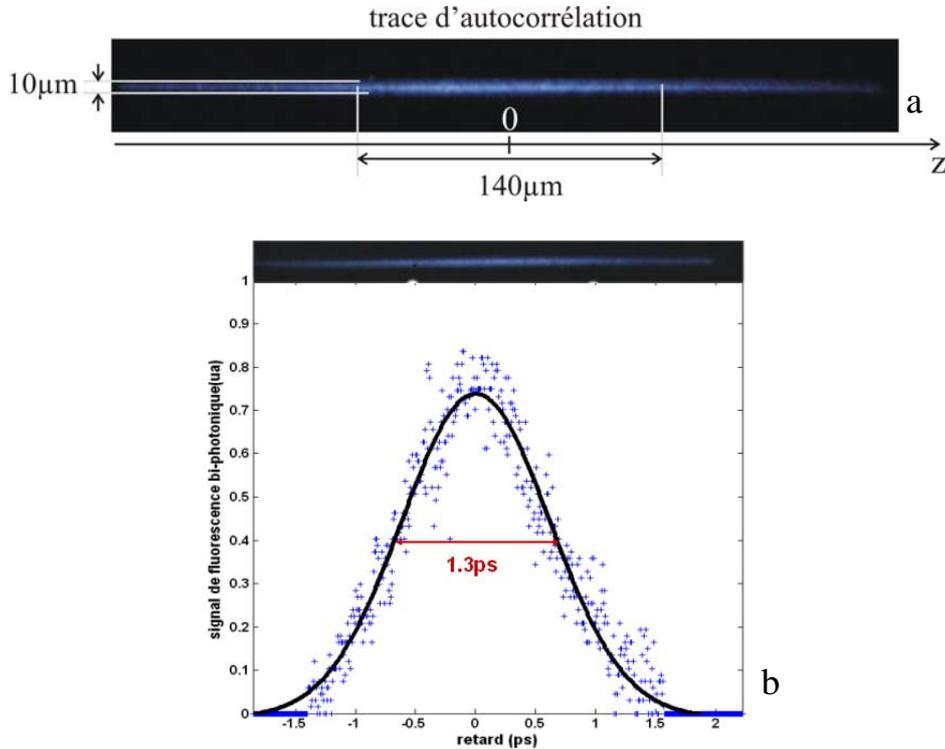


Figure 6 : a. Image de la trace d'autocorrélation. b. En bleu, profil intensimétrique expérimental obtenu à partir de l'image de la trace d'autocorrélation. En noir, extrapolation gaussienne approchant au mieux le profil expérimental.

La durée $\Delta\tau_{ac}$ de la trace d'autocorrélation est égale à 1,3 ps. A partir de cette valeur et dans l'hypothèse d'un profil gaussien (voir annexe B), on extrait la durée à mi-hauteur en intensité de l'impulsion à caractériser : $\Delta t = 1\text{ps}$

IV. Discussion et perspectives

On constate que la durée de l'impulsion mesurée par l'autocorrélateur fibré est différente de la durée de l'impulsion initiale mesurée en sortie de l'oscillateur ($\Delta t_o \approx 200\text{fs}$). Cet écart est dû à la dispersion chromatique et à la non-linéarité des fibres présentes dans le montage.

Les impulsions incidentes de durée proche de 200 fs vont tout d'abord être sujettes aux effets non-linéaires d'automodulation de phase, puis à la dispersion de vitesse de groupe (voir annexe E) lors de la propagation dans les 15 centimètres de la première fibre monomode à 800 nm ($D=120 \text{ ps}\cdot\text{nm}^{-1}\cdot\text{km}^{-1}$, $n_2=3,2\cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$). Les impulsions vont s'élargir spectralement puis temporellement, pour atteindre une durée d'impulsion mesurée expérimentalement en sortie de fibre standard égale à 700 fs. Avant la formation de la trace d'autocorrélation, les impulsions voyagent dans 10 centimètres de fibre à cœur liquide de dispersion supposée voisine de celle de l'éthanol ($D_{\text{éthanol}} \approx 110 \text{ ps}\cdot\text{nm}^{-1}\cdot\text{km}^{-1}$). Dans cette partie, les impulsions ne sont plus soumises aux effets non-linéaires puisque la puissance moyenne dans ce tronçon de fibre est beaucoup plus faible (500 μW) ; de plus les impulsions

sont temporellement plus longues. Sous l'effet de la dispersion chromatique de l'éthanol, les impulsions vont encore s'élargir temporellement, pour atteindre la durée finale égale à 1 ps à l'endroit de la formation de la trace d'autocorrélation.

Une étude numérique prenant en compte les effets physiques principaux (le modèle de propagation d'impulsions dans les fibres sera présenté dans la partie B, au chapitre 7) a permis de vérifier ce comportement. Les principaux résultats de simulation sont représentés en figure 7.b.

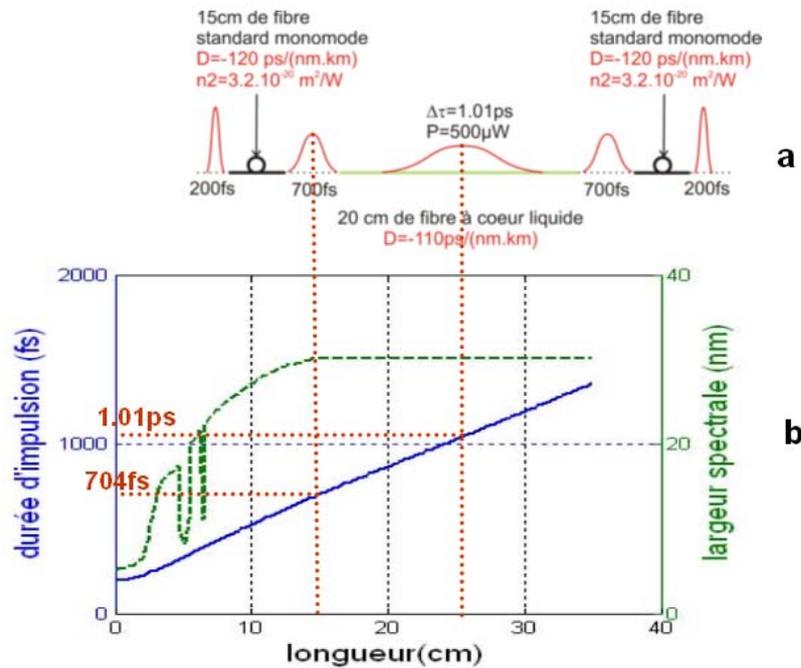


Figure 7 : a. Evolution schématique de l'impulsion. b. Résultats de la simulation.

On obtient donc un bon accord entre les résultats issus de la simulation et les résultats expérimentaux.

Au-delà de cette démonstration de principe qui a consisté en la mesure d'une impulsion de durée picoseconde, la mesure d'impulsions femtosecondes nécessiterait la suppression ou tout du moins un fort raccourcissement des fibres standard d'amenée qui sont responsables de l'allongement de l'impulsion. Par exemple, le couplage dans 4 cm de fibre à cœur liquide d'une impulsion de 200 fs associée à une puissance moyenne de 0,5 mW correspondrait seulement à un élargissement temporel de 5% de la durée initiale. De plus, cette configuration permettrait simultanément la mesure d'impulsions de durée aussi longue que 1 ps.

Notre autocorrélateur s'est révélé être un dispositif extrêmement sensible du fait du fort confinement de la puissance laser dans le cœur liquide de la fibre. En effet, seulement 500 μW de puissance lumineuse sont nécessaires pour mesurer une trace d'autocorrélation alors que plusieurs milliwatts sont préconisés dans le cas d'un autocorrélateur massif usuel fonctionnant par génération de seconde harmonique. L'utilisation de la technologie fibrée permet d'éliminer les problèmes d'alignement des faisceaux que l'on rencontre pour tout autocorrélateur standard. Un autre avantage de cet appareil est qu'il ne comprend pas d'élément mobile. Ceci signifie que cet appareil peut être employé pour la mesure d'impulsions uniques comme pour la mesure d'impulsions récurrentes à haut taux de répétition.

La sensibilité énergétique de ce type d'autocorrélateur peut encore être améliorée, en diminuant par exemple le diamètre du cœur liquide de la fibre.

L'utilisation d'un mélange de plusieurs colorants lasers en solution ayant des bandes d'absorption complémentaires permettrait d'avoir un autocorrélateur utilisable sur une très large bande spectrale.

On peut également envisager de remplacer la fibre à cœur liquide par une fibre polymère dont le cœur central serait dopé par de la rhodamine B par exemple [10]. Ceci permettrait de renforcer la robustesse et la facilité d'utilisation du dispositif.

L'interféromètre volumique de type Sagnac peut lui aussi être remplacé par une architecture "tout-fibrée", ce qui permettrait d'avoir un autocorrélateur ultra-compact.

Pour un gain supplémentaire de compacité, le système d'imagerie utilisé dans notre expérience peut être remplacé par une barrette linéaire CCD directement collée à la fibre fluorescente.

L'ensemble de ces évolutions permettrait alors d'aboutir à un dispositif bas coût, présentant de très nombreux avantages, particulièrement adapté notamment au secteur des télécommunications.

**CHAPITRE 3 : Etat de l'art des techniques de
caractérisation d'impulsions brèves par
interférométrie spectrale**

Les techniques d'autocorrélation présentées dans les chapitres précédents ne permettent pas d'accéder de façon certaine au profil exact de l'impulsion (voir paragraphe B.2 de l'annexe B). Ceci est encore plus vrai lorsque l'on travaille en régime de détection monocoup pour lequel seule l'autocorrélation d'ordre deux est concrètement applicable. La détermination de l'amplitude et de la phase instantanées et celle de la phase spectrale d'une impulsion unique nécessitent d'utiliser des méthodes plus sophistiquées.

Dans ce but, deux classes de méthodes monocoup existent : celles pour lesquelles le profil cohérent de l'impulsion est obtenu à partir des données expérimentales par traitement numérique direct et celles qui mettent en oeuvre un algorithme itératif.

Dans la première catégorie, on trouve presque exclusivement des méthodes basées sur le principe de l'interférométrie spectrale. Le présent chapitre est un état de l'art de ce type de méthode de caractérisation. C'est à cette catégorie qu'appartient la méthode que j'ai développée pendant ma thèse. La présentation de cette technique nommée SPIRIT dont l'application en régime de détection monocoup est originale fait l'objet des Chapitres 4 et 5.

J'ai choisi de reporter en annexe C la présentation des techniques monocoups mettant en oeuvre un algorithme itératif. Ces méthodes sont en effet très éloignées de la technique que j'ai moi-même développée de par leur principe et leurs modalités de mise en oeuvre. Je citerai tout de même la plus célèbre d'entre elles : la méthode FROG (Frequency Resolved Optical Gating) [11]. Cette technique est applicable en régime de détection monocoup et porte alors le nom de GRENOUILLE (GRating Eliminated No-nonsense Observation of Ultrafast Incident Laser Light E-fields) [12, 13]. Cette méthode consiste à combiner un autocorrélateur monocoup (voir Chapitre 1, paragraphe I) avec un spectroscopie imageur. La trace d'autocorrélation est alors résolue spectralement ce qui procure une trace spectro-temporelle bidimensionnelle dont l'allure dépend de la structure cohérente de l'impulsion. Cette trace est analysée numériquement par un algorithme itératif qui converge plus ou moins rapidement vers le profil cohérent réel de l'impulsion. La présentation des principales caractéristiques de FROG et de GRENOUILLE fait l'objet de l'annexe C.

I. Interférométrie spectrale avec référence [14-17]

1) Généralités

Lors de la caractérisation d'une impulsion femtoseconde, il est particulièrement avantageux de travailler dans le domaine spectral car le spectre de l'impulsion est large ce qui n'entraîne généralement pas de problème de résolution. La mesure de l'amplitude spectrale $|\tilde{E}(\omega)|$ est triviale à l'aide d'un spectroscopie standard muni d'un détecteur intensimétrique. La mesure de la phase spectrale $\varphi(\omega)$ est une tâche plus délicate comme nous allons le voir.

2) Principe de l'interférométrie spectrale avec impulsion de référence

Le principe de l'interférométrie spectrale avec référence consiste à faire interférer le spectre de l'impulsion courte à caractériser, représenté par son amplitude complexe $\tilde{E}(\omega) = |\tilde{E}(\omega)| \cdot \exp(i\varphi(\omega))$, avec le spectre d'une impulsion courte de référence parfaitement connue, représenté par son amplitude complexe : $\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega) = |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)| \cdot \exp(i\varphi_{\text{ref}}(\omega))$. Ces deux impulsions doivent posséder une bande spectrale commune. Les structures spatiales des signaux sont strictement identiques (faisceaux monomodes ; même direction de propagation).

Ce mélange interférométrique conduit à la formation de franges d'interférence dont la structure dépend de la phase $\varphi(\omega)$ recherchée.

Lorsque les deux impulsions interférentes sont synchrones, la densité spectrale de puissance mesurée par le spectroscopie s'écrit de la façon suivante :

$$\begin{aligned} S(\omega) &= |\tilde{E}(\omega) + \tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|^2 = |\tilde{E}(\omega)|^2 + |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|^2 + 2.\Re[\tilde{E}(\omega).\tilde{E}_{\text{ref}}^*(\omega)] \\ &= |\tilde{E}(\omega)|^2 + |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|^2 + 2.|\tilde{E}(\omega)|.|\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|.\cos[\varphi(\omega) - \varphi_{\text{ref}}(\omega)] \end{aligned} \quad (3.1)$$

$|\tilde{E}(\omega)|$ est obtenu à partir de la mesure de la densité spectrale de puissance $S_o(\omega)$ en l'absence du signal de référence : $|\tilde{E}(\omega)| = \sqrt{S_o(\omega)}$. $\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)$ est supposé parfaitement connu en amplitude ($|\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|$) et en phase ($\varphi_{\text{ref}}(\omega)$). Dans l'expression de $S(\omega)$, $\varphi(\omega)$ est alors la seule inconnue. La détermination de $\varphi(\omega)$ à partir de $S(\omega)$ rencontre cependant un problème lié à la parité de la fonction cosinus. $\varphi(\omega) = \varphi_{\text{ref}}(\omega) + \Delta\varphi(\omega)$ et $\varphi'(\omega) = \varphi_{\text{ref}}(\omega) - \Delta\varphi(\omega)$ correspondent en effet au même signal $S(\omega)$ de telle sorte qu'il n'est pas possible de lever l'ambiguïté entre ces deux solutions.

Pour contourner cette difficulté, nous allons voir qu'il suffit d'ajouter une surmodulation rapide du pas des franges. Cette surmodulation est obtenue en retardant les impulsions l'une par rapport à l'autre d'une quantité τ connue très supérieure à la durée des impulsions. Dans ce cas, l'expression (3.1) s'écrit :

$$\begin{aligned} S(\omega) &= |\tilde{E}(\omega) + \tilde{E}_{\text{ref}}(\omega).\exp(-i.\omega.\tau)|^2 = |\tilde{E}(\omega)|^2 + |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|^2 + 2.\Re[\tilde{E}(\omega).\tilde{E}_{\text{ref}}^*(\omega).\exp(i.\omega.\tau)] \\ &= |\tilde{E}(\omega)|^2 + |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|^2 + 2.|\tilde{E}(\omega)|.|\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|.\cos[\omega.\tau + \varphi(\omega) - \varphi_{\text{ref}}(\omega)] \end{aligned} \quad (3.2)$$

La fonction $S(\omega)$ représente un spectre cannelé dont le profil intensimétrique est représenté en figure 1. L'ambiguïté sur le signe de la phase de l'impulsion à caractériser est alors levée. D'autre part, nous allons voir que l'existence de cette surmodulation permet de mettre en oeuvre une technique mathématique de filtrage de Fourier pour extraire de façon efficace la valeur de $\varphi(\omega)$.

3) *Algorithme de reconstruction de la phase spectrale*

Cet algorithme de reconstruction a été développé initialement par Takeda [18]. Il consiste dans une première étape à calculer la Transformée de Fourier du spectre cannelé $S(\omega)$:

$$\begin{aligned}
 f(t) &= \text{TF}^{-1}[S(\omega)] \\
 &= \text{TF}^{-1} \left[(\tilde{E}(\omega) + \tilde{E}_{\text{ref}}(\omega).e^{-i\omega\tau}).(\tilde{E}(\omega) + \tilde{E}_{\text{ref}}(\omega).e^{-i\omega\tau})^* \right] \\
 &= \text{TF}^{-1} \left[(\tilde{E}(\omega) + \tilde{E}_{\text{ref}}(\omega).e^{-i\omega\tau}) \right] \otimes \text{TF}^{-1} \left[\tilde{E}^*(\omega) + \tilde{E}_{\text{ref}}^*(\omega).e^{i\omega\tau} \right] \\
 &= (E(t) + E_{\text{ref}}(t - \tau)) \otimes \left(\text{TF}^{-1} \left[\tilde{E}^*(\omega) \right] + \text{TF}^{-1} \left[\tilde{E}_{\text{ref}}^*(\omega) \right] \otimes \delta(t + \tau) \right) \\
 &= (E(t) + E_{\text{ref}}(t - \tau)) \otimes (E^*(-t) + E_{\text{ref}}^*(-t) \otimes \delta(t + \tau)) \\
 &= (E(t) + E_{\text{ref}}(t - \tau)) \otimes (E^*(-t) + E_{\text{ref}}^*(-t - \tau)) \\
 &= E(t) \otimes E^*(-t) + E_{\text{ref}}(t - \tau) \otimes E_{\text{ref}}^*(-t - \tau) + E(t) \otimes E_{\text{ref}}^*(-t - \tau) + E_{\text{ref}}(t - \tau) \otimes E^*(-t)
 \end{aligned}
 \tag{3.3}$$

Cette fonction $f(t)$ contient trois lobes comme il est présenté à la figure 2.

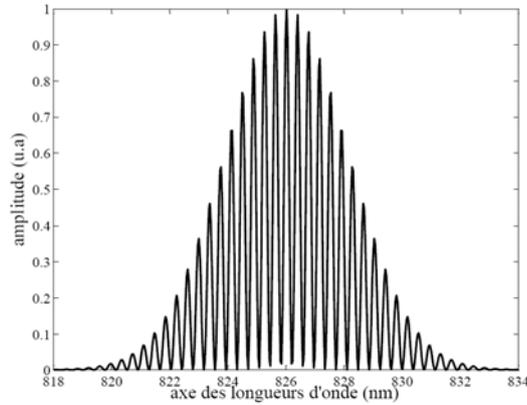


Figure 1 : Exemple de spectre cannelé résultant de la superposition de deux champs électriques temporellement retardés l'un de l'autre

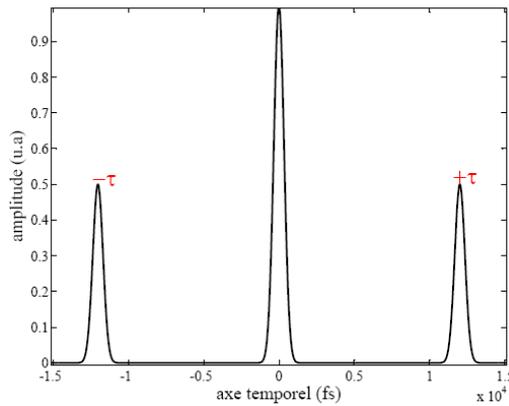


Figure 2 : Transformée de Fourier inverse du spectre cannelé

Sur cette figure :

- Le lobe principal centré sur $t=0$ est caractéristique de la Transformée de Fourier inverse du terme non interférométrique de l'expression (3.2). Ce terme permet d'obtenir l'information sur l'amplitude spectrale. Si on vient filtrer le lobe central qui

a pour expression $E(t) \otimes E^*(-t) + E_{\text{ref}}(t - \tau) \otimes E_{\text{ref}}^*(-t - \tau)$ et qu'on lui applique une nouvelle Transformée de Fourier, on obtient :

$$\begin{aligned}
 & \text{TF}[E(t) \otimes E^*(-t) + E_{\text{ref}}(t - \tau) \otimes E_{\text{ref}}^*(-t - \tau)] \\
 &= \text{TF}[E(t) \otimes E^*(-t)] + \text{TF}[E_{\text{ref}}(t - \tau) \otimes E_{\text{ref}}^*(-t - \tau)] \\
 &= \text{TF}[E(t)].\text{TF}[E^*(-t)] + \text{TF}[E_{\text{ref}}(t - \tau)].\text{TF}[E_{\text{ref}}^*(-t - \tau)] \\
 &= \tilde{E}(\omega).\tilde{E}^*(\omega) + \tilde{E}_{\text{ref}}(\omega).e^{-i.\omega.\tau}.\tilde{E}_{\text{ref}}^*(\omega).e^{i.\omega.\tau} \\
 &= |\tilde{E}(\omega)|^2 + |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|^2
 \end{aligned}$$

(3.4)

Connaissant $|\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|^2$, on peut en déduire l'amplitude spectrale de l'impulsion étudiée $|\tilde{E}(\omega)|^2$ par soustraction.

- Les deux lobes satellites centrés sur $t = -\tau$ et $t = +\tau$ sont caractéristiques de la Transformée de Fourier inverse du terme interférométrique de l'expression (3.2). Par exemple, le lobe situé à droite, centré autour de τ représente l'intercorrélacion des champs électriques temporels de l'équation (3.3).

Par filtrage d'un de ces deux lobes satellites, on peut obtenir l'information sur la différence de phase spectrale $\varphi(\omega) - \varphi_{\text{ref}}(\omega)$. En effet, si on fait la Transformée de Fourier du lobe de droite, on obtient :

$$\begin{aligned}
 & \text{TF}[E_{\text{ref}}(t - \tau) \otimes E^*(-t)] \\
 &= \text{TF}[E_{\text{ref}}(t - \tau)].\text{TF}[E^*(-t)] \\
 &= \tilde{E}_{\text{ref}}(\omega).\tilde{E}^*(\omega).\exp(-i.\omega.\tau) \\
 &= |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|.\exp(-i.\varphi_{\text{ref}}(\omega)).|\tilde{E}(\omega)|.\exp(i.\varphi(\omega)).\exp(-i.\omega.\tau) \\
 &= |\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)|.|\tilde{E}(\omega)|.\exp[-i.(\varphi_{\text{ref}}(\omega) - \varphi(\omega) + \omega.\tau)]
 \end{aligned}
 \tag{3.5}$$

L'argument $\varphi(\omega) - \varphi_{\text{ref}}(\omega) - \omega.\tau$ de cette quantité est alors obtenu numériquement.

L'opération de filtrage du lobe satellite précédente requière de travailler avec un interférogramme dont le nombre de franges est important. Dans le cas inverse (interférogramme contenant un nombre très faible de franges) les lobes satellites et le lobe central se recouvrent ce qui ne permet pas d'isoler efficacement le lobe satellite.

Connaissant le délai de groupe entre les deux impulsions et la phase de l'impulsion de référence, on peut alors en déduire la phase de l'impulsion à caractériser par simple soustraction.

Cette technique de caractérisation qui ne comporte pas d'étape non-linéaire se montre être très sensible énergétiquement. Elle présente tous les avantages inhérents aux techniques interférométriques.

L'emploi de cette technique est cependant limité car il est nécessaire de disposer d'une impulsion référence de spectre suffisamment large et parfaitement connue ce qui est rare.

II. Interférométrie spectrale sans référence

La technique d'interférométrie spectrale sans référence est une transposition des techniques d'interférométrie spatiale à décalage.

1) Interférométrie à décalage appliquée au domaine spatial

Cette technique a pour but de déterminer la phase spatiale d'une onde monochromatique centrée autour de ω_0 non plane. Le principe de cette méthode est schématisé sur la figure 3.

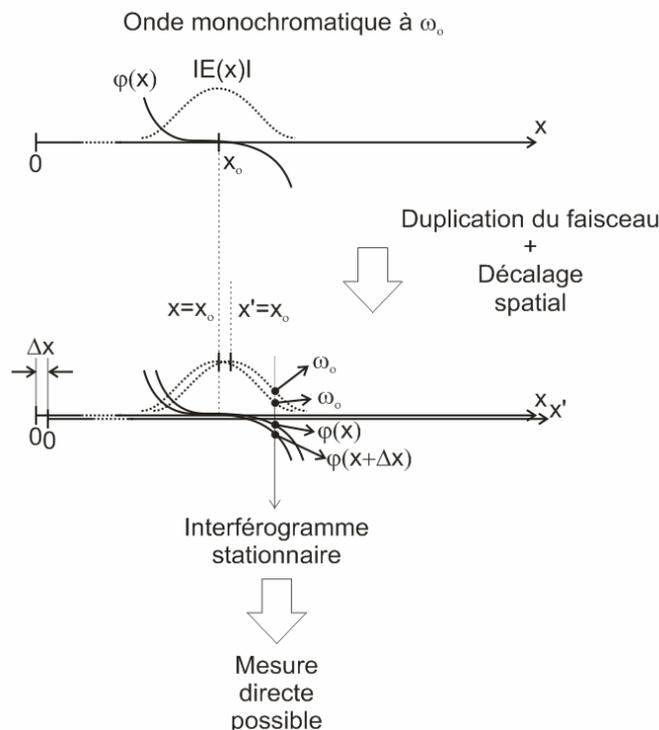


Figure 3 : Principe de l'interférométrie à décalage appliquée au domaine spatial

Dans un interféromètre, on dédouble le faisceau à caractériser pour former deux faisceaux jumeaux. Lors de la recombinaison des faisceaux en sortie d'interféromètre, on impose un décalage spatial entre ceux-ci. Chaque faisceau produit alors un éclairissement respectivement égal à $I(x)$ et $I(x + \Delta x)$ sur un plan d'observation (Ox, Oy). Δx représente la valeur du décalage spatial. Par la suite, Δx est supposé petit. Le décalage spatial introduit entre les deux ondes engendre alors, sur ce plan d'observation, des interférences spatiales dont l'amplitude et l'intensité s'écrivent :

$$\begin{aligned}
 E_{\text{total}}(x) &= |E(x + \Delta x)| \cdot \exp(i\varphi(x + \Delta x)) + |E(x)| \cdot \exp(i\varphi(x)) \\
 I_{\text{total}}(x) &\propto |E(x + \Delta x) + E(x)|^2 \\
 I_{\text{total}}(x) &\propto |E(x + \Delta x)|^2 + |E(x)|^2 + 2 \cdot |E(x + \Delta x)| \cdot |E(x)| \cdot \cos(\varphi(x + \Delta x) - \varphi(x)) \quad (3.6) \\
 I_{\text{total}}(x) &\approx I(x + \Delta x) + I(x) + 2 \cdot \sqrt{I(x + \Delta x)I(x)} \cos\left(\frac{d\varphi(x)}{dx} \cdot \Delta x\right)
 \end{aligned}$$

Soit finalement :

$$I_{\text{total}}(x) \approx 2 \cdot I(x) \cdot \left(1 + \cos\left[\frac{d\varphi(x)}{dx} \cdot \Delta x\right] \right) \quad (3.7)$$

Dans cette expression, $I(x)$ représente le profil intensimétrique du faisceau. $\varphi(x)$ représente la phase du front d'onde à mesurer. L'interférogramme ainsi obtenu contient l'information sur la dérivée de la phase recherchée. Une surmodulation des franges est généralement ajoutée afin d'éviter l'ambiguïté de phase déjà évoquée au paragraphe précédent. Dans ce cas, la surmodulation est obtenue par simple inclinaison d'un faisceau par rapport à l'autre.

A partir d'un algorithme identique à celui présenté dans le paragraphe précédent, il est possible, connaissant la valeur du décalage spatial Δx , d'en déduire la valeur de la dérivée de la phase spectrale $\frac{d\varphi(x)}{dx}$. Enfin, une simple intégration permet de reconstruire la phase spatiale du faisceau étudié.

Dans l'expression (3.7), on constate que la variable temporelle est absente. Ceci vient du fait que les deux ondes qui interfèrent ont la même fréquence (rayonnements monochromatiques). Ceci permet alors d'obtenir un interférogramme stationnaire facilement détectable à partir d'une caméra standard.

A partir d'un interféromètre à décalage dans le domaine spatial, on peut analyser le front d'onde d'un champ ayant traversé un système optique complexe. Cet interféromètre permet de mesurer les aberrations induites par ce système optique sur l'onde incidente et trouve aujourd'hui son application dans beaucoup de domaines tels que l'astronomie par exemple.

2) Interférométrie à décalage appliquée au domaine spectral

Examinons maintenant la transposition directe du principe précédent au cas de l'interférométrie spectrale. La situation que nous envisageons est décrite par le schéma suivant :

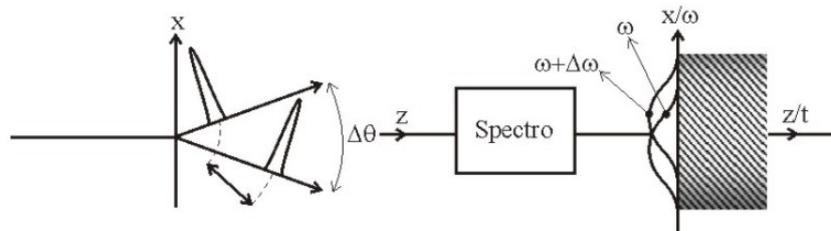


Figure 4 : Principe de la création d'un décalage spectral

On dédouble l'impulsion temporelle avec un interféromètre. Les impulsions jumelles sont ensuite envoyées dans un spectroscopie suivant deux directions différentes comme il est représenté sur la figure 4. Dans le plan spectral, on affiche les spectres jumeaux de l'impulsion à caractériser, légèrement décalés spatialement ce qui entraîne à un endroit donné le décalage spectral $\Delta\omega$. Par la suite, $\Delta\omega$ est supposé petit. En un point donné de l'axe spectral, deux fréquences différentes se superposent et interfèrent conduisant alors à la formation de battements spatio-temporels comme il est montré sur les figures 4 et 5.

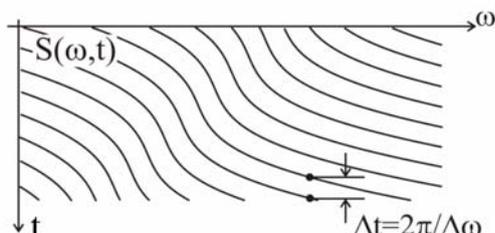


Figure 5 : Schématisation des battements spatio-temporels résultants de l'interférence entre deux spectres répliques légèrement décalés spatialement. Sur cette figure, l'impulsion incidente présente une modulation de phase spectrale complexe

La période temporelle des battements spatio-temporels est alors inversement proportionnelle au décalage spectral introduit entre les spectres répliques. L'ambiguïté sur le signe de la phase, abordée lors de la présentation de la technique d'interférométrie, se pose à nouveau dans cette méthode. On ajoute en plus du décalage spectral entre les deux spectres un retard temporel τ pour surmoduler l'interférogramme. Dans ce cas, l'expression des battements spatio-temporels est la suivante :

$$\begin{aligned}
 S(\omega, t) &= \left| \tilde{E}\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right) e^{+i\omega\frac{\tau}{2}} e^{i\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right)t} + \tilde{E}\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right) e^{-i\omega\frac{\tau}{2}} e^{i\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right)t} \right|^2 \\
 &= \left| \tilde{E}\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right) \right|^2 + \left| \tilde{E}\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right) \right|^2 \\
 &\quad + 2 \left| \tilde{E}\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right) \right| \left| \tilde{E}\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right) \right| \cdot \cos \left[\varphi\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right) + \omega\frac{\tau}{2} + \left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right)t - \left(\varphi\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right) - \omega\frac{\tau}{2} + \left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right)t \right) \right] \\
 &\approx 2 \left| \tilde{E}(\omega) \right|^2 \left[1 + \cos\left(\varphi\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right) - \varphi\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right) + \omega\tau + \Delta\omega t\right) \right]
 \end{aligned}
 \tag{3.8}$$

Cette expression est proche mais différente de l'expression (3.2). Dans cette nouvelle expression, on reconnaît la somme des amplitudes spectrales des deux impulsions jumelles, ainsi qu'un terme interférométrique dans lequel on trouve :

- Un terme dépendant du retard introduit entre les deux impulsions temporelles jumelles : ce terme est à l'origine de la surmodulation.
- Un terme dépendant de la phase spectrale recherchée : $\varphi\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right) - \varphi\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right)$.

Lorsque $\Delta\omega$ est petit, ce terme peut être approximé par :

$$\varphi\left(\omega + \frac{\Delta\omega}{2}\right) - \varphi\left(\omega - \frac{\Delta\omega}{2}\right) \approx \frac{d\varphi}{d\omega} \cdot \Delta\omega = \varphi'(\omega) \cdot \Delta\omega$$

Il vient :

$$S(\omega, t) \approx 2 \left| \tilde{E}(\omega) \right|^2 \left[1 + \cos(\varphi'(\omega) \cdot \Delta\omega + \omega\tau + \Delta\omega \cdot t) \right]$$

- un terme dépendant du temps : $\Delta\omega \cdot t$. Le signal n'est pas stationnaire ce qui constitue une différence majeure avec le cas de l'interférométrie à décalage appliquée au domaine spatial. Le plan d'observation est continûment balayé par un champ d'interférences mobiles dont la périodicité temporelle est égale à $2\pi / \Delta\omega$.

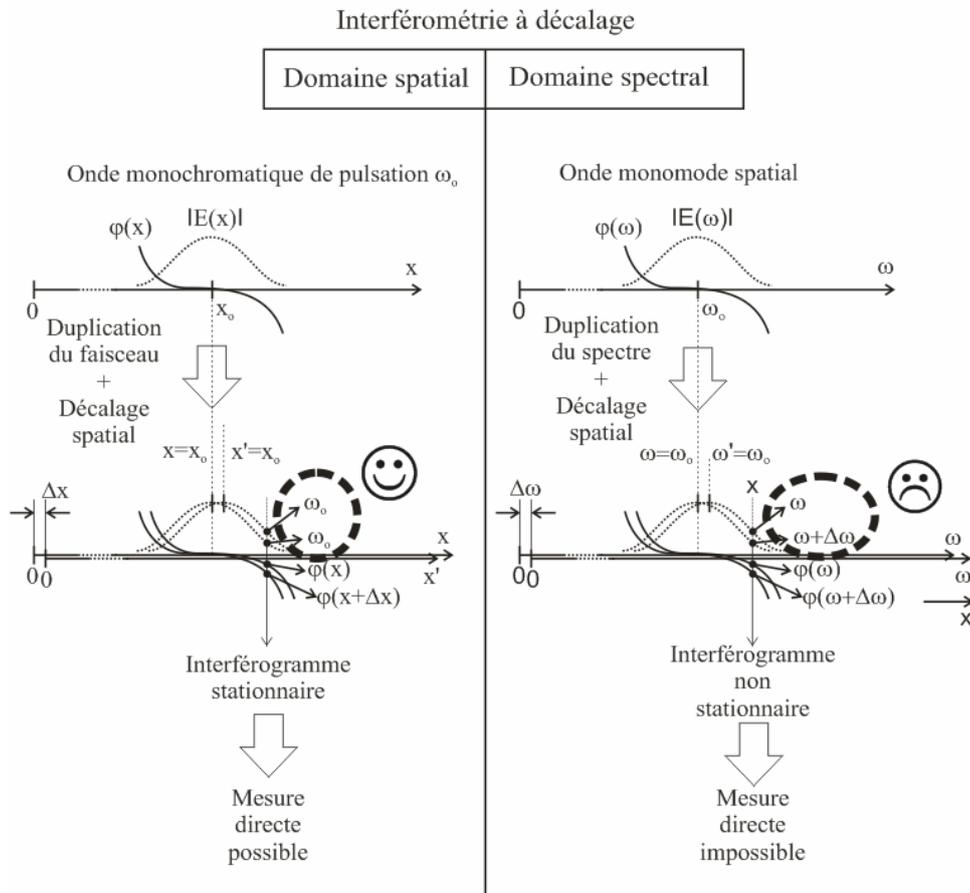


Figure 6 : Principe de l'interférométrie à décalage appliquée au domaine spatial et au domaine spectral

Ce caractère non stationnaire implique l'utilisation d'un système de détection non intégrateur (une caméra électronique à balayage de fente, par exemple) présentant une résolution temporelle suffisante.

Prenons l'exemple d'une impulsion de 100 fs dont la largeur spectrale est de 10 nm. On choisit de décaler les deux spectres répliques d'une quantité égale à 10% de la largeur à mi-hauteur du spectre, soit un décalage spectral $\Delta\lambda = 1 \text{ nm}$, ce qui correspond à un $\Delta\omega = 3 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ pour une longueur d'onde centrale autour de 800 nm. La période des battements est alors égale à 2 ps. Ceci impose alors une résolution temporelle de l'ordre de 200 fs ($1/10^{\text{ème}}$ de la période des battements) si on souhaite échantillonner temporellement le signal.

Le schéma de principe précédent mettant en oeuvre l'enregistrement de battements spectro-temporels par une caméra à balayage de fente a donné naissance à la technique SORBETS développée par nos collègues de l'Université Libre de Bruxelles [19, 20]. Cette solution conduit à un dispositif large bande très sensible. D'autre part, l'enregistrement de l'ensemble des battements spectro-temporels dans une figure bidimensionnelle fournit un très grand nombre d'informations ce qui, après traitement numérique, permet d'accéder à un très bon rapport signal sur bruit. La limitation de cette technique provient principalement du détecteur, puisque nous avons vu dans l'introduction générale que la résolution temporelle de ce type de caméra est le plus souvent insuffisante. Il s'agit d'autre part d'un système de détection coûteux et de mise en oeuvre lourde.

Dans la suite de ce manuscrit, je présenterai successivement deux techniques qui permettent l'enregistrement d'un interférogramme stationnaire sans utiliser de caméra à balayage de fente : SPIDER, qui conclura le présent état de l'art, et SPIRIT, qui fait l'objet des Chapitres 4 et 5 de ma thèse. Dans les deux cas, l'enregistrement de l'interférogramme stationnaire se fera par une technique de porte optique non-linéaire passive constituée d'éléments optiques standard peu coûteux.

III. Technique SPIDER [21-24]

Préambule : Ce paragraphe III présente la version basique de SPIDER. L'annexe D présente une liste des principales évolutions (ZAP-SPIDER , SEA-SPIDER , 2DSI) qui sont apparues par la suite.

1) *Principe de SPIDER*

Comme nous venons de le voir, la transposition directe du principe de l'interférométrie à décalage du domaine spatial au domaine spectral conduit à la formation d'une structure spatio-temporelle rapidement variable dans le temps. L'enregistrement d'un interférogramme stationnaire est alors problématique.

Pour contourner ce problème, SPIDER consiste à décaler fréquentiellement les deux répliques spectrales et non pas spatialement comme nous l'avons envisagé jusqu'à maintenant. L'analogie avec l'interférométrie à décalage appliquée au domaine spatiale est alors totale.

Pour cela SPIDER fait usage de deux images spectrales cohérentes décalées fréquentiellement et centrées respectivement sur ω'_0 et $\omega'_0 + \Delta\omega$. La pulsation centrale au voisinage de laquelle s'affiche les deux répliques est généralement égale à la pulsation harmonique : $\omega'_0 = 2\omega_0$, ω_0 représentant la pulsation fondamentale du signal à caractériser. Les deux images spectrales doivent être des répliques cohérentes du spectre fondamental étudié. Ces deux images cohérentes sont obtenues chacune par transposition non-linéaire de fréquence vers la nouvelle plage fréquentielle ω'_0 (voir figure 7). Lors de l'étape non-linéaire de transposition de fréquence, les deux répliques spectrales sont décalées en fréquence de façon légèrement différente d'une petite quantité $\Delta\omega$. Les deux images spectrales cohérentes

se recouvrent et interfèrent donnant lieu à un interférogramme stationnaire enregistrable par un spectroscopie standard muni d'un détecteur quadratique intégrateur.

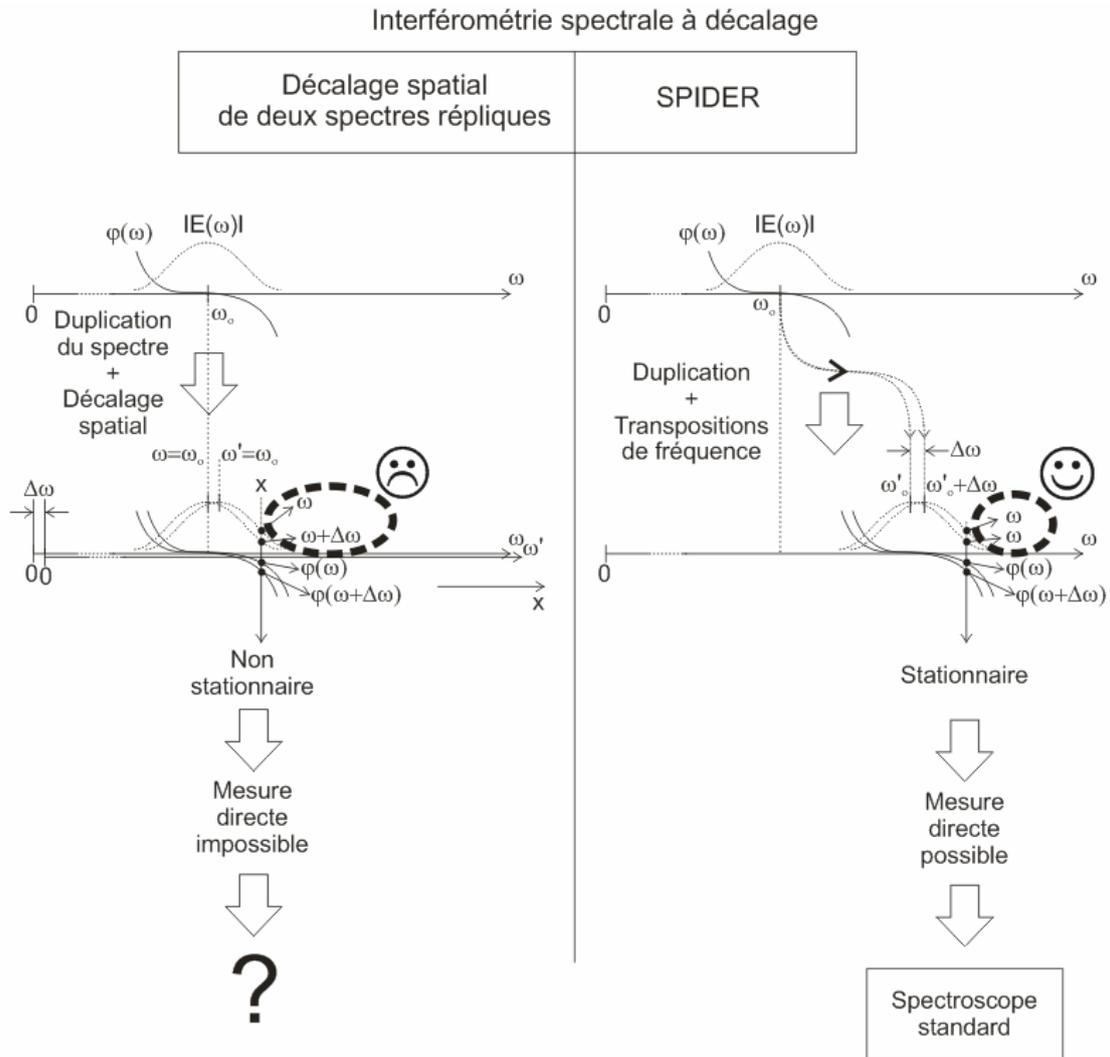


Figure 7 : Principe de la technique SPIDER

2) Production du décalage spectral

Je présente maintenant la procédure expérimentale qui permet de mettre en place le principe précédent.

Dans une première étape, l'impulsion fondamentale étudiée, de champ électrique $E(t)$, est dédoublée à l'aide d'une simple lame à face parallèle d'épaisseur contrôlée. Un retard τ dépendant de l'épaisseur de la lame est ainsi introduit entre les deux impulsions fondamentales qui résultent de ce dédoublement : $E(t-\tau/2)$ et $E(t+\tau/2)$. Ce retard permettra d'introduire la surmodulation dont l'utilité a déjà été discutée au paragraphe I de ce chapitre. Ce retard permet également comme nous allons le voir de définir la valeur du décalage de fréquence $\Delta\omega$.

Parallèlement à la création des deux impulsions répliques, une fraction de l'impulsion à caractériser est prélevée puis envoyée vers un système dispersif tel qu'une ligne à réseaux de diffraction en configuration "Treacy" (voir annexe G). Cette ligne permet alors de disperser

temporellement fortement le signal, ce qui conduit à un affichage au cours du temps du spectre du signal. La fréquence instantanée de ce signal s'écrit alors : $\omega(t) = \omega_0 + \frac{1}{\varphi^{(2)}}.t$ où

$\varphi^{(2)}$ représente la dérivée seconde de la phase spectrale introduite par la ligne dispersive calculée en $\omega = \omega_0$. A la sortie de ce système fortement dispersif, les composantes quasi-monochromatiques du signal sont séparées temporellement. Il s'agit maintenant de prélever deux de ces composantes par mélange avec les deux répliques évoquées dans l'étape précédente.

Les deux répliques retardées, $E(t - \tau/2)$ et $E(t + \tau/2)$, et le signal fortement dispersé sont simultanément envoyés à $t=0$ à l'intérieur d'un cristal non-linéaire d'ordre deux sommateur de fréquences. Une des répliques du signal étudié est synchronisée avec la composante monochromatique à $\omega_0 + \Delta\omega/2$, l'autre avec la composante $\omega_0 - \Delta\omega/2$. Ceci est obtenu

lorsque : $\Delta\omega = \frac{\tau}{\varphi^{(2)}}$. A la sortie du cristal non-linéaire, on obtient deux signaux centrés

respectivement sur $2\omega_0 + \Delta\omega/2$ et $2\omega_0 - \Delta\omega/2$. L'étape de sommation de fréquences étant potentiellement un processus cohérent, l'amplitude et surtout la phase du spectre de départ sont transférées dans les deux images non-linéaires qui contiennent alors toute l'information de phase recherchée.

Le caractère monochromatique des composantes à $\omega_0 + \Delta\omega/2$ et $\omega_0 - \Delta\omega/2$ n'est obtenu que lorsque les répliques ont une durée faible devant la durée du signal dispersé. Ceci justifie l'emploi d'un système fortement dispersif. Les amplitudes A_1 et A_2 des champs électriques des composantes monochromatiques sélectionnées sont idéalement proches afin de garantir l'obtention d'un contraste maximal de l'interférogramme SPIDER. Ceci est obtenu par modification éventuelle du synchronisme entre l'impulsion dispersée et l'ensemble des deux répliques. Ainsi, dans le cas idéal, les deux amplitudes sont égales ($A_1=A_2=A$). Les amplitudes complexes temporelles des deux images cohérentes transposées respectivement en $2\omega_0 + \Delta\omega/2$ et $2\omega_0 - \Delta\omega/2$ sont proportionnelles au produit de A et des amplitudes complexes instantanées des deux répliques (elles-mêmes images directes retardées du signal de départ d'amplitude complexe instantanée $E(t)$) : $E_{2\omega_0 - \Delta\omega/2}(t) \propto A.E(t - \tau/2)$ et

$E_{2\omega_0 + \Delta\omega/2}(t) \propto A.E(t + \tau/2)$. Le principe de la transposition en fréquence est schématisé à la figure 8.

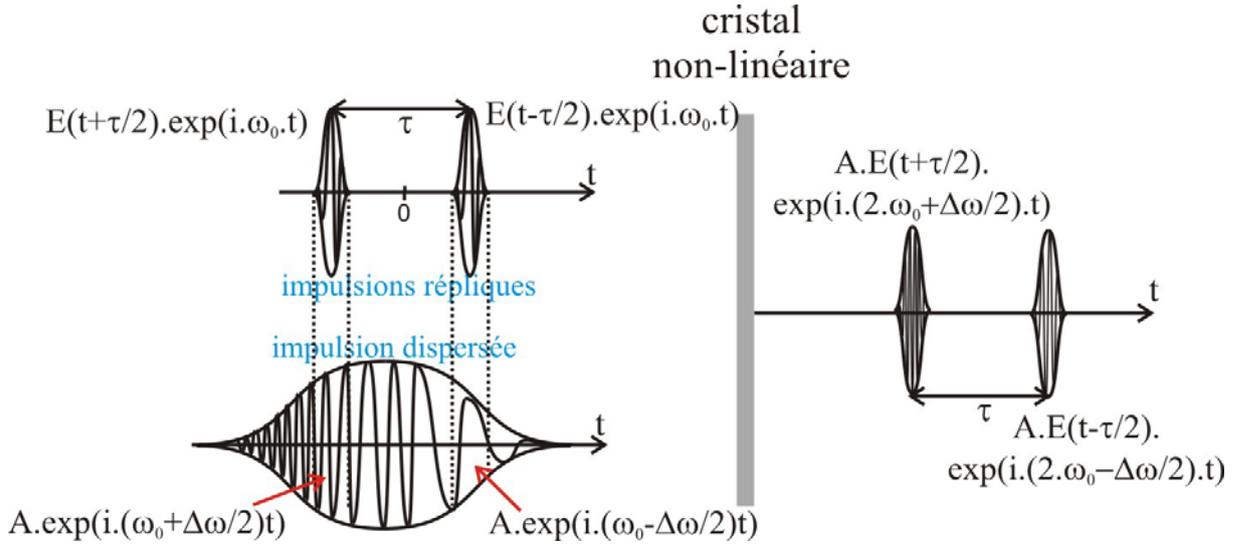


Figure 8 : Principe de la transposition en fréquence par sommation de fréquences

Les deux impulsions répliques transposées fréquentiellement et retardées sont alors envoyées dans un spectroscopie standard.

3) Enregistrement de l'interférogramme à décalage

Le résultat de l'affichage du spectre des deux signaux copropagatifs précédents dans un spectroscopie standard est un spectre cannelé centré sur la fréquence $2\omega_0$. Cet interférogramme est alors proportionnel à :

$$\begin{aligned}
 I_{\text{SPIDER}}(\omega) &\propto \left| \text{TF} \left(E(t - \tau/2).e^{i.(2\omega_0 - \Delta\omega/2)t} + E(t + \tau/2).e^{i.(2\omega_0 + \Delta\omega/2)t} \right) \right|^2 \\
 &= \left| \text{TF} \left(\left[E(t - \tau/2).e^{i.(-\Delta\omega/2)t} + E(t + \tau/2).e^{i.(+\Delta\omega/2)t} \right].e^{i.2\omega_0.t} \right) \right|^2 \\
 &= \left| \text{TF} \left(E(t - \tau/2).e^{i.(-\Delta\omega/2)t} + E(t + \tau/2).e^{i.(+\Delta\omega/2)t} \right) \otimes \delta(\omega - 2\omega_0) \right|^2 \\
 &= \left| \left(\tilde{E}(\omega).e^{-i.\omega\tau/2} \otimes \delta(\omega - \Delta\omega/2) + \tilde{E}(\omega).e^{+i.\omega\tau/2} \otimes \delta(\omega + \Delta\omega/2) \right) \right|^2 \otimes \delta(\omega - 2\omega_0) \\
 &= \left| \tilde{E}(\omega - \Delta\omega/2).e^{-i.(\omega - \Delta\omega/2)\tau/2} + \tilde{E}(\omega + \Delta\omega/2).e^{+i.(\omega + \Delta\omega/2)\tau/2} \right|^2 \otimes \delta(\omega - 2\omega_0) \\
 &= \delta(\omega - 2\omega_0) \otimes \left[\left| \tilde{E}(\omega - \Delta\omega/2) \right|^2 + \left| \tilde{E}(\omega + \Delta\omega/2) \right|^2 \right. \\
 &\quad \left. + 2 \cdot \left| \tilde{E}(\omega - \Delta\omega/2) \right| \left| \tilde{E}(\omega + \Delta\omega/2) \right| \times \cos \left(\varphi(\omega - \Delta\omega/2) - (\omega - \Delta\omega/2).\tau/2 - \left(\varphi(\omega + \Delta\omega/2) + (\omega + \Delta\omega/2).\tau/2 \right) \right) \right] \\
 &= \delta(\omega - 2\omega_0) \otimes \left[\left| \tilde{E}(\omega - \Delta\omega/2) \right|^2 + \left| \tilde{E}(\omega + \Delta\omega/2) \right|^2 \right. \\
 &\quad \left. + 2 \cdot \left| \tilde{E}(\omega - \Delta\omega/2) \right| \left| \tilde{E}(\omega + \Delta\omega/2) \right| \cos(\varphi(\omega + \Delta\omega/2) - \varphi(\omega - \Delta\omega/2) + \omega\tau) \right]
 \end{aligned} \tag{3.9}$$

Il vient finalement en considérant $\Delta\omega$ petit :

$$I_{\text{SPIDER}}(\omega) \propto \left[\left| \tilde{E}(\omega) \right|^2 \cdot (1 + \cos[\varphi'(\omega) \cdot \Delta\omega + \omega\tau]) \right] \otimes \delta(\omega - 2\omega_0)$$

On vérifie bien que l'interférogramme est stationnaire ce qui permet d'enregistrer l'interférogramme SPIDER à partir d'un spectroscopie standard muni d'un détecteur intégrateur.

4) *Analyse de l'interférogramme SPIDER*

Le terme de gauche de l'expression précédente est similaire à celui de la formule (3.2) obtenu dans le cas de l'interférométrie spectrale avec référence. L'analyse de l'interférogramme est par conséquent la même. Ainsi, dans une dernière étape, l'algorithme de Takeda (voir Chapitre 3, paragraphe I 3.) permet d'extraire la valeur de $\varphi'(\omega) \cdot \Delta\omega$. On en déduit $\varphi(\omega)$ après calibration de $\Delta\omega$ et intégration numérique de $\varphi'(\omega)$. Partant de la connaissance de $\varphi(\omega)$ et de $\left| \tilde{E}(\omega) \right|$, le profil temporel cohérent de l'impulsion est obtenu par une dernière Transformée de Fourier.

5) *Conclusion*

SPIDER est applicable en monocoup, à basse cadence ou à haute cadence sans modification. L'algorithme qu'il met en oeuvre est direct de telle sorte que SPIDER est également compatible avec un affichage temps réel du profil cohérent de l'impulsion. Le dispositif est constitué d'éléments optiques standard et son emploi est relativement simple. SPIDER a rencontré un succès incontestable dans la communauté des impulsions brèves. Plusieurs sociétés commercialisent des appareils basés sur son principe.

Certaines limitations apparaissent cependant notamment lors de la caractérisation d'impulsions complexes. Comme nous l'avons vu, SPIDER met en oeuvre une étape de transposition de fréquence non-linéaire avant l'étape interférométrique. La validité de la technique repose donc notamment sur la qualité du transfert de cohérence réalisé par cette opération non-linéaire. Expérimentalement, il s'avère nécessaire de vérifier pour chaque mesure que chacune des deux images spectrales harmoniques du spectre fondamental sont conformes au spectre de départ. Cette vérification porte forcément uniquement sur l'amplitude spectrale. Il n'existe bien évidemment pas de moyen de vérifier que la phase spectrale est correctement convertie lors de cette étape non-linéaire.

Au chapitre suivant, je présente la technique SPIRIT que j'ai développée pendant ma thèse. Comme SPIDER, SPIRIT met en oeuvre une étape interférométrique et une étape non-linéaire. Comme nous allons le voir, SPIRIT présente notamment l'avantage de ne pas être conditionné par la qualité du transfert de cohérence assuré par cette étape non-linéaire qui a seulement alors un rôle intensimétrique.

**CHAPITRE 4 : Interférométrie Spectrale à Décalage
Résolue Temporellement : Technique SPIRIT**

La technique SPIRIT repose sur le principe de l'interférométrie spectrale à décalage. SPIRIT et SPIDER, qui a été présentée au chapitre précédent, sont des techniques proches. Elles ont toutes les deux pour but l'obtention de la phase spectrale $\varphi(\omega)$ de l'impulsion étudiée à partir de la mesure de l'interférogramme à décalage suivant (voir aussi Chapitre 3, III 3.):

$$S(\omega) \propto |\tilde{E}(\omega)|^2 \cdot (1 + \cos[\varphi'(\omega) \cdot \Delta\omega + \omega\tau])$$

(4.1)

L'analyse de cet interférogramme est identique pour les deux techniques. Seule la manière de former expérimentalement l'interférogramme diffère. De ce point de vue SPIRIT est proche de la technique SORBETS (Chapitre 3, II. 2.). L'innovation apportée par SPIRIT par rapport à SORBETS repose sur le remplacement de la caméra à balayage de fente par une technique passive d'échantillonnage temporel par une porte optique non-linéaire.

La technique SPIRIT (SPectral Interferometry Resolved In Time) a été démontrée initialement en 2002 dans une première version applicable seulement à un train d'impulsions récurrentes haute cadence [25]. Le dispositif comprenait alors un élément mobile conduisant à l'enregistrement de l'interférogramme par balayage mécanique. Pour cette raison SPIRIT n'était alors pas applicable à la caractérisation d'impulsion unique.

La partie de mon travail de thèse relative à SPIRIT a consisté à développer une version de SPIRIT applicable à la caractérisation d'une impulsion unique. Cette méthode sera nommée "SPIRIT monocoup".

Dans un premier temps, je présenterai en détail SPIRIT monocoup. Je décrirai le modèle numérique qui m'a permis de définir les paramètres permettant d'optimiser la technique. Ce modèle m'a aussi permis de simuler la mesure d'impulsions complexes difficilement synthétisables en laboratoire, et ainsi de prévoir les limites de la méthode. Puis, je présenterai les résultats expérimentaux qui ont été obtenus au laboratoire XLIM à Limoges sur la caractérisation d'impulsions courtes issues d'un oscillateur laser haute cadence. Enfin, je présenterai les résultats expérimentaux qui ont été obtenus au Laboratoire d'Optique Appliquée à Palaiseau sur deux chaînes laser basse cadence (10 Hz) délivrant des impulsions de 100 fs et de 30 fs respectivement.

I. Principe de SPIRIT

SPIRIT consiste dans une première étape à superposer de façon cohérente deux répliques décalées spatialement du spectre de l'impulsion étudiée. Pour cela, deux impulsions répliques temporelles de l'impulsion à analyser sont envoyées dans un spectroscopie à réseau de diffraction avec un angle d'incidence légèrement différent $\Delta\theta$.

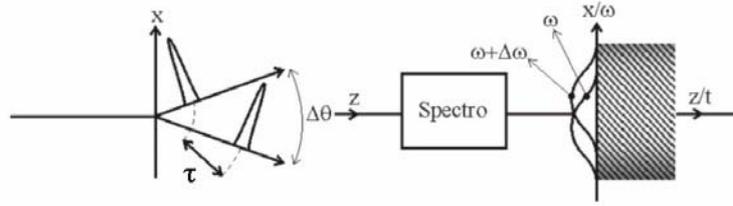


Figure 1 : Schéma de la première étape de SPIRIT

Dans ce cas, on affiche dans le plan spectral du spectroscopie les spectres dédoublés de l'impulsion à analyser que l'on superpose et que l'on décale légèrement spatialement. Ce décalage spatial des spectres entraîne à un endroit donné l'existence de deux fréquences décalées fréquentiellement d'une petite quantité $\Delta\omega$. De plus, un retard temporel τ entre les deux impulsions répliques est ajouté préalablement, ce qui permet de surmoduler l'interférogramme produit. Conformément à ce qui a déjà été discuté au paragraphe II du chapitre 3, cette situation conduit à l'existence de battements spatio-temporels dont la phase dépend de la dérivée de la phase spectrale de l'impulsion à analyser :

$$I(\omega, t) \approx 2 |\tilde{E}(\omega)|^2 [1 + \cos(\varphi'(\omega).\Delta\omega + \omega\tau + \Delta\omega.t)] \quad (4.2)$$

Ces battements balayent le plan spectral continûment avec une période temporelle $\Delta t = \frac{2.\pi}{\Delta\omega} = \frac{\lambda^2}{c.\Delta\lambda}$ qui est typiquement de l'ordre de la picoseconde (2 ps pour un décalage de 1 nm à $\lambda_0=800$ nm). A cause de ce balayage rapide, l'interférogramme, qui est non-stationnaire, ne peut pas être enregistré avec un simple détecteur intégrateur.

L'étape interférométrique précédente est maintenant suivie de la phase de détection résolue temporellement des battements. La solution originale fournie par SPIRIT consiste à prélever un échantillon temporel des battements à l'aide d'une porte optique non-linéaire dont le déclenchement à $t=t_0$ est assuré par l'impulsion ultra-brève étudiée elle-même :

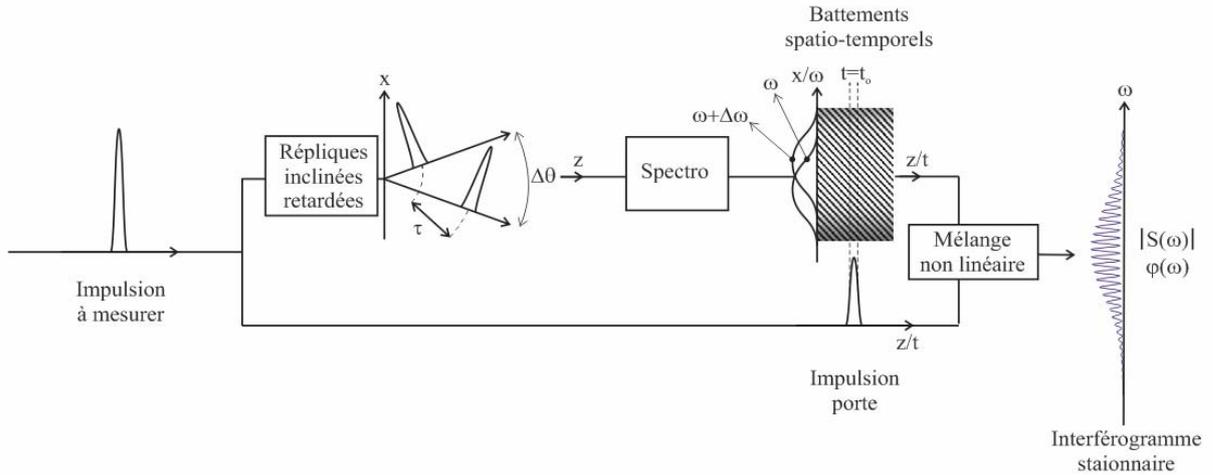


Figure 2 : Schéma des étapes expérimentales de SPIRIT

Pour cela, on a préalablement prélevé une fraction de l'impulsion femtoseconde initiale afin qu'elle joue le rôle de porte optique. Cette impulsion femtoseconde est synchronisée avec le signal de battement dont la durée totale est de l'ordre de la réponse impulsionnelle du réseau de diffraction ce qui dans notre cas correspond à une dizaine de picosecondes.

L'impulsion porte et le signal de battement sont mélangés dans un milieu non-linéaire. Il peut s'agir par exemple d'un milieu Kerr, d'un milieu présentant une saturation d'absorption ou encore comme c'est le cas dans mes expériences d'un milieu paramétrique produisant une somme de fréquence entre les deux signaux. L'interaction non-linéaire aboutit alors à un signal converti qui est un échantillon temporel du signal de battement à l'instant $t=t_0$ où se produit la porte. A l'issue de cet échantillonnage temporel l'expression du signal interférométrique est alors égal à :

$$S(\omega) \approx 2|\tilde{E}(\omega)|^2 [1 + \cos(\varphi'(\omega).\Delta\omega + \omega\tau + \Delta\omega.t_0)] \quad (4.3)$$

Du point de vue spatial, le faisceau porte est associé à une tache focale astigmatique étendue recouvrant uniformément le spectre ce qui permet la détection sur un tir unique de l'ensemble des composantes spectrales.

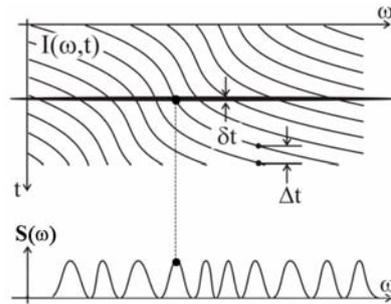


Figure 3 : Intensité instantanée des battements spatio-temporels. δt représente la durée de l'impulsion étudiée et Δt est la période temporelle des battements.

Ce système de détection entièrement passif et auto-référencé délivre alors un interférogramme dont l'amplitude et surtout la phase contiennent toute l'information utile à la reconstruction numérique complète de l'impulsion étudiée. L'interférogramme stationnaire est enregistré par un détecteur intégrateur multipixel (barrette linéaire ou caméra CCD).

Vient enfin l'analyse numérique de l'interférogramme. Cette étape numérique finale de reconstruction met en œuvre l'algorithme direct non itératif de Takeda (voir paragraphe I.3. du Chapitre 3) qui est suffisamment rapide pour permettre un affichage temps réel du profil cohérent de l'impulsion.

SPIRIT présente un certain nombre d'avantages sur SPIDER. Comme nous venons de le voir, la création du décalage spectral s'appuie sur un effet de décalage géométrique. Il ne nécessite pas de transposition en fréquence via un effet non-linéaire comme dans la technique SPIDER. Le problème du transfert de cohérence de l'étape non-linéaire, que j'ai souligné à la fin du chapitre 3 a disparu. La porte joue simplement un rôle intensimétrique insensible aux effets de phase. De plus, la configuration utilisée dans SPIRIT permet de dissocier le retard temporel τ entre les impulsions répliques et le décalage spectral $\Delta\omega$ entre les spectres jumeaux, à l'inverse de SPIDER où le décalage spectral dépend du retard temporel. Enfin le décalage spectral est imposé uniquement par la configuration expérimentale et ne dépend pas de l'impulsion d'entrée.

II. Expérience numérique

1) *Présentation du modèle*

Dans un premier temps j'ai mis en place un modèle numérique quantitatif simulant SPIRIT. Ce modèle numérique m'a permis d'optimiser la mise au point du dispositif et d'en cerner les limitations.

Le modèle numérique se décompose en 4 volets :

- Le premier bloc de simulation permet de synthétiser numériquement une impulsion complexe de profil temporel et de profil spectral quelconques en amplitude et en phase.
- La deuxième étape modélise en détail les différentes étapes de traitement du signal décrites ci-dessus. Dans cette partie, les paramètres réglables sont notamment le décalage spectral $\Delta\omega$ et le retard entre les deux spectres τ . Tous les paramètres physiques importants sont pris en compte quantitativement. L'effet d'intégration du signal converti pendant la durée de la porte (qui n'est pas infiniment brève contrairement à ce qui avait été considéré dans la présentation simpliste précédente) est notamment pris en compte. Seule la résolution limitée du spectroscopie, l'efficacité du processus non-linéaire et celle du détecteur ne sont pas incluses dans le modèle.
- Vient ensuite l'analyse de l'interférogramme fourni par l'étape précédente. L'algorithme de Takeda (Chapitre 3, I.3.) permet tout d'abord de calculer la valeur de la phase des franges : $\Phi(\omega) = \omega.\tau + \varphi'(\omega).\Delta\omega$. La dérivée de la phase spectrale est ensuite déduite de la formule suivante : $\varphi'(\omega) = \frac{\Phi(\omega) - \omega.\tau}{\Delta\omega}$, τ et ω étant des

paramètres connus. On en déduit enfin $\varphi(\omega) = \int \varphi'(\omega).d\omega$ par intégration numérique. L'algorithme de Takeda calcule aussi l'amplitude spectrale $|\tilde{E}(\omega)|$ (voir Chapitre 3, I. 3.).

Note : Ce bloc de programmation ainsi que le suivant sont utilisés aussi bien pour la présente expérience numérique que lors de l'analyse de véritables enregistrements expérimentaux.

Une fois la phase spectrale et l'amplitude spectrale calculées, vient enfin une dernière étape de détermination du profil temporel cohérent. L'impulsion reconstruite peut alors être comparée à l'impulsion initiale.

2) *Forme des battements spatio-temporels dans des cas simples*

Ce paragraphe présente des exemples numériques simples de battements spatio-temporels avant les étapes ultérieures d'échantillonnage temporel et d'analyse.

a. $\Delta\omega \neq 0, \tau = 0, \varphi(\omega) = 0$

Dans un premier exemple, l'impulsion étudiée est de profil gaussien en limite de Fourier. Le retard temporel entre les deux spectres est nul. Le décalage spectral est non nul. La figure des battements spatio-temporels calculée est la suivante :

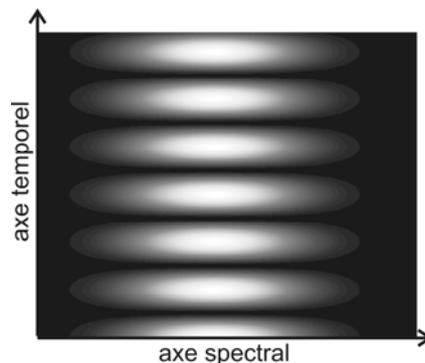


Figure 4 : Battements spatio-temporels obtenus lorsque $\tau = 0, \Delta\omega \neq 0, \varphi(\omega) = 0$

Les battements sont périodiques temporellement de période $\Delta t = \frac{2.\pi}{\Delta\omega}$. $\tau = 0$ et $\varphi(\omega) = 0$ impose des battements spatio-temporels sans dépendance spectrale conformément à l'expression (4.3).

b. $\Delta\omega = 0, \tau \neq 0, \varphi(\omega) \neq 0$

Dans ce deuxième exemple, le retard temporel entre les deux spectres jumeaux est non nul, le décalage spectral est nul et la phase spectrale de l'impulsion est éventuellement complexe :

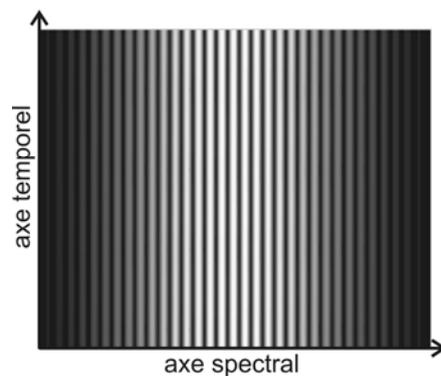


Figure 5 : Structure obtenue lorsque $\tau \neq 0$, $\Delta\omega = 0$, $\varphi(\omega) \neq 0$

On obtient une forme classique de spectre cannelé constituée de franges spectrales périodique de période $\delta\omega = \frac{2\pi}{\tau}$. Les battements temporels ont disparu ($\Delta\omega = 0$). Cette figure peut être enregistrée à partir d'un détecteur intégrateur, mais elle ne permet pas d'obtenir d'information sur la phase spectrale de l'impulsion.

c. $\Delta\omega \neq 0$, $\tau \neq 0$, $\varphi(\omega) = 0$

On combine maintenant un retard temporel et un décalage spectral sans structuration de phase de l'impulsion :

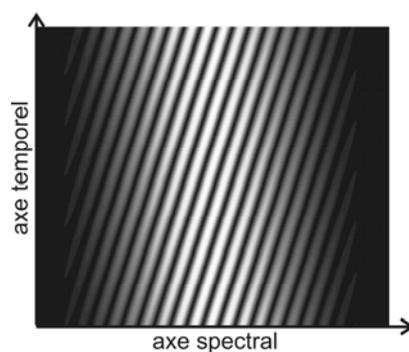


Figure 6 : Battements spatio-temporels obtenus lorsque $\tau \neq 0$, $\Delta\omega \neq 0$, $\varphi(\omega) = 0$

Les battements spatio-temporels sont inclinés et parfaitement rectilignes. La période temporelle $\Delta t = \frac{2\pi}{\Delta\omega}$ et la période fréquentielle est $\delta\omega = \frac{2\pi}{\tau}$.

d. $\Delta\omega \neq 0, \tau \neq 0, \varphi(\omega) = \alpha.\omega^2$

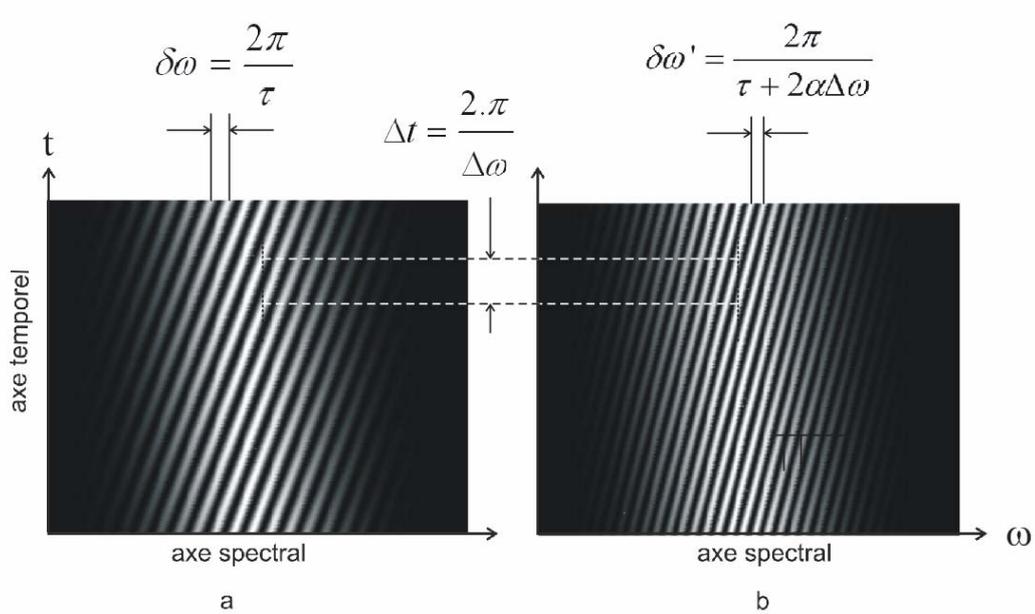


Figure 7 : a. $\tau \neq 0, \Delta\omega \neq 0, \varphi(\omega) = 0$. b. $\tau \neq 0, \Delta\omega \neq 0, \varphi(\omega) = \alpha.\omega^2$

Les battements spatio-temporels sont à nouveau inclinés et parfaitement rectilignes. Ceci est conforme à l'expression de l'interférogramme dont la partie variable dépend alors de $\cos([2.\alpha.\Delta\omega + \tau].\omega + \Delta\omega.t_0)$. On constate une modification de l'inclinaison des franges spatio-temporelles par rapport au cas où $\varphi(\omega) = 0$, les valeurs de $\Delta\omega$ et de τ étant inchangées par rapport au cas précédent. Cette modification d'inclinaison est associée à une variation du pas des franges spectrales, la période temporelle des battements restant inchangée.

Note : La forte variation du pas des franges spectrales présentée ci-dessus a été obtenue numériquement pour une valeur de α très grande. Expérimentalement, cet effet est très faible. Il n'est pas mesurable directement. Ceci justifie l'utilité de l'analyse fine de la structure des franges par l'algorithme de Takeda.

e. $\Delta\omega \neq 0, \tau \neq 0, \varphi(\omega) = \beta.\omega^3$

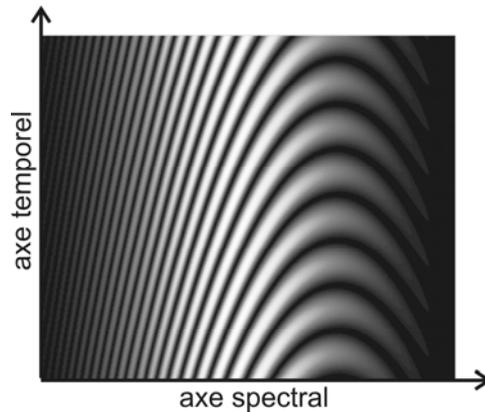


Figure 8 : $\tau \neq 0, \Delta\omega \neq 0, \varphi(\omega) = \beta.\omega^3$

Une forte modulation de phase spectrale d'ordre 3 est ajoutée. Les battements spatio-temporels ont une forme parabolique ce qui est conforme à l'écriture analytique de l'interférogramme qui dépend alors d'un terme en $\cos(3.\beta.\Delta\omega.\omega^2 + \tau.\omega + \Delta\omega.t_0)$.

Note : Les figures présentées ci-dessus peuvent être mesurées expérimentalement avec la technique SORBETS qui met en oeuvre une détection bidimensionnelle directe et complète des battements spatio-temporels. Ceci illustre un avantage de cette technique qui donne, dans le cas où la modulation est forte, une représentation directe et intuitive de la structure de phase étudiée avant traitement numérique de l'interférogramme. Cette idée nous a encouragés à développer ultérieurement une évolution de SPIRIT qui permette l'affichage bidimensionnel des battements spatio-temporels. Cette évolution se nomme SPIRIT 2D et fait l'objet du chapitre 5.

3) *Exemples de reconstruction d'impulsion dans des cas complexes*

a. Impulsion présentant une modulation de phase spectrale d'ordre 3

Le profil de l'impulsion testée est représenté sur la figure 9.a.

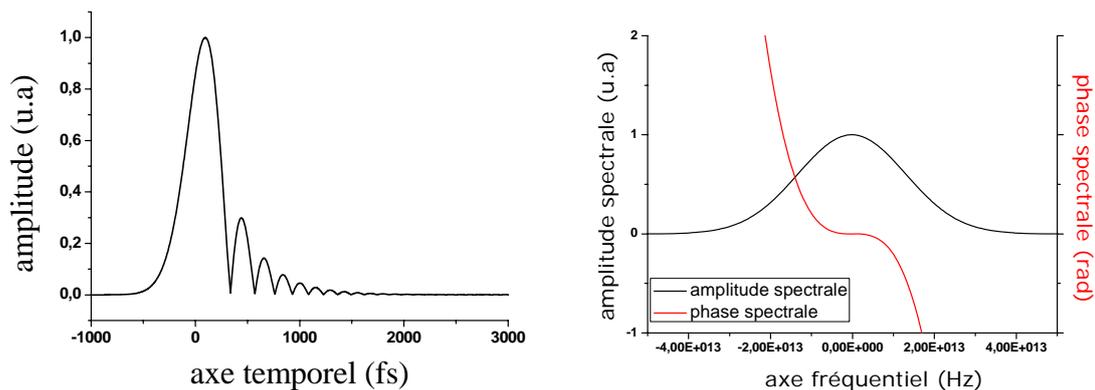


Figure 9 : a. Impulsion complexe initiale. La durée à mi-hauteur en intensité du lobe principal de l'impulsion testée est égale à 388 fs. b. Amplitude spectrale gaussienne et phase spectrale cubique initiales.

Le décalage temporel τ est fixé et choisi de façon à obtenir un nombre suffisant de franges dans le spectre cannelé. τ est égal à 3,3 ps. Le décalage spectral vaut 1 nm pour un spectre de 7 nm de large. La période des battements temporels est par conséquent égale à $\Delta t \approx 2$ ps. La durée de la porte temporelle qui n'est autre que l'impulsion de départ est proche de $\delta t \approx 400$ fs. On vérifie que $\delta t < \Delta t$ ce qui assure que l'impulsion porte est capable d'échantillonner de manière satisfaisante le signal de battement. Le résultat obtenu est un interférogramme dont le profil est représenté à la figure 10.a.

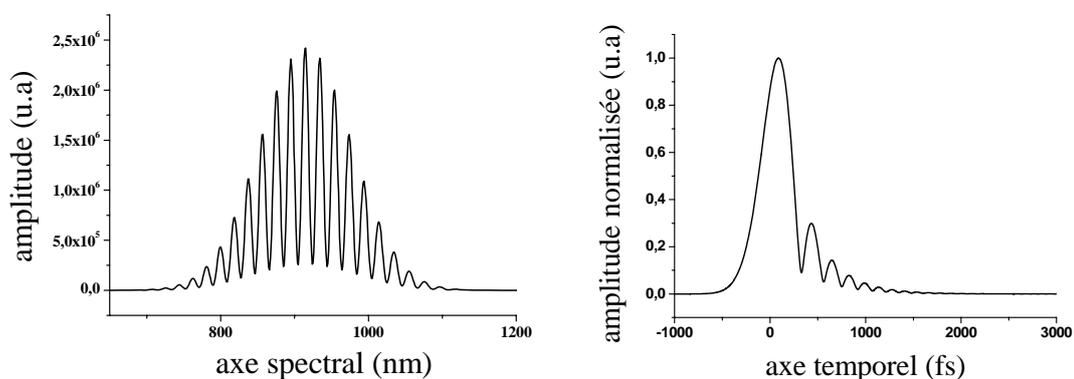


Figure 10 : a. Interférogramme obtenu lorsque $\tau \neq 0$ et $\Delta\omega \neq 0$. b. Profil de l'impulsion reconstruite

Le profil de l'impulsion reconstruite est fidèle au profil de l'impulsion initiale.

b. Impulsion présentant une modulation de phase spectrale d'ordre 2 et d'ordre 3

L'amplitude spectrale et la phase spectrale de l'impulsion à caractériser sont présentées sur la figure 11.b. A cause de la présence d'une modulation de phase spectrale d'ordre 2 faible, les rebonds se situant dans la partie droite de l'impulsion ne retombent pas à zéro.

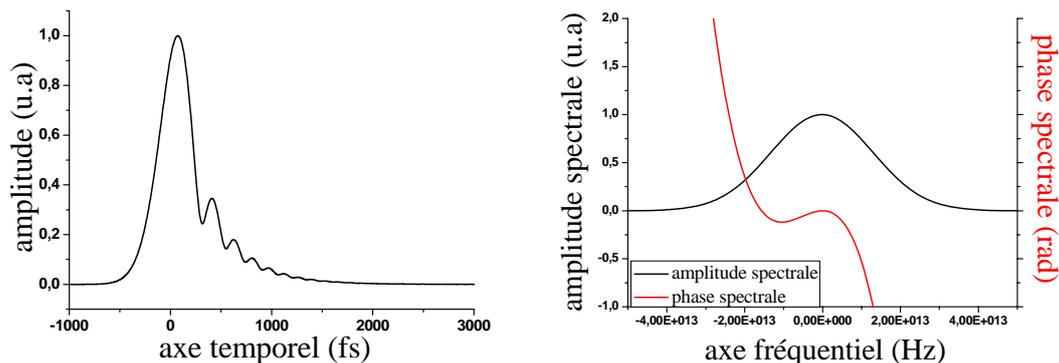


Figure 11 : a. Profil temporel initial. b. Amplitude et phase spectrales initiales

Le décalage spectral et le retard τ sont inchangés par rapport au paragraphe précédent.

L'impulsion retrouvée est représentée à la figure 12. Elle correspond fidèlement à l'impulsion recherchée.

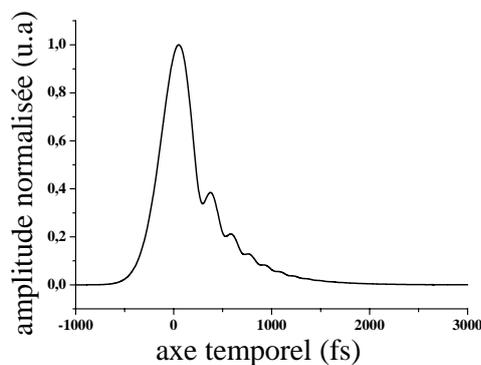


Figure.12 : Profil de l'impulsion reconstruite

On note cependant que les lobes secondaires de l'impulsion reconstruite sont moins marqués que les lobes secondaires de l'impulsion de référence. Les raisons de cet écart seront rediscutées au paragraphe 3.

c. Impulsion double

Chaque impulsion a une durée à mi-hauteur en intensité égale à 84 fs. Les deux impulsions sont séparées de 600 fs.

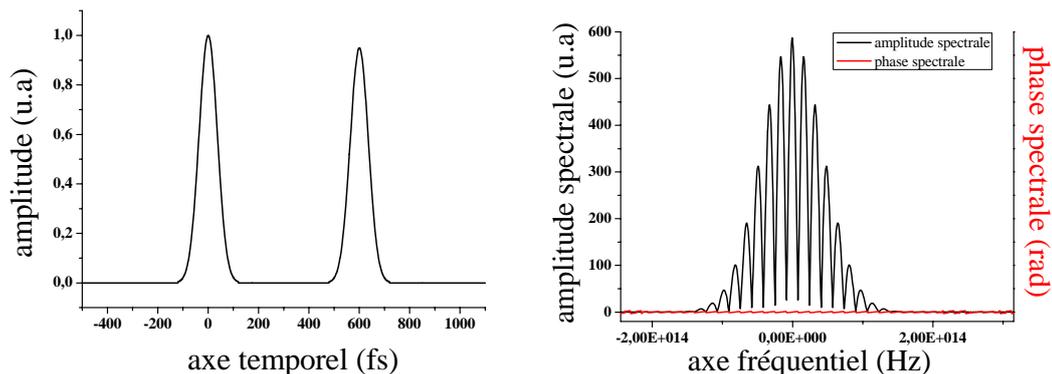


Figure 13 : a. Impulsion bi-lobe initiale. b. Amplitude et phase spectrales correspondantes. Le spectre de départ est déjà constitué de franges spectrales.

Le retard τ est inchangé. Par contre le décalage spectral vaut maintenant $\Delta\lambda \approx 0,4 \text{ nm}$. Ceci est rendu nécessaire par la présence d'une structure fine dans le spectre initial de périodicité de l'ordre de 3 nm.

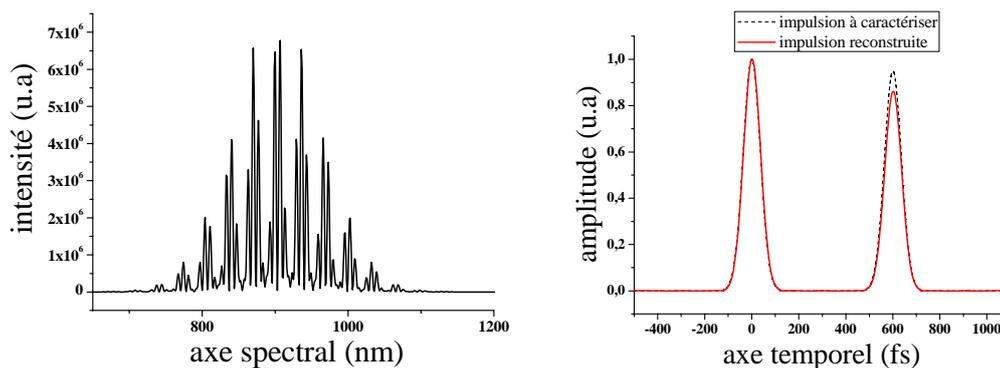


Figure 14 : a. Interférogramme SPIRIT. b. Impulsion reconstruite.

L'interférogramme présente une double structure de franges.

L'impulsion reconstruite correspond bien à l'impulsion initiale. Seule la hauteur relative des 2 lobes présente un léger écart par rapport au signal de référence.

Les cas précédents montrent que SPIRIT est tout à fait capable de mesurer efficacement des impulsions complexes. Nous allons maintenant définir les paramètres optimaux assurant la qualité de cette reconstruction.

4) *Evaluation des paramètres optimaux*

a. Choix du retard τ

Lors de la présentation de l'algorithme de Takeda (paragraphe I. 3. Chapitre 3), nous avons vu qu'il était préférable de travailler avec un interférogramme contenant un grand nombre de

franges. Ceci correspond a une valeur de τ grande (pas des franges égal à $\delta\omega = \frac{2\pi}{\tau}$).
 Expérimentalement, la résolution du spectroscopie limite le nombre de franges mesurables. Un compromis doit donc être trouvé entre précision de l'algorithme de Takeda et résolution du spectroscopie.

En pratique, un minimum de 10 franges dans le spectre semble souhaitable. Un spectre de 10 nm correspond alors à un pas de franges de 1 nm c'est à dire à $\tau = 3$ ps . La réalisation d'un tel retard et la résolution des franges associées ne posent pas de problème pratique comme nous le verrons plus loin.

b. Evaluation du décalage spectral $\Delta\omega$ optimal

La principale contrainte sur la valeur de $\Delta\omega$ vient du fonctionnement de la porte non-linéaire. La porte temporelle doit être beaucoup plus courte que la période des battements à échantillonner. Dans le cas contraire, le contraste de l'interférogramme diminue ce qui affecte à nouveau la précision du résultat fourni par l'algorithme de Takeda. La durée de la porte étant imposée par la durée de l'impulsion à mesurer, on a donc intérêt à augmenter la période des battements Δt ce qui correspond à une valeur faible de $\Delta\omega$ ($\Delta t = \frac{2\pi}{\Delta\omega}$).

Expérimentalement, la valeur de $\Delta\omega$ est elle aussi soumise à une contrainte venant de la résolution limitée du spectroscopie : le spectroscopie doit résoudre $\Delta\omega$. Une valeur trop faible de $\Delta\omega$ n'est donc pas souhaitable de ce point de vue.

Un compromis est donc là aussi nécessaire. Le modèle numérique va nous permettre de mieux évaluer la valeur à choisir pour $\Delta\omega$.

Etudions l'influence du rapport $\eta = \frac{\text{période des battements}}{\text{durée de l'impulsion étudiée}} = \frac{\Delta t}{\delta t}$ sur la précision de la reconstruction de l'impulsion.

Pour cela, je considère une impulsion fixe présentant une modulation spectrale d'ordre 3 pure. La durée de cette impulsion est évaluée à 300 fs à mi-hauteur en intensité du lobe principal et le décollement de phase d'ordre 3 ajoutée est de 0,54 rad.

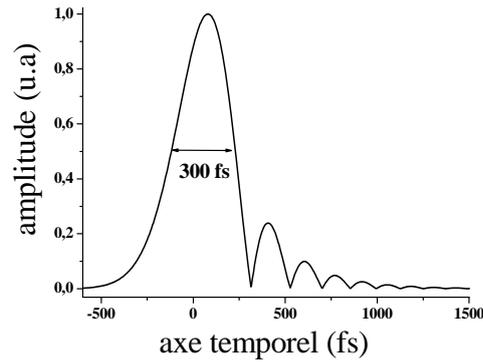


Figure 15 : Impulsion initiale résultant d'une modulation spectrale d'ordre 3 pure.

On fixe $\tau = 3$ ps . L'impulsion n'est pas modifiée pendant l'étude de telle sorte que la durée de la porte reste fixe. On fait varier $\Delta\omega$ ce qui entraîne une variation de η .

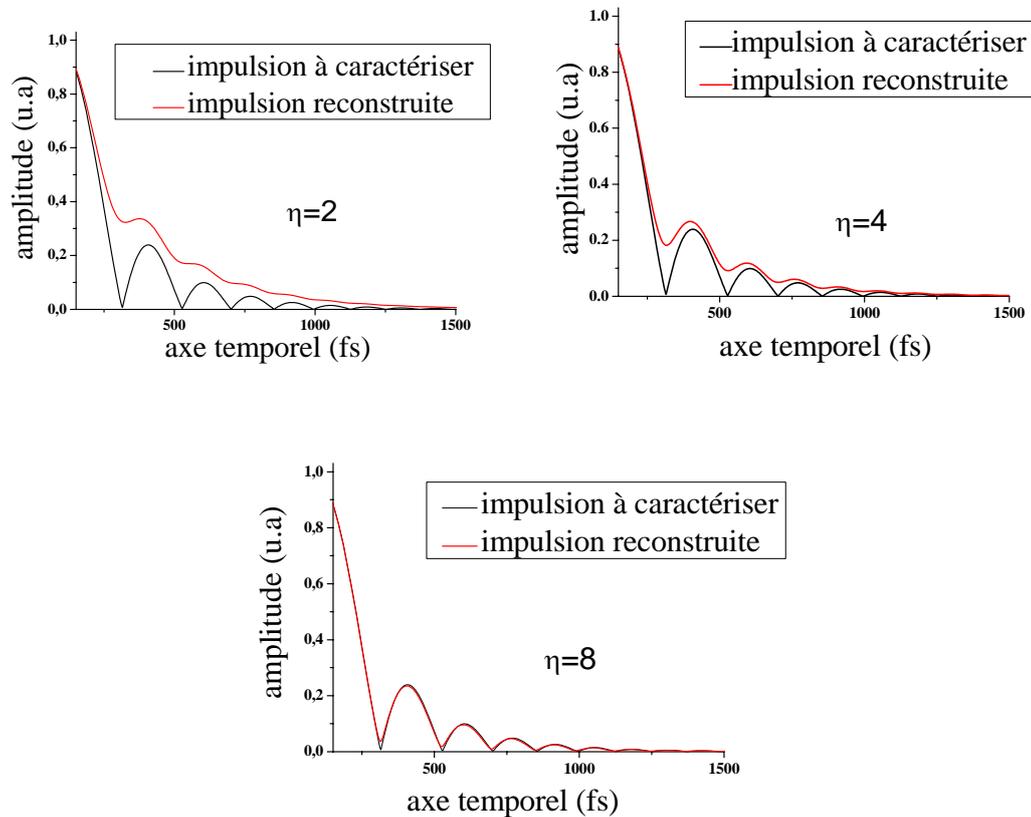


Figure16 : Impulsion reconstruite pour différentes valeurs du rapport η .

Pour $\eta = 2$, qui correspond à un décalage spectral égal à 3,5 nm pour un spectre de 7 nm de large, le contraste de l'interféromètre SPIRIT est faible. On obtient une impulsion reconstruite qui correspond mal à l'impulsion à caractériser. Le résultat de la reconstruction suggère que l'impulsion étudiée possède une phase spectrale d'ordre 2 et d'ordre 3, ce qui est faux.

Pour $\eta = 4$ et $\eta = 8$, ce qui correspond respectivement à décalage spectral égal à 1,75 nm et 0,88 nm, les lobes secondaires sont mieux décrits. Lorsque $\eta = 10$, c'est-à-dire dans le cas où le décalage spectral représente 10 % de la largeur à mi-hauteur du spectre, on obtient une impulsion reconstruite parfaitement identique à l'impulsion initiale.

Il est donc souhaitable de travailler avec un décalage spectral $\Delta\omega$ approximativement égal à 10% de la largeur à mi-hauteur en intensité du spectre de l'impulsion à caractériser.

En fait le résultat précédent est seulement valable lorsque l'impulsion à caractériser est proche de la limite de Fourier. La discussion précédente dépend de la complexité de l'impulsion.

Supposons que le produit de la durée temporelle de l'impulsion et de la largeur spectrale soit égal à N ($\delta t \cdot \delta\omega = 2\pi \cdot N$). Nous venons de voir qu'il est nécessaire de travailler avec $\eta = \frac{\text{période des battements}}{\text{durée de l'impulsion étudiée}} = \frac{\Delta t}{\delta t} \approx 10$. Le décalage spectral doit alors être égal à

$\Delta\omega = \frac{\delta\omega}{10 \cdot N}$. Plus l'impulsion est complexe, c'est-à-dire plus N est grand, plus le décalage spectral requis doit être petit. Ceci impose par conséquent de travailler avec un spectroscopie de forte résolution.

Par la suite, je présente des résultats expérimentaux qui ont été obtenus grâce à la technique SPIRIT monocoup sur 2 sites de recherche : le laboratoire XLIM à Limoges et le Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) à Palaiseau.

Les résultats du laboratoire XLIM ont été obtenus sur un oscillateur laser Ti : Saphir commercial délivrant des impulsions de l'ordre de la centaine de femtosecondes avec un taux de répétition de 75 MHz.

Les résultats du LOA ont été obtenus sur deux chaînes amplifiées basse cadence 10 Hz délivrant des impulsions de 100 fs et 30 fs respectivement.

III. Caractérisation d'un oscillateur femtoseconde

1) Présentation du montage expérimental

Le principe de SPIRIT est schématiquement rappelé sur la figure suivante :

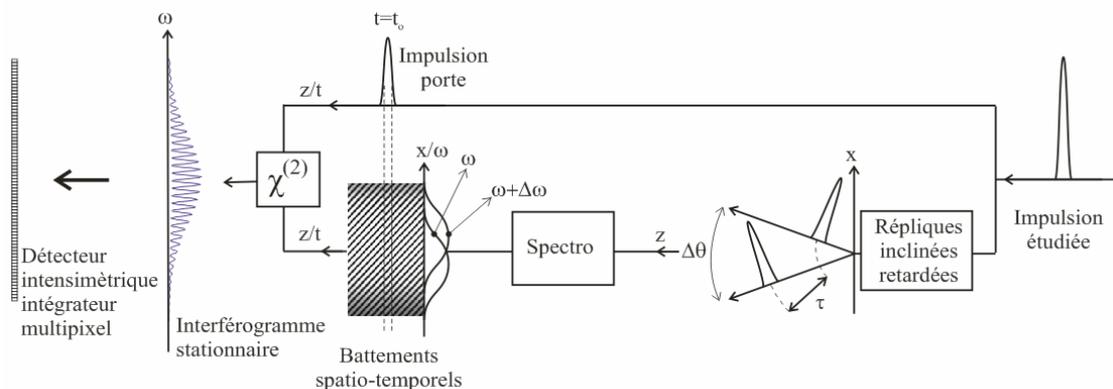


Figure 17 : Synoptique de SPIRIT.

Le montage expérimental qui m'a permis de mettre en oeuvre ce principe est le suivant :

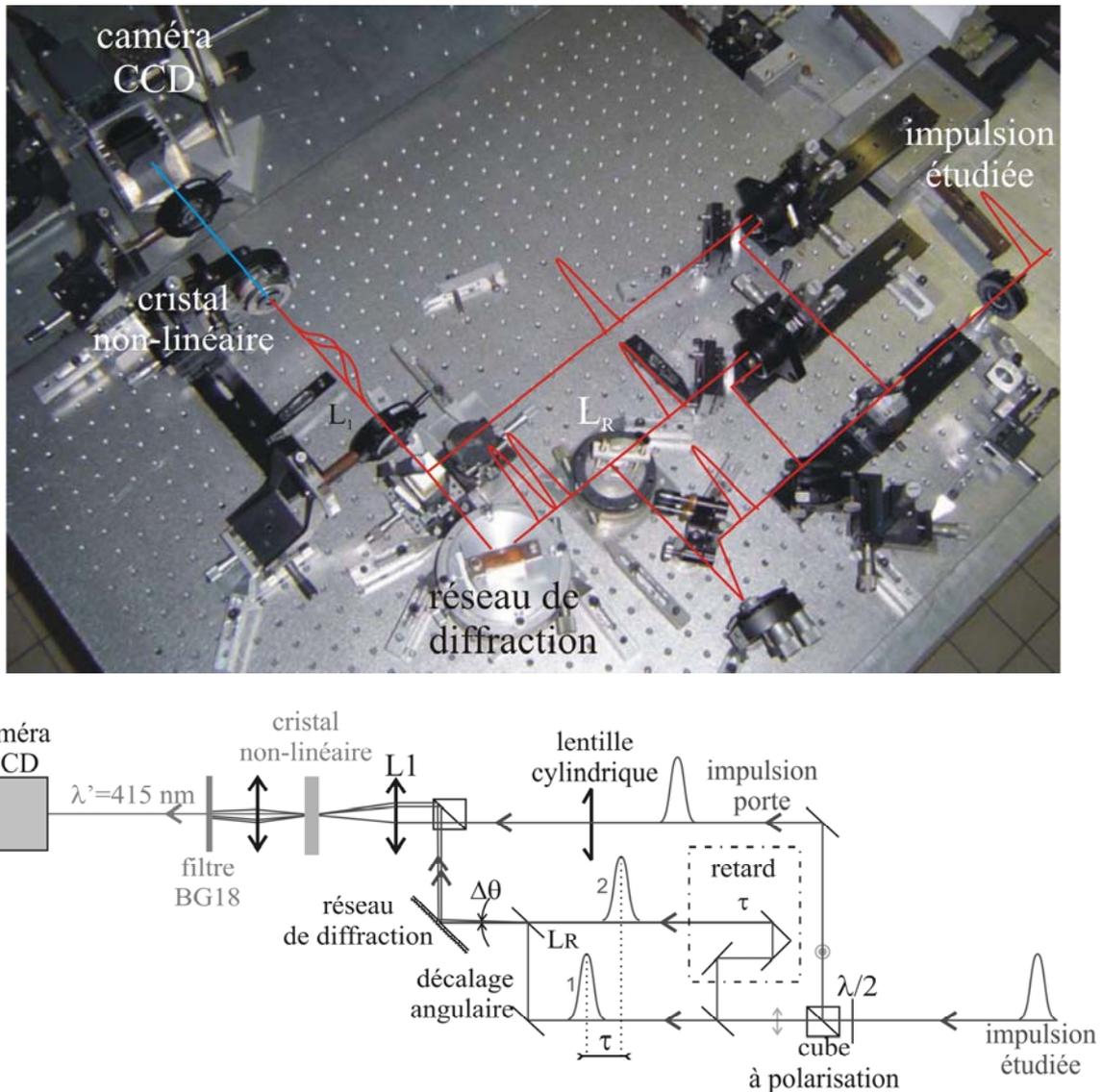


Figure 18 : Montage expérimental

Le montage est alimenté par un train d'impulsions récurrentes issues d'un oscillateur femtoseconde Ti : Al₂O₃ commercial fonctionnant à la longueur d'onde moyenne de 830 nm.

Le faisceau incident traverse tout d'abord une lame $\lambda/2$ suivie d'un cube à polarisation qui permet de créer deux impulsions de polarisation croisée de poids ajustable. L'impulsion dont la polarisation est parallèle à la table est envoyée dans un arrangement de type interféromètre de Mach-Zender. Ce dernier permet de créer les deux impulsions jumelles (1, 2). Il permet de les retarder l'une par rapport à l'autre d'une quantité τ contrôlable via une ligne à retard. Les deux faisceaux ainsi créés sont recombinaison en sortie d'interféromètre grâce à une lame de recombinaison 50/50 (L_R), placée sur une platine de rotation micrométrique. Ces deux faisceaux répliques sont ensuite envoyés sur un réseau de diffraction (600 traits/mm). Puis, une lentille de focalisation (L_1) affiche les deux spectres jumeaux dans son plan focal qui constitue le plan spectral de notre spectroscopie. Ce spectroscopie déplié a été calibré précisément préalablement.

La lame de recombinaison en sortie de l'interféromètre de Mach-Zender, permet d'introduire un angle entre les deux impulsions répliques. On décale géométriquement les

deux faisceaux issus de l'interféromètre d'une quantité $\Delta\theta$ faible (de l'ordre de quelques mrad). Les faisceaux quasi-confondus frappent ensuite le réseau de diffraction sous un angle d'incidence légèrement différent. Dans ces conditions, les spectres des impulsions répliqués sont décalés spatialement d'une quantité contrôlable via L_R ce qui permet de contrôler $\Delta\omega$.

A l'entrée du montage expérimental, une fraction de l'impulsion incidente a été prélevée par le premier cube à polarisation. Cette impulsion va servir de porte temporelle. Le faisceau porte possède une polarisation perpendiculaire à la table. L'impulsion porte traverse une ligne à retard variable ce qui permet de régler le synchronisme avec le signal de battements à échantillonner.

Sur le trajet du faisceau porte, on place une lentille cylindrique afin d'élargir spatialement le faisceau porte suivant la direction horizontale qui est celle le long de laquelle s'affiche le spectre. Le montage est tel que, dans le plan spectral qui est en aval, le faisceau porte forme une tache d'astigmatisme qui recouvre uniformément le spectre. La focale et la position de cette lentille sont choisies de façon adaptée. La présence de cette lentille cylindrique permet ainsi d'échantillonner le spectre sur un tir unique. Elle est donc directement responsable du caractère monocoup de cette configuration de SPIRIT.

L'impulsion porte est ensuite combinée avec le signal interférométrique grâce à un deuxième cube à polarisation. L'impulsion porte traverse la lentille L1 dans le plan focal de laquelle se trouve un cristal non-linéaire de type beta-BaB2O4 (BBO) type II. Ce cristal permet alors de faire la somme de fréquence non-colinéaire entre les battements spatio-temporels et la porte dont les polarisations sont croisées. Le signal converti à 2ω apparaît alors sur la bissectrice entre le signal de la porte et le signal de battement.

Vient enfin une seconde lentille convergente (L2) qui permet d'imager le cristal sur une caméra CCD chargée d'enregistrer l'interférogramme stationnaire. La caméra est précédée d'un filtre passe haut qui ne laisse passer que la composante bleue issue de la somme de fréquence ($\lambda = 415\text{nm}$). La réjection des signaux infrarouges est également obtenue par filtrage spatial.

2) *Calibration de SPIRIT*

a. Calibration du spectroscopie

L'accordabilité de l'oscillateur au saphir dopé titane offre un moyen très simple de calibrer le spectroscopie qui est intégré à SPIRIT. La précision de la calibration est accrue lorsque l'oscillateur fonctionne en mode continu à spectre étroit.

b. Calibration du décalage spectral $\Delta\omega$

La technique la plus fiable pour calibrer le décalage spectral $\Delta\omega$ consiste tout d'abord à régler le fonctionnement de l'oscillateur en mode continu à spectre étroit. Dans le plan spectral de SPIRIT s'affiche alors deux spots associés aux spectres des deux répliques. La mesure de $\Delta\omega$ est alors triviale une fois la calibration de l'axe spectral effectuée.



Figure 19 : Enregistrement des deux spectres jumeaux infrarouges lorsque le laser Ti : Sa est en régime "CW"

La calibration de $\Delta\omega$ peut également être obtenue à partir de la calibration de la position angulaire de la lame séparatrice L_R à l'aide d'un montage goniométrique standard. C'est la solution que nous avons adoptée lors de la caractérisation des chaînes basse cadence pour lesquelles le passage en mode continu envisagé précédemment est impossible pratiquement.

c. Calibration du retard τ

La technique la plus fiable pour la calibration du retard τ consiste à effectuer un enregistrement préalable de l'interférogramme SPIRIT sans décalage spectral ($\Delta\omega = 0$). L'interférogramme dépend alors uniquement du terme de phase induit par τ

$$I(\omega, t) \approx 2|\tilde{E}(\omega)|^2 [1 + \cos(\omega\tau)]$$

L'analyse de cet interférogramme à l'aide de l'algorithme de Takeda permet d'évaluer expérimentalement le terme de phase associé à τ : $\Phi_\tau(\omega) = \omega\tau$. Ce terme de phase spectrale est mémorisé puis soustrait à chaque fois que l'on procède à une mesure réelle ($\Delta\omega \neq 0$).

3) **Résultats expérimentaux**

a. Mesure des impulsions directement issues de l'oscillateur

La figure suivante présente un exemple d'enregistrement expérimental obtenu lors de la caractérisation d'une impulsion directement issue de l'oscillateur femtoseconde.

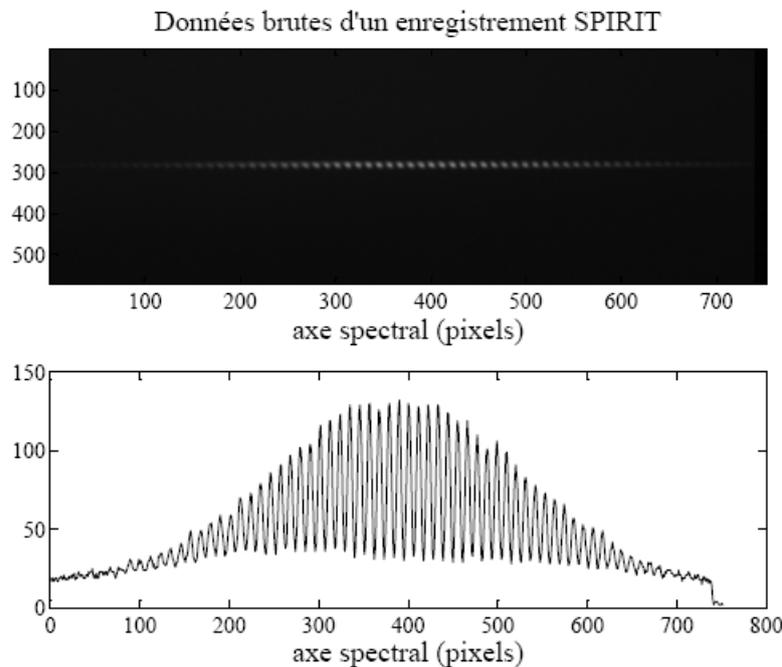


Figure 20 : Enregistrement SPIRIT pour une impulsion directement issue de l'oscillateur femtoseconde ; $\Delta\lambda = 0,7\text{nm}$ et $\delta\lambda = 10\text{nm}$

La mesure de cet interférogramme a pu être effectuée avec un rapport signal à bruit satisfaisant pour une puissance moyenne incidente à l'entrée du dispositif aussi faible que 15 mW. Ce chiffre correspond approximativement au seuil de détection d'un autocorrélateur

intensimétrique standard. Notons que la transparence de nombreux éléments optiques du montage expérimental était non optimisée. Ces constatations prouvent que SPIRIT possède une très bonne sensibilité énergétique.

L'analyse numérique de l'enregistrement précédent conduit aux profils reconstruits suivants :

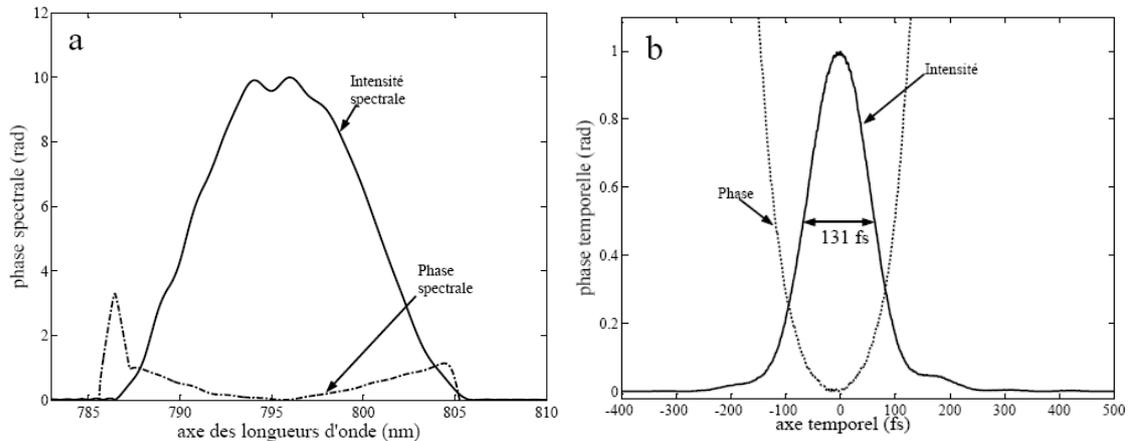


Figure 21 : a. Intensité et phase spectrales reconstruites. b. Intensité et phase temporelles reconstruites.

La durée à mi-hauteur en intensité obtenue par la technique SPIRIT est égale à 131 fs.

J'ai comparé ce résultat avec celui fourni par un autocorrélateur d'ordre 2 commercial. J'ai supposé que le profil de l'impulsion issue du laser était gaussien ce qui est tout à fait justifié compte tenu du résultat fourni par SPIRIT. La durée obtenue avec l'autocorrélateur est égale à 141 ± 10 fs. Les résultats concordent.

On notera la présence de rebonds dissymétriques dans les pattes de l'impulsion et d'une phase spectrale parabolique avec une flèche de quelques dixièmes de radians due vraisemblablement à la mauvaise optimisation de la ligne dispersive se trouvant à l'intérieur de l'oscillateur femtoseconde. En jouant sur cette ligne dispersive on peut faire évoluer la durée des impulsions. La durée d'impulsion fournie par SPIRIT passe alors par exemple à 148 fs alors que la durée fournie par l'autocorrélateur est alors égale à 155 fs. Là encore, on a un bon accord entre le résultat fourni par SPIRIT et celui fourni par l'autocorrélateur. L'amplitude et la phase spectrales de cette impulsion sont présentées sur la figure suivante. Sur la figure 22.b est représenté le profil temporel.

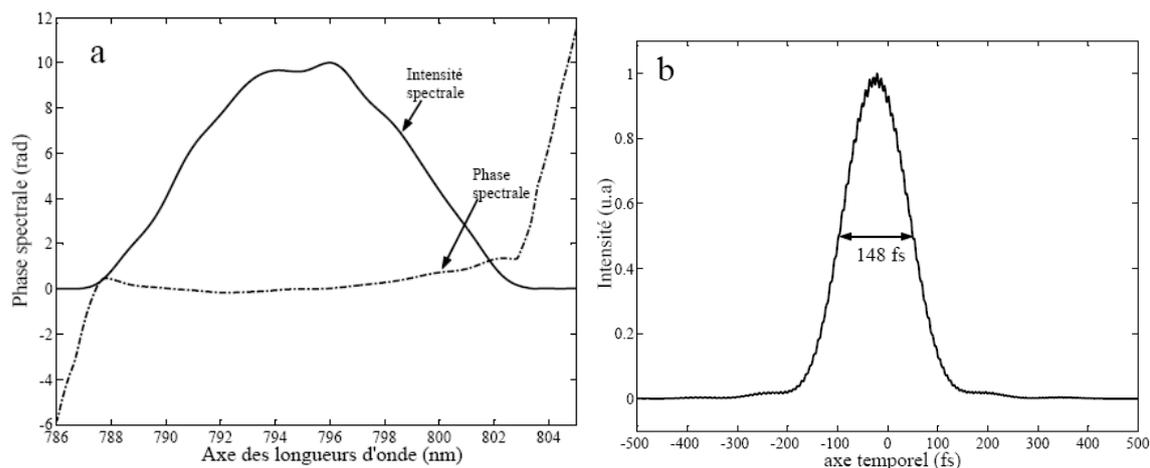


Figure 22 : a. Amplitude et phase spectrales reconstruites. b. Profil et phase temporelle reconstruits

b. Mesure de la phase spectrale ajoutée par un bloc de verre dispersif

J'ai ensuite procédé à la détermination de la phase spectrale ajoutée par la traversée d'une lame à face parallèle épaisse en verre dispersif. L'épaisseur de verre traversée par le faisceau laser est de 12 cm et le verre est de type F4. La lame à face parallèle est positionnée directement en amont de SPIRIT.

Pour accéder à la phase spectrale ajoutée par le morceau de verre et la comparer à la phase spectrale théorique obtenue à partir des coefficients de Sellmeier du verre, il faut supprimer la phase spectrale de l'impulsion issue directement du laser. Pour cela, on fait un enregistrement sans morceaux de verre et un enregistrement avec morceaux de verre. Après analyse numérique de ces deux enregistrements on soustrait les deux lois de phase spectrale reconstruites.

La figure suivante présente la comparaison entre phase mesurée et phase théorique.

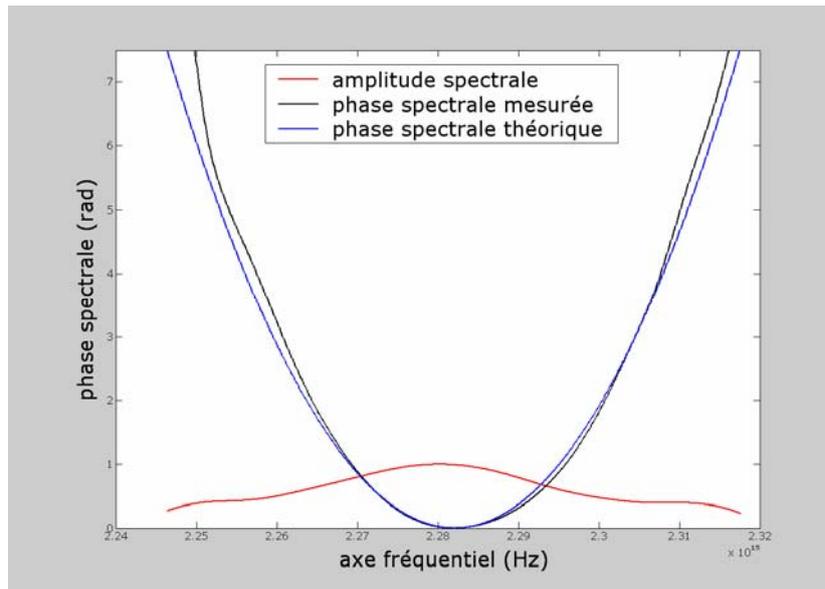


Figure 23 : Superposition de la phase spectrale mesurée par SPIRIT et de la phase spectrale théorique obtenue à partir des coefficients de Sellmeier pour 12 cm de verre de type F4.

On constate que la phase spectrale reconstruite par SPIRIT correspond bien à la phase spectrale théorique calculée à partir des formules de Sellmeier.

Ces résultats valident l'efficacité de SPIRIT dans sa configuration monocoup (avec lentille cylindrique) pour la caractérisation d'un oscillateur femtoseconde haute cadence. Le paragraphe suivant présente la validation expérimentale de SPIRIT monocoup pour la caractérisation d'une impulsion unique issue d'une chaîne femtoseconde amplifiée basse cadence.

IV. Caractérisation d'une chaîne femtoseconde basse cadence

Ces mesures ont eu lieu au Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) à Palaiseau qui possède plusieurs chaînes amplifiées basse cadence (10Hz). Pour effectuer cette campagne de manipulation à l'extérieur de mon laboratoire d'origine, j'ai fait en sorte que SPIRIT loge sur une table optique de 70 cm par 70 cm transportable aisément.

1) *Caractérisation d'une impulsion unique de durée égale à 100 fs*

Le montage SPIRIT est ici strictement identique à celui utilisé pour la caractérisation de l'oscillateur haute cadence. En amont du montage expérimental, deux lames 50/50 ont été placées pour diminuer la puissance incidente à SPIRIT. Seulement 3 mJ d'énergie ont été prélevé en bout de chaîne pour l'analyse des impulsions.

Lors de cette expérience, j'ai eu accès à un autocorrélateur d'ordre 2 monocoup et à un système SPIDER présents au LOA. J'ai pu ainsi comparer les résultats fournis par les trois appareils.

a. Reconstruction d'une impulsion laser

Le résultat de la reconstruction d'un profil temporel d'impulsion par la technique SPIRIT est représenté à la figure 24.

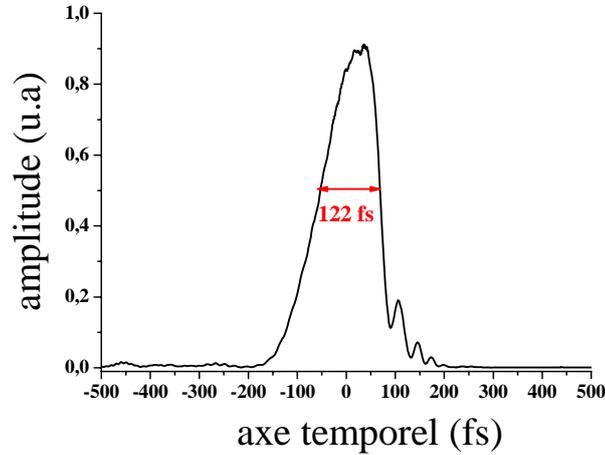


Figure 24 : Profil de l'impulsion obtenu lors de l'optimisation de la ligne de recompression de la chaîne laser par la technique SPIRIT

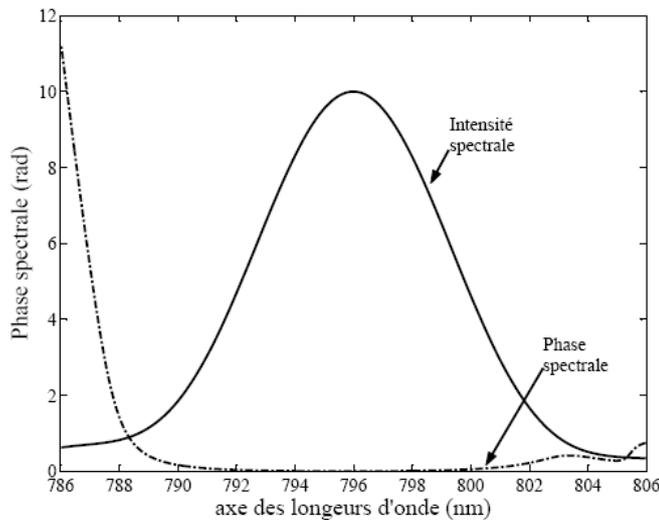


Figure 25 : Intensité et phase spectrales associées

b. Dérèglement de la ligne de recompression de la chaîne amplifiée

La seconde étude réalisée sur cette chaîne a permis de constater le comportement de SPIRIT lorsque l'on dérègle la ligne de recompression à réseaux qui se trouve à la fin de la chaîne amplifiée.

Dans cette expérience, la distance entre les réseaux a été modifiée continûment, dans le but de faire varier la phase spectrale parabolique de l'impulsion. Ainsi, en changeant la distance entre les réseaux du compresseur, il est possible d'obtenir une phase spectrale de l'impulsion positive ou négative. Le parallélisme des réseaux, quant à lui, reste inchangé.

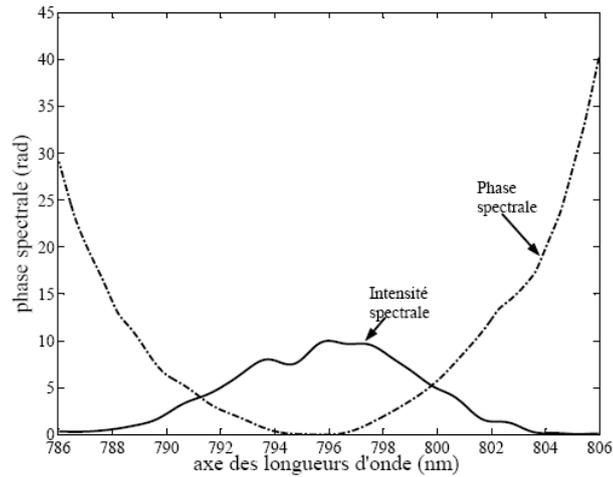


Figure 26 : Intensité et phase spectrales mesurées pour le réglage initial de la ligne de recompression

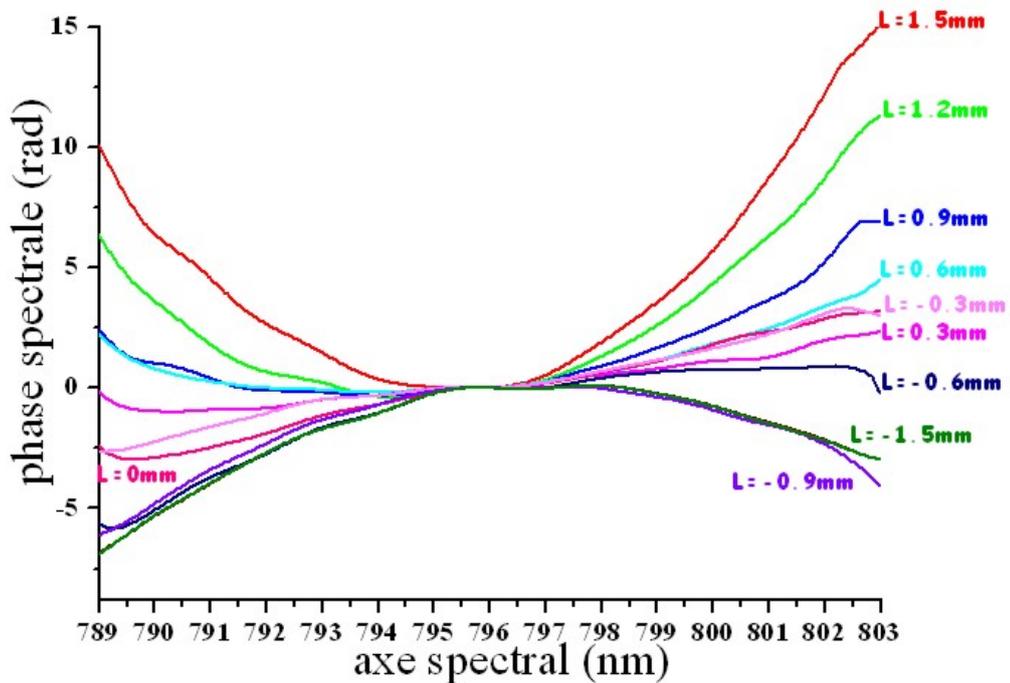


Figure 27 : Phase spectrale reconstruite en fonction de la distance entre les réseaux du compresseur.

c. Comparaison entre SPIDER, SPIRIT et un autocorrélateur d'ordre 2

i. **Reconstruction d'une impulsion par la méthode SPIDER et comparaison avec SPIRIT**

Dans un premier temps, la ligne de recompression est optimisée afin de produire une impulsion de durée minimale. On mesure alors simultanément l'impulsion avec SPIDER et avec SPIRIT.

L'impulsion ainsi reconstruite par la technique SPIDER est montrée à la figure 28.b

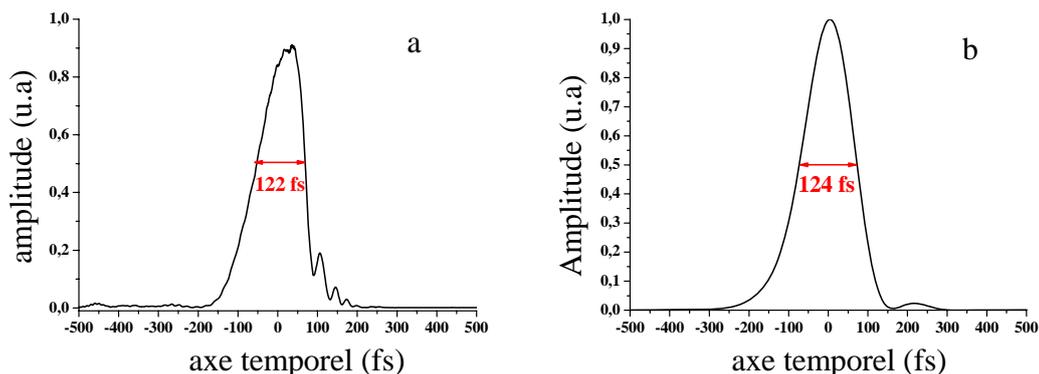


Figure 28 : Profil de l'impulsion obtenu lors de l'optimisation de la ligne de recompression. a. Par la technique SPIRIT, b. Par la technique SPIDER

Les durées d'impulsions reconstruites par SPIDER et SPIRIT concordent parfaitement.

Les deux profils présentent des oscillations sur le côté droit de l'impulsion. Ces aberrations temporelles sont vraisemblablement dues à la non compensation des termes de phase spectrale d'ordre supérieur par le compresseur. Cet effet est surtout visible lorsque l'ordre deux est compensé ce qui était le cas de cette expérience.

Sur le profil fourni par SPIDER, les rebonds multiples caractéristiques d'une dispersion d'ordre 3 se réduisent à un rebond unique plus long. Cette différence pourrait provenir du fait que le système SPIDER utilisé était optimisé pour des impulsions plus courtes de durée 30 fs. L'interférogramme SPIDER comprenait alors très peu de franges, ce qui remet vraisemblablement en cause la qualité de la reconstruction des détails fins de l'impulsion.

ii. Comparaison des durées fournies par SPIDER, par SPIRIT et par l'autocorrélateur

Cette étude comparative a été menée en changeant continûment la distance séparant les réseaux du compresseur.

Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 29.

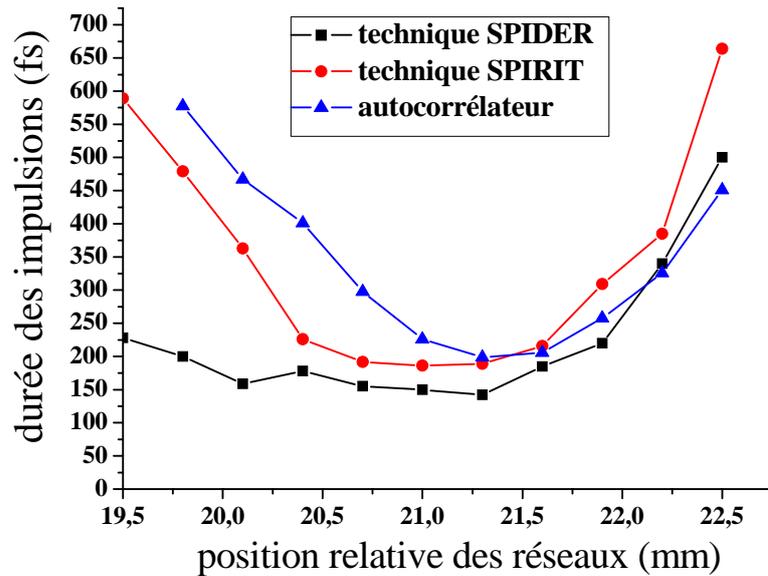


Figure 29 : Evolution de la durée mesurée en fonction de la distance qui sépare les réseaux.

On constate un accord qualitatif satisfaisant entre les résultats fournis par les trois appareils.

2) Caractérisation d'une impulsion de 30fs

a. Schéma expérimental

Pour la caractérisation d'impulsions d'une trentaine de femtosecondes, il a été nécessaire de modifier le montage expérimental initial.

Dans le montage précédent, l'impulsion traverse une épaisseur de verre cumulée de plusieurs centimètres à cause notamment de la présence des cubes à polarisation et des lentilles. Or, la traversée d'un matériau de type BK7 (matériau constituant principalement les optiques) augmente la durée des impulsions à cause des effets de dispersion chromatique. Pour des impulsions de 100 fs à spectre relativement étroit (10 nm), j'ai vérifié que cet effet était pratiquement négligeable (allongement inférieur à 10% de la durée d'impulsion). Pour des impulsions ultra-brèves de durée 30 fs et à spectre large (30 nm) cet effet n'est plus négligeable. Prenons l'exemple d'une impulsion gaussienne en limite de Fourier ($\delta t \cdot \delta \nu = 1$), de durée à mi-hauteur en intensité égale à 30 fs. Le spectre de cette impulsion a une largeur de 31 nm. Si cette impulsion traverse un morceau de verre type BK7 d'épaisseur 5 mm, alors l'impulsion s'élargit d'un coefficient 0,75.

Une solution consisterait alors à soustraire numériquement la phase spectrale ajoutée par l'épaisseur de verre traversée sans modification du montage expérimental. Cette situation reviendrait à caractériser une impulsion qui s'éloigne de la limite de Fourier ce qui peut s'avérer problématique comme nous l'avons souligné au paragraphe II 4.b. de ce Chapitre. Il nous a semblé préférable de mettre en place un dispositif expérimental dédié aux impulsions ultra-courtes minimisant la traversée de composants dispersifs.

Le dispositif expérimental qui a été développé pour la caractérisation d'impulsions 30 fs est représenté en figure 30. Dans ce montage expérimental, j'ai supprimé les cubes à

polarisation qui possédaient des dimensions trop importantes. Le cube à polarisation à l'entrée du système a été remplacé par une pellicule à polarisation et le cube à polarisation qui permettait la recombinaison du faisceau porte avec le signal interférométrique a été supprimé. La recombinaison a maintenant lieu sur le bord du réseau de diffraction (RdD). La lentille de focalisation dans le cristal non-linéaire a été remplacée, quant à elle, par un miroir concave.

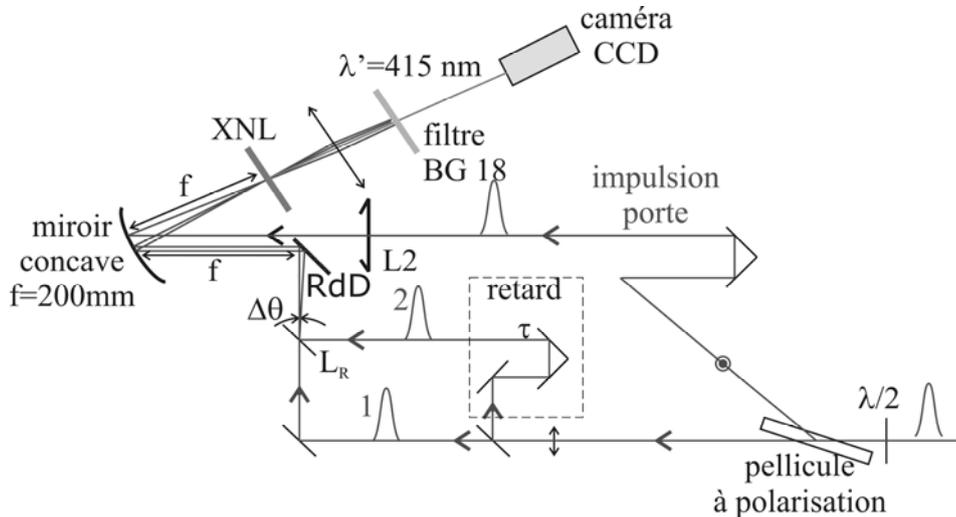


Figure 30 : Montage expérimental utilisé pour la caractérisation d'impulsions ultra courtes. RdD est le réseau de diffraction, L2 représente la lentille cylindrique, XNL représente le cristal non-linéaire.

b. Mesure d'une impulsion

Le montage expérimental présenté dans le paragraphe précédent a permis de caractériser des impulsions issues de la chaîne laser amplifiée de la salle dite "salle jaune" du LOA. Cette chaîne, lorsqu'elle est optimisée, délivre des impulsions d'une durée de l'ordre de la trentaine de femtosecondes. Cette chaîne possède trois étages d'amplification et est surtout dédiée à des expériences de physiques moléculaires sous vide. Ces expériences nécessitent des impulsions les plus courtes possible parfaitement connues en amplitude et en phase. Les expériences SPIRIT qui ont eu lieu sur cette chaîne ont été faites après le second étage d'amplification.

Le profil temporel fourni par SPIRIT a été comparé à celui obtenu avec SPIDER. Ces profils ont été acquis sur le même tir ; ils sont montrés à la figure 31.

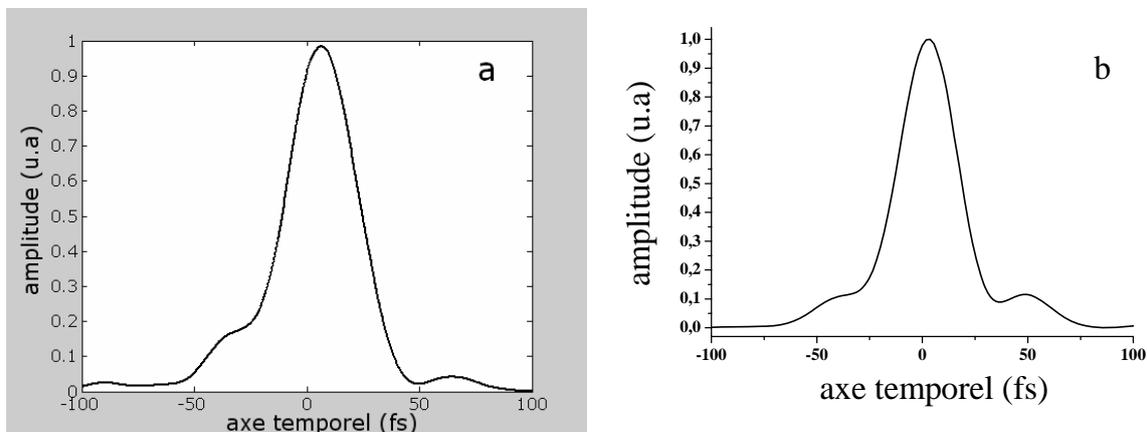


Figure 31 : a. Profil temporel obtenu à partir de la technique SPIRIT. b. Profil temporel obtenu à partir de la technique SPIDER

On s'aperçoit que les profils reconstruits par SPIDER et SPIRIT sont très proches. La durée FWHMI correspondant au profil temporel SPIDER est de 32 fs alors que la durée FWHMI obtenue à partir du profil temporel SPIRIT est de 35 fs. Là encore, la correspondance des durées est très bonne ce qui confirme la polyvalence de SPIRIT.

**CHAPITRE 5 : Interférométrie Spectrale à Décalage
à Deux Dimensions: SPIRIT 2D**

I. Présentation de SPIRIT 2D

1) Introduction

La configuration de SPIRIT qui a été présentée au chapitre précédent repose sur l'analyse d'un interférogramme spectral à décalage unidimensionnel qui renferme l'information de phase recherchée sous la forme d'une faible variation du pas des franges d'interférence. L'allure générale de l'interférogramme est surtout due à l'existence d'une surmodulation des franges indépendante du signal étudié. La structure de phase recherchée influe faiblement quant à elle sur la structure de l'interférogramme. Celui-ci ne fournit pas une représentation directe et intuitive de la structure de phase recherchée. Seule une analyse numérique fine permet de faire apparaître l'information recherchée.

L'interférogramme SPIRIT est en fait un échantillon à un instant donné d'une structure de battements spectro-temporels bidimensionnelle. La forme de cette structure dépend de la phase spectrale recherchée : une phase spectrale parabolique correspond à des franges spectro-temporelles rectilignes ; une phase spectrale cubique correspond à des franges possédant de la courbure etc. ... (Voir Chapitre 4 II. 2.). L'enregistrement de l'ensemble des battements spectro-temporels fournit alors une représentation directe et intuitive de la structure de phase recherchée. Cette propriété, que j'ai illustrée au chapitre précédent à l'aide de résultats numériques, constitue un atout indéniable de la technique SORBETS (voir Chapitre 3 II. 2.)). Cette technique consiste à enregistrer une figure d'interférence spectro-temporelle bidimensionnelle similaire à celle produite par la partie amont du montage SPIRIT à l'aide d'une caméra à balayage de fente. L'enregistrement de l'ensemble des battements spectro-temporels dans une figure bidimensionnelle fournit un très grand nombre d'informations ce qui après traitement numérique permet d'accéder à un très bon rapport signal sur bruit. Un autre avantage de SORBETS vient du fait que la valeur du décalage spectral apparaît directement sur la figure. En effet la valeur de la période temporelle des

battements est directement reliée à ce décalage spectral : $\Delta t = \frac{2.\pi}{\Delta\omega}$. La méthode SORBETS

est par conséquent auto-calibrée du point de vue du décalage spectral. Enfin, il n'est pas nécessaire de surmoduler l'interférogramme qui possède naturellement une périodicité temporelle. Ceci dispense de la procédure de calibration associée à la présence du retard τ .

Cependant, malgré ces nombreux avantages, la technique SORBETS est peu utilisée à cause des inconvénients liés à l'emploi d'une caméra à balayage de fente.

Dans ce chapitre je présente une évolution de SPIRIT, nommée SPIRIT 2D, qui consiste à reproduire le principe de SORBETS en remplaçant la caméra à balayage de fente par un système passif tout optique compatible avec une détection monocoup.

Cette évolution de la méthode SPIRIT a profité d'une collaboration entre le laboratoire XLIM (Limoges) et l'Université de Yerevan (Arménie) dans le cadre d'un projet soutenu par l'OTAN (Programme Science for Peace). Dans cette phase de mes travaux, j'ai reçu l'aide précieuse de deux collègues Arméniens qui ont contribué à finaliser cette étude. A ce titre, je remercie donc chaleureusement Tigran Mansuryan et le professeur Levon Mouradian de l'Université de Yerevan.

2) Principe général

Le schéma synoptique présentant le principe de SPIRIT 2D est le suivant :

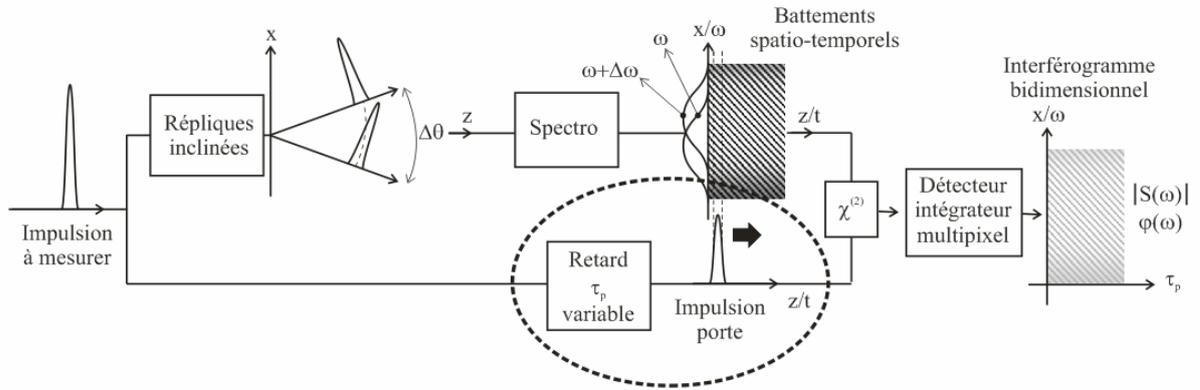


Figure 1 : schéma synoptique de SPIRIT 2D

Le principe de SPIRIT 2D est très proche de celui de SPIRIT. La nouveauté consiste simplement à introduire une variation du retard τ_p de l'impulsion porte afin d'échantillonner de façon variable au cours du temps l'ensemble des battements spectro-temporels. SPIRIT 2D consiste non plus à échantillonner les battements spectro-temporels à un seul instant t_0 , mais à différents instants t . D'autre part, le retard τ entre les impulsions répliques peut être supprimé.

L'interférogramme qui est enregistré prend alors la forme suivante :

$$S(\omega, \tau_p) \approx 2|\tilde{E}(\omega)|^2 \left[1 + \cos(\Delta\omega \cdot \tau_p + \varphi'(\omega) \cdot \Delta\omega) \right] \quad (5.1)$$

Deux schémas expérimentaux permettant l'enregistrement de cet interférogramme bidimensionnel ont été développés respectivement pour la détection d'impulsions récurrentes et pour la détection sur tir unique. Ces deux configurations font l'objet du paragraphe II et III.

Dans ces deux configurations, nous avons fait usage du même algorithme de reconstruction. Le paragraphe suivant présente cet algorithme.

3) Algorithme de reconstruction

Un exemple d'interférogramme expérimental SPIRIT 2D est donné figure 2.a :

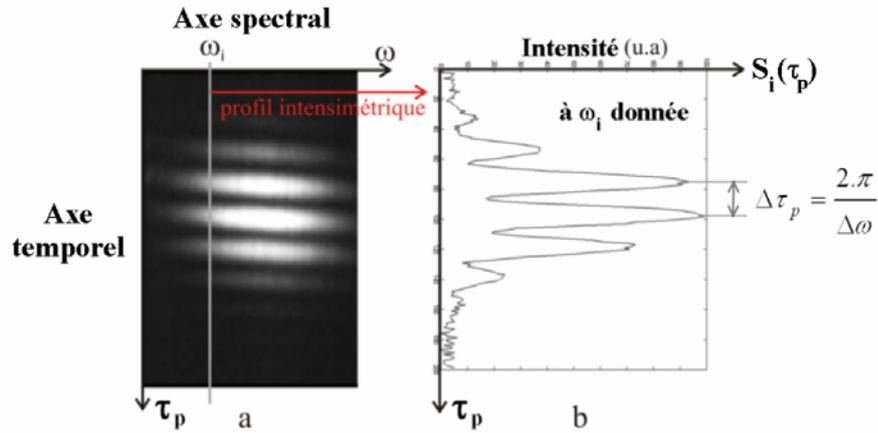


Figure 2 : a. Exemple d'interférogramme expérimental SPIRIT 2D. b. Profil intensimétrique d'une tranche fréquentielle.

Pour une composante fréquentielle ω_i donnée le signal temporel $S_i(\tau_p) = S(\tau_p, \omega = \omega_i)$

est une fonction sinusoïdale de période temporelle $\Delta\tau_p = \frac{2\pi}{\Delta\omega}$:

$$S_i(\tau_p) = S(\omega = \omega_i, \tau_p) \approx 2|\tilde{E}(\omega_i)|^2 \left[1 + \cos(\Delta\omega \cdot \tau_p + \varphi'(\omega_i) \cdot \Delta\omega) \right] \times \text{RI}(\tau_p) \quad (5.2)$$

($\text{RI}(\tau_p)$) représente la réponse impulsionnelle du spectroscopie.)

$\varphi'(\omega_i)$ qui est notre inconnue intervient alors dans la phase à l'origine du signal temporel $S_i(\tau_p)$.

L'algorithme pour extraire $\varphi'(\omega_i)$ suit les étapes suivantes :

- On calcule la transformée de Fourier numérique de $S_i(\tau_p)$. Cette transformée de Fourier comprend 3 lobes :

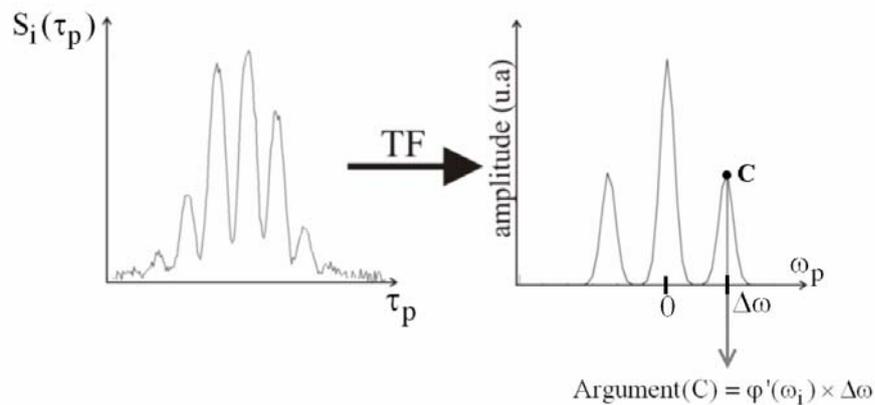


Figure 3 : Transformée de Fourier du signal $S_i(\tau_p)$

- La phase du lobe secondaire de droite qui vaut $\Psi(\omega_i) = \varphi'(\omega_i) \times \Delta\omega$ est obtenue numériquement.

- $\Delta\omega$ est un paramètre connu qui est obtenu par calibration de l'axe temporel (Cette calibration sera discutée ultérieurement). On en déduit : $\varphi'(\omega_i) = \frac{\Psi(\omega_i)}{\Delta\omega}$.
- Les étapes précédentes sont répétées pour toutes les valeurs de ω_i nécessaires à un échantillonnage satisfaisant de l'axe spectral. On en déduit alors la fonction $\varphi'(\omega)$.

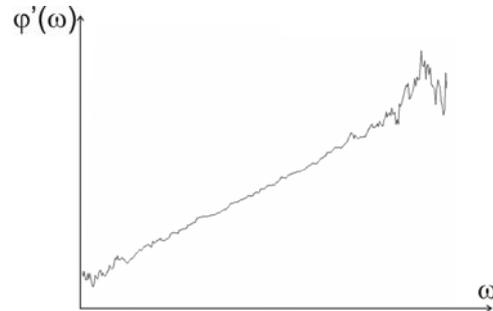


Figure 4 : Exemple de calcul de la dérivée de la phase spectrale fournie par l'algorithme SPIRIT 2D à partir d'une trace expérimentale.

- La phase spectrale recherchée est calculée par intégration numérique : $\varphi(\omega) = \int \varphi'(\omega).d\omega$
- L'amplitude spectrale est quant à elle obtenue par intégration de la figure bidimensionnelle $S(\omega, \tau_p)$ le long de l'axe temporel τ_p :

$$|\tilde{E}(\omega)| \propto \sqrt{\int S(\omega, \tau_p).d\tau_p} \quad (5.3)$$

- Enfin, une dernière Transformée de Fourier permet d'obtenir le profil temporel cohérent de l'impulsion étudiée.

II. Caractérisation d'impulsions femtosecondes récurrentes

1) Présentation du montage expérimental

L'expérience est alimentée par un oscillateur laser Ti : Sa qui délivre un train d'impulsions femtosecondes récurrentes de durée de l'ordre de la centaine de femtosecondes avec une cadence de répétition de 75MHz.

Le dispositif développé pour caractériser les impulsions est le suivant :

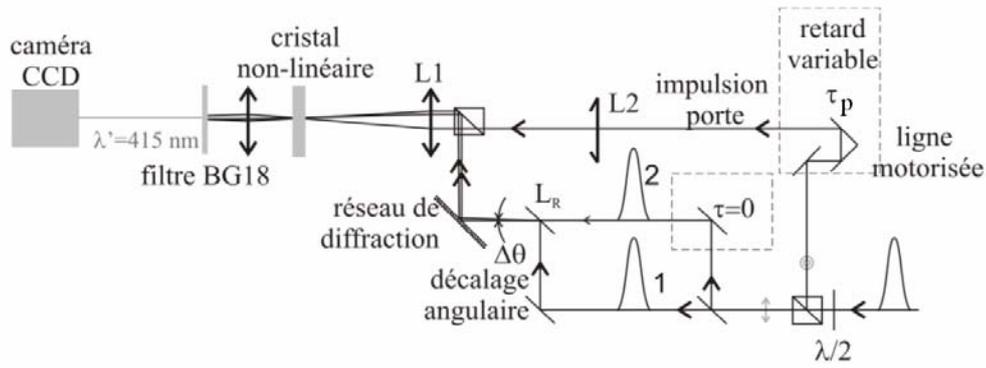


Figure 5 : Dispositif expérimental de SPIRIT 2D haute cadence

Le dispositif expérimental de SPIRIT 2D haute cadence est quasiment identique à celui de la version unidimensionnelle de SPIRIT monocoup présentée au chapitre précédent (dit "SPIRIT 1D"). Une fraction de l'impulsion à caractériser est envoyée dans un interféromètre Mach-Zender. Contrairement au cas de SPIRIT 1D l'interféromètre est réglé pour avoir un chemin optique nul entre les impulsions répliques. Ces impulsions répliques sont envoyées dans un spectromètre déplié avec un angle d'incidence sur le réseau différent.

Une autre fraction de l'impulsion, servant de porte temporelle, est envoyée sur une ligne à retard variable. Cette ligne est munie d'une translation motorisée ce qui permet de disposer d'un délai lentement variable au cours du temps. Le balayage de la trace SPIRIT 2D prend 10 secondes. Le reste du dispositif optique est identique à celui de SPIRIT 1D.

Le système d'acquisition est par contre différent. La caméra CCD délivre une vidéo numérique permettant de disposer de 25 images par seconde. A partir de chaque image, correspondant à un instant donné, on extrait une ligne spectrale. Ensuite, toutes les lignes spectrales sont concaténées pour fournir une image numérique bidimensionnelle d'axe temporel orthogonal à l'axe spectral. Le nombre d'échantillons le long de l'axe spectral correspond au nombre de pixel de la caméra CCD le long de cet axe. Le nombre d'échantillons temporels correspond au nombre d'images contenues dans la vidéo enregistrée par la caméra.

Le résultat est alors une figure dont l'allure est la suivante :

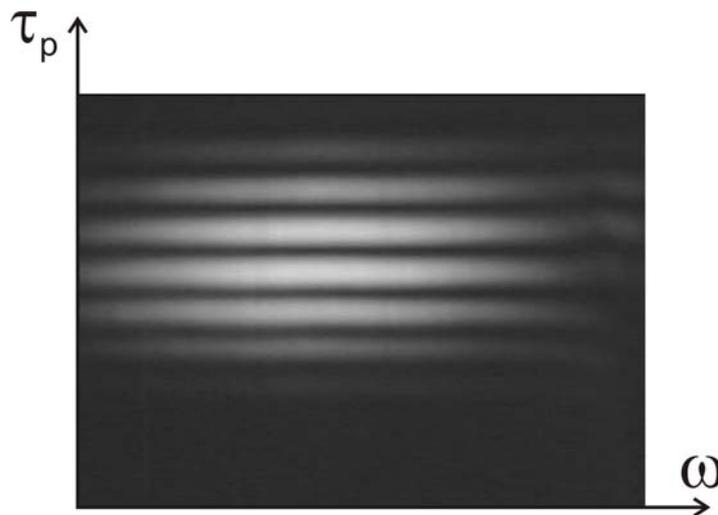


Figure 6 : Enregistrement expérimental d'une figure de battements spectro-temporels

Sur cet exemple, les franges sont horizontales car aucun délai n'a été ajouté entre les impulsions répliques et l'impulsion mesurée est sans phase.

2) *Amplitude de balayage de la porte*

Sur la figure précédente, les battements spectro-temporels s'affichent à l'intérieur de la réponse impulsionnelle du spectroscopie à réseau de durée Dt . Il est donc souhaitable de balayer temporellement la porte sur une durée au moins égale à Dt .

Cette durée peut être évaluée à partir des caractéristiques optogéométriques du réseau de diffraction : le faisceau incident au réseau possède un diamètre à mi-hauteur en intensité qui a été mesuré égal à 2 mm. Le réseau utilisé ici est un réseau de diffraction qui compte 600 traits/mm ; il est optimisé sur l'ordre $k=1$; l'angle d'incidence vaut $65,7^\circ$. Par construction graphique, il est simple d'évaluer la réponse impulsionnelle du spectromètre à réseau. Celle-ci est approximativement égale à $Dz = 2,4$ mm. Temporellement, cette réponse correspond à une durée égale à $Dt=Dz/c = 8$ ps ($c=3.10^{+8}$ m/s). Le moteur qui contrôle le déplacement de la porte est un moteur pas à pas contrôlé électroniquement dont la vitesse de déplacement est de $266,6 \mu\text{m/s}$. La durée totale d'acquisition est de 10 secondes. La translation totale résultante vaut donc 2,7 mm. Le faisceau fait un double passage dans la ligne à retard. L'amplitude de variation de la ligne à retard est donc égale à $2 \times 2,7 = 5,4$ mm ce qui est supérieur à la longueur de la réponse impulsionnelle (2,4 mm). Les paramètres ci-dessus sont donc adaptés pour décrire l'ensemble de la trace SPIRIT 2D.

3) *Calibration des axes de la figure bidimensionnelle*

La calibration spectrale est identique à celle de SPIRIT 1D (0,0406 nm/pixel spectral).

Le déplacement de la porte entre deux images enregistrées par la caméra (25 images par secondes) vaut $dz = 2 \times \frac{1}{25} \times 266,6 \mu\text{m} = 21,33 \mu\text{m}$. La calibration de l'axe temporel de la figure numérique SPIRIT 2D est donc égale à dz/c , c'est à dire 71 fs/pixel.

Ces calibrations permettent d'afficher des axes calibrés visible sur l'exemple suivant :

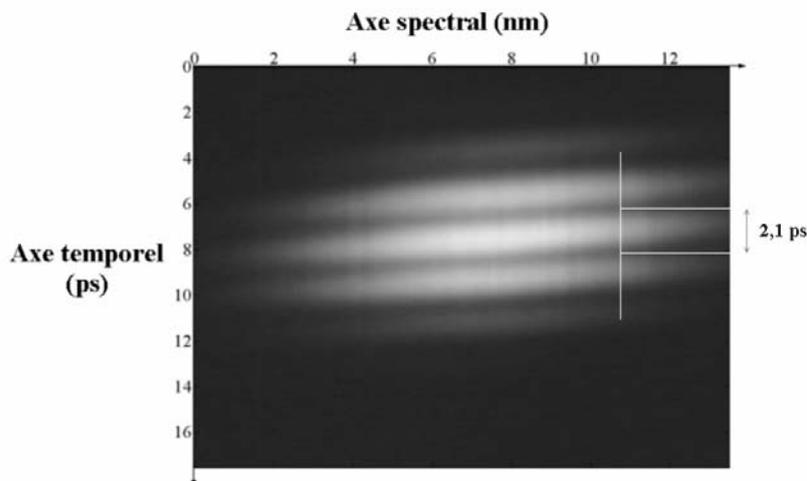


Figure 7 : Exemple de battement spectro-temporel après calibration temporelle et spectrale.

4) Calibration du décalage spectral

La calibration du décalage peut être effectuée avec la même procédure que pour SPIRIT 1D (voir Chapitre 4, III.2.b.) lors d'une procédure préalable. La mesure est assez triviale lorsque l'on peut faire fonctionner la source en régime continu. C'est plus fastidieux dans le cas d'une chaîne amplifiée où un montage goniométrique annexe est requis.

Une autre alternative consiste à relever la valeur du décalage spectral directement sur la trace SPIRIT 2D elle-même. Comme cela a été souligné au I.1., la trace SPIRIT 2D est auto-référencée du point du décalage spectral. La période temporelle des battements est directement reliée à ce décalage via la formule $\Delta t = \frac{2.\pi}{\Delta\omega}$. La calibration de l'axe temporel entraîne la calibration du décalage spectral.

Exemple : Sur la figure précédente on relève une périodicité temporelle égale à $\Delta t = 2,1$ ps ce qui correspond à un décalage spectral égale à $\Delta\lambda = 0,9$ nm.

5) Reconstruction de la phase spectrale ajoutée par un morceau de verre

Dans ce paragraphe, je présente la validation expérimentale quantitative de SPIRIT 2D. Cette expérience a consisté à mesurer la phase spectrale ajoutée par la traversée d'une épaisseur de verre connu placée sur le trajet du faisceau de façon similaire à ce qui a été fait pour SPIRIT 1D (Chapitre 4 III.3.b.).

Comme nous l'avons vu au paragraphe III.3.b. du Chapitre IV la phase ajoutée par un milieu dispersif est parabolique. L'expérience numérique présentée au paragraphe II.2.d. de ce Chapitre IV nous enseigne que la présence de cette phase parabolique doit se traduire par un effet d'inclinaison des franges de la trace SPIRIT 2D qui restent rectilignes.

Nous avons vérifié expérimentalement ce comportement comme l'attestent les résultats suivants :

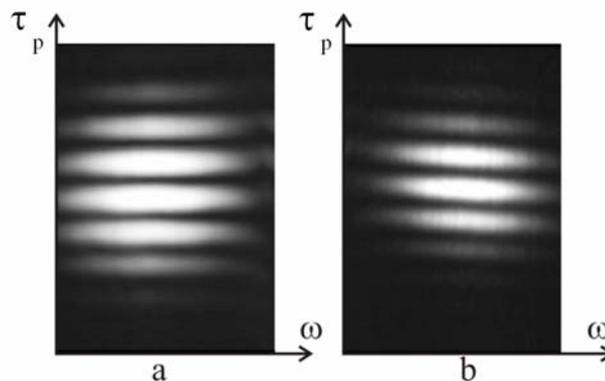


Figure 8 : a. Enregistrement expérimental de la figure de battements spectro-temporels obtenus sans morceau de verre et pour un décalage spectral égal à 1nm. b. Enregistrement expérimental obtenu après traversée de 12cm de verre F4 dans les mêmes conditions.

La figure suivante présente la phase ajoutée par le bloc de verre calculée par soustraction des deux lois de phase déduites de l'analyse des deux enregistrements précédents. Cette phase retrouvée est comparée à la phase théorique déduite des formules de Sellmeier.

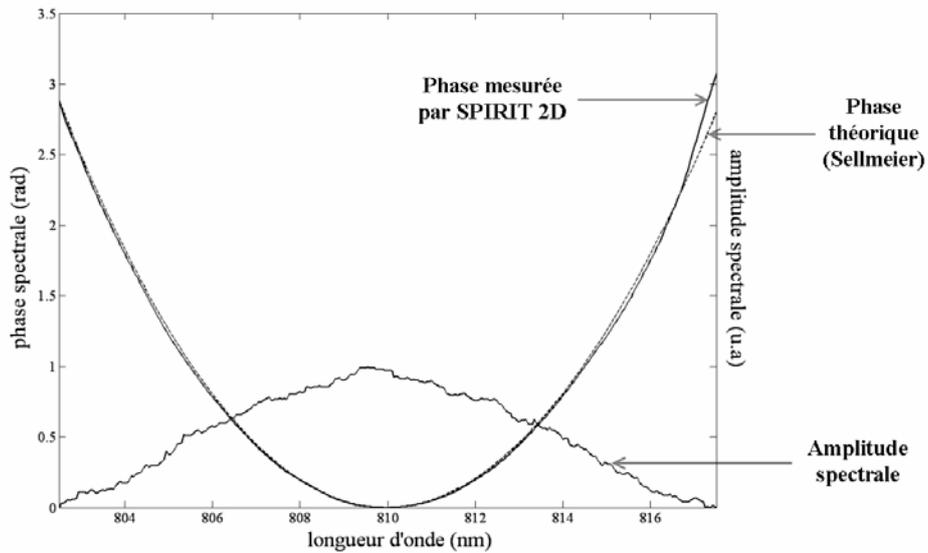


Figure 9 : Mesure de la phase spectrale parabolique ajoutée par 12cm de verre de type F4.

La phase spectrale mesurée par SPIRIT 2D correspond parfaitement à la phase spectrale calculée à partir des coefficients de Sellmeier. Si on compare les résultats donnés par SPIRIT 1D et par SPIRIT 2D pour la même expérience, on constate que la phase spectrale expérimentale obtenue à partir de la seconde méthode coïncide mieux avec la phase spectrale théorique. L'écart entre théorie et mesure ne dépasse pas 0,03 rad dans ce deuxième cas. Cette différence sur la précision des deux techniques peut s'expliquer par le fait que la technique SPIRIT 2D tire avantage de l'utilisation des deux dimensions spectrales et temporelles. La figure bidimensionnelle SPIRIT 2D renferme plus d'informations qu'il n'est nécessaire pour la reconstruction de la phase spectrale. Cette surinformation permet d'accéder à un meilleur rapport signal sur bruit.

Note : La figure suivante présente le profil temporel de l'impulsion dispersée reconstruite à partir de l'enregistrement de la figure 8. b.

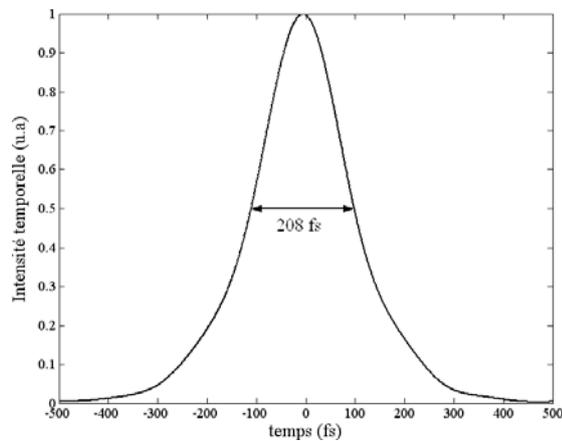


Figure 10 : Profil temporel de l'impulsion après traversée de 12cm de verre.

6) *Reconstruction de structures de phase spectrale d'ordre supérieur*

Le but de ce paragraphe est de tester le comportement de SPIRIT 2D en présence de structures de phase complexes.

Dans ce but un dispositif de mise en forme temporelle d'impulsion a été mis en place en amont de l'appareil SPIRIT 2D. Ce dispositif est basé sur la technique du masquage de phase spectrale.

a. Masquage de phase spectrale

Plusieurs solutions existent pour modifier la phase spectrale d'une impulsion brève :

- Sur une des chaînes amplifiées basse cadence avec laquelle j'ai travaillé durant mes campagnes de mesure au LOA, on trouve en sortie d'oscillateur laser un système de modulation de phase spectrale nommé Dazzler [26]. Ce dispositif acousto-optique permet de pré-compenser les effets de phase spectrale accumulés dans l'ensemble du système afin de produire une impulsion finale amplifiée en limite de Fourier. Ce dispositif permet ainsi d'ajouter à l'impulsion initiale une modulation de phase spectrale d'ordre 2, d'ordre 3 et d'ordre 4. Cependant, pour un oscillateur haute cadence (75MHz), l'utilisation de cet appareil est complexe [27].
- La solution que nous avons retenue est utilisable aussi bien sur une chaîne amplifiée basse cadence qu'à haute cadence sur un oscillateur. Il s'agit d'une ligne à dispersion nulle à masquage de phase spectrale. Cette ligne permet à partir d'un masque de phase placé dans le plan spectral d'une ligne 4f de changer le profil de la phase spectrale de l'impulsion. Nous avons utilisé un masque passif que nous avons réalisé artisanalement au laboratoire. Ce masque de phase peut aussi être constitué d'une barrette de cristaux liquide, d'un miroir déformable ou encore d'une barrette de MEMS pilotée électroniquement. Ce type de ligne est utilisé par exemple en photochimie pour des expériences de contrôle cohérent [28].

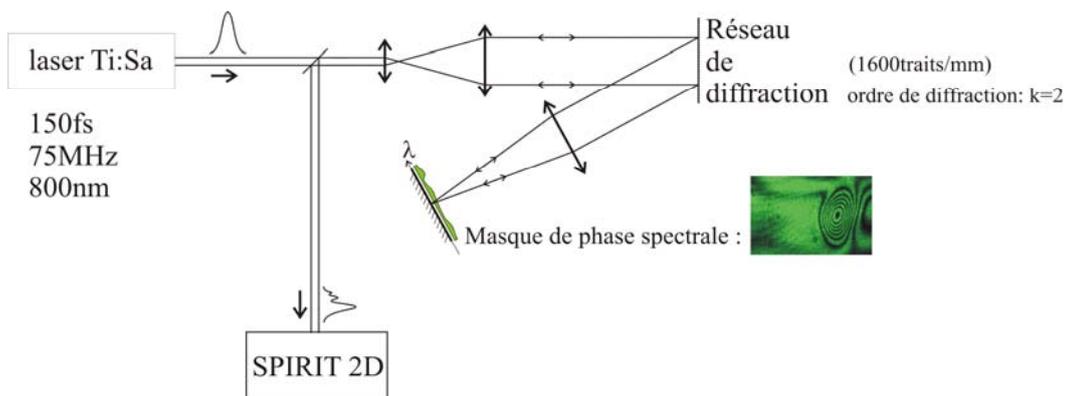


Figure 11 : Mise en forme des impulsions.

Faute de disponibilité au laboratoire d'une barrette de cristaux liquide ou d'un miroir déformable pilotables, le masque de phase qui a été utilisé dans mes expériences est une lame de microscope "couvre objet" de qualité optique qui a été localement chauffée et déformée.

Pour contrôler la déformation de cette lame de verre lors du chauffage, nous avons utilisé la visualisation en temps réel des franges d'interférence spatiale (voir figure 11) données par ce masque placé dans un des bras d'un interféromètre de Michelson éclairé par un rayonnement monochromatique. Une fois réalisé, le masque est positionné dans le plan spectral de la ligne 4f à l'endroit où s'affiche le spectre de l'impulsion. Le masque étant non uniforme, il est possible de modifier la forme de la modulation de phase spectrale en déplaçant ce dernier verticalement ou horizontalement dans le plan spectral.

b. Phase spectrale d'ordre 3

Pour une position particulière du masque nous avons obtenue la figure SPIRIT 2D suivante :

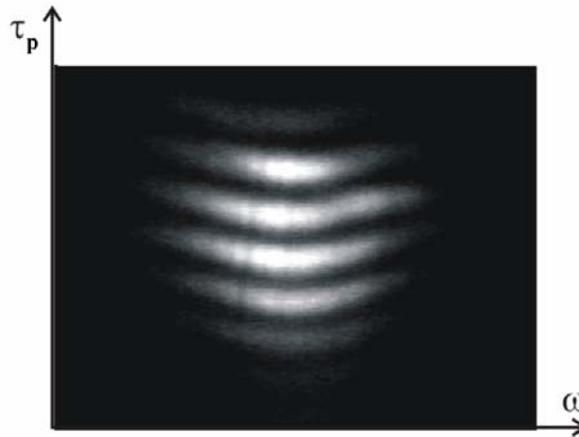


Figure 12 : Enregistrement expérimental d'une figure de battements spectro-temporels à partir de la technique SPIRIT 2D. L'impulsion caractérisée ici présente une modulation de phase spectrale d'ordre 3.

La courbure des franges est due à l'existence d'une phase spectrale cubique (voir Chapitre 4 II 2.d.).

Les figures suivantes présentent respectivement la phase spectrale des battements, la phase spectrale de l'impulsion reconstruite et le profil temporel de l'impulsion associés à l'enregistrement précédent :

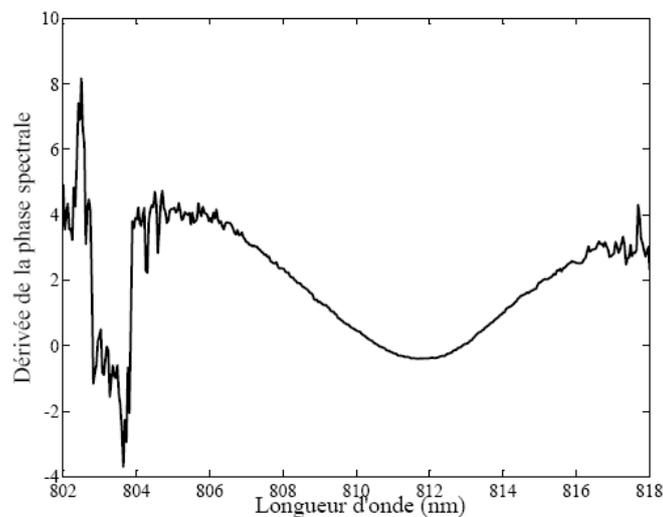


Figure 13 : Phase spectrale des battements

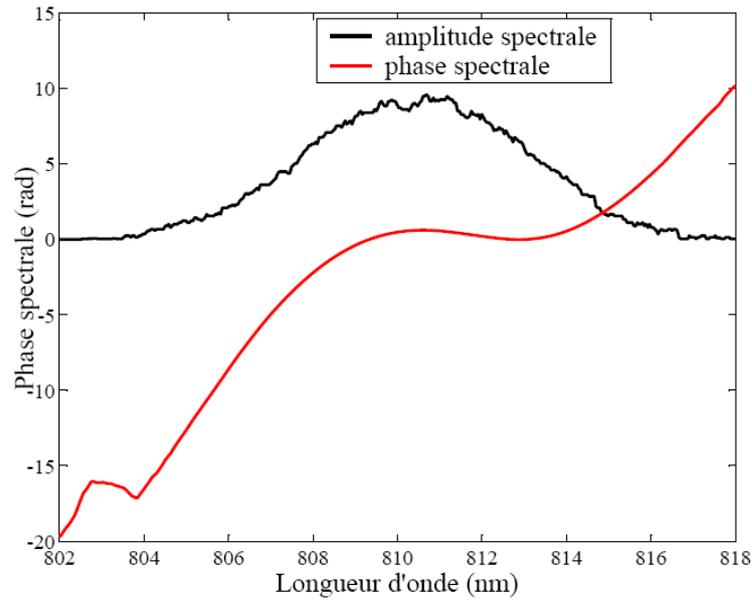


Figure 14 : Phase spectrale reconstruite

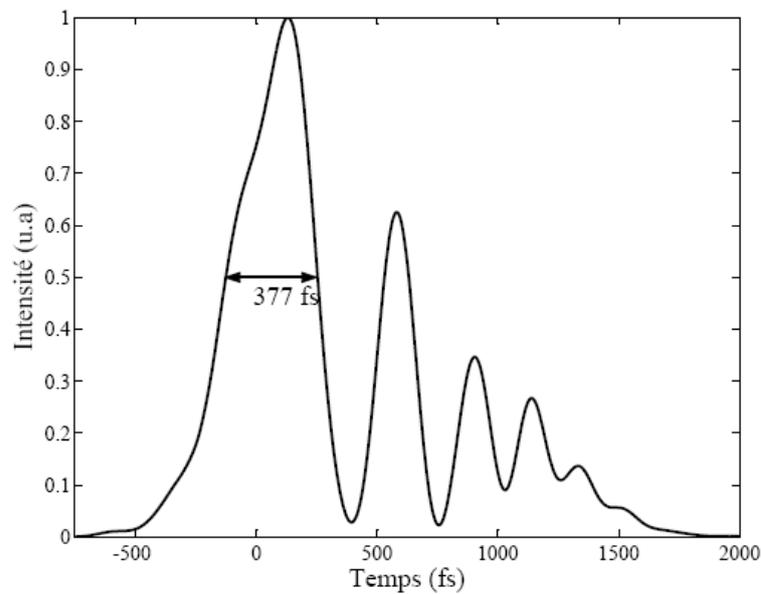


Figure 15 : Impulsion reconstruite

Afin de valider les résultats fournis par SPIRIT 2D, nous avons comparé le résultat précédent à celui donné par un autocorrélateur d'ordre 2. Pour cela, j'ai calculé numériquement la trace d'autocorrélation d'ordre 2 de l'impulsion reconstruite par SPIRIT 2D que j'ai comparée à la trace d'autocorrélation expérimentale fournie par l'autocorrélateur. L'accord entre les deux résultats est très satisfaisant comme le montre la figure suivante :

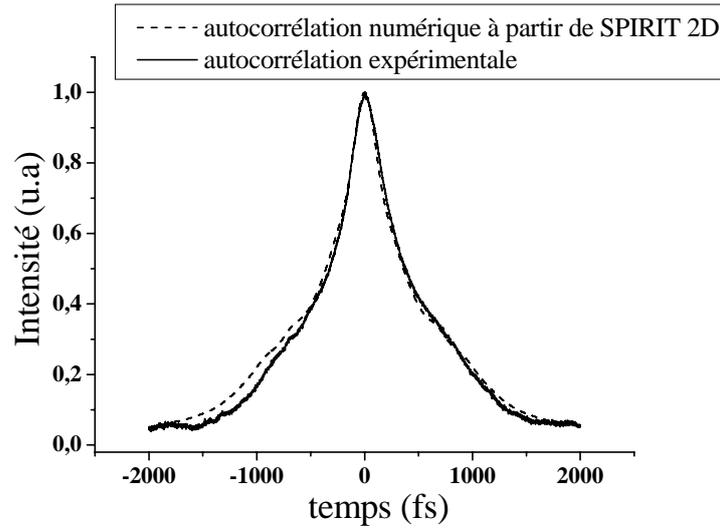


Figure 16 : Comparaison entre le résultat fourni par un autocorrélateur et celui donné par SPIRIT 2D.

c. Phase spectrale d'ordre supérieur

Pour une autre position du masque nous avons obtenu la figure SPIRIT 2D suivante :

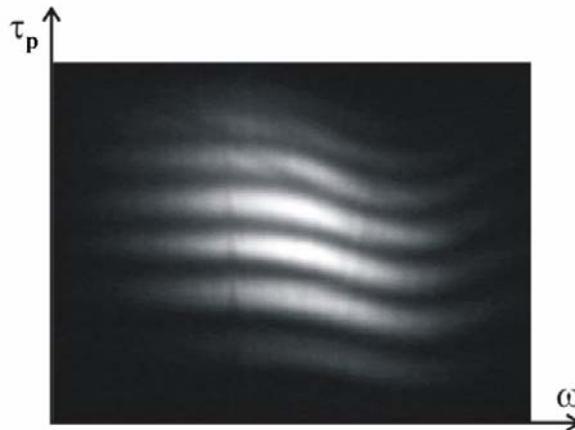


Figure 17 : Enregistrement expérimental à partir de la technique de SPIRIT 2D d'une impulsion présentant une phase spectrale d'ordre supérieur

La forme en "S" des franges permet d'en déduire que la phase spectrale présente une composante d'ordre 4.

Les figures suivantes présentent respectivement la phase spectrale des battements, la phase spectrale reconstruite, le profil temporel de l'impulsion reconstruite et la comparaison avec la mesure fournie par l'autocorrélateur :

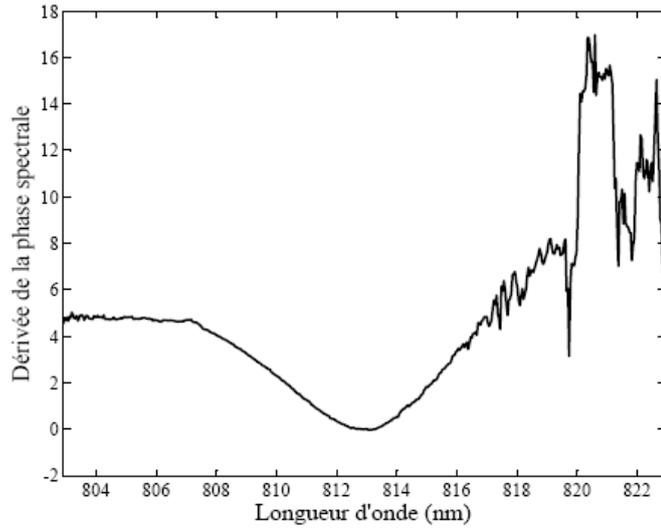


Figure 18 : Phase spectrale des battements

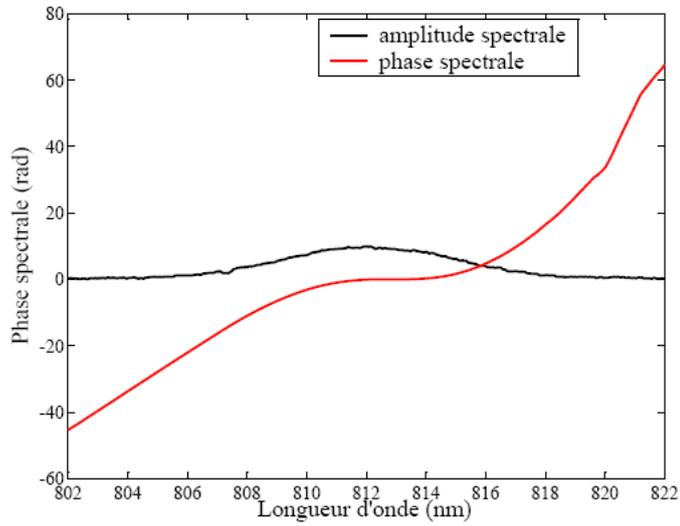


Figure 19 : Phase spectrale de l'impulsion

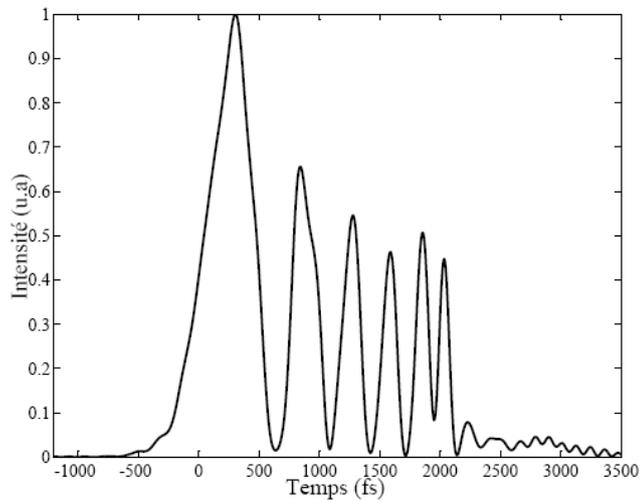


Figure 20 : Phase spectrale reconstruite

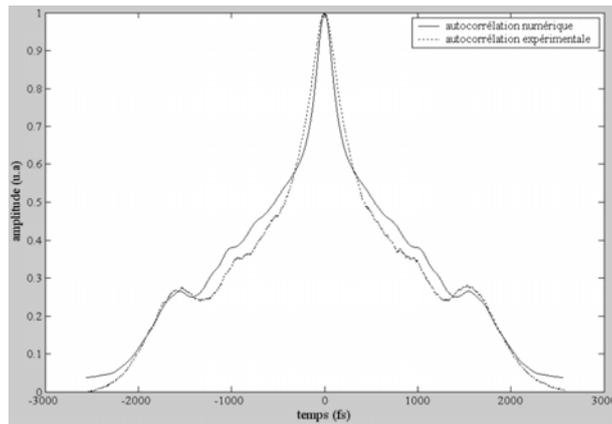


Figure 21 : Comparaison avec l'autocorrélateur

L'accord avec la trace fournie par l'autocorrélateur est à nouveau satisfaisant.

III. SPIRIT 2D monocoup

1) Principe

Lors de la détection d'une impulsion unique on ne peut plus procéder à l'affichage de la trace SPIRIT 2D par balayage mécanique comme c'est le cas de la configuration que je viens de présenter. La disponibilité d'un retard variable de la porte nécessaire à la production de la figure bidimensionnelle passe alors par un dispositif plus complexe. Le retard variable de la porte est alors codé dans une dimension spatiale supplémentaire rendue disponible par une modification de l'appareil. Cette évolution est similaire à celle qui permet de passer d'un autocorrélateur haute cadence à un autocorrélateur monocoup (voir Chapitre 1).

Le principe de SPIRIT 2D monocoup est schématisé sur la figure suivante :

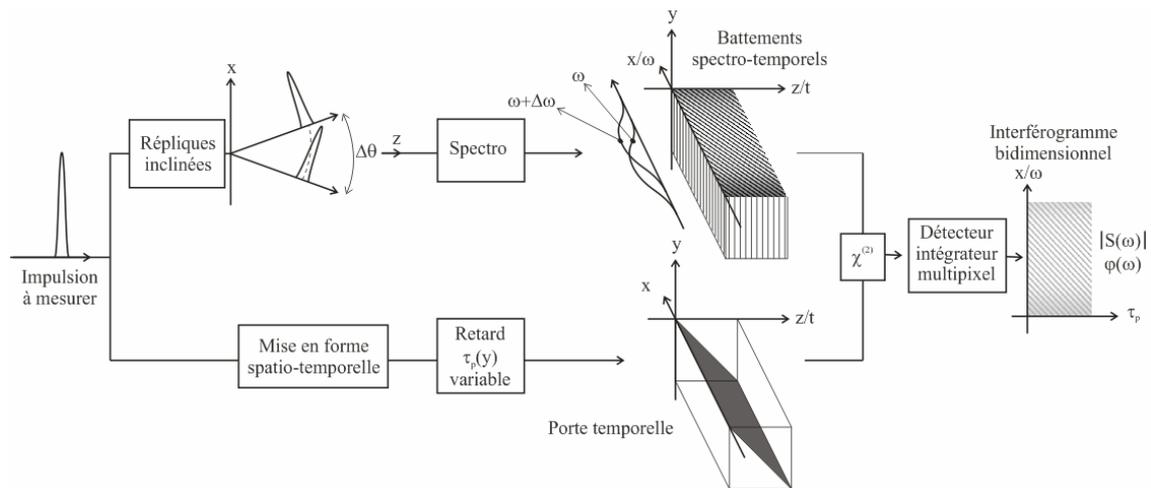


Figure 22 : Dispositif expérimental de SPIRIT 2D monocoup

L'impulsion porte est mise en forme spatio-temporellement de telle sorte qu'elle présente un retard variable $\tau_p(y)$ codé spatialement le long de la direction verticale (y), restée

inutilisée dans la configuration précédente. Le faisceau qui est porteur des battements spectro-temporels est étendu uniformément dans la direction (y). Sa structure dans les autres directions est inchangée. Dans ces conditions, l'échantillonnage des battements spectro-temporels par la porte mise en forme spatio-temporellement produit une figure bidimensionnelle enregistrable sur un tir unique par un détecteur intégrateur multipixel.

2) Dispositif expérimental

La mise en forme spatio-temporelle de la porte prend une configuration utilisée par exemple par K. Oba [2] dans son autocorrélateur monocoup. L'impulsion porte frappe un réseau de diffraction en configuration de Littrow. L'orientation du réseau est telle que ses traits sont parallèles au plan du montage. Après avoir frappé le réseau, le front d'énergie de l'impulsion porte est incliné par rapport au plan du montage d'un angle à peu près égal au double de celui du réseau :

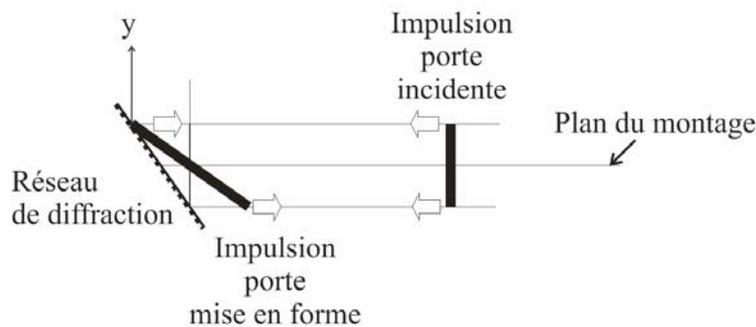
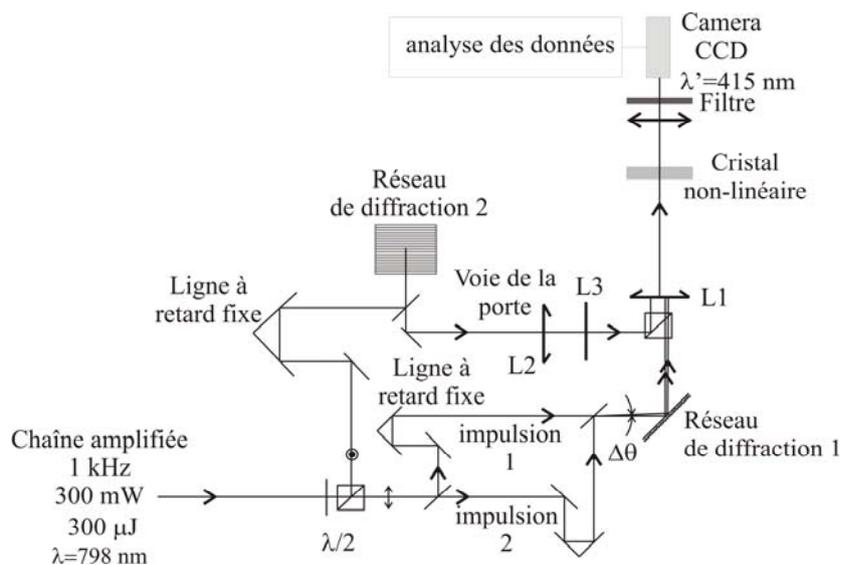


Figure 23 : Inclinaison du front d'énergie

Le plan du réseau de diffraction est imagé sur le cristal non-linéaire où se produit l'échantillonnage afin d'éviter la dispersion spatiale de la porte dans le plan (yz).

Le dispositif expérimental utilisé est le suivant :



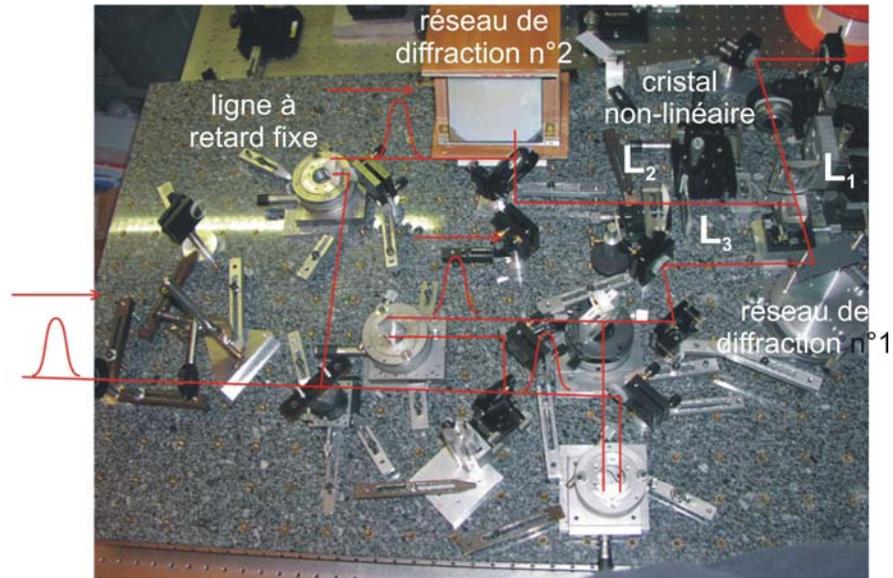
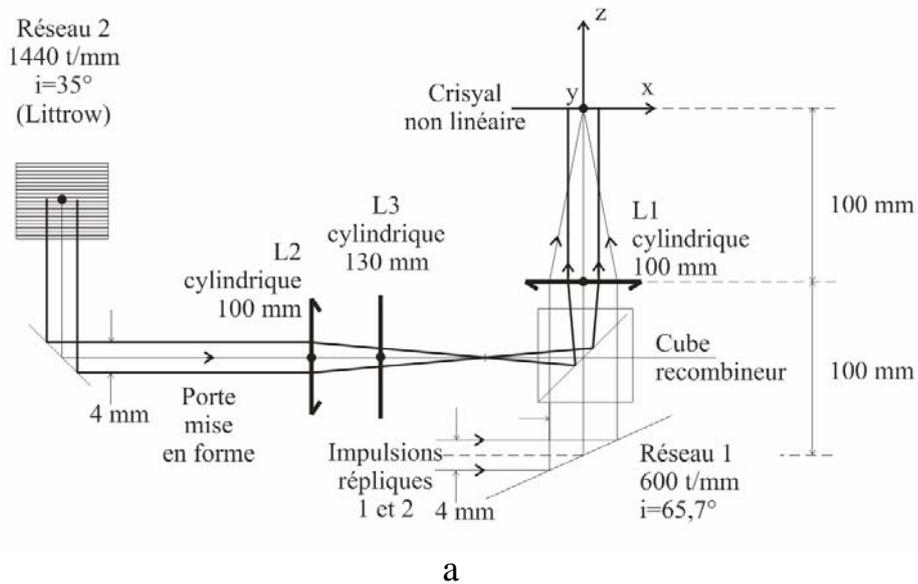


Figure 24 : Montage expérimental SPIRIT 2D monocoup pour la caractérisation d'impulsions issues d'une chaîne basse cadence. Le réseau de diffraction n°2 est en configuration Littrow. Il est orienté vers le haut. L_2 et L_1 sont des lentilles cylindriques de focale 100 mm qui agissent dans le plan du montage. L_3 est une lentille cylindrique de focale 130 mm qui agit dans le plan orthogonal au plan du montage.

Les figures suivantes présentent en détail le positionnement des éléments optiques les uns par rapport aux autres :



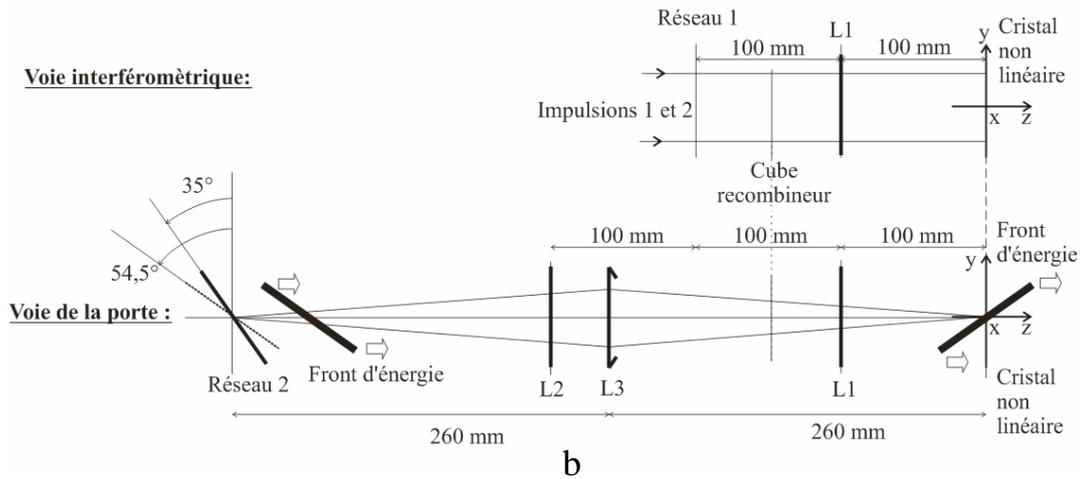


Figure 25 : a. Bras porte vu du dessus. b. Bras porte et bras de signal vu de côté

Cette disposition permet de répondre à toutes les exigences requises par la mise en oeuvre du principe exposé au paragraphe précédent.

3) Exemples d'enregistrements bidimensionnels produits par SPIRIT 2D monocoup

Malgré la complexité apparente du montage, la mise en oeuvre expérimentale et le réglage du dispositif se sont avérés plutôt plus simples que les autres configurations présentées précédemment.

Voici des exemples d'enregistrements que nous avons obtenus dans différentes conditions :

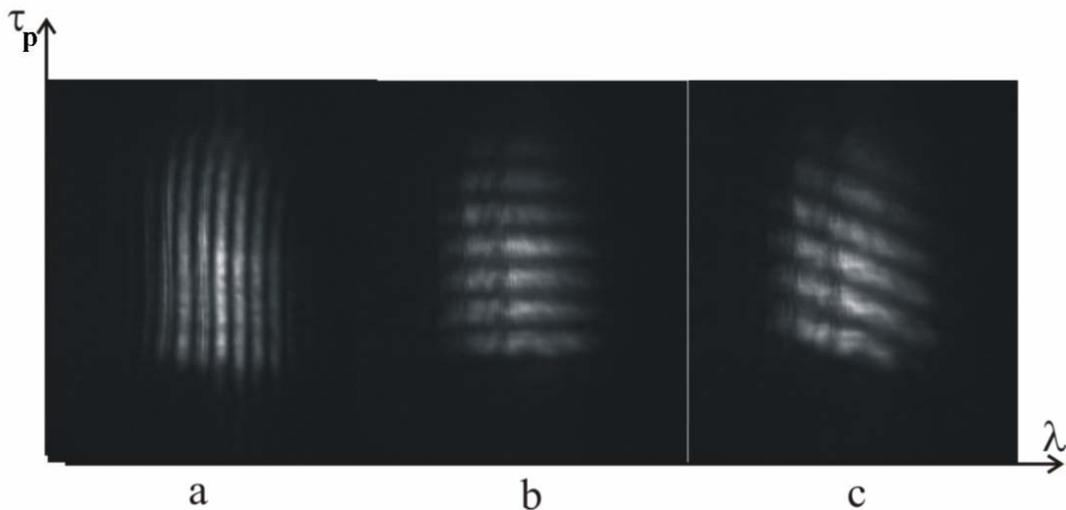


Figure 26 : Traces SPIRIT 2D dans différentes conditions ; a. Retard entre les impulsions répliques $\tau \neq 0$ et décalage spectral $\Delta\omega = 0$; b. $\tau = 0$ et $\Delta\omega \neq 0$ et $\varphi(\omega) \approx 0$; c. $\tau \neq 0$ et $\Delta\omega \neq 0$ et $\varphi(\omega) \approx 0$.

4) Calibrations

a. Calibration de l'axe spectral

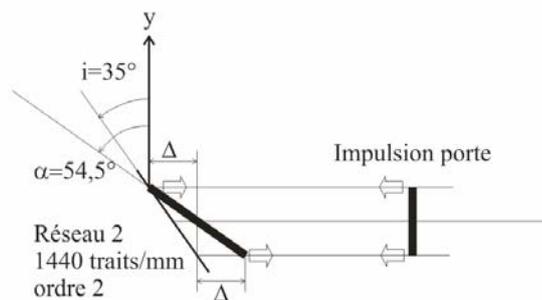
La calibration de l'axe spectral peut s'effectuer à partir d'une situation $\tau \neq 0$, $\Delta\omega = 0$ (voir figure précédente) par comparaison avec le spectre donné par un spectroscopie annexe de référence positionné en sortie de système.

b. Calibration de l'axe temporel

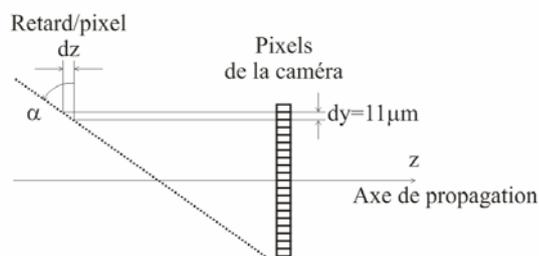
La calibration de l'axe temporel peut s'effectuer à partir de la connaissance des caractéristiques spatio-temporelles de l'impulsion porte. Il s'agit notamment d'évaluer l'angle d'inclinaison du front d'énergie de la porte qui joue le rôle de rampe temporelle de façon similaire à la rampe de tension d'une caméra à balayage de fente.

Pour cela, nous avons utilisé les paramètres suivants :

- i = angle d'incidence sur le réseau en configuration Littrow ($i=35^\circ$)
- α = angle d'inclinaison du front d'énergie de la porte par rapport à la verticale ($\alpha=54,5^\circ$)



- grandissement entre le plan du réseau 2 et le plan du cristal non-linéaire (égal à 1 dans notre montage)
- grandissement entre le plan du cristal non-linéaire et le plan de la caméra (égal à 1)
- dimension des pixels de la caméra (égale à $11 \mu\text{m}$ pour notre caméra).



Ces paramètres conduisent à une échelle temporelle en femtosecondes par pixel (égale à 52 fs /pixel dans notre cas).

c. Calibration du décalage spectral

La calibration du décalage spectral découle de la calibration de l'axe temporel. En effet, comme nous l'avons déjà souligné précédemment, la période Δt des battements temporels qui est mesurable le long de l'axe temporel de la trace SPIRIT 2D permet de calculer le

$$\text{décalage spectral : } \Delta\omega = \frac{2.\pi}{\Delta t} .$$

Cette propriété est un avantage de la technique SPIRIT 2D dont la trace contient l'information sur la valeur de ce décalage spectral ce qui dispense d'une procédure annexe de calibration.

5) *Caractérisation de l'impulsion issue de la chaîne amplifiée*

La reconstruction de l'impulsion issue de la chaîne amplifiée optimisée part de l'enregistrement expérimental sans surmodulation spectrale ($\tau = 0$) suivant :

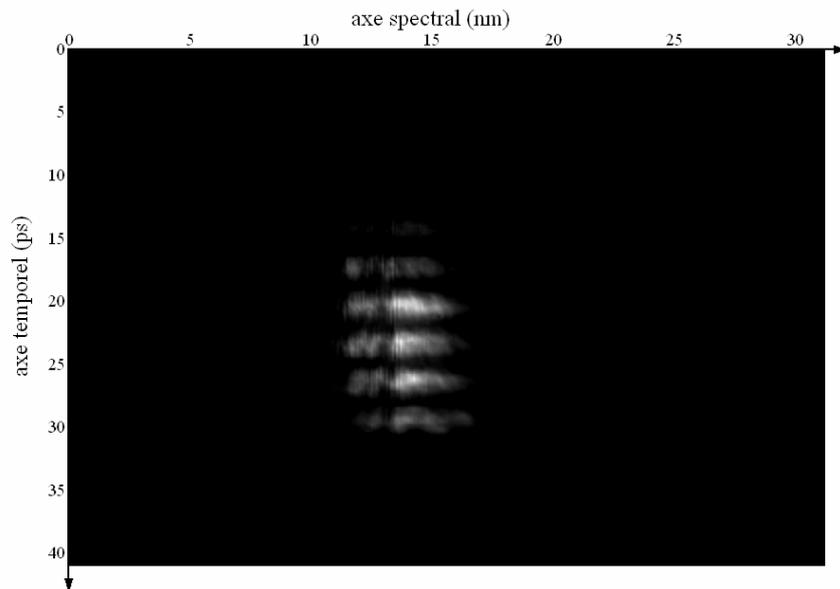


Figure 27 : Image des battements spatio-temporels donnée par SPIRIT 2D lorsque le décalage spectral est non nul et le retard temporel entre les impulsions répliques est nul

La phase spectrale des battements déduite de la figure précédente à l'aide de l'algorithme présenté au I.3 est la suivante :

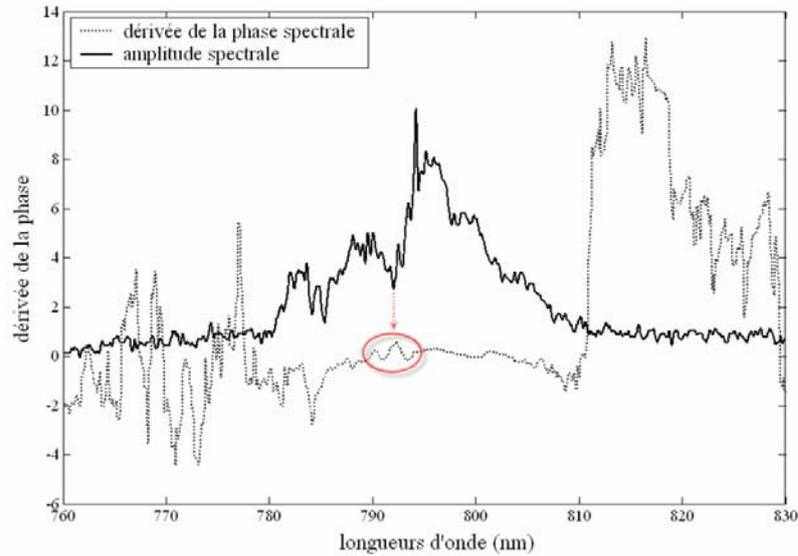


Figure 28 : Phase spectrale des battements et amplitude spectrale déduite de l'image en figure 27

On constate la présence d'un saut de phase des battements sur la partie gauche du spectre qui coïncide avec une forte modulation d'amplitude spectrale. Ce saut de phase est visible sur la trace SPIRIT 2D sous la forme d'une ondulation des franges. Ce détail vient en fait d'un défaut d'un des réseaux de la ligne de recompression de la chaîne amplifiée sur lequel s'affiche le spectre. Ce réseau présentait en effet un halot sombre à cet endroit du spectre. On constate donc que ce défaut induit non seulement une modulation de l'amplitude spectrale, ce qui est facile à deviner et à mesurer, mais aussi une modulation de phase, ce qui est plus difficile à caractériser. Cette modulation de phase se répercute sur la phase spectrale reconstruite comme l'atteste la figure suivante :

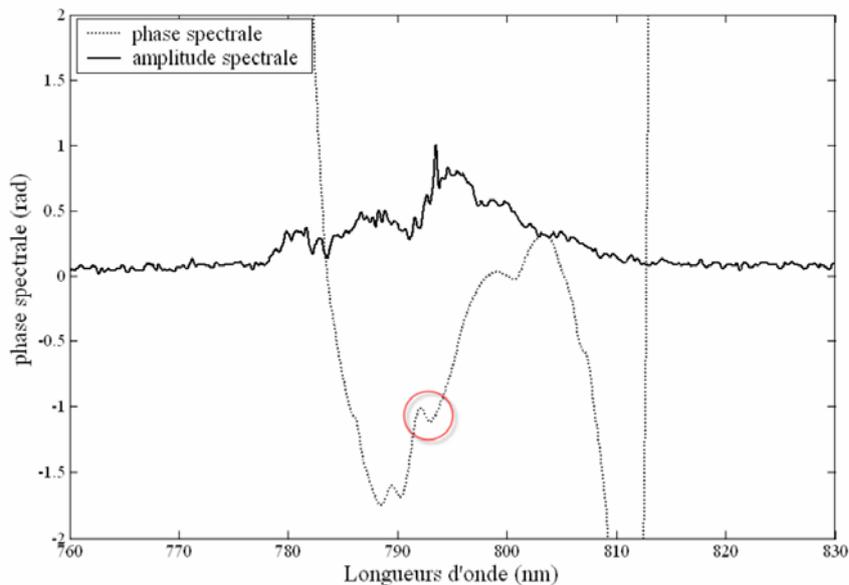


Figure 29 : Phase et amplitude spectrales de l'impulsion issue du laser

Le profil de l'impulsion reconstruite est le suivant :

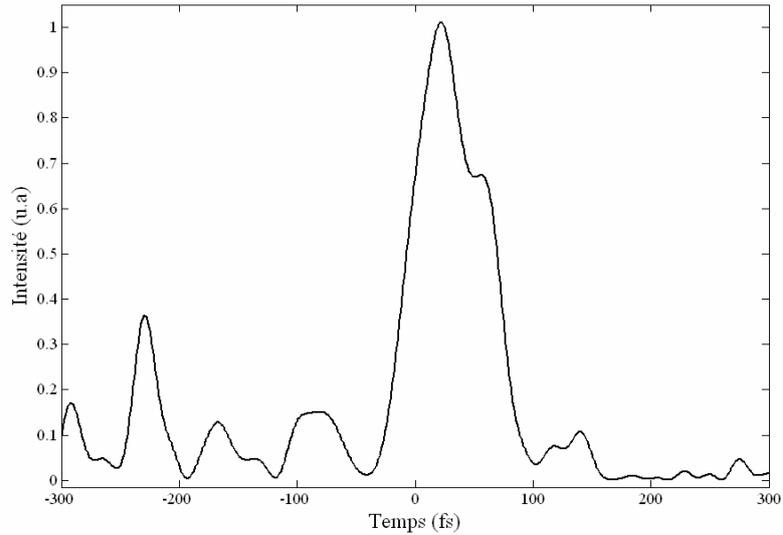


Figure 30 : Profil temporel de l'impulsion

On mesure une durée d'impulsion à mi-hauteur en intensité égale à 78 fs, ce qui est tout à fait en accord avec les valeurs habituellement relevées sur cette chaîne.

6) Caractérisation d'impulsions dispersées produites par variation du compresseur de la chaîne amplifiée

Partant de la situation précédente qui correspondait à une durée d'impulsion minimale, nous avons déréglé le compresseur de la chaîne amplifiée en modifiant par excès ou par défaut la distance entre les deux réseaux qui le constituent. Cette variation joue uniquement sur la dispersion d'ordre deux introduite par le compresseur (voir annexe G). La phase spectrale est alors principalement parabolique ce qui correspond à une trace SPIRIT 2D formée de franges rectilignes inclinées. Ce comportement qui est prévu par l'étude numérique présentée au Chapitre 4 II.2.d. a été confirmé expérimentalement comme l'attestent les figures suivantes :

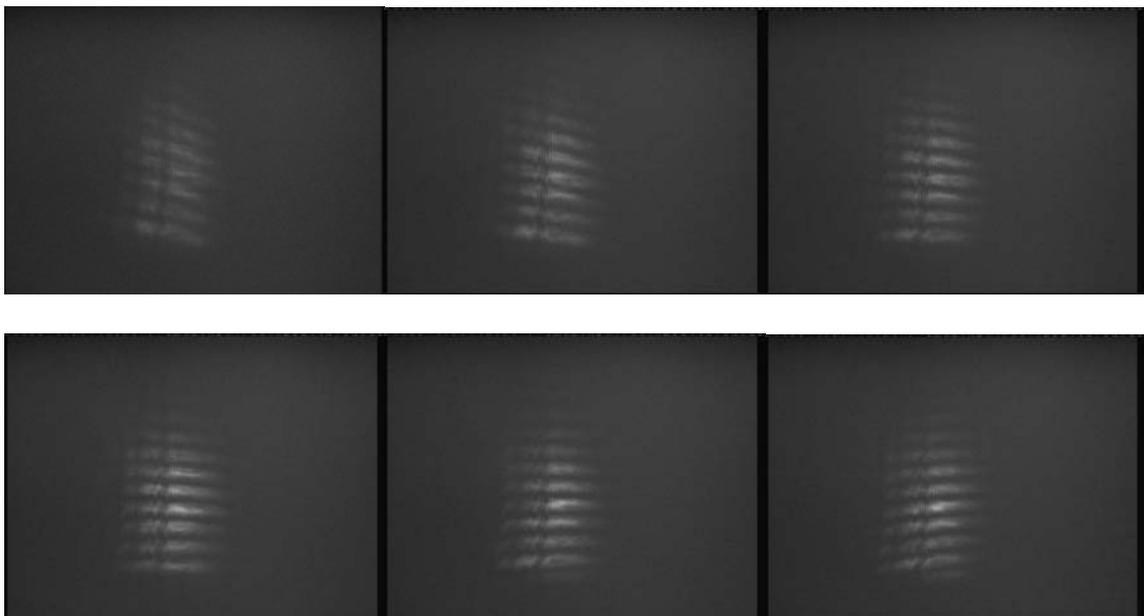




Figure 31 : Succession des traces SPIRIT 2D obtenues lors de la variation continue de la distance entre les réseaux du compresseur.

Les battements passent d'une inclinaison négative à une inclinaison positive en passant par une position centrale pour laquelle les franges sont horizontales. Il est donc possible d'optimiser en temps réel sans traitement numérique la ligne de recompression des impulsions en minimisant la phase parabolique, c'est-à-dire en diminuant la pente de l'inclinaison des franges. Lorsque la phase parabolique est nulle, on obtient des battements parfaitement horizontaux.

A partir de chacune des images précédentes, j'ai calculé la phase spectrale de chaque impulsion à l'aide de l'algorithme de reconstruction. J'en ai déduit l'évolution du taux de dispersion d'ordre 2 des impulsions en fonction du dérèglement du compresseur. Cette évolution est présentée sur la figure suivante :

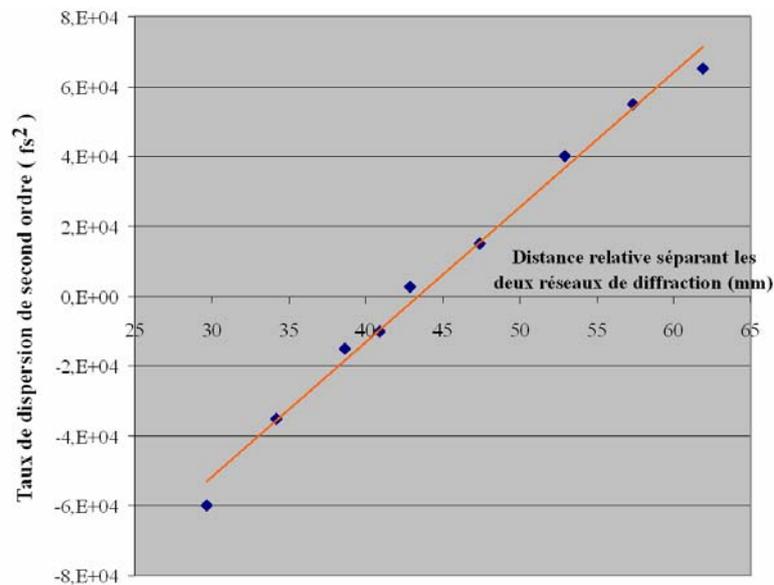


Figure 32 : Evolution du taux de dispersion d'ordre deux des impulsions en fonction du dérèglement de la ligne de recompression en sortie de laser.

On vérifie le comportement linéaire du compresseur qui est basé sur le principe de la ligne dispersive de Treacy (voir annexe G).

7) *Caractérisation d'une impulsion complexe*

Pour obtenir un profil de battements spectro-temporels plus complexe que les profils précédents, nous avons placé le masque de phase, utilisé au paragraphe II. 6. de ce chapitre, dans le plan spectral de la ligne de compression du laser, c'est à dire à proximité d'un des deux réseaux.

Pour une position particulière du masque de phase, on obtient le résultat suivant :

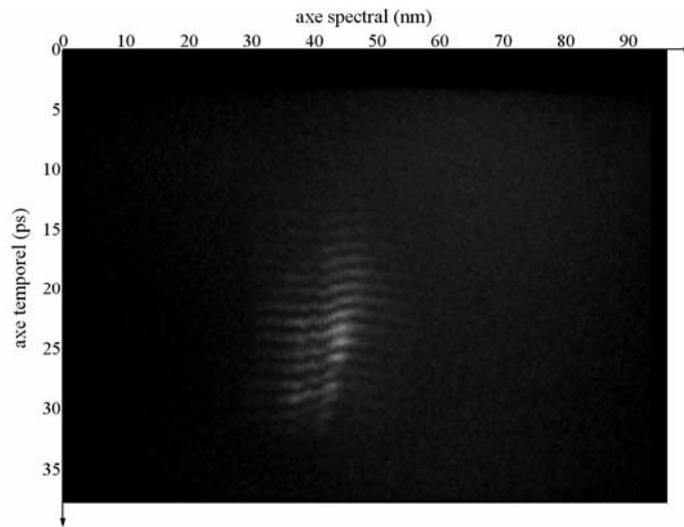


Figure 33 : Profil de battements spectro-temporels pour une impulsion complexe

Cette figure donne en temps réel une représentation directe de la dérivée de la phase spectrale imposée par le masque. Tout déplacement du masque se traduit instantanément par une variation de la figure d'interférence.

Enfin, le profil de l'impulsion reconstruite à partir de la trace SPIRIT 2D précédente est représenté sur la figure suivante:

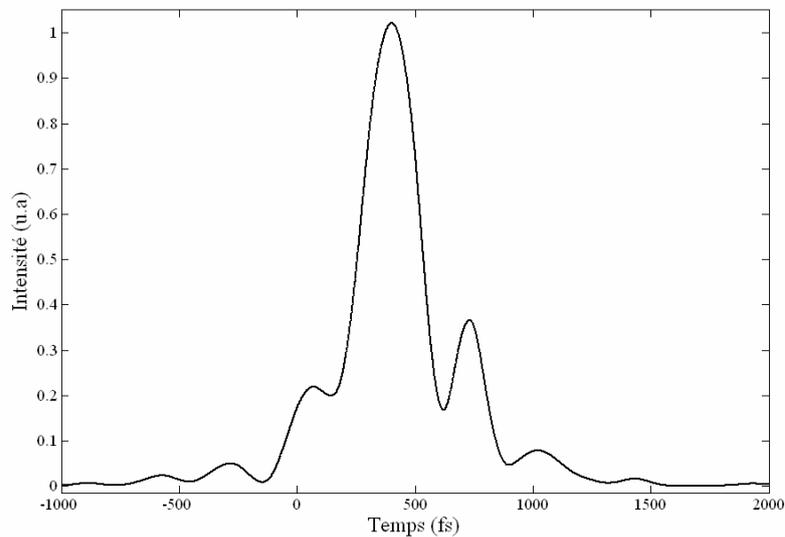


Figure 34 : Profil temporel de l'impulsion complexe reconstruite

Conclusion et Perspectives A

Conclusion

Dans cette phase de mon travail de thèse, qui a porté sur la caractérisation d'impulsions, j'ai développé trois dispositifs de mesure monocoup innovants.

Le premier dispositif est un autocorrélateur fonctionnant par fluorescence à deux photons dans une géométrie d'interféromètre de Sagnac. L'utilisation d'une fibre à coeur liquide comme élément central non-linéaire m'a permis d'éliminer les problèmes d'alignement et de longueur d'interaction qui se rencontrent habituellement dans ce type d'autocorrélateur. Le choix d'une technologie optique guidée confère à cet autocorrélateur une grande sensibilité. Une première réalisation non optimale a permis de caractériser des impulsions de durée proche de une picoseconde. Au contraire des autocorrélateurs par génération de seconde harmonique ce dispositif est insensible à l'état de polarisation des impulsions à mesurer.

Comme toute technique d'autocorrélation, ce dispositif ne fournit qu'une information approchée sur la durée et sur la forme de l'impulsion testée.

Le second dispositif s'appuie sur une technique originale, désignée par l'acronyme SPIRIT, pour reconstruire l'amplitude et la phase d'impulsions courtes et ce sans référence. Son principe repose sur l'interférométrie à décalage appliqué au domaine spectral et résolue en temps. L'originalité de la méthode réside notamment dans la manière de créer le décalage spectral à partir d'un simple décalage géométrique. Cette caractéristique apporte une certaine simplicité de manipulation. J'ai fait évoluer le dispositif initial pour supprimer tout balayage et l'adapter par là même à la caractérisation d'impulsions uniques ou à basse récurrence. Grâce à des simulations reproduisant le fonctionnement complet du système de mesure, et incluant le traitement des données, j'ai pu déterminer l'incidence des différents réglages. J'ai aussi exploité ce modèle pour montrer que SPIRIT est capable de reconstruire précisément des impulsions au profil complexe. Les performances de SPIRIT monocoup ont été évaluées sur la mesure d'impulsions de 100 fs et 30 fs, aussi bien sur un oscillateur laser haute cadence que sur des chaînes lasers amplifiées basse cadence du LOA (Laboratoire d'Optique Appliquée). La fiabilité de la méthode a été éprouvée de deux manières. Premièrement la phase spectrale ajoutée par un bloc de verre sur une impulsion femtoseconde a été comparée à la phase spectrale théorique. Deuxièmement, les résultats des mesures effectuées avec SPIRIT ont été confrontés à ceux donnés par la technique concurrente nommée SPIDER.

Les avantages de SPIRIT sont :

- Une mesure autoréférencée
- Un traitement numérique direct des enregistrements
- Le réglage du décalage spectral qui est intrinsèquement lié au montage et n'est pas susceptible d'évoluer selon l'impulsion incidente comme c'est le cas avec SPIDER.
- L'indépendance entre les deux paramètres fondamentaux de la mesure (retard temporel entre les impulsions répliquées et décalage spectral) qui sont fixés par le montage.

Ces spécificités permettent de simplifier la calibration et de rendre la méthode plus fiable.

Les limites de la méthode sont :

- Comme toute technique de caractérisation dérivée de l'interférométrie spectrale à décalage, SPIRIT ne permet pas de reconstruire correctement la phase spectrale d'impulsions dont le spectre possède une amplitude nulle sur une étendue supérieure au décalage spectral. Dans ce cas, la solution consiste à effectuer plusieurs mesures pour différents décalages spectraux.
- Pour être autoréférencée SPIRIT utilise une porte temporelle non-linéaire commandée par l'impulsion à caractériser elle-même. Une des conséquences est que le spectromètre utilisé doit avoir une résolution limite plus faible que le décalage spectral introduit entre les spectres échantillonnés.
- Pour des impulsions à spectre ultralarge il est nécessaire de tenir compte de l'acceptance spectrale finie du cristal servant à l'échantillonnage temporel.
- Pour des impulsions présentant des états de polarisation différents, SPIRIT ne permettra de caractériser l'impulsion entière que par partie. Ce problème est cependant identique à toutes les techniques de caractérisation.

Enfin, le troisième dispositif est une évolution de SPIRIT, qui se nomme SPIRIT 2D. Grâce à ce nouveau montage, il est possible d'afficher et d'observer de manière directe sur une caméra CCD standard, les battements spectro-temporels entre les impulsions répliquées. La forme des modulations visualisées renseigne ainsi directement sur la dérivée de la phase spectrale de l'impulsion à analyser sans avoir à effectuer de calculs. Les enregistrements peuvent cependant être traités numériquement suivant une procédure distincte de la version initiale de SPIRIT. La calibration est simplifiée et la redondance d'information dans cet affichage bi-dimensionnel est susceptible de conduire à un très bon rapport signal sur bruit. Une version avec balayage a été expérimentée et une version réellement monocoup développée et exploitée. La technique a été validée sur la caractérisation d'impulsions simples et complexes après mise en forme par une technique de masquage de phase. Elle a été exploitée aussi pour optimiser la durée des impulsions issues d'une chaîne amplifiée. Cette dernière étape de mes recherches sur la mesure d'impulsions courtes s'est effectuée en collaboration avec L. Mouradian et T. Mansuryan de la Yerevan State University (Arménie).

Perspectives

L'autocorrélateur fibré pourrait être rendu plus sensible encore en diminuant le diamètre de la fibre ou en remplaçant le colorant laser par des nanoparticules de semi-conducteur en solution plus efficaces. Il pourrait être rendu utilisable sur une large bande spectrale en

mélangeant plusieurs chromophores ayant des bandes d'absorption complémentaires. La robustesse et la facilité d'utilisation de ce dispositif pourraient être améliorées en remplaçant la fibre à cœur liquide par une fibre polymère dopée. Ces évolutions conduiraient à obtenir un dispositif de mesure bas coût, compact, et efficace.

Ce type d'autocorrélateur pourrait aussi reposer sur un processus d'absorption à 3 photons, ce qui conduirait à un dispositif de mesure de plus grande dynamique. L'application directe serait la caractérisation d'impulsions présentant des lobes secondaires.

Concernant SPIRIT, au-delà de démonstrations et tests de principe, il reste en perspective d'en faire un instrument pratique d'emploi, compact et automatisé. Cela passera par le développement d'une interface et l'adaptation de l'algorithme de reconstruction pour pouvoir afficher en temps réel le profil des impulsions. Le prototype SPIRIT utilisé dans mes expériences de laboratoire est non-optimisé d'un point de vue encombrement puisque j'ai cherché à conserver un maximum de degré de liberté. Un gain de place peut être obtenu en figeant les divers éléments optiques. Le remplacement de l'interféromètre Mach-Zender par une lame prismatique peut être envisagé. Cette lame de par son épaisseur permettrait de retarder les impulsions répliques et par son angle au sommet permettrait d'assurer le décalage spectral.

Le remplacement du spectroscopie de SPIRIT par un spectroscopie imageur rendrait également possible l'analyse du profil spatial du faisceau. Ce développement potentiel permettrait de déceler d'éventuelles non uniformités spatio-temporelles dans les faisceaux intenses.

**PARTIE B : DEVELOPPEMENT D'UN ENDOMICROSCOPE
NON-LINEAIRE**

SOMMAIRE : PARTIE B

Partie B : Développement d'un Endomicroscope Non-Linéaire 98

CHAPITRE 6 : NOUVELLES MICROSCOPIES-ÉTAT DE L'ART 102

I.	Microscopies non-linéaires	104
1)	Microscopie de fluorescence à deux photons	104
a.	Limitations de la microscopie de fluorescence monophotonique	104
b.	Principe de la microscopie bi-photonique.....	104
c.	Avantages de la microscopie à deux photons	106
2)	Nouvelles imageries non-linéaires.....	107
a.	Microscopie par génération de seconde et troisième harmonique (SHG, THG).....	107
b.	Microscopie CARS : Coherent Anti-Stokes Raman Scattering	108
c.	Imagerie de contrôle cohérent.....	109
d.	Une limitation des nouvelles imageries non-linéaires	110
II.	Microscopie par fibre optique	110
1)	Introduction	110
2)	Architectures d'un endomicroscope	111
a.	Endomicroscope à balayage distal	111
b.	Endomicroscope à balayage proximal	112
3)	Endomicroscopie et imageries non-linéaires	113
a.	Avantages de l'association des deux technologies	113
b.	Problématique liée à l'endomicroscopie non-linéaire.....	114

CHAPITRE 7 : ACHEMINEMENT D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES PAR FIBRE OPTIQUE. 115

I.	Effets physiques intervenant lors de la propagation d'une impulsion femtoseconde dans une fibre optique	116
1)	Effets physiques principaux.....	116
a.	Dispersion de vitesse de groupe.....	116
b.	Automodulation de phase	118
2)	Effets physiques secondaires	120
a.	Dispersion d'ordre 3	120
b.	Biréfringence	120
c.	Modulation de phase croisée.....	121
d.	Autoraidissement	122
e.	Diffusion Raman Stimulée.....	122
II.	Acheminement d'impulsion femtosecondes par fibre optique sans mise en forme préalable du signal.....	123
1)	Propagation dispersive en présence de non linéarité dans la fibre endoscopique sans mise en forme préalable de l'impulsion	123
2)	Fibres innovantes pour le transport d'impulsions brèves	125

a.	Présentation	125
i.	Système basé sur l'emploi de lentilles relais.....	125
ii.	Fibres à cœur creux	125
iii.	Fibres à gros cœur	125
iv.	Fibres à dispersion forte.....	126
b.	Discussion.....	126
III.	Acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique avec mise en forme temporelle du signal.....	127
1)	Mise en forme temporelle : précompensation de la dispersion.....	127
2)	Résultat de la pré-compensation en régime linéaire	128
3)	Comportement en présence d'effets non-linéaires.....	129
IV.	Acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique avec mise en forme temporelle et spectrale du signal.....	130

CHAPITRE 8 : CONCEPTION ET OPTIMISATION D'UN ENDOMICROSCOPE BI-PHOTONIQUE

		133
I.	Présentation générale de l'endomicroscope bi-photonique.....	134
1)	Architecture de l'endomicroscope non-linéaire.....	134
2)	Définition des performances à atteindre	134
a.	Détermination du signal d'excitation de référence	134
b.	Facteur de qualité.....	135
c.	Niveau de fonctionnement.....	136
3)	Caractéristiques du système réel prises en compte par le modèle	137
II.	Evaluation des performances	138
1)	Réglage du système numérique	138
2)	Puissance minimale à déposer sur les tissus	139
3)	Allure du signal lorsque F=100% est atteint.....	140
4)	Performance maximale	142
5)	Comportement en puissance.....	142
6)	Validation du choix technologique.....	142
7)	Performances en présence de biréfringence des coeurs du guide d'image	143
8)	Influence de l'auto-raïdissement et de la diffusion Raman	145
III.	Optimisations possibles.....	145
1)	Augmentation de la transparence du système.....	145
2)	Equilibrage du ratio dispersion/non linéarité.....	145
a.	Optimisation du diamètre de la première fibre	145
b.	Introduction d'une pré-modulation de l'impulsion.....	146
3)	Correction de phase	146
4)	Bilan des optimisations possibles	148

CHAPITRE 9 : REALISATION D'UN ENDOMICROSCOPE BI-PHOTONIQUE 149

I.	Acheminement d'impulsions femtosecondes en bout de guide d'image.....	150
1)	Schéma expérimental.....	150
2)	Caractérisation des impulsions en bout de guide d'image.....	151
a.	Profils d'impulsions en sortie de guide d'image.....	151
b.	Evolution de la durée en fonction de la puissance de sortie.....	152
c.	Mesure du spectre.....	152
d.	Comparaison avec la pré-compensation linéaire sans pré-compensation des effets non- linéaires.....	153
3)	Mesure du signal de fluorescence à deux photons.....	154
II.	Mise au point de l'endomicroscope bi-photonique	156
1)	Présentation du système complet.....	156
2)	Enregistrement d'images non-linéaires	158
	CONCLUSION ET PERSPECTIVES B	160

CHAPITRE 6 : Nouvelles Microscopies-État de l'Art

Depuis la découverte du phénomène de fluorescence il y a plus d'un siècle, la microscopie de fluorescence s'est imposée comme une technique performante pour l'imagerie contrastée de cellules et de tissus biologiques. Cette technique, en raison de ses possibilités de détection de cellules "*In-Vivo*", qui ne peuvent pas être visualisées à partir d'une technique d'imagerie conventionnelle telle que la microscopie de diffusion, a supplantée cette dernière dans les laboratoires de biologie. Dans ces techniques de microscopie de fluorescence, on trouve notamment la méthode de microscopie confocale qui a fait l'objet de nombreux développements et qui se caractérise par des capacités de résolutions spatiales tridimensionnelles de l'ordre du micromètre. Grâce à ses performances, associées à des techniques informatiques de traitement d'image en constante évolution, il est possible aujourd'hui de faire une image de cellule très détaillée.

Plus récemment, suite à l'apparition des sources lasers impulsionnelles ultra-brèves, la microscopie de fluorescence par absorption à deux photons s'est fortement développée. Dans ce type de microscopie qui s'avère naturellement confocale, la résolution spatiale est identique à celle de la microscopie confocale traditionnelle. Par ailleurs, cette technique possède de par l'utilisation d'un rayonnement infrarouge l'avantage supplémentaire de pouvoir effectuer l'étude d'échantillons biologiques profondément enfouis dans la matière biologique rendue moins diffusante pour cette longueur d'onde. L'autre avantage d'utiliser des impulsions courtes est de limiter le processus de photo-blanchiment des cellules observées. L'imagerie non-destructrice haute résolution qu'offre cette dernière technique permet la localisation d'entités fluorescentes (endogènes ou exogènes) et permet ainsi l'étude fonctionnelle des systèmes biologiques. Depuis maintenant une dizaine d'années, ce type de microscopie non-linéaire tend à compléter la microscopie linéaire.

Néanmoins, ces techniques de microscopie de fluorescence restent des procédés fortement invasifs puisque l'échantillon biologique doit être inerte. Les échantillons étudiés sont alors anesthésiés ou une biopsie des tissus du malade est effectuée. Cependant, il existe des techniques dites endoscopiques qui permettent de rendre l'observation de tissus à l'intérieur de corps creux minimalement invasives. Ces dernières techniques d'imagerie permettent l'observation d'organes profonds "*In Vivo*" et "*In Situ*" sous la surface des tissus (profondeur supérieure à quelques dizaines de microns), dans des conditions de vie normales. Mais ces méthodes très peu destructrices reposent actuellement sur une imagerie optique conventionnelle. Récemment, des endomicroscopes linéaires associant les techniques d'endoscopie fibrée et de microscopie de fluorescence à un photon ont vu le jour (*) et permettent aujourd'hui de faire de l'imagerie tridimensionnelle haute résolution "*In Vivo*" et "*In Situ*" en temps réel.

Récemment, l'association des techniques d'endoscopie fibrée et de l'imagerie à deux photons a fait l'objet de nombreuses études conduites notamment par l'équipe de W. Denk au laboratoire Max Planck Institut d'Heidelberg ou encore par l'équipe de Helmchen de l'Organisch Chemisches Institut d'Heidelberg. Dans une volonté commune du laboratoire XLIM et de la société Mauna Kea technologies de développer un endomicroscope non-linéaire, une collaboration est née. Ce nouvel endomicroscope non-linéaire permettrait alors l'observation d'organes profonds "*In Vivo*" et "*In Situ*" en temps réel sous la surface des tissus (profondeur supérieure à quelques 100µm), dans des conditions de vie normales par un procédé minimalement invasif.

Cependant, des problèmes liés à la propagation d'impulsions brèves à l'intérieur de fibres optiques viennent compliquer la faisabilité de cet endomicroscope et nécessite alors la mise en place de systèmes de façonnage d'impulsions autour du système optique d'imagerie. Ces systèmes de profilage d'impulsions permettent de contourner les distorsions que subit l'impulsion femtoseconde lors de sa propagation dans une fibre optique et qui sont liées aux

effets linéaires et non-linéaires. Grâce à ces systèmes, il est possible d'obtenir, en sortie de système, des impulsions de durée proche de celle du laser source.

Dans ce chapitre, après avoir rappelé les limitations de la microscopie mono-photonique, je présenterai le principe et les avantages de la microscopie par fluorescence à deux photons. Après une brève présentation des autres techniques d'imagerie non-linéaires, je décrirai les microscope non-linéaires fibrés. Enfin, une dernière partie exposera la problématique de l'endomicroscopie non-linéaire.

(*) Ce type de système est aujourd'hui commercialisé par deux grandes sociétés Mauna Kea Technologies (France) et Optiscan (Australie).

I. Microscopies non-linéaires

1) *Microscopie de fluorescence à deux photons*

a. Limitations de la microscopie de fluorescence monophotonique

La microscopie de fluorescence monophotonique fut initialement développée pour augmenter le contraste optique des substances biologiques qui sont, la plupart du temps, des objets de phase transparents. Par la suite, l'association de cette technique avec la microscopie confocale par balayage laser a permis d'accéder en supplément à une imagerie tridimensionnelle haute résolution en profondeur sous la surface des tissus.

Cette profondeur de pénétration qui dépasse difficilement la dizaine de microns s'avère maintenant insuffisante pour bon nombre d'applications en biologie. Cette limitation vient de la diffusion par les tissus de la lumière de pompe courte longueur d'onde employée en imagerie monophotonique.

D'autre part, la microscopie de fluorescence monophotonique est également pénalisée par le phénomène de photoblanchiment qui entraîne une perte d'efficacité des fluorophores. Cet endommagement des marqueurs a lieu aussi bien au point de focalisation du faisceau excitateur qu'au niveau des plans inférieurs et supérieurs à ce point.

La microscopie de fluorescence à deux photons permet de contourner au moins partiellement ces deux problèmes.

b. Principe de la microscopie bi-photonique

La possibilité qu'une molécule puisse émettre une lumière de fluorescence courte longueur d'onde après avoir absorbé simultanément deux photons de longueur d'onde plus grande a été prédite théoriquement en 1931 par Maria Göppert-Mayer. Grâce à l'apparition des lasers délivrant des impulsions courtes et intenses, cet effet non-linéaire, qui dépend quadratiquement de l'intensité instantanée, fut observé expérimentalement en 1961 par Kaiser et Garret. Plus tard, en 1990, ce phénomène a trouvé son application dans le microscope à deux photons développé par Denk [29].

L'architecture d'un microscope à deux photons est semblable à celle d'un microscope confocal monophotonique dans lequel on a remplacé le laser de pompe continu courte longueur d'onde par un oscillateur laser femtoseconde proche infrarouge. Cette source d'impulsions brèves est la plupart du temps un oscillateur au saphir dopé titane, ce qui permet de disposer en supplément d'une large plage d'accordabilité.

Le principe de fonctionnement (voir figure 1) d'un microscope à deux photons est le suivant : le faisceau de pompe infrarouge se reflète sur un miroir dichroïque possédant une réflectivité maximale à la longueur d'onde incidente et étant transparent à la longueur d'onde de la lumière de fluorescence non-linéaire.

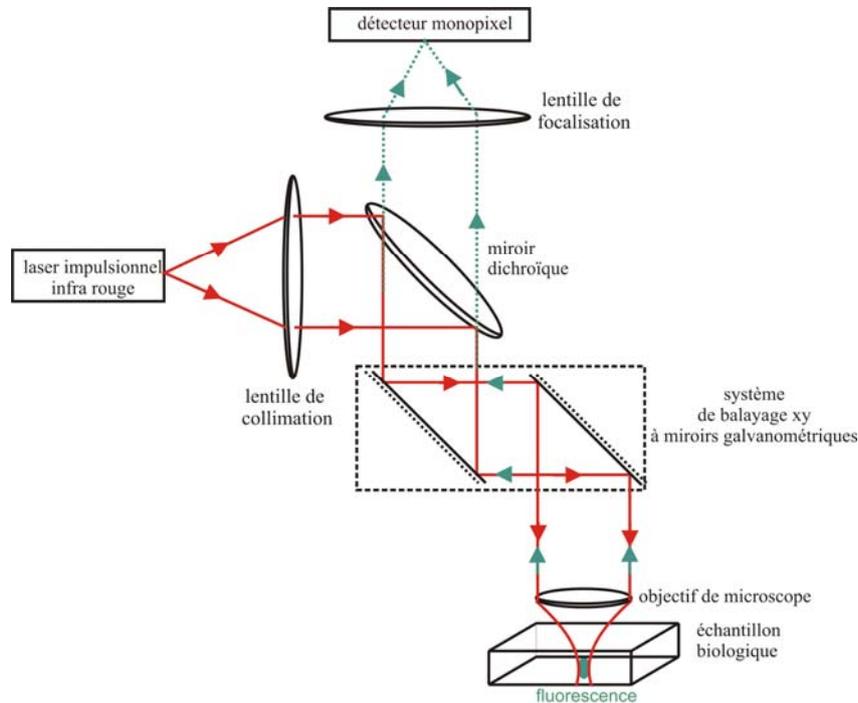


Figure 1 : Microscope à deux photons

Le faisceau infrarouge exciteur est ensuite focalisé par un objectif de microscope achromatique d'ouverture numérique forte. La fluorescence à deux photons est maximale là où la probabilité de présence simultanée de deux photons est la plus grande, c'est-à-dire à l'endroit où le confinement spatial et temporel des impulsions est le plus fort. L'emploi d'impulsions femtosecondes assure déjà le confinement temporel. Le confinement spatial maximal est obtenu au point focal de l'objectif de microscope où se concentre alors toute la lumière de fluorescence non-linéaire (voir photo ci-dessous).

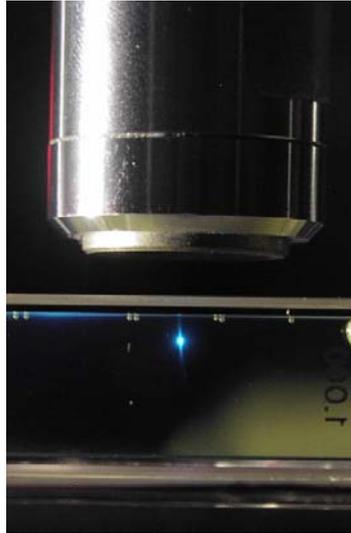


Figure 2 : Illustration du confinement spatial du processus de fluorescence non-linéaire.

L'énergie requise par impulsion pour produire un signal de fluorescence non-linéaire mesurable est typiquement de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de picojoules incident sur les tissus, ce qui correspond à une puissance moyenne de quelques milliwatts à quelques dizaines de milliwatts pour une fréquence de répétition des impulsions de 75 MHz. Ceci correspond aussi à un niveau d'éclairement au point focal de quelques dizaines de GW/cm^2 .

Ensuite, comme dans un microscope confocal linéaire, l'objectif de microscope collecte en retour la lumière d'épi-fluorescence non-linéaire qui parcourt le système en sens inverse jusqu'à un détecteur monopixel.

Comme dans un microscope confocal traditionnel, un système de balayage laser x,y composé de miroirs galvanométriques permet alors d'exciter successivement les différents points du plan focal. La mesure de l'évolution de l'intensité de fluorescence non-linéaire au cours du temps permet ensuite de reconstruire numériquement en temps réel l'image de ce plan. Un balayage axial est ajouté pour former des images tridimensionnelles par tranche comme dans un microscope confocal monophotonique.

En première approche, la résolution de ce type de microscope est plus faible que celle d'un microscope confocal monophotonique en raison de l'augmentation des effets de la diffraction liée à l'augmentation de la longueur d'onde excitatrice. Le processus non-linéaire renforce, quant à lui, l'importance de la partie centrale de la zone focale, ce qui contribue à augmenter la résolution. Finalement, on montre que la résolution d'un microscope à deux photons s'avère comparable à celle d'un microscope confocal linéaire [30].

c. Avantages de la microscopie à deux photons

Les principaux avantages du microscope à deux photons par rapport au microscope confocal linéaire sont les suivants:

- Le fait d'utiliser une longueur d'onde excitatrice grande permet de minimiser la diffusion des tissus biologiques se trouvant entre l'objet à imager et la surface des tissus (diffusion Rayleigh en $1/\lambda^4$). Cette diminution de la diffusion aux hautes longueurs d'onde permet d'avoir une meilleure profondeur de pénétration du faisceau

laser excitateur et permet ainsi d'imager des cellules ou de tissus biologiques épais (plusieurs centaines de microns voire le millimètre dans certains cas). Ceci constitue indéniablement le point fort de la microscopie à deux photons.

- De par le confinement de la fluorescence non-linéaire dans un volume extrêmement faible, la lumière de fluorescence issue des plans inférieurs et supérieurs au plan focal est inexistante. Celle-ci ne vient donc pas bruite le signal utile lors de la détection. La microscopie à deux photons est naturellement confocale ce qui dispense de l'emploi d'un trou de filtrage.
- Contrairement à la microscopie confocale conventionnelle, la longueur d'onde d'excitation et la longueur d'onde de fluorescence sont très éloignées l'une de l'autre, ce qui permet de séparer efficacement ces deux longueurs d'onde par des filtres appropriés. Cette distinction entre les deux longueurs d'onde permet alors de diminuer encore le bruit lors de la détection du signal.
- Le fait d'avoir un volume d'excitation non-linéaire extrêmement faible permet aussi de confiner le photoblanchiment des fluorophores au point focal en laissant intact tout le volume se trouvant sur la trajectoire du faisceau excitateur.

A cause de ces avantages, le microscope à deux photons est en train de supplanter le microscope confocal traditionnel dans le secteur des neurosciences ou celui de l'étude de l'embryogenèse par exemple.

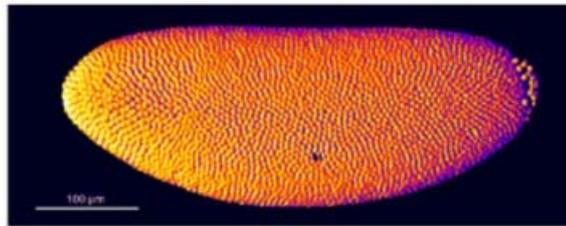


Figure 3 : Image à deux photons d'un embryon de drosophile. (E. Beaufrepaire, LOB, Ecole Polytechnique, Palaiseau).

Note : Pour plus de détails concernant la fluorescence à deux photons, j'ai ajouté en annexe (Annexe G) une présentation complémentaire des principales caractéristiques de ce processus non-linéaire d'ordre 3.

2) *Nouvelles imageries non-linéaires*

Un inconvénient de la microscopie à deux photons est qu'elle requiert la plupart du temps l'ajout de fluorophores "marqueurs" exogènes dont l'innocuité pour le milieu biologique est souvent sujette à caution. Cet inconvénient justifie les efforts qui sont actuellement faits pour développer de nouvelles imageries non-linéaires permettant de se passer de marqueurs exogènes.

a. Microscopie par génération de seconde et troisième harmonique (SHG, THG) [31-38]

Lorsque l'on focalise un faisceau infrarouge femtoseconde sur un tissu non centrosymétrique (cellules de collagène par exemple), on obtient par effet non-linéaire non résonnant d'ordre 2 la génération d'une onde lumineuse cohérente de fréquence double. Cette

lumière harmonique peut servir à former une image non-linéaire des tissus au même titre que la lumière de fluorescence à deux photons.

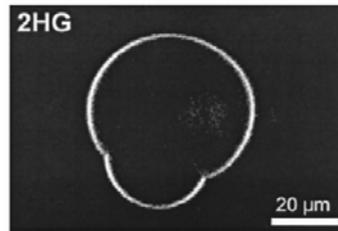


Figure 4 : Imagerie par génération de seconde harmonique d'une membrane cellulaire marquée. (J. Mertz, ESPCI, Paris)

Cette technique utilise les mêmes outils que la microscopie de fluorescence par absorption à deux photons et possède les mêmes avantages. La lumière générée étant cohérente avec la lumière incidente, celle-ci se construit préférentiellement dans des directions de l'espace qui satisfont l'accord de phase, ce qui lui confère certaines propriétés intéressantes dont l'imagerie peut tirer partie.

Cependant, les tissus ou les substances biologiques non centrosymétriques sont rares, ce qui limite le développement de cette technique. Je citerai tout de même l'exemple spectaculaire suivant : l'image d'un neurone peut être produite par doublage de fréquence par "poling" électrique de zones membranaires soumises à l'activité électrique naturelle du cerveau [39].

La génération de troisième harmonique [40] présente l'avantage d'être applicable potentiellement à tous les tissus biologiques qui possèdent forcément une certaine non-linéarité d'ordre 3. Cependant, l'efficacité d'excitation d'une harmonique d'ordre supérieur est très faible (plusieurs centaines de GW/cm^2 s'avèrent nécessaires à l'obtention d'un signal détectable), ce qui risque de limiter les applications de cette technique.

b. Microscopie CARS : Coherent Anti-Stokes Raman Scattering [31, 41-45]

La technique CARS est basée sur un processus non-linéaire d'ordre 3 de mélange à quatre ondes résonnant, préférentiellement en régime d'impulsions picosecondes. Elle utilise certains niveaux vibrationnels moléculaires pour créer le contraste nécessaire à l'imagerie. Ce contraste est alors représentatif de la densité d'une liaison chimique particulière. Cette technique ne nécessite donc pas de marquage préalable des tissus ou des cellules à étudier, ce qui constitue un atout important.

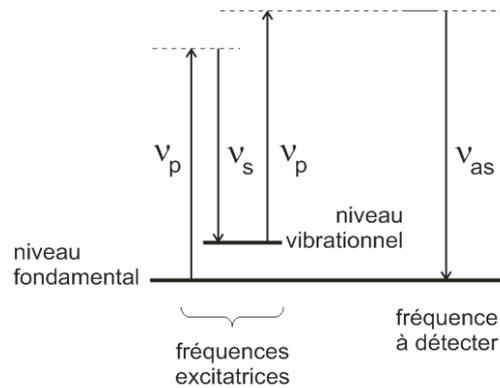


Figure 5 : Fréquences nécessaires à l'obtention de l'onde anti-Stockes.

L'imagerie CARS implique l'interaction de trois champs de fréquence différente. Un champ dit "de pompe", de fréquence ν_p et un champ complémentaire dit "Stockes", de fréquence ν_s . L'interaction de ces champs dans le tissu biologique génère une onde lumineuse "anti-Stockes" dont la fréquence est égale à $\nu_{AS} = 2.\nu_p - \nu_s$ suivant une direction satisfaisant l'accord de phase $\vec{k}_{AS} = 2.\vec{k}_p - \vec{k}_s$. Pour obtenir le meilleur contraste, il est nécessaire de régler la différence de fréquence entre l'onde Stockes et l'onde pompe pour que celles-ci soient en résonance avec la liaison chimique qui nous intéresse.

A cause de la condition d'accord de phase, la détection de l'onde anti-Stockes se fait plutôt à travers l'échantillon étudié ce qui conduit préférentiellement à l'étude d'échantillons biologiques minces. Dans le cas d'échantillons épais, il est également possible d'utiliser l'onde anti-Stockes rétrodiffusée [41].

Notons enfin que le mélange à 4 ondes non résonnant, qui coexiste avec le rayonnement CARS, ajoute un bruit qui diminue le contraste de l'image.

c. Imagerie de contrôle cohérent [46-49]

Le contrôle cohérent permet de manipuler l'état interne des atomes ou des molécules à partir de la mise en forme temporelle cohérente des impulsions femtosecondes excitatrices. Actuellement, cette technique trouve principalement son application dans des expériences de photochimie en phase gazeuse [48], mais, depuis peu, elle trouve aussi son application dans les expériences de biologie [27, 47-49]. A partir de la mise en forme temporelle de l'impulsion excitatrice, il est possible d'optimiser les images non-linéaires. Cette technique est complémentaire des autres techniques d'imagerie non-linéaire telles que l'imagerie de fluorescence à deux photons [27] ou l'imagerie CARS [50].

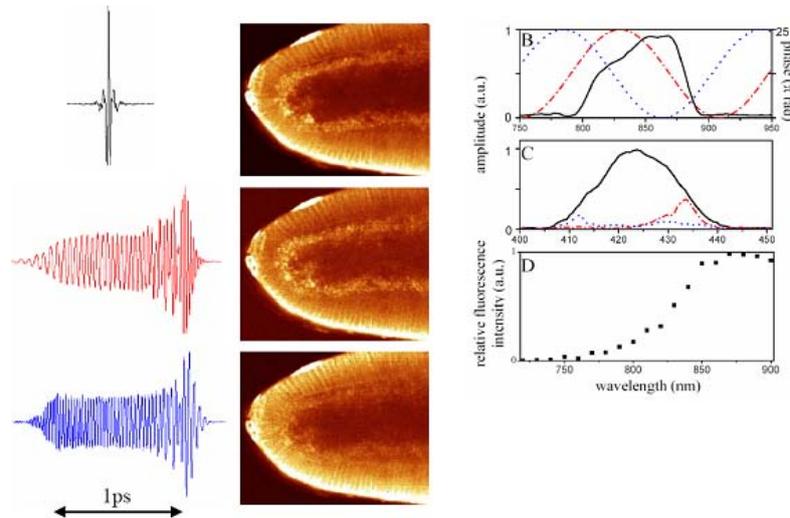


Figure 6 : Sur ces images de fluorescence à deux photons, on voit qu'il est possible d'améliorer le contraste de certaines parties de la cellule en contrôlant le profil temporel de l'impulsion femtoseconde excitatrice. (M. Joffre, LOB, Ecole Polytechnique, Palaiseau)

d. Une limitation des nouvelles imageries non-linéaires

Les techniques non-linéaires précédentes qui sont basées sur l'emploi d'impulsions brèves et ultra-brèves ont prouvé leur grande efficacité et leur complémentarité. Cependant, comme la microscopie confocale linéaire, elles impliquent actuellement la biopsie, l'anesthésie ou même la dissection des entités biologiques étudiées. Ces opérations limitent la réactivité des analyses microscopiques associées. Dans le cas de l'étude d'animaux vivants, les observations sont alors limitées à la surface de certains organes superficiels facilement accessibles. L'observation est dite invasive et l'étude des tissus ne se fait pas dans des conditions de vie normales car l'animal doit être immobilisé et/ou anesthésié pour être positionné sous le microscope qui est un appareil lourd et encombrant.

II. Microscopie par fibre optique

1) *Introduction*

Les techniques endoscopiques basées sur l'emploi de fibres optiques ont fait depuis longtemps leurs preuves aussi bien dans le secteur du diagnostic clinique qu'en recherche biomédicale notamment dans le secteur des neurosciences. Elles n'obligent pas à prélever et donc de tuer à court terme les cellules étudiées. S'agissant de procédés minimalement invasifs, elles permettent l'étude "*In Vivo*" "*In Situ*" d'organismes dans des conditions de vie quasi normales.

Des appareils commerciaux permettant de faire de la microscopie haute résolution temps réel par fibre optique (ou endomicroscopie) ont vu le jour depuis peu. Ils permettent d'allier les avantages de la microscopie linéaire (résolution, contraste, imagerie tridimensionnelle, imagerie en temps réel, ...) à ceux qu'apporte l'utilisation d'une fibre optique (flexibilité, miniaturisation, ...).

La longueur de la fibre endoscopique utilisée dans ces appareils est de l'ordre du mètre. Elle est unimodale, ce qui assure une très bonne résolution spatiale de l'image. Il est possible

de classer les endomicroscopes en deux familles en fonction du nombre de coeurs (un seul coeur ou un très grand nombre de coeurs) constituant la fibre optique utilisée :

- *fibre à coeur unique* : la fibre optique est reliée à un microscope confocal à balayage laser miniaturisé placé dans la tête endoscopique. Le balayage est dit "distal".
- *fibre multicoeur* : dans ce cas, la tête endoscopique est porteuse d'un simple objectif de microscope miniaturisé ; la fibre multicoeur relie la tête endoscopique à un microscope confocal macroscopique. Les coeurs de la fibre qui sont indépendants sont excités les uns après les autres au cours du temps par le dispositif de balayage laser placé dans la partie du système se trouvant du côté de l'utilisateur. Le balayage est dit "proximal". Chaque coeur devient alors un pixel de l'image finale.

Ces appareils permettent d'allier les avantages de la microscopie confocale de fluorescence monophotonique à ceux des technologies à fibre optique, au prix d'efforts technologiques importants comme nous allons le voir. Les paragraphes suivants présentent les principales caractéristiques de ces deux classes d'appareils.

2) Architectures d'un endomicroscope

a. Endomicroscope à balayage distal

Dans un endomicroscope linéaire à balayage distal [51, 52], le rayonnement laser continu visible est couplé à l'intérieur d'une fibre optique unimodale monocoeur.

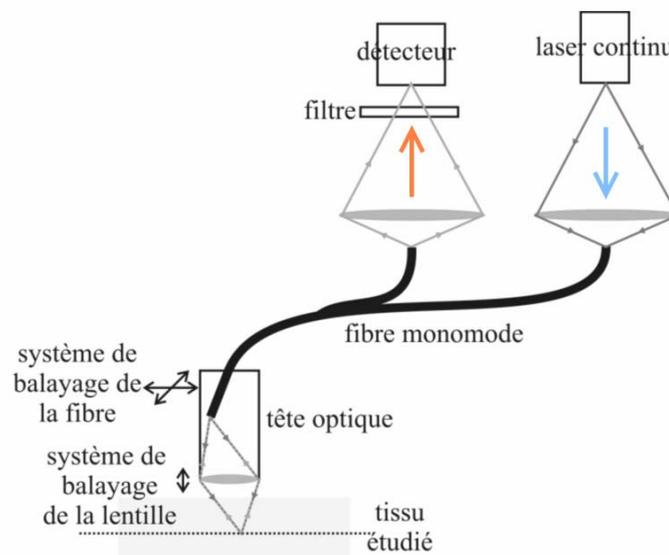


Figure 7 : Endomicroscope à balayage distal.

Le rayonnement issu de la fibre est alors focalisé sur le tissu marqué par un fluorophore par une lentille GRIN miniature. Un système de balayage miniaturisé permet de balayer le champ objet comme dans un microscope confocal standard. Les différentes solutions technologiques de balayage distal sont représentées sur la figure suivante :

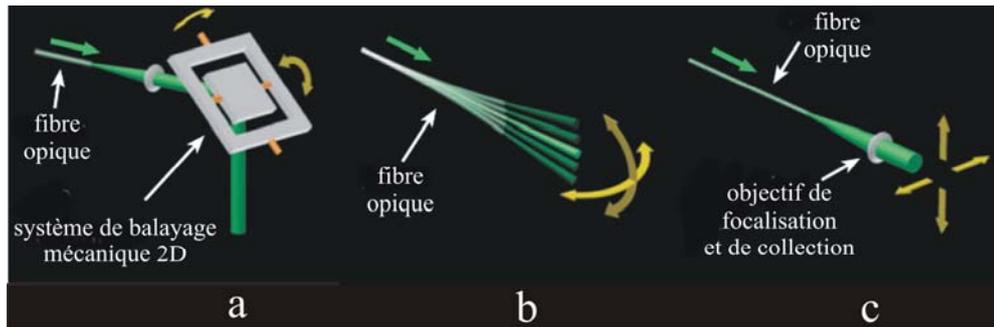


Figure 8 : Différents types de systèmes de balayage laser distal. a. Système de balayage deux dimensions qui peut être composé d'un miroir ou de MEMS. b. Dans ce système de balayage, l'embout de la fibre du côté distal bouge sous l'action d'un champ électrostatique par exemple. c. Dans ce dernier exemple, la lentille de focalisation et de collection est montée sur une platine de translation miniaturisée x,y [56]

La lumière d'épifluorescence est collectée en retour par l'optique d'excitation. Ce signal de fluorescence est alors envoyé suivant les cas :

- Vers un détecteur miniature placé dans la tête endoscopique muni d'un filtre dichroïque,
- Vers un détecteur standard macroscopique en position proximale via une seconde fibre placée à côté de la précédente reliée à un composant dichroïque. Cette seconde fibre est souvent multimode d'ouverture numérique forte, ce qui permet de collecter un plus grand nombre de photons fluorescés,
- Vers un détecteur standard macroscopique en position proximale via la fibre unimodale d'amenée [51] reliée à un coupleur fibré dichroïque. Dans ce cas, la face de sortie de la fibre joue le rôle de trou de filtrage comme dans un microscope confocal ce qui est un atout indéniable. On parle alors d'endomicroscope confocal.

Cependant, quelle que soit la solution technique adoptée les systèmes à balayage distal restent généralement encombrants (diamètre de l'ordre du centimètre). Une tête endoscopique à usage clinique doit avoir un diamètre inférieur à 2,5 mm, ce qui semble inaccessible avec un système à balayage distal. Les systèmes à balayage distal sont plutôt destinés à un usage dans les laboratoires de recherche, pour lesquels le critère du diamètre de la tête endoscopique est moins strict. (Des systèmes très légers ont par contre été développés de telle sorte qu'il puisse être installés sur des animaux vivants sans en perturber le comportement [53])

b. Endomicroscope à balayage proximal [54-56]

La solution du balayage proximal contourne ce problème lié à la miniaturisation de la tête endoscopique. La partie proximale du système est strictement conforme à un microscope confocal à balayage laser macroscopique. Au niveau de la tête endoscopique, seule l'optique de focalisation requiert des efforts de miniaturisation. Les lentilles GRIN permettent de réduire relativement facilement le diamètre de la tête endoscopique en dessous de la limite des 2,5 mm. Cette solution permet ainsi d'envisager un usage aussi bien dans le domaine de la recherche que dans le secteur clinique, notamment sur l'homme.

Les efforts technologiques se reportent alors plutôt sur la fibre optique qui est multicoeur comme nous l'avons dit. Cette fibre endoscopique est une nappe constituée de milliers de coeurs optiques indépendants les uns des autres. Celle-ci est encore appelée "guide d'image". Une photographie d'un guide d'image (fabriqué par la société Fujikura) utilisé dans un

endomicroscope commercialisé par la société Mauna Kea Technologies est présentée sur la figure suivante :

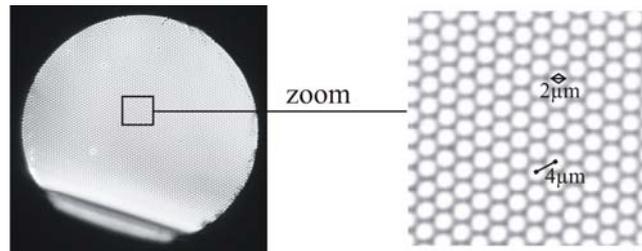


Figure 9 : Fibre "Proflex" utilisée par la société Mauna Kea Technologies. Cette fibre permet simultanément l'acheminement du rayonnement visible et la collection de l'épifluorescence. Ce guide d'image est composé de 30 000 fibres optiques indépendantes les unes des autres.

Le diamètre total du guide d'image est de 1mm ce qui le rend suffisamment flexible pour un usage endoscopique. Il peut être constitué de quelques milliers de coeurs optiques (6 000 coeurs optiques) voire de plusieurs dizaines de milliers (30 000 coeurs optiques). L'homogénéité de la structure est bonne. Par contre ces guides d'image présentent une biréfringence non uniforme (voir annexe H) (ce qui ne pose pas de problème pour une imagerie linéaire). La distance inter-coeur est de quelques microns. L'utilisation d'une optique de focalisation de grandissement inférieur à 1 permet alors d'accéder à une imagerie de résolution de l'ordre du micron. Le problème lié à la pixellisation de l'image est minimisé par l'emploi de techniques de traitement d'image temps réel adaptées. Le diamètre des coeurs est quant à lui extrêmement faible. Dans le cas du guide d'image Proflex présenté ci-dessus, qui nous servira de référence, ce diamètre est égal à 1,7 μm . Cette dimension est associée à une forte ouverture numérique ce qui permet une collection de la lumière d'épifluorescence efficace.

D'autre part, le système est confocal dès lors que l'on détecte à un instant donné la lumière de fluorescence provenant uniquement de la fibre excitatrice à cet instant. Ceci est rendu possible simplement en positionnant un trou de filtrage du côté proximal comme dans un microscope confocal traditionnel.

La solution du balayage proximal semble donc la plus adaptée au développement d'un endomicroscope à haute performance polyvalent.

3) *Endomicroscopie et imageries non-linéaires*

a. Avantages de l'association des deux technologies

Les endomicroscopes actuels sont des microscopes de fluorescence à un photon. Par conséquent, comme leur homologues macroscopiques, ils sont limités notamment par une profondeur de pénétration faible liée à la diffusion des tissus.

L'idée vient alors naturellement de passer à une imagerie endoscopique non-linéaire dans le but d'augmenter cette profondeur de pénétration.

L'association de l'endomicroscopie et des imageries non-linéaires permettrait alors d'accéder à un outil d'observation "*In Vivo*" et "*In Situ*" d'organes profonds sous la surface des tissus (profondeur supérieure à quelques 100 μm), dans des conditions de vie normales par un procédé minimalement invasif. C'est vers cet objectif qu'est tourné la deuxième partie de mon travail de thèse.

b. Problématique liée à l'endomicroscopie non-linéaire

Comme nous l'avons vu, l'imagerie à 2 photons, qui est la technique d'imagerie non-linéaire la plus répandue, met en oeuvre des impulsions ultra-brèves de durée femtoseconde.

L'association des impulsions femtosecondes à un microscope confocal traditionnel ne pose pas de problème lié à la distorsion temporelle des impulsions. Dès lors que la durée des impulsions est supérieure à 100 fs, les distorsions temporelles à la traversée du microscope sont négligeables. Ceci vient du fait que l'épaisseur de matière cumulée (correspondant à l'ensemble des composants optiques qui constituent le microscope) traversée par les impulsions est faible (de l'ordre de quelques centimètres au plus). L'impulsion reste brève au foyer du microscope de telle sorte que le confinement temporel des photons reste assuré.

Il en va tout autrement lorsque l'on connecte directement une source femtoseconde à un endomicroscope conventionnel constitué par exemple d'une fibre optique de 1 mètre de long. L'épaisseur de matière traversée avant d'atteindre les fluorophores est telle que l'impulsion s'allonge sous l'effet de processus linéaire et non-linéaire se produisant pendant la propagation dans la fibre. L'impulsion excitatrice s'allonge, ce qui correspond à une perte de confinement temporel rédhibitoire pour la production d'un signal de fluorescence non-linéaire en bout de fibre endoscopique.

Le développement d'un endomicroscope non-linéaire passe donc par la maîtrise des processus linéaires et non-linéaires se produisant lors de l'acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique. La présentation de ces effets fait l'objet du Chapitre 7 suivant.

**CHAPITRE 7 : Acheminement d'impulsions
femtosecondes par fibre optique**

Préambule : Le but de ce chapitre est tout d'abord de présenter les effets physiques qui interviennent lors de la propagation d'impulsions femtosecondes intenses de longueur d'onde centrale égale à 800 nm dans une fibre optique monomode. Il s'agit également de présenter les différentes solutions envisageables pour la production en bout de fibre d'impulsions femtosecondes intenses dans le contexte de la réalisation d'un endomicroscope non-linéaire.

Dans tout ce chapitre, les impulsions étudiées auront une durée initiale de 100 fs, une fréquence de répétition de 75 MHz et seront associées à une puissance moyenne de 10 mW en sortie de fibre endoscopique. La longueur de la fibre sera fixée à 1 mètre, son diamètre de coeur sera proche de 2 μm . Ces valeurs correspondent en effet aux conditions qui doivent être prises en compte lors de la réalisation d'un endomicroscope non-linéaire bi-photonique à guide d'image multicoeur (voir Chapitre 6 précédent). Là, est l'objectif de mon travail.

I. Effets physiques intervenant lors de la propagation d'une impulsion femtoseconde dans une fibre optique

1) Effets physiques principaux

a. Dispersion de vitesse de groupe [57]

La dispersion de vitesse de groupe est une conséquence de la variation à l'ordre 2 de l'indice de réfraction linéaire $n(\lambda)$ de la fibre optique en fonction de la longueur d'onde λ . Les différents paquets de fréquences qui composent le spectre de l'impulsion se propagent avec des vitesses de groupe différentes, ce qui induit un étalement temporel de l'impulsion durant sa propagation. A 800 nm, la dispersion d'une fibre est telle que les paquets de fréquences de grande longueur d'onde (qui sont dits "rouges") vont plus vite que les paquets de fréquences de courte longueur d'onde (qui sont dits "bleus"). Ceci correspond à un comportement de dispersion dit "normal". La fréquence instantanée suit une dérive temporelle linéaire pendant la durée de l'impulsion dispersée, les paquets de fréquences rouges se trouvant sur le front avant de l'impulsion.

La durée d'impulsion Δt_f après allongement par dispersion dépend de la longueur parcourue L , de la largeur spectrale $\Delta\lambda_i$ du signal (qui est inchangée pendant ce processus linéaire) et du coefficient de dispersion d'ordre 2 de la fibre D :

$$\Delta t_f \approx \Delta\lambda_i \cdot L \cdot D \quad (7.1)$$

Dans cette expression, $D = +\frac{\lambda}{c} \cdot \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \approx 120 \text{ fs}/(\text{nm} \cdot \text{m})$ à $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ pour une fibre monomode standard (la fibre endoscopique que nous étudions est supposée, dans ce chapitre, posséder la même dispersion qu'une fibre standard). Ainsi, une impulsion de durée initiale $\Delta t_i = 100 \text{ fs}$, de largeur spectrale $\Delta\lambda_i = 10 \text{ nm}$, s'allonge d'un coefficient 12 par propagation dispersive dans une fibre de 1 m : $\Delta t_f \approx 1,2 \text{ ps}$ (voir figure 1).

On peut donc en conclure que cet effet n'est absolument pas négligeable dans le contexte du développement d'un endomicroscope non-linéaire.

On montre que la formule (7.1) est valable seulement lorsque $L > L_D$ avec $L_D = \frac{\pi c}{2 \ln 2 \lambda_o^2 D} \Delta t_i^2$. Pour une fibre standard et une impulsion de durée initiale $\Delta t_i = 100$ fs

à 800 nm, L_D est environ égale à 9 cm, ce qui valide le résultat obtenu pour $L=1$ m. On montre que pour $L \ll L_D$ les effets de la dispersion sont faibles. L_D donne la distance à partir de laquelle la dispersion commence à produire ses effets. On parle de "longueur caractéristique de dispersion". On vérifie que la dispersion n'est absolument pas négligeable dans le contexte du développement d'un endomicroscope non-linéaire : $L_{\text{Fibre endoscopique}} \approx 10 \times L_D$.

Lorsque L est environ égale à L_D ou bien lorsque l'on veut connaître avec précision les effets de la dispersion, notamment lorsqu'elle intervient en présence d'un autre effet physique, il est possible d'en calculer les conséquences à l'aide de l'approche numérique suivante :

- La fibre est découpée en tranches dz petites devant L_D (par exemple, dans notre cas $dz=2$ mm et est adapté à toutes les situations étudiées).
- Pour chaque tranche, les effets de la dispersion sont pris en compte dans le domaine spectral : elle se traduit par une modulation de phase spectrale parabolique (voir partie A et annexe E) prenant la forme suivante :

$$d\varphi^{(2)}(\omega) = \frac{1}{2} \cdot d\varphi^{(2)} \cdot (\omega - \omega_0)^2 \text{ avec } d\varphi^{(2)} = -\frac{\lambda_o^2 \cdot D}{2\pi \cdot c} dz \quad (7.2)$$

Cette méthode, appelée "Split Step Method", permet de connaître de proche en proche les évolutions temporelle et spectrale cohérentes de l'impulsion. Elle est à la base du modèle numérique de propagation d'impulsions brèves dans les fibres optiques qui a été développé au laboratoire depuis quelques années et que j'ai utilisé pendant mon travail de thèse. Ce modèle numérique permet également de calculer tous les effets physiques qui sont présentés dans ce paragraphe. Les résultats numériques que je présente dans cette partie B de mon manuscrit sont tous issus de ce modèle et sont calculés à partir de profils temporels et spectraux d'impulsion initialement gaussiens.

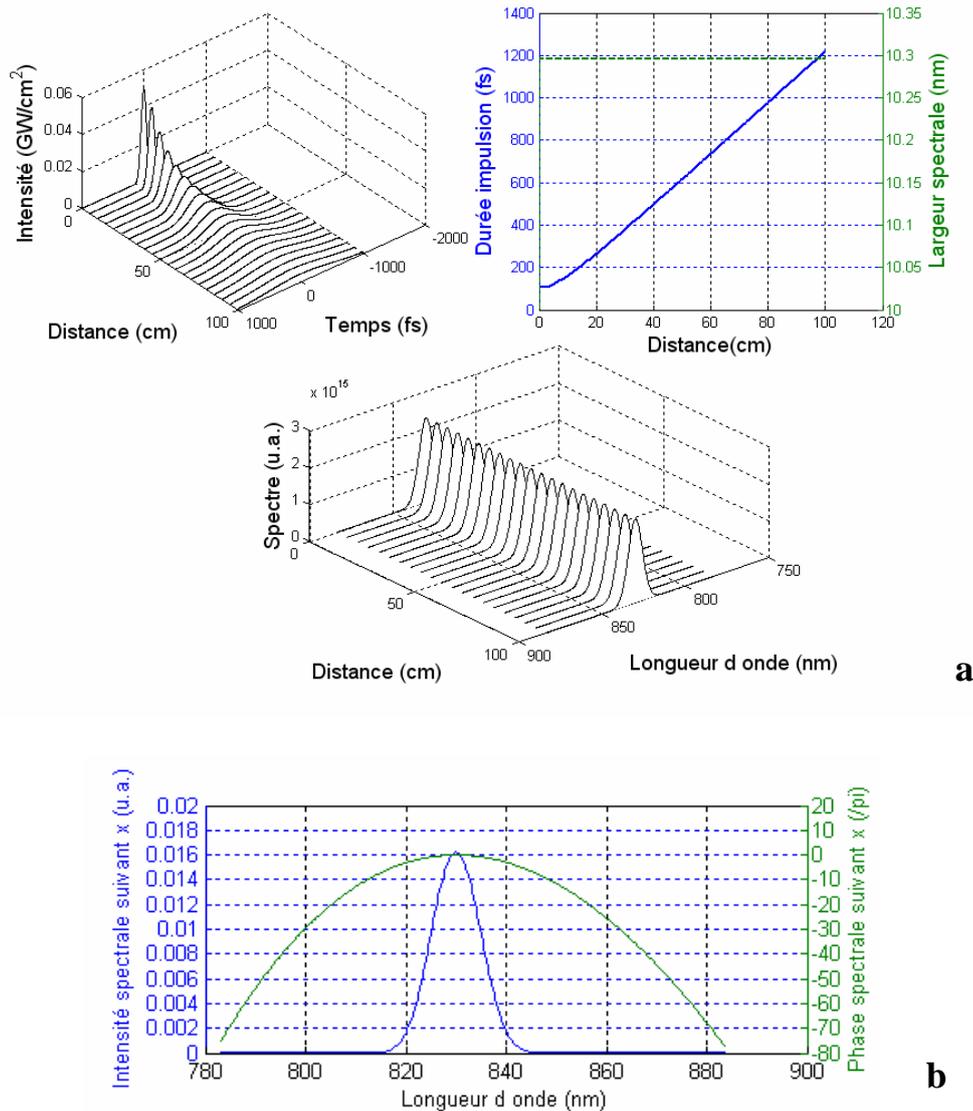


Figure 1 : a. Evolutions temporelle et spectrale d'une impulsion de durée initiale 100 fs à 830 nm par propagation dispersive dans une fibre monomode standard à faible puissance moyenne (<<1mW). L'évolution du profil temporel est tracée dans le repère de temps de groupe de l'impulsion. b. Densité spectrale de puissance et phase spectrale de l'impulsion après 1 mètre de propagation.

Note : Une présentation plus détaillée de la dispersion de vitesse de groupe est accessible dans l'annexe F de ce manuscrit.

b. Automodulation de phase [57, 58]

Le phénomène d'automodulation de phase ou effet Kerr optique apparaît lorsque la silice qui constitue la fibre est soumise à l'action d'un champ optique intense. L'indice effectif du mode dépend linéairement de l'intensité du champ $I(t)$:

$$n(t) = n + n_2 \cdot I(t) \text{ avec } n_2 = 3,2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1} \quad (7.3)$$

La conséquence de l'automodulation de phase apparaît directement dans le domaine temporel : après traversée d'une tranche de fibre dz , l'amplitude temporelle du signal est modulée en phase par le terme suivant :

$$d\varphi(t) = -\frac{2\pi}{\lambda_0} \cdot n(t) \cdot dz = -\frac{2\pi}{\lambda_0} \cdot n_2 \cdot I(t) \cdot dz \quad (7.4)$$

Cette automodulation de phase temporelle entraîne une automodulation de fréquence instantanée dont l'allure est représentée sur la figure suivante pour une impulsion de profil gaussien :

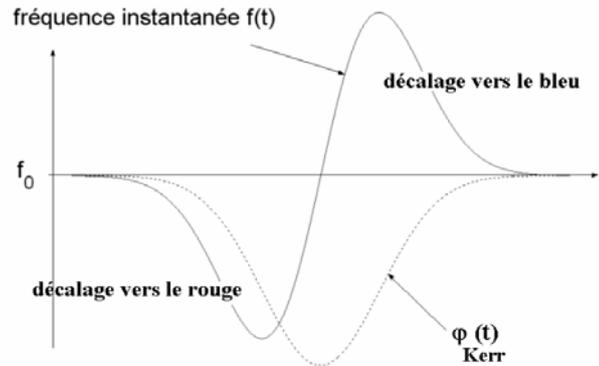


Figure 2 : Automodulation de phase par effet Kerr ; le front avant de l'impulsion est décalé vers le rouge ; le front arrière est décalé vers le bleu.

Pour une impulsion en cloche sans phase initiale, le spectre s'élargit et des cannelures apparaissent dans celui-ci. Par contre, en l'absence d'autre effet physique, le profil temporel en intensité reste inchangé. L'effet d'automodulation ne conduit pas directement à un allongement temporel.

Comme pour l'effet de dispersion de vitesse de groupe, il est possible de définir une longueur caractéristique à partir de laquelle l'effet commence à apparaître. Cette longueur se nomme longueur non-linéaire et s'exprime suivant la relation :

$$L_{NL} = \frac{\lambda_0}{(2\pi\gamma I_{max})} \quad (7.5)$$

Pour un train d'impulsions gaussiennes récurrentes à 75 MHz, de durées 100 fs, de puissance moyenne 10 mW, se propageant dans une fibre de silice parfaitement transparente, de rayon en 1/e en champ égal à 1,7 μm , la longueur non-linéaire vaut 1,5 cm.

On peut donc en conclure que, comme la dispersion chromatique, cet effet d'automodulation de phase n'est absolument pas négligeable dans le contexte du développement d'un endomicroscope non-linéaire ($L_{\text{Fibre endoscopique}} \approx 100 \times L_{NL}$).

Note : Une présentation complémentaire de l'effet d'automodulation de phase est accessible dans l'annexe E de ce manuscrit.

2) Effets physiques secondaires

a. Dispersion d'ordre 3 [57]

La dispersion d'ordre 3 est une conséquence de la variation à l'ordre 3 de l'indice de réfraction linéaire $n(\lambda)$ de la fibre optique en fonction de la longueur d'onde λ . La traversée d'une tranche dz de fibre induit une modulation de phase spectrale égale à :

$$d\varphi^{(3)}(\omega) = \frac{1}{6} \cdot d\beta^{(3)} \cdot (\omega - \omega_0)^3 \text{ avec } d\beta^{(3)} = -\beta^{(3)} \cdot dz \text{ et}$$

$$\beta^{(3)} = 2,21 \cdot 10^{-21} \text{ u.s.i. pour une fibre standard.}$$

Un exemple d'impulsion modulée spectralement à l'ordre 3 a déjà été présenté au Chapitre 4 I. 3. a. de la partie A de ce manuscrit : la principale caractéristique de la dispersion d'ordre 3 lorsqu'elle intervient seule est de faire apparaître des rebonds dans la partie latérale de l'impulsion.

L'évaluation quantitative de cet effet pour une impulsion de 100 fs (10 nm de largeur spectrale), se propageant sur un mètre de fibre standard, donne une phase d'ordre 3 totale faible (décollement de phase d'ordre 3 de l'ordre de 0,1 rad à mi-hauteur du spectre). On peut donc en conclure que, dans cette situation simpliste, la dispersion d'ordre 3 pure est négligeable. Par contre, il est à prévoir qu'en absence d'un élargissement spectral par automodulation de phase non-linéaire et pour un système à dispersion d'ordre deux annulée cet effet a un impact non négligeable.

b. Biréfringence [57]

Les fibres standard sont très faiblement biréfringentes surtout pour des tronçons courts (1 m dans notre cas). Par contre, les guides d'images multicoeur, qui sont utilisés dans les endomicroscopes à balayage proximal, sont le plus souvent biréfringents. Lors de la fabrication du guide d'image, celui-ci est soumis à de fortes contraintes thermiques et mécaniques qui le rendent biréfringent. Ceci a pour conséquence de créer deux axes de polarisation privilégiés orthogonaux entre eux (axes x et y). Ces axes, dits "neutres", sont notamment associés à des vitesses de groupe différentes.

Cet effet est pris en compte par le modèle sous la forme d'un déphasage spectral d'ordre 1 de type :

$$d\varphi^{(1)}_{\text{biréfringence}}(\omega) = \frac{\Delta n_g}{c} \cdot (\omega - \omega_0) \cdot dz$$
, Δn_g étant égal à la différence d'indice de groupe des deux modes de polarisation.

Cette différence de vitesse de groupe peut se répercuter fortement sur la propagation d'une impulsion brève comme le montrent les résultats suivants :

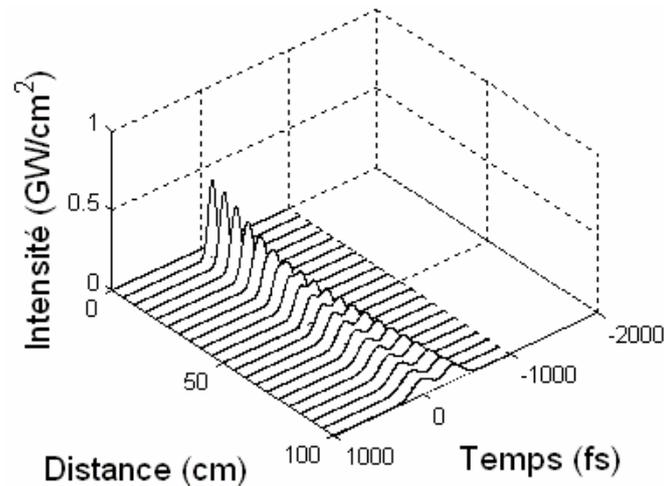


Figure 3 : Evolution temporelle d'une impulsion dans une fibre optique biréfringente en absence de dispersion de vitesse de groupe et d'effets non-linéaires. $\Delta n_g = 10^{-4}$; la lumière incidente est polarisée rectilignement à 45° par rapport aux axes neutres de la fibre

L'impulsion se dédouble en deux impulsions polarisées orthogonalement qui se désynchronisent progressivement au cours de la propagation. L'intensité maximale diminue ce qui est néfaste à la production d'effets non-linéaires en bout de fibre. Une réduction d'un coefficient 2 de l'intensité maximale est atteinte lorsque les deux impulsions sont complètement séparées.

On peut donc en conclure que cet effet n'est pas négligeable dans le contexte du développement d'un endomicroscope non-linéaire à guide d'image multicoeur, pour lequel la fibre endoscopique présente une biréfringence et où l'on excite les deux lignes neutres de celle-ci.

c. Modulation de phase croisée [57]

Il s'agit d'une conséquence à la fois de la biréfringence et de l'effet Kerr. On montre en effet qu'un des modes de polarisation peut moduler non-linéairement la phase de l'autre mode et inversement. Les variations d'indice non-linéaires correspondantes s'écrivent de la manière suivante :

$$n^x(t) = n^x + n_2 \cdot I^x(t) + \frac{2}{3} n_2 \cdot I^y(t)$$

$$n^y(t) = n^y + \frac{2}{3} n_2 \cdot I^x(t) + n_2 \cdot I^y(t)$$

$I^x(t)$ et $I^y(t)$ représentent respectivement l'intensité de l'impulsion polarisée suivant l'axe des x et l'axe des y ; $n^x(t)$ et $n^y(t)$ représentent respectivement l'indice de réfraction vu par l'onde polarisée suivant l'axe des x et suivant l'axe des y.

Ce processus peut induire des décalages spectraux ou tout du moins des effets de dissymétrisation du spectre. Son ampleur dépend du ratio entre la durée d'impulsion et la différence de vitesse de groupe des modes à polarisation.

Il semble assez difficile d'en évaluer dès maintenant l'impact, vraisemblablement faible, sur un système d'acheminement d'impulsions brèves par fibre optique. Cette étude sera menée ultérieurement lorsque les détails du système global seront mieux définis.

d. Autoraidissement [57]

Cet effet non-linéaire d'ordre supérieur se traduit par le fait que l'indice de groupe, comme l'indice de phase, peut devenir une fonction (croissante) de l'intensité instantanée à fort niveau de puissance. Son amplitude dépend de n_2 , de la durée d'impulsion, de son niveau d'intensité et de la longueur de propagation.

Il conduit à un raidissement du profil temporel de l'impulsion du côté du front montant et à un élargissement asymétrique du profil spectral du côté des hautes fréquences :

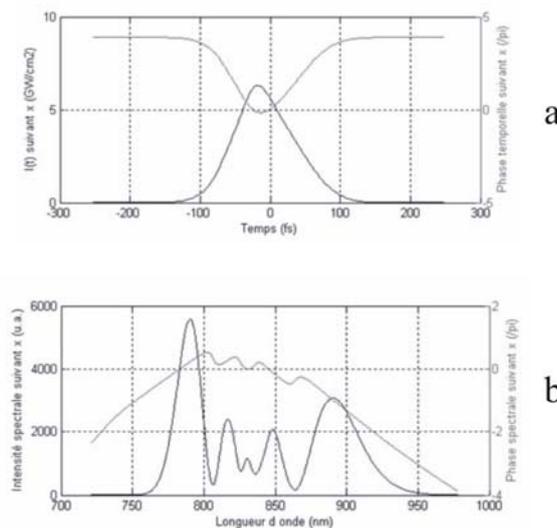


Figure 4.a. Profil temporel de l'impulsion (10 mW, 75 MHz) après propagation dans une fibre optique de diamètre proche de 2 μm et de 1 mètre de long en présence d'autoraidissement et d'automodulation de phase. b. Profil du spectre en sortie de fibre. Les cannelures du spectre sont dues à l'automodulation de phase par effet Kerr. La dissymétrie du spectre est attribuable à l'autoraidissement

Cet effet est réputé pour n'intervenir que dans le cas d'impulsions ultracourtes de durée inférieure à 50 fs. Dans le cas d'impulsions de durée 100 fs, il joue vraisemblablement un rôle correctif dont l'ampleur sera évaluée ultérieurement.

e. Diffusion Raman Stimulée [57]

La Diffusion Raman Stimulée est liée au caractère non instantané de la variation d'indice non-linéaire due à l'effet Kerr. La réponse non-linéaire Raman de la silice est représentée sur la figure suivante [59, 60] :

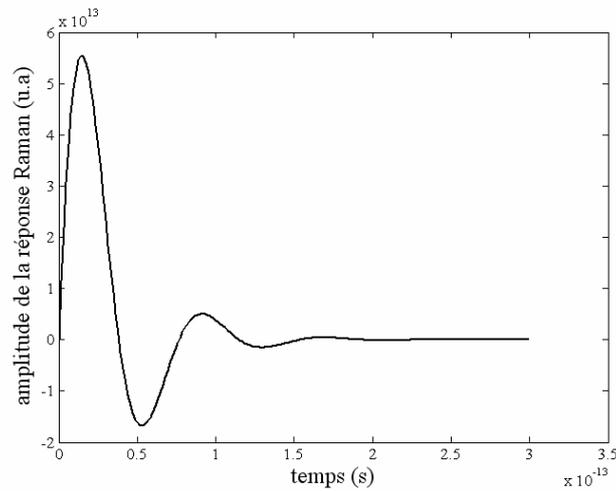


Figure 5 : Variation temporelle de la réponse Raman pour une fibre silice

Cet effet contribue à la variation d'indice non-linéaire sous la forme d'un produit de convolution entre le profil temporel en intensité de l'impulsion et la réponse oscillante amortie précédente.

Il se traduit par l'apparition de nouvelles fréquences du côté rouge du spectre. L'effet Raman est surtout visible en régime picoseconde. Dans le cas d'impulsions de durée 100 fs, il joue vraisemblablement un rôle correctif dont l'ampleur sera évaluée ultérieurement.

II. Acheminement d'impulsion femtosecondes par fibre optique sans mise en forme préalable du signal

1) Propagation dispersive en présence de non linéarité dans la fibre endoscopique sans mise en forme préalable de l'impulsion

Considérons la situation simple où un oscillateur femtoseconde est directement relié à une fibre monomode de diamètre de coeur proche de $2 \mu\text{m}$ (rayon de champ de mode = $1,7 \mu\text{m}$) qui joue le rôle de fibre endoscopique dans le but de produire un signal de fluorescence non-linéaire en bout de fibre :

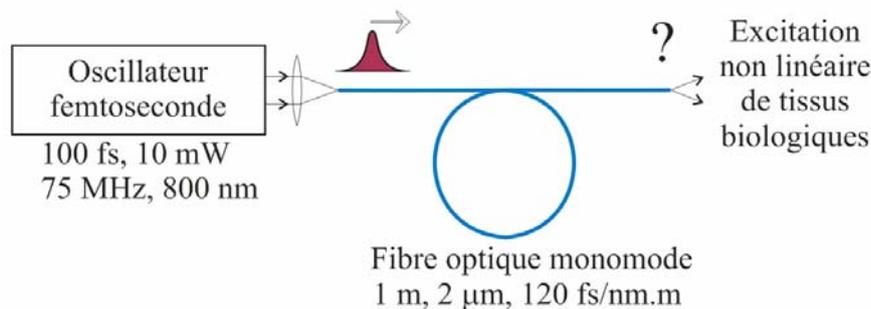


Figure 6 : Propagation d'une impulsion femtoseconde dans une fibre optique sans mise en forme temporelle, ni spectrale

L'impulsion initiale est supposée sans phase et l'injection dans la fibre parfaite.

Les graphes suivants présentent le résultat de la propagation dans la fibre endoscopique avec prise en compte de tous les effets physiques présentés au paragraphe précédent dans les conditions de référence indiquées sur la figure 6.

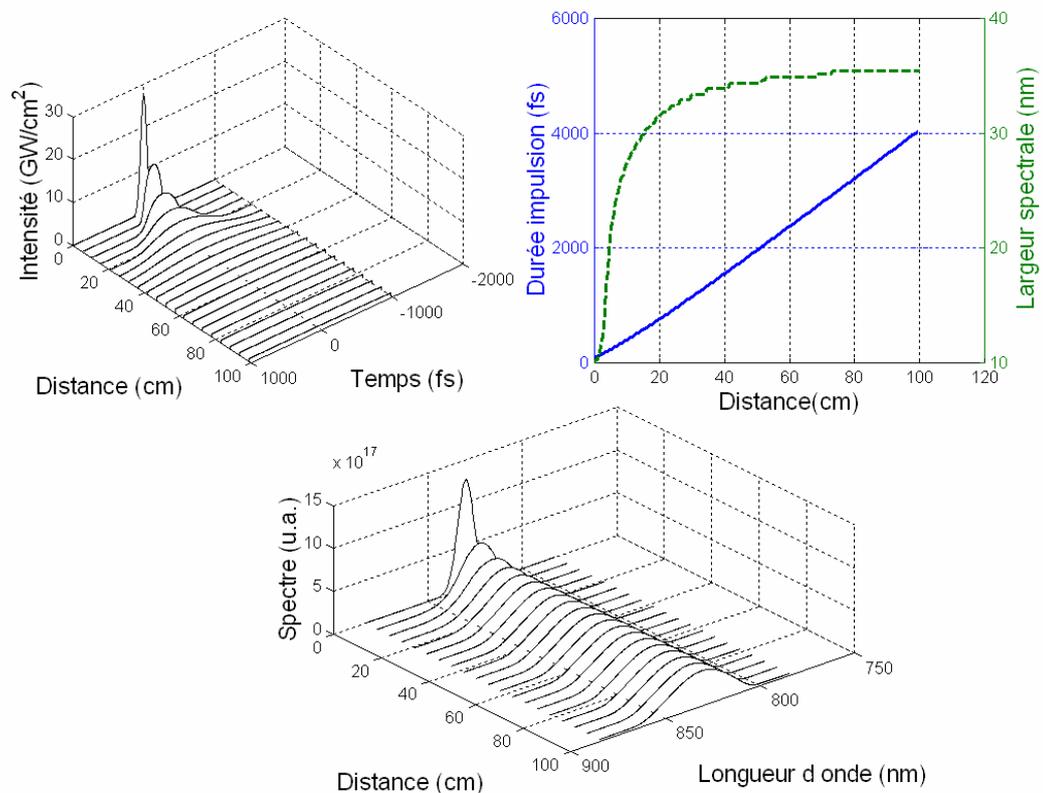


Figure 7 : Evolution temporelle et spectrale d'une impulsion femtoseconde soumise aux effets linéaires et non-linéaires au cours de sa propagation dans une fibre.

Sous l'effet de la dispersion chromatique, l'impulsion s'allonge très fortement. La durée finale est proche de 4 ps. Le spectre s'élargit jusqu'à 35 nm ce qui traduit la présence d'effets non-linéaires forts.

Note : On constate donc que la formule $\Delta t_f \approx \Delta \lambda \cdot L \cdot D$ reste approximativement valable sous réserve de considérer non pas la largeur spectrale initiale mais celle après élargissement non-linéaire.

Le niveau crête de l'impulsion dans la fibre passe d'environ 30 GW/cm² à l'entrée de la fibre à seulement 0,5 GW/cm² en sortie de système. La production de fluorescence non-linéaire en bout de fibre endoscopique est clairement impossible.

La solution triviale qui consiste à alimenter directement la fibre endomicroscopique par un oscillateur femtoseconde n'est pas viable en vue d'une application en imagerie de fluorescence non-linéaire.

2) *Fibres innovantes pour le transport d'impulsions brèves*

a. Présentation

i. **Système basé sur l'emploi de lentilles relais**

Pour limiter les effets de dispersion chromatique et d'automodulation de phase, une première solution consiste à faire propager les impulsions dans des guides d'onde constitués d'une succession de lentilles relais [61]. Comme les impulsions se propagent principalement dans l'air, les effets linéaires et non-linéaires sont alors limités. Cette solution permet de conserver la brièveté des impulsions en bout de système.

Cependant, ce guide d'onde présente des dimensions transverses importantes qui le rendent rigide et donc inapproprié à un usage endoscopique.

ii. **Fibres à cœur creux**

Récemment, de nouvelles fibres microstructurées ont permis de guider la lumière dans un cœur fait uniquement d'air. Pour cela, la propagation guidée du rayonnement lumineux à l'intérieur du cœur ne se fait plus par réflexion totale, puisque ici l'indice du cœur est inférieur à l'indice de la gaine (voir Chapitre 2) mais par propagation par effet de Bandes Interdites Photoniques (BIP). Comme le cœur où se propage l'impulsion brève est composé uniquement d'air, il est possible de minimiser les effets linéaire et non-linéaire qui sont majoritairement dus, dans les fibres standard, à la présence de silice qui compose le cœur. Il est possible en ajustant divers paramètres (diamètre de cœur, proportion d'air, distance entre les trous constituant la gaine) d'avoir une propagation unimodale.

Ce type de fibres a alors immédiatement trouvé son application en microscopie non-linéaire [62, 63] [64].

La propagation par effet BIP n'est possible que sur une bande spectrale étroite (quelques nanomètres). Or, si cette bande de fonctionnalité est centrée autour de la longueur d'onde de l'onde excitatrice (800 nm), la fibre à cœur creux présentera alors beaucoup de pertes pour la lumière de fluorescence courte longueur d'onde.

Enfin, à cause de leur faible ouverture numérique, on est souvent obligé d'associer ces fibres à une seconde fibre standard (multimode) d'ouverture numérique plus forte pour collecter le signal de fluorescence.

iii. **Fibres à gros cœur**

D'autres fibres microstructurées fonctionnant par réflexion totale et possédant un cœur optique pouvant atteindre plusieurs dizaines de microns ont été développées. Ces fibres sont dites à large cœur (Large Mode Area : LMA). Le fait d'avoir un cœur large permet de limiter les effets non-linéaires en réduisant le niveau d'intensité crête auquel est soumise la fibre. Pour obtenir une propagation monomode dans ce cœur large, il est nécessaire de jouer sur l'indice effectif de la gaine afin d'avoir une faible différence entre l'indice de cœur et l'indice effectif de la gaine.

Ces fibres, développées dans le but de limiter les effets non-linéaires, présentent tout de même l'effet linéaire de dispersion de vitesse de groupe. Il est alors nécessaire de pré-compenser cet effet linéaire en plaçant en amont de la fibre endoscopique une ligne dispersive anormale. Cette solution sera discutée par la suite.

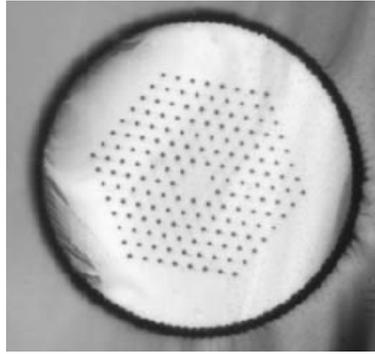


Figure 8 : Image obtenue par la microscopie électronique d'une fibre LMA double gaine. Le diamètre du cœur est de 16 microns. Cette photo a été prise sur le site de la société "crystal fiber".

L'emploi en imagerie de fluorescence non-linéaire [65, 66] d'une fibre LMA de plusieurs dizaines de micromètres de cœur entraîne l'utilisation d'une tête endoscopique qui applique un grandissement très inférieur à 1 pour obtenir une tache focale de l'ordre du micron. Ceci conduit alors à une réduction du champ d'observation. De plus, une telle fibre présente une ouverture numérique qui est obligatoirement très faible de l'ordre de 0,05, ce qui signifie que la fibre risque de collecter très peu de lumière de fluorescence non-linéaire. A cause de cette faible ouverture numérique, on associe souvent à cette fibre LMA une seconde fibre dont l'ouverture numérique est plus grande, ce qui permet de collecter plus de lumière de fluorescence.

Une autre solution consiste à ajouter à la fibre LMA une seconde gaine concentrique [67-69] dont l'ouverture numérique est forte (voir figure 8).

Néanmoins, ce type de fibre présente une sensibilité aux courbures importantes, ce qui limite donc la flexibilité de la fibre endoscopique qui doit être maintenue droite.

iv. **Fibres à dispersion forte**

S. Ramachandran [70] a montré qu'il est possible, à partir d'une fibre fortement dispersive, associée à une ligne pré-compensatrice, d'obtenir en sortie de fibre endoscopique une impulsion dont la durée est proche de celle de l'impulsion en entrée de système.

Il est en effet possible de limiter fortement les effets non-linéaires avec une fibre dont la dispersion normale est forte (+900 fs/nm.m) à 830 nm, bien que l'aire effective du cœur ($18 \mu\text{m}^2$) soit proche de l'aire effective d'un cœur de fibre standard ($14 \mu\text{m}^2$). Pour obtenir une telle dispersion de la fibre, il faut travailler non pas avec le mode LP_{01} mais avec le mode LP_{02} . Dans ce cas, la longueur de dispersion est très courte par rapport à la longueur non-linéaire. Ceci entraîne donc un allongement temporel immédiat de l'impulsion brève avant que le déphasage non-linéaire n'ait le temps de croître. Cet élargissement temporel limite l'effet non-linéaire et permet d'augmenter de manière effective la longueur non-linéaire qui dépend de la puissance crête de l'impulsion. Cependant, l'excitation sélective sur un mode particulier de cette fibre bi-mode est certainement critique ce qui en limite l'emploi.

b. Discussion

Les fibres innovantes que je viens de présenter ont toutes un cœur unique. L'emploi de ce type de fibres dans un endomicroscope entraîne alors forcément l'usage d'une tête endoscopique à balayage distal miniaturisée. Or, comme nous l'avons déjà dit au chapitre

précédent, l'encombrement important de ce type de tête fait que l'appareil n'est pas compatible avec une observation endoscopique minimalement invasive.

D'autre part, les principes qu'elles mettent en oeuvre rendent impossible la constitution d'un guide d'image multicoeur dont chaque coeur possèderait les propriétés innovantes énoncées dans ce paragraphe. Ces nouvelles fibres sont trop grosses ou trop sensibles à leur environnement pour pouvoir être assemblées dans une structure multicoeur de pas micrométrique.

Ces fibres ne peuvent donc pas être retenues pour l'application que j'ai décidé d'étudier (voir Chapitre 6 II, 3.a.). La suite de mon travail fait usage de fibres monomodes ayant un comportement standard en terme de dispersion et de non linéarité.

III. Acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique avec mise en forme temporelle du signal

1) Mise en forme temporelle : précompensation de la dispersion

Examinons la solution suivante :

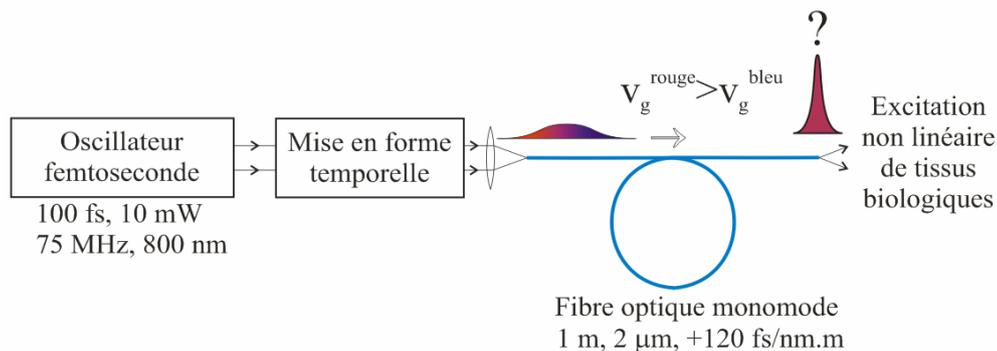


Figure 9 : Propagation d'une impulsion femtoseconde dans une fibre optique avec mise en forme temporelle de celle-ci avant propagation

L'impulsion n'est pas envoyée directement dans la fibre endoscopique. Elle subit une mise en forme temporelle sans modification de l'amplitude spectrale. Cette modification consiste à positionner les paquets de fréquences bleus sur le front avant de l'impulsion et les paquets de fréquences rouges sur le front arrière. Lors de la propagation en régime de dispersion normale dans la fibre, les paquets de fréquences rouges qui sont plus rapides rattrapent les paquets de fréquences bleus, ce qui conduit à la recompression de l'impulsion.

Cette mise en forme peut être effectuée à l'aide d'une ligne dispersive anormale de type Treacy par exemple [71, 72]. Le taux de dispersion de vitesse de groupe de la ligne est alors opposé à celui de la fibre. La ligne pré-compense donc la dispersion de la fibre :

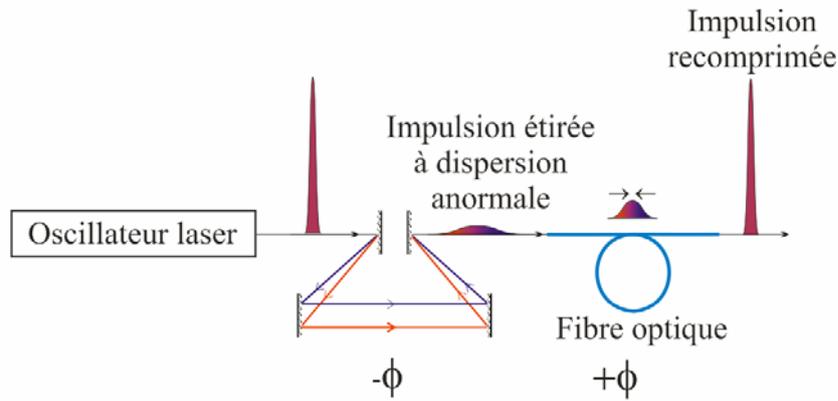


Figure 10 : Synoptique de la ligne Treacy placée en amont de la fibre optique. Cette ligne permet de retarder les composantes de fréquences plutôt rouges par rapport aux composantes plutôt bleues. Le déphasage Φ de cette ligne est en valeur absolue égal au déphasage Φ de la fibre optique et de signe opposé.

2) *Résultat de la pré-compensation en régime linéaire*

Dans un premier temps, examinons ce qui se passe à faible niveau de puissance. J'ai choisi par exemple de travailler avec 0,1 mW dans la fibre, tous les autres paramètres restant inchangés.

Pour un réglage adapté de la ligne dispersive nous obtenons les résultats suivants :

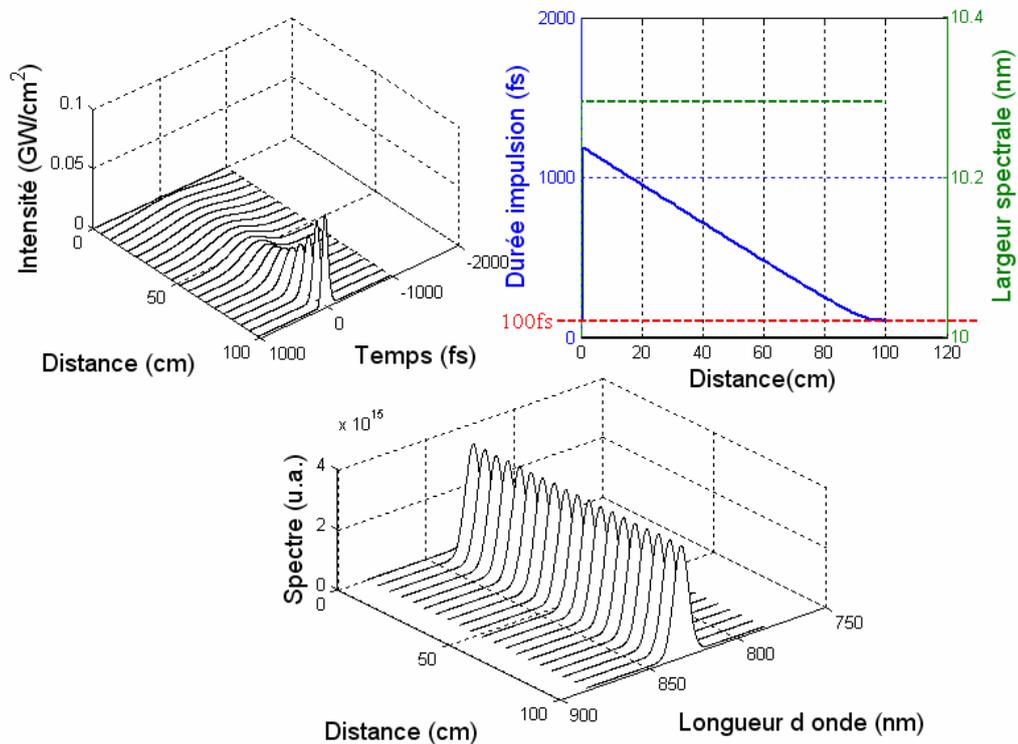


Figure 11 : Evolution de la durée d'une impulsion femtoseconde mise en forme temporellement avant propagation dans la fibre optique. La puissance moyenne de l'impulsion est trop faible pour engendrer des effets non-linéaires (largeur spectrale constante)

On vérifie en examinant les résultats de simulation précédents qu'il est possible d'obtenir en sortie de système une impulsion dont la durée est proche de la durée initiale avant pré-modulation. L'évolution spectrale au cours de la propagation montre qu'il n'y a pas d'effet non-linéaire, l'énergie de l'impulsion ayant été volontairement réduite. En effet, les valeurs de l'intensité crête sont au maximum de quelques MW/cm^2 .

En conclusion de cette partie, on constate que si l'énergie incidente à la fibre est faible, la technique de pré-compensation des effets linéaires, par mise en forme temporelle, marche parfaitement. Cependant, étant donné le faible niveau d'énergie, il n'est pas possible de produire un signal de fluorescence en bout de fibre suffisamment important.

3) Comportement en présence d'effets non-linéaires

On peut s'interroger sur ce qu'il se passe lorsque l'énergie des impulsions en sortie de fibre endoscopique avoisine l'énergie requise pour notre application ?

Pour le même réglage de la ligne dispersive qui permet de compenser la dispersion et pour une puissance moyenne dans la fibre égale à 10 mW, nous obtenons les résultats suivants :

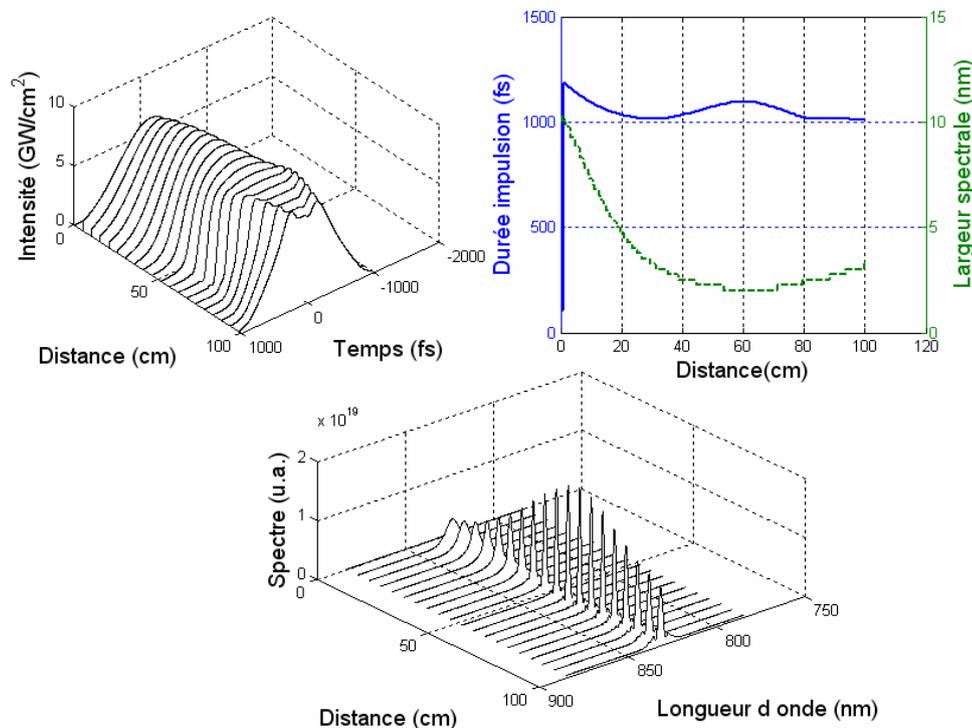


Figure 12 : Evolution de la durée temporelle d'une impulsion femtoseconde mise en forme temporellement avant propagation dans la fibre optique. Dans cet exemple, la puissance moyenne couplée engendre des effets non-linéaires dans la fibre.

Le spectre est modifié ce qui traduit la présence d'effets non-linéaires. La recompression temporelle est très imparfaite ; le niveau crête final est de l'ordre de $5 \text{ GW}/\text{cm}^2$ alors qu'une recompression parfaite conduirait à près de $30 \text{ GW}/\text{cm}^2$. La durée d'impulsion finale est 10 fois supérieure à la valeur initiale. Quel que soit le réglage de la ligne dispersive, il n'a pas été possible d'avoir un résultat meilleur que le précédent.

Cette solution apporte un gain par rapport à l'injection directe mais l'excitation non-linéaire de substances biologiques en bout de fibre endoscopique est loin d'être optimisée avec ce dispositif.

Cette solution est pénalisée par le phénomène de compression spectrale qui est une conséquence inhabituelle de l'automodulation de phase :

A l'entrée de la fibre, l'automodulation de phase est faible car l'impulsion dispersée anormalement est longue. Après une première phase de compression temporelle due à la dispersion normale dans la fibre, l'automodulation commence à produire ces effets. Nous avons vu que l'automodulation de phase (qui dépend uniquement de l'intensité et pas de la phase du signal) induit un décalage fréquentiel vers les fréquences rouges sur le front avant de l'impulsion et un décalage vers les fréquences bleues sur le front arrière. L'impulsion étant préalablement dispersée anormalement des paquets de fréquences bleues sont initialement présents sur le front avant de l'impulsion. L'automodulation de phase à cet endroit de l'impulsion décale ces fréquences bleues par défaut de telle sorte que ces fréquences se rapprochent de la fréquence centrale. Inversement, sur le front arrière, les fréquences rouges sont décalées par excès de telle sorte qu'elles se rapprochent elles aussi de la fréquence centrale. Le spectre se comprime alors. Même après recompression temporelle l'impulsion est forcément longue puisque son spectre est étroit.

Bien que non optimale, la solution précédente est actuellement utilisée dans des systèmes d'imagerie non-linéaire par fibre optique à balayage distal [73]. Il est alors nécessaire d'augmenter fortement la puissance moyenne afin d'accéder à un niveau de puissance crête suffisant en sortie de fibre pour engendrer la fluorescence bi-photonique des substances biologiques. Cette augmentation de puissance, qui consiste à augmenter la puissance moyenne d'un ordre de grandeur (passage de 10 mW à 100 mW), entraîne alors un risque important de détérioration des tissus biologiques. Cette solution entraîne presque systématiquement la mort des organismes observés. Nous reviendrons plus quantitativement sur cette situation au chapitre suivant.

IV. Acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique avec mise en forme temporelle et spectrale du signal [74]

Le constat précédent montre que la précompensation de la dispersion seule est insuffisante. Les effets non-linéaires doivent eux aussi être pré-compensés. Ces effets étant plutôt de nature spectrale, ceci passe par la mise en forme spectrale du signal en supplément de la mise en forme temporelle :

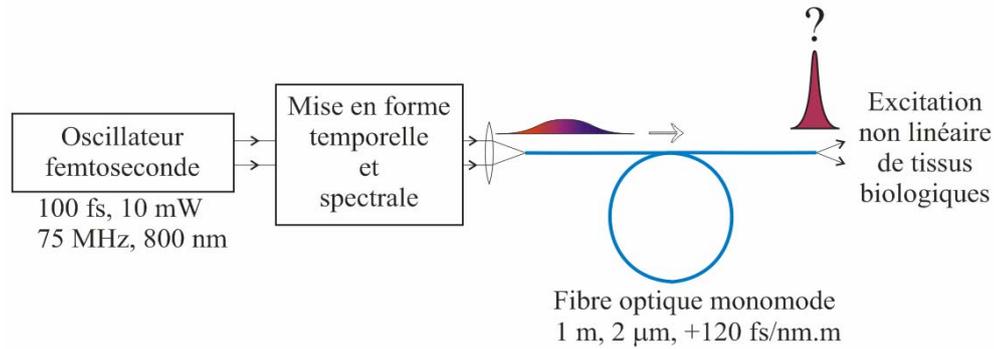


Figure 13 : Propagation d'une impulsion femtoseconde à l'intérieur d'une fibre optique suite à sa mise en forme temporelle et spectrale.

Nous venons de voir que l'automodulation de phase d'une impulsion dispersée anormalement dans la fibre endoscopique entraînait la compression du spectre. La mise en forme spectrale préalable du signal consiste par conséquent à élargir préalablement le spectre avant l'injection de l'impulsion dans la fibre endoscopique. Cette opération qui est elle-même forcément non-linéaire peut être assurée par la propagation préalable des impulsions brèves dans un milieu non-linéaire de type Kerr. Le choix d'une fibre optique complémentaire permet d'éviter les effets spatiaux qu'occasionnerait un milieu non-linéaire massif. Ces idées conduisent alors au schéma de principe suivant [74] :

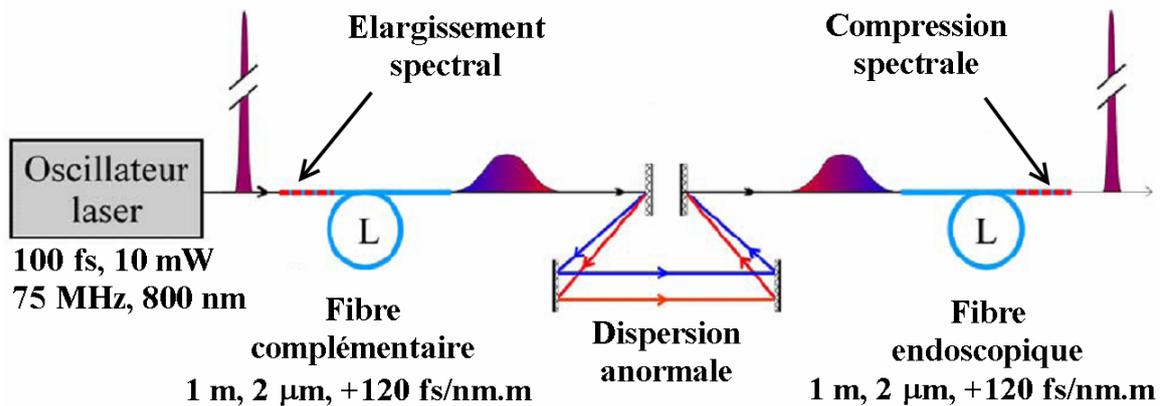


Figure 14 : Evolution temporelle d'une impulsion de 100 fs de haute énergie dans une architecture mettant en œuvre la mise en forme temporelle et spectrale. Dans le cas présenté ici, les deux fibres optiques ont la même longueur et la même valeur de dispersion. Le taux de dispersion introduit alors par la ligne dispersive est double de celui de chacune des deux fibres

Dans cette première approche simplifiée, les pertes sont négligées (l'injection dans les fibres est supposée égale à 100 %, de même pour l'efficacité énergétique de la ligne dispersive, et les pertes des fibres sont supposées nulles). Cette simplification conduit à un système symétrique dans lequel la fibre complémentaire qui est ajoutée avant la ligne dispersive est identique à la fibre endoscopique.

Le réglage de la ligne dispersive anormale est tel qu'elle compense la dispersion de vitesse de groupe des deux tronçons de fibre de façon à maintenir la précompensation de la dispersion.

Pour un réglage adapté de la ligne, nous obtenons le résultat représenté sur la figure 15. Par souci de simplicité, dans cette première approche, les résultats ont été obtenus sans prise en

compte des effets secondaires (tel que par exemple la dispersion d'ordre 3 de la ligne dispersive). L'impact de tous les effets secondaires sur un système réel sera étudié en détail au chapitre suivant.

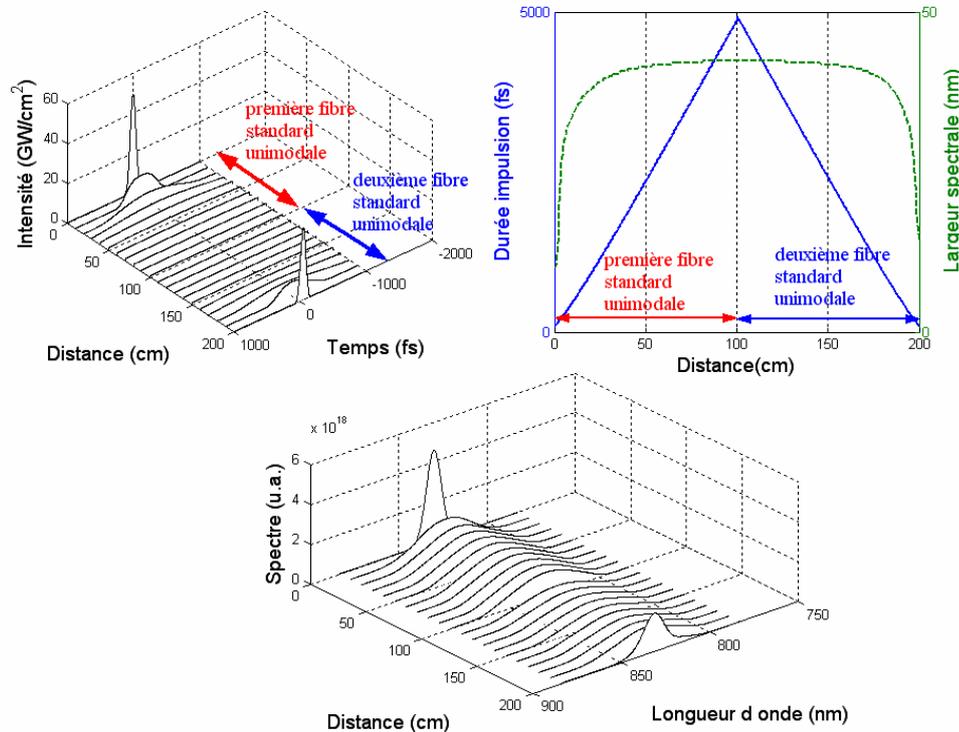


Figure 15 : Evolution de la durée et de la largeur spectrale d'une impulsion de 100 fs dans une architecture mettant en œuvre la mise en forme temporelle et spectrale

L'impulsion se recomprime temporellement et spectralement dans la fibre endoscopique. La compression spectrale est toujours présente. Elle se produit à partir du milieu de la fibre endoscopique et non dans les derniers centimètres comme on pourrait le croire. Elle agit cette fois sur un spectre élargi de largeur en entrée de fibre endoscopique proche de 35 nm. La compression spectrale aboutit à un spectre comprimé plus étroit que ces 35 nm. La symétrie du processus ramène aux 10 nm initiaux.

L'impulsion finale est alors identique temporellement et spectralement à l'impulsion initiale. Le niveau de puissance crête finale est optimal (environ 30 GW/cm²) ce qui est parfaitement adapté à l'excitation non-linéaire de substances biologiques en bout de fibre endoscopique.

Cette architecture, qui n'a jamais été utilisée dans un dispositif d'imagerie non-linéaire par fibre optique, semble parfaitement adaptée au but que nous nous sommes fixés. L'optimisation et la mise en œuvre expérimentale de cette configuration sur un système réel font l'objet des deux chapitres suivants.

CHAPITRE 8 : Conception et Optimisation d'un endomicroscope bi-photonique

I. Présentation générale de l'endomicroscope bi-photonique.

1) Architecture de l'endomicroscope non-linéaire

Le travail qui est présenté dans la partie B de mon manuscrit de thèse s'inscrit dans le cadre d'une collaboration entre le laboratoire XLIM (Limoges) et la société MAUNA KEA TECHNOLOGIES (MKT) (Paris). MKT a mis au point depuis quelques années un endomicroscope linéaire à balayage proximal à guide d'image multicoeur qui est maintenant utilisé dans de nombreux laboratoires de recherche en biologie moléculaire et dans de nombreux hôpitaux. Cet appareil sert de base au développement du futur endomicroscope bi-photonique.

Les évolutions que j'ai apportées à cet appareil conduisent à l'architecture suivante :

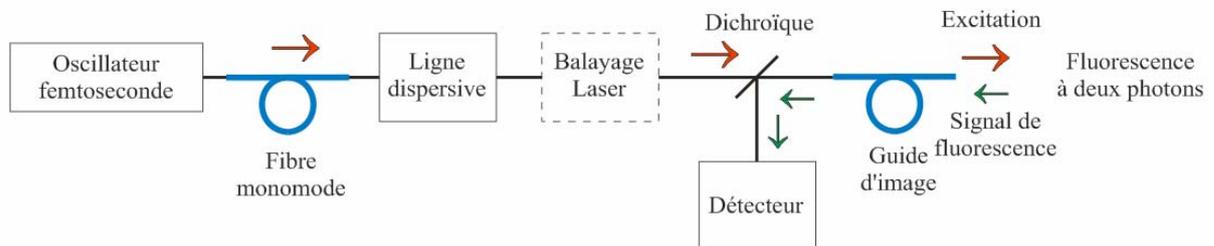


Figure 1 : Architecture du futur endomicroscope non-linéaire

Cette configuration intègre la mise en forme temporelle et spectrale des impulsions femtosecondes dont l'intérêt a été présenté au chapitre précédent.

Le but du présent chapitre est d'évaluer par simulation numérique, à l'aide du modèle présenté au Chapitre 7, les performances que l'on peut attendre de cette architecture en vue de la réalisation d'un prototype expérimental qui sera présenté au dernier chapitre de ce manuscrit. Il s'agit aussi de définir les possibilités d'optimisation du prototype qui seront possibles ultérieurement.

2) Définition des performances à atteindre

a. Détermination du signal d'excitation de référence

Le calcul du signal de fluorescence à deux photons, la prise en compte de l'efficacité de collection de ce signal et la sensibilité du détecteur ne font pas partie du modèle numérique que j'ai utilisé lors de cette étude (les paramètres pris en compte dans ce modèle sont présentés au 3. de ce paragraphe).

Une étude expérimentale préliminaire a par contre permis de définir un signal d'excitation de référence prenant en compte ces paramètres. Cette expérience préliminaire est basée sur la détection d'un signal de fluorescence en fonction de la puissance infrarouge émergente d'un dispositif dont l'architecture est celle d'un microscope non-linéaire, non-fibré et dont le schéma est présenté sur la figure suivante :

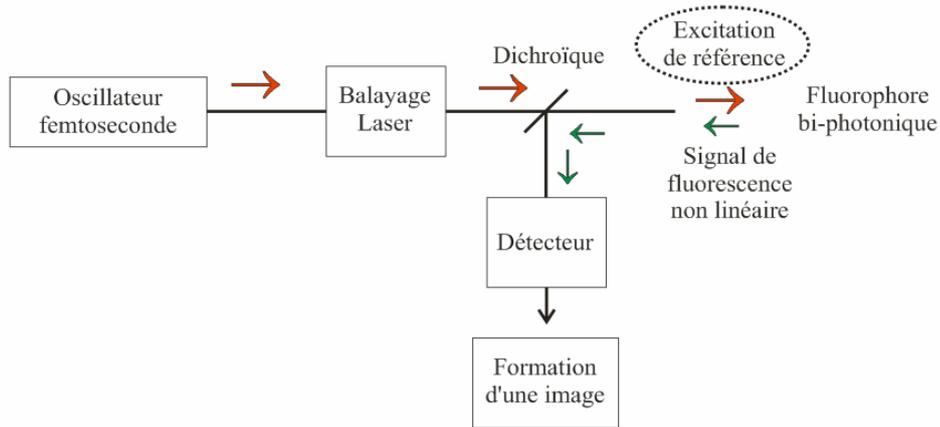


Figure 2 : Schéma expérimental du dispositif utilisé pour déterminer le signal d'excitation de référence

Cette expérience a permis d'évaluer le niveau d'excitation non-linéaire qui est nécessaire à la formation d'une image à deux photons par le système MKT. L'efficacité de collection du signal de fluorescence par le guide d'image qui était absent lors de cette l'expérience a été prise en compte à posteriori.

Le signal d'excitation de référence en bout de fibre endoscopique qui a découlé de cette expérience préliminaire possède les caractéristiques suivantes : durée d'impulsion à profil gaussien environ égale à 100 fs ; puissance moyenne environ égale à 10 mW à 75 MHz. D'autre part, les contraintes liées à l'utilisation future de l'appareil imposent une longueur de fibre endoscopique minimale de l'ordre de 1 mètre.

Mon travail a donc consisté à déterminer par simulation numérique, s'il était possible de faire parvenir des impulsions femtosecondes gaussiennes de **100 fs** à 75 MHz avec une puissance moyenne de **10 mW** au bout d'un guide d'image de **1 mètre** de long en utilisant l'architecture suivante :

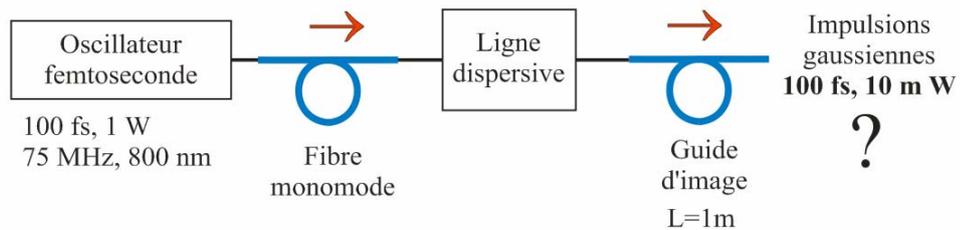


Figure 3 : Architecture choisie du futur dispositif endoscopique

b. Facteur de qualité

L'évaluation précédente correspond à des impulsions directement issues de l'oscillateur dont le profil temporel est quasi-gaussien. Nous verrons que le profil temporel des impulsions qui émergent du système réel est loin d'être gaussien. Des distorsions interviennent notamment à cause de l'effet de dispersion d'ordre 3. Compte tenu de ces distorsions, la durée d'impulsion et la puissance moyenne délivrées en bout de fibre endoscopique se sont révélées être des paramètres insuffisants pour caractériser les performances du système.

Dans cet objectif, nous avons introduit un facteur de qualité F à partir des quantités suivantes :

- $P_{référence}(t)$ représente la puissance instantanée d'une impulsion parfaitement gaussienne de durée totale à mi-hauteur en intensité égale à 100 fs appartenant à un train d'impulsions de fréquence de répétition 75 MHz et de puissance moyenne 10 mW.
- $s_{référence} = \alpha \times \int_{-\infty}^{\infty} P_{référence}^2(t).dt$ représente le signal de fluorescence à deux photons détecté, à partir de l'excitation par l'impulsion de référence précédente. Cette formule tient compte du fait que la fluorescence à deux photons est un processus non-linéaire d'ordre 3 dépendant du carré de la puissance instantanée (voir annexe G). Le coefficient α dépend notamment de l'efficacité du fluorophore bi-photonique employé, des caractéristiques du milieu biologique étudié, de l'objectif de microscope de focalisation, de l'efficacité de collection du signal de fluorescence à deux photons par le guide d'image, de la transmission de l'élément dichroïque et de la sensibilité du détecteur.
- $s = \alpha \times \int_{-\infty}^{\infty} P^2(t).dt$ est le signal de fluorescence à deux photons détecté à partir de l'excitation par l'impulsion réelle en sortie de notre système fibré.

La définition du facteur de qualité est alors :

$$F = \frac{s}{s_{réf.}}, \text{ c'est-à-dire } F = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} P^2(t).dt}{\int_{-\infty}^{\infty} P_{réf.}^2(t).dt}$$

L'examen de cette quantité dispense d'avoir à déterminer le coefficient α qui dépend, comme nous l'avons vu, de nombreux paramètres. F sera exprimé en %.

Si $F \geq 100\%$, alors le système est assez sensible pour mesurer le signal de fluorescence produit, ce qui veut dire que la formation d'une image de fluorescence non-linéaire est possible.

c. Niveau de fonctionnement

F est forcément une fonction croissante de la puissance moyenne en sortie de fibre endoscopique. Ainsi, l'obtention de $F=100\%$, qui est notre critère de réussite, peut passer par une augmentation de cette puissance.

Or, il n'est pas possible d'augmenter indéfiniment la puissance moyenne déposée sur les tissus biologiques sous peine de voir apparaître des problèmes de photo-dommages des tissus étudiés.

Ainsi, un autre paramètre important est la puissance moyenne requise pour atteindre $F=100\%$ que nous noterons : $P^{F=100\%}$. Cette valeur devra se situer en dessous de quelques dizaines de milliwatts afin de maintenir l'intégrité des tissus observés.

3) *Caractéristiques du système réel prises en compte par le modèle*

Seuls les éléments qui ont une influence sur l'évolution des impulsions femtosecondes infrarouges excitatrices sont prises en compte par le modèle numérique que j'ai utilisé.

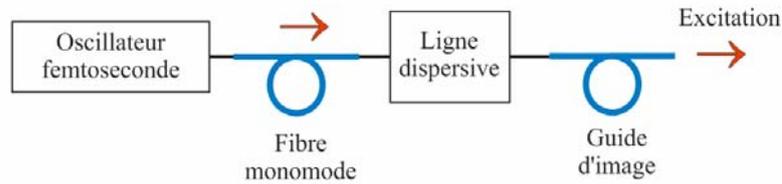


Figure 4 : Eléments pris en compte par le modèle numérique

Le tableau suivant présente l'ensemble des caractéristiques réelles des éléments qui sont prises en compte. Ces données proviennent soit d'informations fournies par le constructeur, soit d'informations issues de la littérature ou bien de caractérisations expérimentales que j'ai effectuées (voir annexe H).

Laser femtoseconde	durée d'impulsion	100 fs	mesuré
	profil d'impulsion	gaussien	mesuré
	largeur spectrale initiale	10 nm	mesuré
	longueur d'onde	830 nm	mesuré
	fréquence de répétition	75 MHz	mesuré
	prémodulation de phase	0	ajustable
Première fibre monomode	rayon de champ de mode	3,3 μm	constructeur
	longueur	1 m	mesuré
	dispersion d'ordre 2	120 fs/nm.m	mesuré
	dispersion d'ordre 3	$2,21 \cdot 10^{-41}$ u.s.i	littérature
	non linéarité	$3,2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$	littérature
	puissance de sortie	ajustable	ajustable
	puissance en sortie maximale	200 mW	constaté expérimentalement
	atténuation	0	littérature
Ligne dispersive Treacy	nombre de traits du réseau	1200 traits/mm	constructeur
	angle d'incidence	45°	mesuré
	efficacité énergétique	75%	mesuré
	distance entre les réseaux	ajustable	ajustable
Fibre endoscopique	rayon de champ de mode	1,7 μm	constructeur / mesuré
	longueur	1 m	mesuré
	dispersion d'ordre 2	160 fs/nm.m	mesuré
	dispersion d'ordre 3	$2,21 \cdot 10^{-41}$ u.s.i	littérature
	non linéarité	$3,2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$	littérature
	biréfringence	0	ajustable
	angle / ligne neutre	0	ajustable
	efficacité d'injection	50%	mesuré
	puissance en sortie maximale	50 mW	littérature
atténuation	0	littérature	
Simulation numérique	pas du calcul	4 mm	ajustable
	nb points simulation	4096	ajustable

Table 1 : Ensemble des caractéristiques réelles des divers éléments nécessaires au modèle

II. Evaluation des performances

1) Réglage du système numérique

Après avoir introduit les données ci-dessus dans le programme, une première étape consiste à régler la distance entre les réseaux de la ligne Treacy (voir annexe F) qui constitue la ligne dispersive anormale se situant au milieu du système. Pour cela, j'ai cherché à maximiser le facteur de qualité F en régime linéaire à très faible puissance. L'enregistrement suivant donne alors l'état du système :

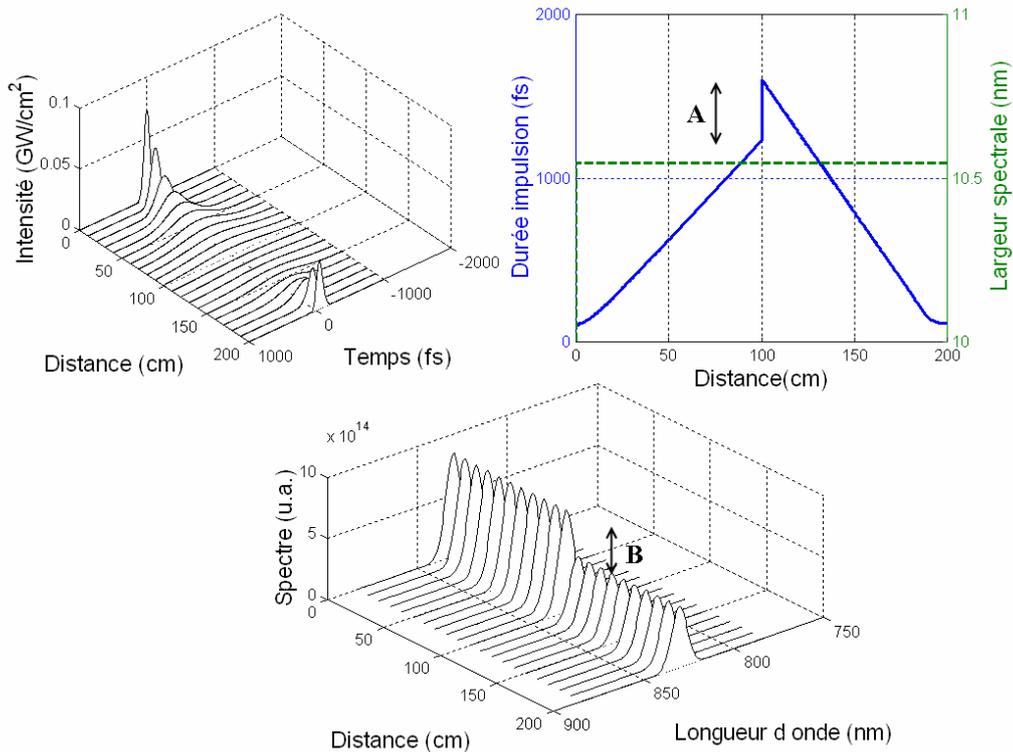


Figure 5 : Régulation de la ligne dispersive en régime linéaire (puissance dans la première fibre = 0,1 mW)

Pour obtenir un facteur de qualité maximal, la distance d entre les réseaux est choisie égale à 3,05 cm. La sensibilité de ce réglage est de l'ordre du millimètre ce qui est facilement accessible expérimentalement. De cette figure, on peut voir que la durée des impulsions en sortie de système est proche de celle en entrée de ligne.

Le saut A qui apparaît sur l'évolution de la durée d'impulsion est dû à la différence de dispersion de la fibre standard et de la fibre endoscopique (respectivement 120 et 160 fs/nm.m).

Le saut B qui apparaît sur l'évolution du profil de la densité spectrale et surfacique de puissance vient des pertes totales (85%) induites par la ligne dispersive (70%) et par l'injection (50%) dans la fibre endoscopique, mais aussi de la différence des diamètres de cœur des deux fibres (respectivement 3,3 μm et 1,7 μm). Le niveau d'intensité dans les deux fibres est donc différent. Nous reviendrons ultérieurement sur ce point.

Ensuite, j'ai fait varier la puissance injectée dans la première fibre jusqu'au niveau de puissance souhaité. J'ai constaté que l'apparition des effets non-linéaires ne nécessitait pratiquement pas de nouveau réglage de la ligne dispersive pour optimiser F.

2) Puissance minimale à déposer sur les tissus

Un facteur de qualité $F=100\%$ est obtenu pour une puissance dans la première fibre égale à 110 mW.

La puissance calculée émergente de la fibre endoscopique est alors égale à :

$$P_{F=100\%} = 17 \text{ mW}$$

Cette valeur confirme que la solution technologique que nous avons choisie est adaptée à la réalisation expérimentale d'un prototype d'endomicroscope bi-photonique. La puissance dans la première fibre est en effet tout à fait acceptable en regard du seuil de rupture de la face d'entrée de cette fibre et des problèmes de réinjection dans l'oscillateur ($P_{1^{\text{ère}} \text{ fibre}}^{\text{max}} < 200 \text{ mW}$).

D'autre part, la puissance minimale à déposer sur les tissus est relativement faible en regard du seuil de dommage de la plupart des substances biologiques.

Note : Malgré de nombreuses recherches, il n'a pas été possible de se faire une idée très précise de ce problème de seuil de dommage des tissus en régime femtoseconde. Il semble qu'une puissance inférieure à 1 mW (100 fs, 75 MHz) au foyer de l'objectif de focalisation soit inoffensive à coup sûr et qu'une puissance supérieure à 100 milliwatts entraîne systématiquement une modification irréversible des cellules. Compte tenu des informations que nous avons trouvées dans la littérature, nous avons choisi de prendre $P_{\text{Bio}}^{\text{max}} \approx 50 \text{ mW}$.

3) Allure du signal lorsque $F=100\%$ est atteint

Le graphe suivant donne les évolutions temporelles et spectrales de l'impulsion à l'intérieur du système réel lorsque $F=100\%$ est atteint :

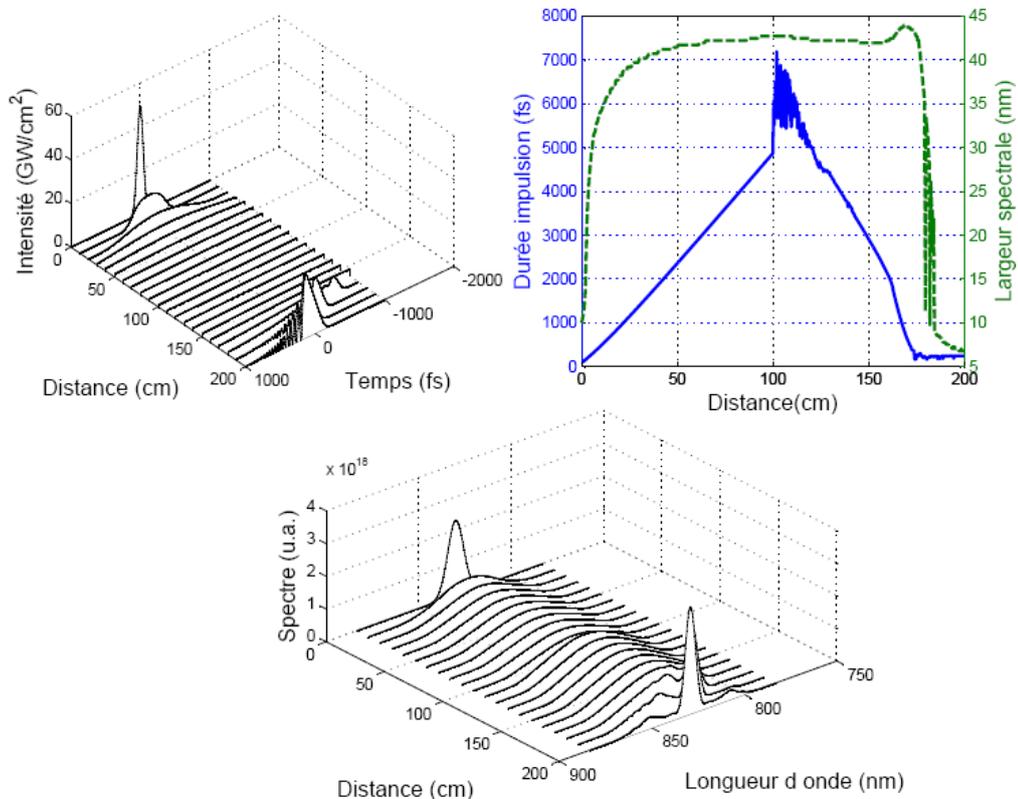


Figure 6 : Evolutions temporelles et spectrales de l'impulsion à l'intérieur du système pour $F=100\%$.

A ce niveau de puissance, les effets non-linéaires sont clairement visibles ce qui justifie la nécessité de les pré-compenser.

L'impulsion finale est fortement distordue sous l'effet de la dispersion d'ordre trois des fibres et de la ligne dispersive. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.

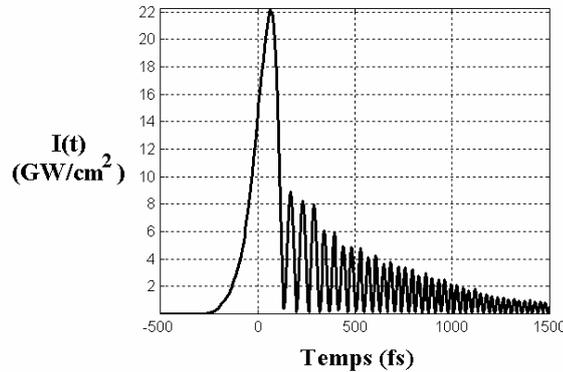


Figure 7 : Profil temporel final de l'impulsion lorsque F=100% est atteint.

La durée du lobe principal de l'impulsion vaut à mi-hauteur en intensité 140 fs. L'intensité maximale vaut 22 GW/cm^2 .

Si l'acheminement d'impulsions était parfait, la durée finale serait égale à 100 fs, le profil serait gaussien, l'intensité maximale disponible sur la face de sortie de la fibre endoscopique vaudrait 50 GW/cm^2 et le facteur de qualité vaudrait $F''=330\%$, ceci pour le même niveau de puissance (17 mW). Ces valeurs permettent de se faire une idée de ce qui reste à gagner en optimisant le système. Nous discuterons ultérieurement des solutions envisageables pour cela car il en existe.

Le graphe suivant met en évidence l'état du spectre en sortie de fibre endoscopique :

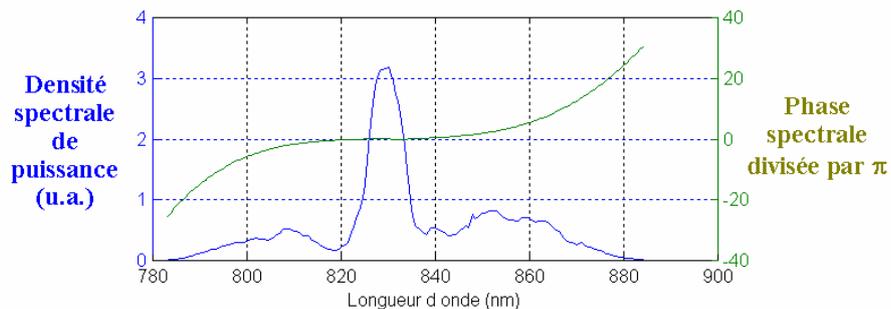


Figure 8: Profil spectral final de l'impulsion lorsque F=100% est atteint.

La compression spectrale est imparfaite. Le spectre couvre près de 60 nm. Ceci n'est pas forcément un point négatif car cela pourrait conduire à la formation d'impulsions ultracourtes de durée inférieure à 100 fs. Ce qui est plus gênant, c'est la présence d'une phase spectrale d'ordre 3 importante induisant un décalage de phase de près de 10 fois π dans les parties latérales du spectre.

4) *Performance maximale*

Du fait de la limitation de la puissance dans la première fibre, la puissance maximale disponible en bout de fibre endoscopique est égale à environ 30 mW. On obtient alors un facteur de qualité calculé maximal égal à $F^{\max} \approx 200\%$.

5) *Comportement en puissance*

Dans cette étude, il est logique d'étudier en terme de facteur de qualité, le système réel mis en place par rapport à une augmentation de la puissance moyenne en sortie de guide d'image. Dans cette étude, comme dans les études précédentes, tous les effets non-linéaires et linéaires sont pris en compte.

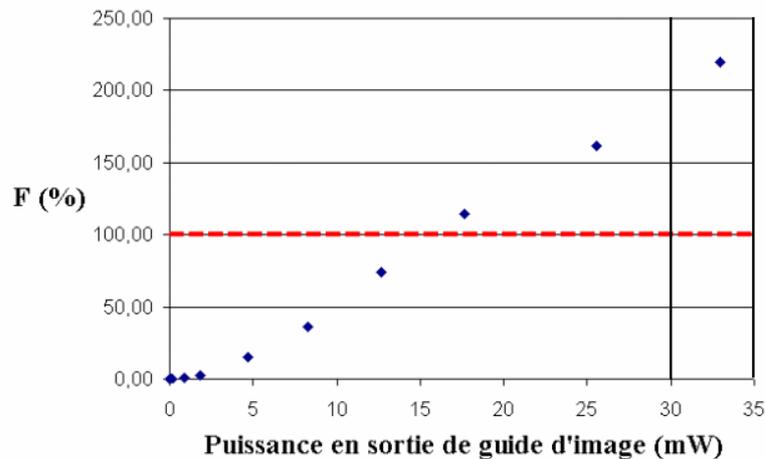


Figure 9 : Evolution du facteur de qualité en fonction de la puissance déposée sur les tissus.

Le graphe précédent fait apparaître une zone de fonction comprise approximativement entre 15 mW et 30 mW.

6) *Validation du choix technologique*

J'ai tout d'abord comparé numériquement les performances précédentes à celles produites par l'architecture simpliste qui consiste à envoyer directement l'impulsion femtoseconde dans le guide d'image sans aucune mise en forme. La valeur maximale de la puissance en sortie de guide d'image est alors conditionnée par le seuil de dommage des substances biologiques : $P_{\text{Bio}}^{\max} \approx 50\text{mW}$. Pour une telle puissance, le facteur de qualité F est égal à 40%. Même en soumettant les tissus à un très fort niveau d'éclairement, il est impossible de produire un signal suffisant pour la formation d'une image à deux photons.

J'ai ensuite comparé numériquement les performances obtenues aux paragraphes II.3 et 4 à celles produites par l'architecture plus simple présentée au paragraphe II du Chapitre 7 consistant à pré-compenser la dispersion de la fibre endoscopique sans précompensation des effets non-linéaires. Cette autre solution présente l'avantage d'être plus simple au niveau de la mise en oeuvre. Elle permet aussi l'accès à un niveau de puissance légèrement supérieur (50 mW pour 30 mW dans notre cas).

Cette architecture se caractérise par les résultats numériques suivants : $P'_{F=100\%} = 40 \text{ mW}$ et $F^{\text{max}} \approx 150\%$. Il faut deux fois plus de puissance sur les tissus pour réaliser une image et le signal maximum accessible est inférieur. La plage de fonctionnement est réduite. Enfin, cette architecture ne présente pas de possibilité d'optimisation contrairement au cas de la solution que nous avons choisie, comme nous allons le voir.

7) Performances en présence de biréfringence des coeurs du guide d'image

Lors des calculs précédents, la biréfringence des coeurs du guide d'image a été négligée. Or, comme cela est expliqué à l'annexe H, ce phénomène est pourtant présent de façon non homogène au sein du guide d'image réel.

J'ai donc évalué numériquement l'impact de ce phénomène sur les performances du système dans un cas simple où la biréfringence du coeur étudié est caractérisée par une différence d'indice de groupe égale à $\Delta n_g = 10^{-4}$ et dans le cas d'une polarisation à 45° des ligne neutres.

- A faible puissance, c'est à dire en l'absence d'effets non-linéaires dans les fibres, j'ai tout d'abord vérifié l'apparition de deux impulsions en sortie de système comme on pouvait le prévoir depuis la présentation de ce phénomène faite au chapitre précédent.

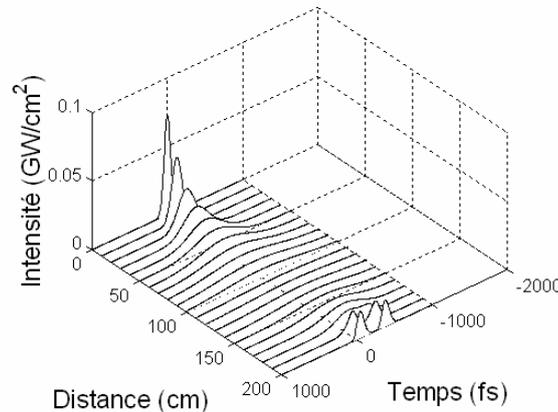


Figure 10 : Evolution du signal en présence d'une biréfringence de groupe valant $\Delta n_g = 10^{-4}$

Dans ce cas, le facteur de qualité vaut 0,00011% à comparer aux 0,00022% lorsque la biréfringence est absente dans les mêmes conditions. La biréfringence peut donc réduire le signal de fluorescence d'un coefficient 2 au maximum. Les explications à ce coefficient sont les suivantes :

- Supposons tout d'abord le niveau d'intensité de l'impulsion en sortie de fibre endoscopique I_0 en l'absence de biréfringence. Cette impulsion produit alors un signal de fluorescence à deux photons proportionnel à I_0^2 .
- Maintenant, si chaque impulsion dédoublée en présence de biréfringence possède un niveau d'intensité égal à $I_0/2$, alors celles-ci vont chacune produire un signal non-linéaire en $I_0^2/4$. La somme des signaux non-linéaires produits par les deux impulsions

dédoublées est donc en $I_0^2/2$, c'est à dire la moitié du signal non-linéaire obtenu sans biréfringence.

- A forte puissance, pour $P_{F=100\%} = 17 \text{ mW}$, et en présence de biréfringence, on vérifie à nouveau le dédoublement de l'impulsion comme l'atteste le graphe suivant :

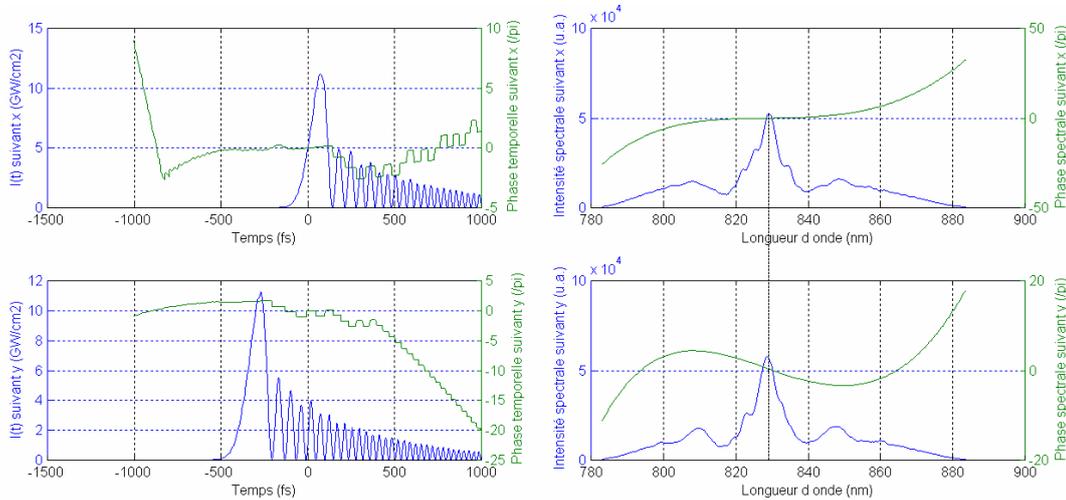


Figure 11 : Profils temporels et spectraux finaux sur les deux lignes neutres en présence d'une biréfringence de groupe $\Delta n_g = 10^{-4}$ avec excitation à 45° des lignes neutres.

Dans ce cas où les effets non-linéaires ne sont plus négligeables, le facteur de qualité est étonnamment réduit d'un coefficient 1,75 par rapport au cas où il n'y a pas de biréfringence. Ce facteur de qualité n'est pas réduit d'un coefficient 2 comme en l'absence d'effets non-linéaires dans la fibre endoscopique. Cet écart va dans le bon sens du point de vue des performances du système.

Si on enlève artificiellement la modulation de phase croisée du modèle, on constate une augmentation relative du signal de fluorescence de 5%. Cette variation est faible. La modulation de phase croisée n'est donc pas de nature à expliquer le coefficient 1,75 précédent. Des éléments de réponse sont donnés au paragraphe III. 2. b. suivant.

Quoiqu'il en soit, nous pouvons en conclure que l'impact de la biréfringence est important puisqu'elle peut occasionner une réduction du signal de fluorescence jusqu'à un maximum de 50%.

La présence de biréfringence est liée au bon fonctionnement du guide d'image (voir annexe H) car elle permet d'assurer l'absence de couplage entre coeurs du guide d'image qui est une condition indispensable à la formation d'une image de haute résolution. Il s'agirait donc d'évaluer s'il est possible de trouver un compromis permettant de réduire le dédoublement des impulsions tout en maintenant un bon fonctionnement du guide d'image. Par manque de temps je n'ai pas pu examiner plus en détail ce problème.

8) *Influence de l'auto-raidisement et de la diffusion Raman*

S'agissant d'un système non-linéaire, il n'est pas forcément prudent de considérer les effets indépendamment les uns des autres. Cependant, voici les résultats que j'ai obtenus en enlevant artificiellement dans les deux fibres chacun des effets physiques secondaires tout en maintenant les autres :

- Sans auto-raidisement : réduction relative de F de 2%
- Sans Raman : augmentation relative de F de 6%

L'impact de ces effets sur les performances du système est faible ce qui était prévisible.

Conclusion : Au vu des résultats de simulation précédents, le comportement du système est surtout conditionné par la dispersion d'ordre 2 et 3, par l'automodulation de phase ainsi que par la biréfringence lorsque celle-ci est présente.

III. Optimisations possibles

1) *Augmentation de la transparence du système*

Le maximum de puissance en sortie de fibre endoscopique est seulement de 30 mW. Avec des réseaux de diffraction d'efficacité 85%, et non 75%, on accèderait à 50 mW en sortie, ce qui est compatible avec la résistance des tissus biologiques. Ceci permettrait d'étendre la plage de fonctionnement de l'appareil qui n'est pas large.

2) *Equilibrage du ratio dispersion/non linéarité*

a. Optimisation du diamètre de la première fibre

Le système, que nous avons étudié jusque-là et qui sera mis en oeuvre expérimentalement, n'est pas optimisé en terme de diamètre de première fibre comme le montre le graphe suivant :

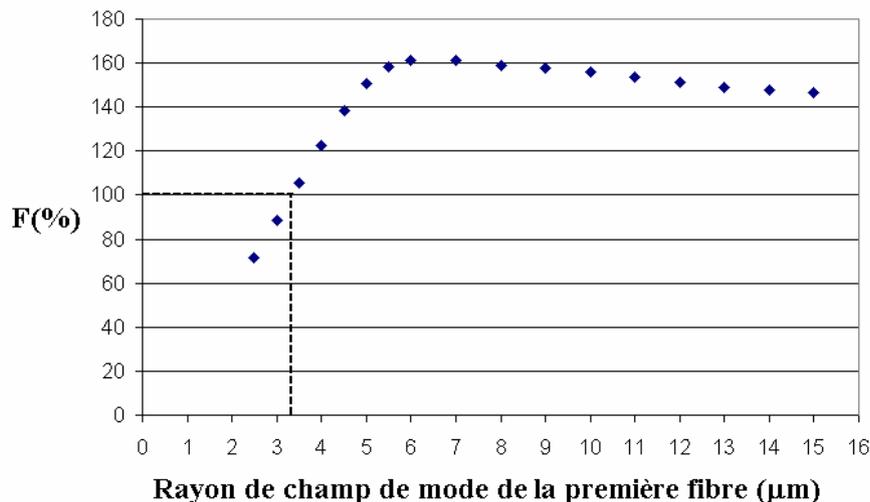


Figure 12 : Evolution du facteur de qualité en fonction de l'optimisation du rayon en 1/e en champ de la première fibre

La fibre monomode standard qui a été considérée jusqu'à présent est trop petite ; elle est trop non-linéaire. L'élargissement spectral dans cette première fibre est trop grand en comparaison de la compression spectrale dans la fibre endoscopique qui ne parvient pas à recomprimer complètement le spectre comme nous l'avons vu au paragraphe I. 3.

Ce problème est lié à un déséquilibre du ratio dispersion/non linéarité entre les deux fibres.

Le nombre soliton $N^{1^{\text{ère}} \text{ fibre}} = \sqrt{\frac{L_D^{1^{\text{ère}} \text{ fibre}}}{L_{NL}^{1^{\text{ère}} \text{ fibre}}}} = 0,5$ [57] qui caractérise la propagation non-linéaire en présence de dispersion dans cette fibre est notablement plus faible que celui qui caractérise la fibre endoscopique qui vaut $N^{\text{fibre endoscopique}} = \sqrt{\frac{L_D^{\text{fibre endoscopique}}}{L_{NL}^{\text{fibre endoscopique}}}} = 2$.

En augmentant le diamètre de la première fibre, en choisissant l'optimum qui se situe vers un rayon de champ de mode de 6 μm , grâce par exemple à l'emploi d'une fibre LMA à large coeur (voir Chapitre 7), on atteint un gain d'un coefficient 1,6 sur la valeur de F. Cette situation optimale correspond alors à un équilibre du système :

$$\sqrt{\frac{L_D^{\text{fibre endoscopique}}}{L_{NL}^{\text{fibre endoscopique}}}} \approx \sqrt{\frac{L_D^{1^{\text{ère}} \text{ fibre}}}{L_{NL}^{1^{\text{ère}} \text{ fibre}}}}.$$

L'emploi de cette fibre optimale conduirait aux caractéristiques suivantes :

- $P_{F=100\%} = 14 \text{ mW}$ et $F^{\text{max}} \approx 600\%$ après optimisation des réseaux de diffraction.
- L'apport de cette optimisation est donc majeur.

b. Introduction d'une pré-modulation de l'impulsion

Une autre manière de réduire la non-linéarité de la première fibre consiste à imposer une pré-modulation de phase parabolique positive à l'impulsion à l'entrée de la première fibre afin d'augmenter sa durée d'entrée sans qu'elle se recomprime à l'intérieur de la première fibre. Cette pré-modulation peut être obtenue en modifiant très finement le réglage de l'oscillateur. Par manque de temps, je n'ai pas pu examiner plus en détail la faisabilité de cette alternative.

Note : La biréfringence de la fibre endoscopique joue également un rôle au niveau de l'équilibre du système. En effet, le dédoublement des impulsions réduit le niveau d'intensité des impulsions dédoublées. En conséquence, la biréfringence fait diminuer ainsi le niveau de non-linéarité de la fibre endoscopique (ce qui accroît le déséquilibre dans le cas où la première fibre est trop petite par exemple).

3) Correction de phase

Les distorsions de l'impulsion finale montrent clairement la présence de dispersion d'ordre 3 (voir figure 7 du paragraphe II. 3)). La dispersion d'ordre trois des fibres est un paramètre

assez difficilement ajustable. La principale contribution à la dispersion d'ordre 3 vient de la ligne dispersive de Treacy (voir annexe F).

Le remplacement de la ligne Treacy par une ligne à dispersion nulle à masquage de phase spectrale dans un montage 4f [28] offre une perspective d'optimisation. Voici les résultats de simulation que j'ai obtenus lorsque les phases spectrales d'ordre 2 et 3 sont optimisées en milieu de système :

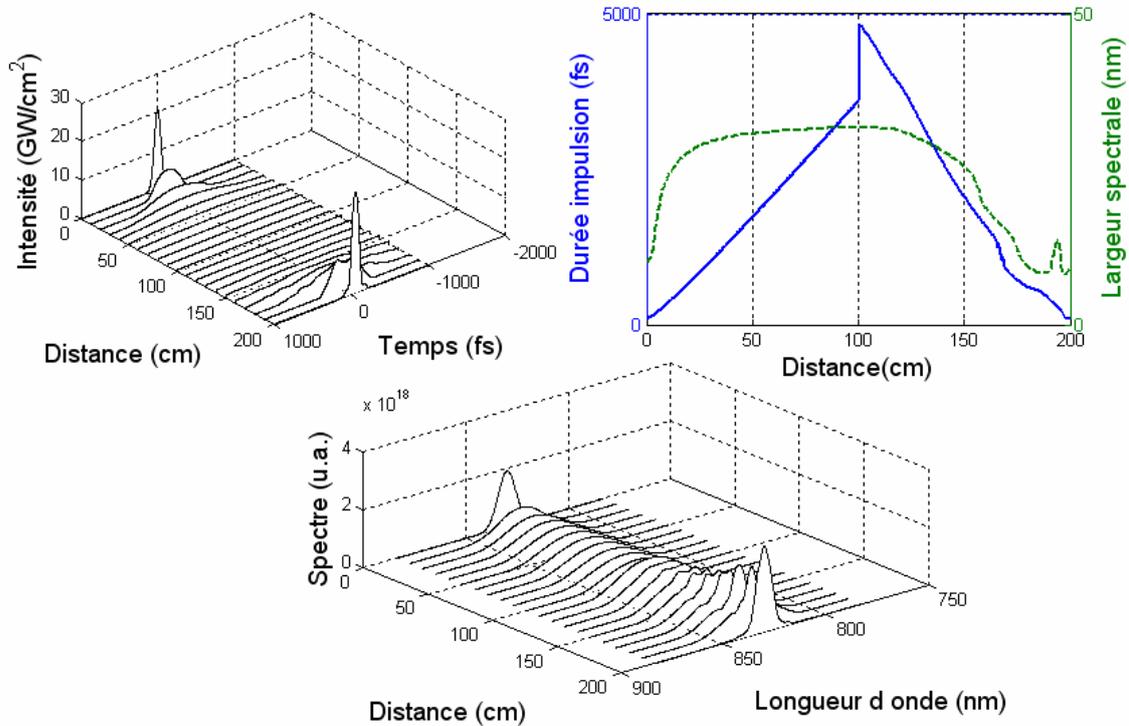


Figure 13 : Evolutions temporelles et spectrales lorsque l'ordre 2 et l'ordre 3 de la dispersion sont compensés en milieu de système.

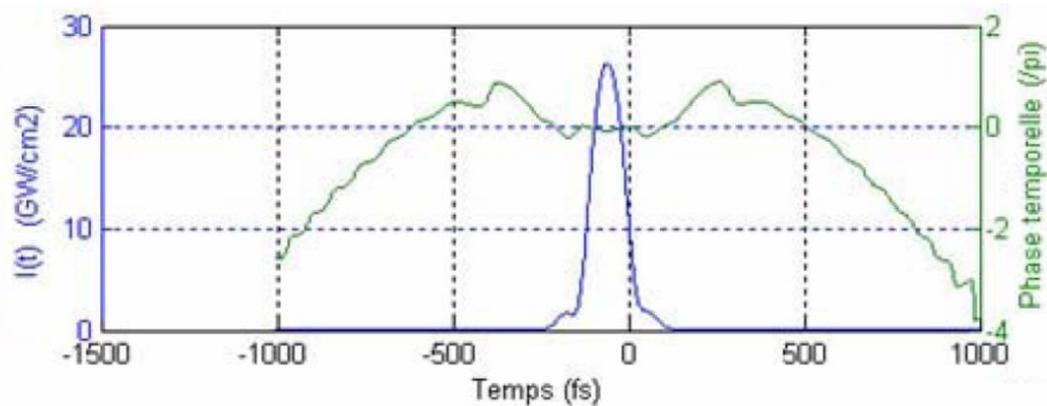


Figure 14 : Profil temporel en sortie de fibre endoscopique lorsque l'ordre 2 et l'ordre 3 de la dispersion sont compensés en milieu de système

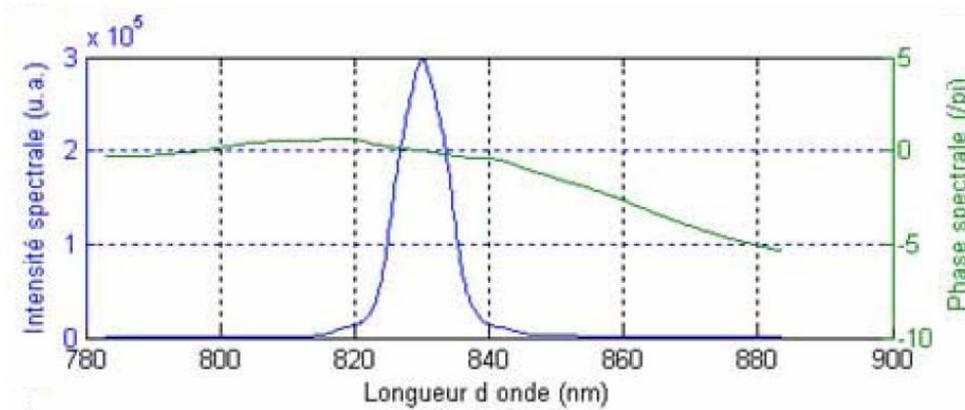


Figure 15 : Profil spectral en sortie de fibre endoscopique lorsque l'ordre 2 et l'ordre 3 de la dispersion sont compensés en milieu de système

$F=100\%$ a été obtenu pour une puissance en sortie de fibre endoscopique égale à seulement $P_{F=100\%} = 10,4 \text{ mW}$. Dans cette situation, le décalage de phase spectrale d'ordre 3 optimisé vaut environ $\pi/2$ d'un côté du spectre à mi-hauteur. Le spectre ne présente plus de piédestal. Le profil temporel est proche d'un profil gaussien. La durée finale de l'impulsion est égale à 110 fs.

L'apport de cette optimisation est donc majeur puisqu'elle permet de gagner un coefficient 4 sur le signal maximal détectable. Le système est alors pratiquement totalement optimisé.

4) *Bilan des optimisations possibles*

Après prise en compte de toutes les possibilités d'optimisation, en travaillant à pleine puissance, c'est à dire avec une puissance en sortie de fibre endoscopique égale à 50 mW, j'ai relevé un facteur de qualité égal à $F = 2500\%$ (1250% si la biréfringence est présente). Le système dépasse alors largement les performances recherchées. Ceci veut dire que l'endomicroscope est particulièrement sensible.

Le facteur de qualité a été défini initialement en partant de fluorophores bi-photoniques exogènes (Rhodamine et Coumarine) d'efficacité importante. Les performances du système optimisé laissent entrevoir la possibilité de détecter la fluorescence endogène naturelle des tissus ou bien d'augmenter la profondeur jusqu'à laquelle la formation de l'image sera possible. Une autre perspective attrayante concerne la possibilité de passer à une imagerie de contrôle cohérent fibrée. Les performances du système optimisé laisse en effet une souplesse suffisante pour permettre d'introduire un module de masquage de phase spectrale actif [28] dans le but de produire en bout de guide d'image une impulsion de profil temporel contrôlé. Ces possibilités permettraient d'étendre encore le champ d'application de l'appareil.

CHAPITRE 9 : Réalisation d'un endomicroscope bi-photonique

Préambule : Encouragé par les résultats positifs fournis par l'étude numérique précédente, j'ai entrepris la réalisation expérimentale de l'endomicroscope bi-photonique sur la base de l'architecture suivante :

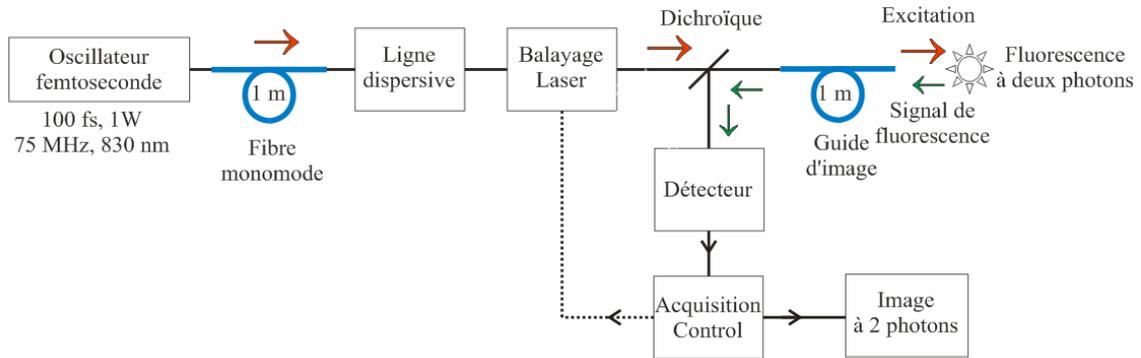


Figure 1 : Synoptique du montage expérimental de l'endomicroscope

I. Acheminement d'impulsions femtosecondes en bout de guide d'image

1) Schéma expérimental

Avant de passer à la mise au point expérimentale de l'ensemble du dispositif qui sera présentée au paragraphe II, j'ai tout d'abord procédé à la validation expérimentale du principe d'acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre présenté précédemment. Cette validation expérimentale a consisté à ne garder dans le montage réel que les éléments qui ont une influence sur l'évolution des impulsions. Voici le schéma expérimental correspondant :

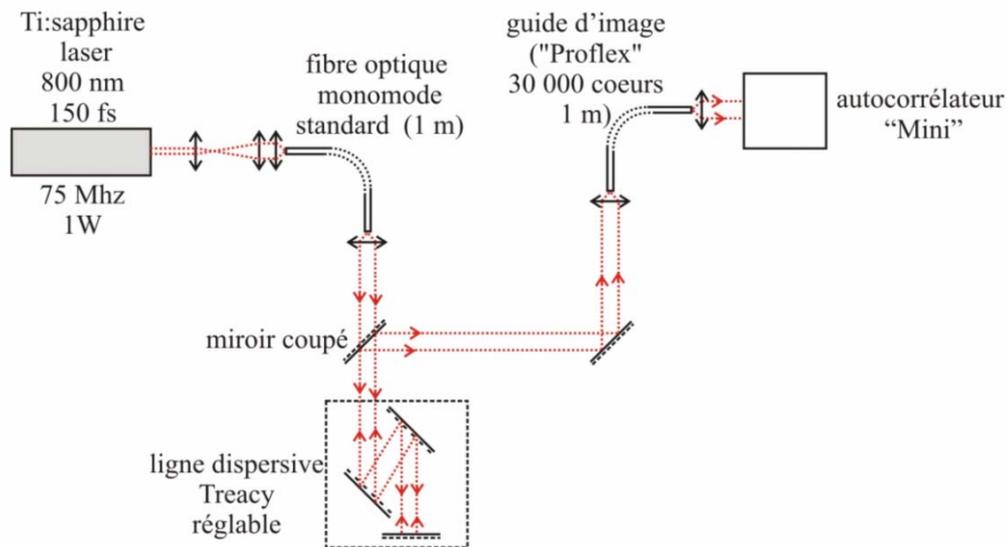


Figure 2 : Montage expérimental permettant de valider le principe d'acheminement d'impulsions femtosecondes par fibre optique.

Après optimisation de l'injection dans un unique coeur du guide d'image, j'ai réglé la distance séparant les réseaux de la ligne dispersive de Treacy au voisinage de la valeur prévue

par l'étude numérique, c'est-à-dire 3 cm. Ensuite, j'ai pu optimiser cette distance à l'aide de l'information fournie par l'autocorrélateur.

2) *Caractérisation des impulsions en bout de guide d'image*

a. Profils d'impulsions en sortie de guide d'image

Quel que soit le coeur du guide excité, j'ai observé un régime d'impulsions brèves. En fonction du coeur étudié et en fonction de la direction de polarisation en entrée de guide (variable grâce à une lame demi-onde), j'ai constaté soit une trace présentant un lobe unique (figure 3.a.) ou bien une trace tri-lobé (figure 3.b) :

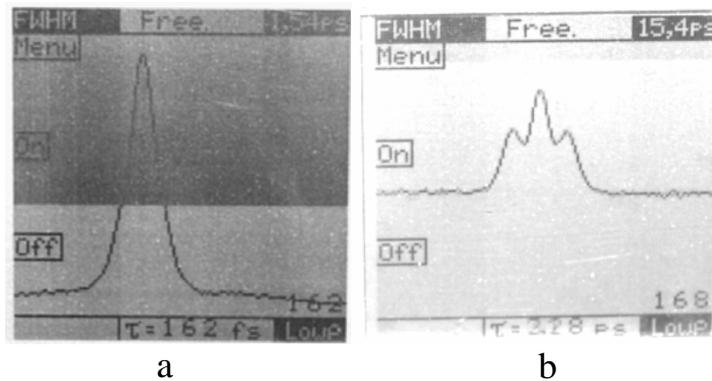


Figure 3 : Traces d'autocorrélation en sortie de guide d'image. Ces deux enregistrements viennent de deux coeurs et de deux orientations de la polarisation incidente différentes.

Il existe donc une certaine disparité des coeurs qui sont la plupart du temps biréfringents. Ceci est tout à fait conforme aux caractérisations linéaires que j'avais faites de façon préliminaire (voir annexe H). Cette disparité et cette biréfringence sont liées au bon fonctionnement du guide car elles permettent d'éviter le phénomène de couplage inter-coeur. L'indépendance des coeurs est en effet une condition indispensable à la formation d'une image endoscopique de haute résolution.

Le niveau moyen de biréfringence peut être évalué à partir de la figure 3.b. Sur ce cas particulier, la mesure du retard entre les deux impulsions dédoublées donne un écart d'indice de groupe des deux modes de polarisation égal à $\Delta n_g = 3.10^{-4}$. Ceci correspond bien à l'ordre de grandeur que nous avons considéré en simulation ($\Delta n_g = 10^{-4}$).

On peut donc s'attendre à une disparité inter-coeur du signal de fluorescence non-linéaire d'un coefficient approximativement égal à 2 (voir Chapitre 8. II. 7.). Cette disparité des coeurs du guide d'image devrait pouvoir être compensée par le système informatique de traitement d'image développé par MKT qui est habitué à cette situation, présente également en imagerie de fluorescence linéaire.

Le profil de la trace d'autocorrélation d'une impulsion unique est plutôt triangulaire (voir figure 3.a). Ceci est clairement attribuable aux distorsions d'ordre 3 mises en évidence au chapitre précédent (voir également annexe B.2).

La figure 3.a correspond à une durée d'impulsion proche de 150 fs. Cette valeur est la plus faible que j'ai pu observer, ceci pour un coeur bien particulier. En changeant de coeur, j'ai eu

beaucoup de mal à retrouver cette valeur. Plus fréquemment, cette durée se situait au voisinage de 250 fs.

b. Evolution de la durée en fonction de la puissance de sortie

J'ai ensuite relevé l'évolution de la durée d'impulsion optimisée en faisant varier la puissance dans la première fibre :

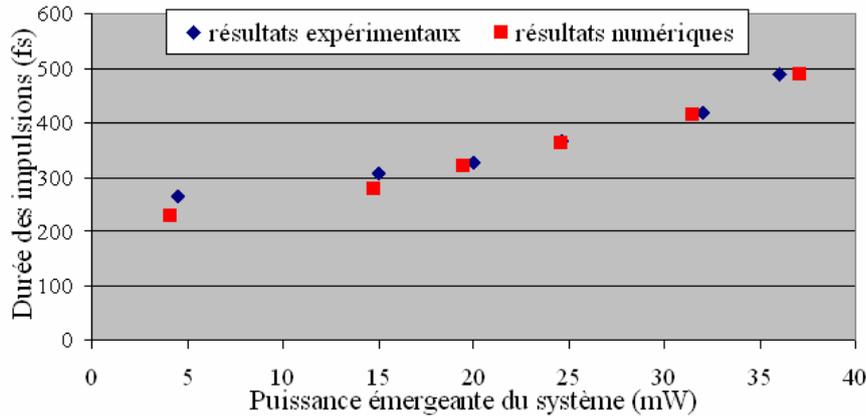


Figure 4 : Evolution de la durée d'impulsions en fonction de la puissance émergente du guide d'image. La courbe bleue représente les résultats obtenus expérimentalement à partir d'un autocorrélateur. La courbe rouge représente les résultats numériques.

On constate que ces mesures sont en bon accord avec les résultats du modèle numérique. L'écart entre expérience et modèle apparaît surtout lorsque la puissance émergente est faible, ce qui correspond à la zone où l'autocorrélateur est en limite de détection. Ce bon accord a été obtenu en introduisant dans le calcul numérique, en complément des paramètres réels listés au Chapitre 8. I. 3., une pré-modulation positive de l'impulsion à la sortie de l'oscillateur. Avec cette pré-modulation, la durée d'impulsion initiale calculée vaut alors 150 fs ce qui correspond bien à la mesure faite au moment de l'expérience. J'ai également du modifier la valeur du rayon de champ de mode et celle de dispersion d'ordre 3 du guide d'image. Je suis passé de 1,7 μm à 1,6 μm pour le rayon de champ de mode et de $2,21 \cdot 10^{-41}$ u.s.i. à $3,8 \cdot 10^{-41}$ u.s.i. Ceci est raisonnable compte tenu de la disparité des coeurs et du fait que la dispersion d'ordre 3 du guide n'est certainement pas égale à celle d'une fibre standard.

Avec ces nouveaux paramètres, le modèle donne toujours un facteur de qualité du signal à 2 photons supérieur à 100% à pleine puissance.

c. Mesure du spectre

Les effets spectraux prévus par le modèle sont visibles expérimentalement comme l'atteste la figure suivante :

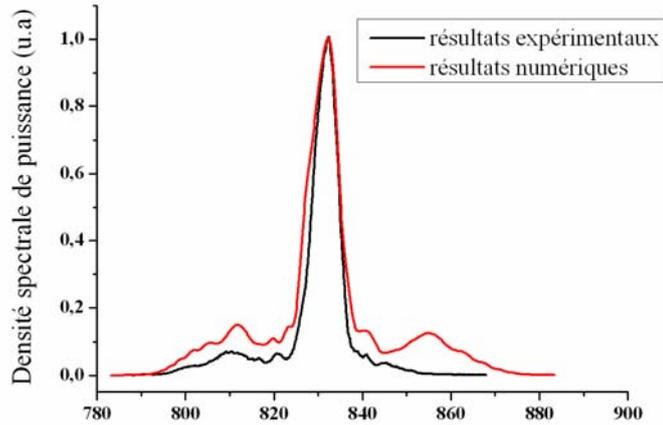


Figure 5 : Spectre en sortie du guide d'image pour une puissance moyenne finale de 15 mW.

On retrouve bien le piédestal témoin de l'élargissement préalable dans la première fibre. On voit bien l'effet de la compression spectrale qui produit finalement le lobe central de largeur spectrale légèrement supérieur à 10 nm.

d. Comparaison avec la pré-compensation linéaire sans pré-compensation des effets non-linéaires

J'ai ensuite enlevé la première fibre afin de comparer expérimentalement les résultats obtenus à partir de notre ligne avec ceux donnés par la technique de pré-compensation linéaire sans pré-compensation des effets non-linéaires (Chapitre 7. III. et Chapitre 8. II. 6.). Le tracé comparatif des mesures expérimentales données par les deux configurations est présenté sur le graphe suivant :

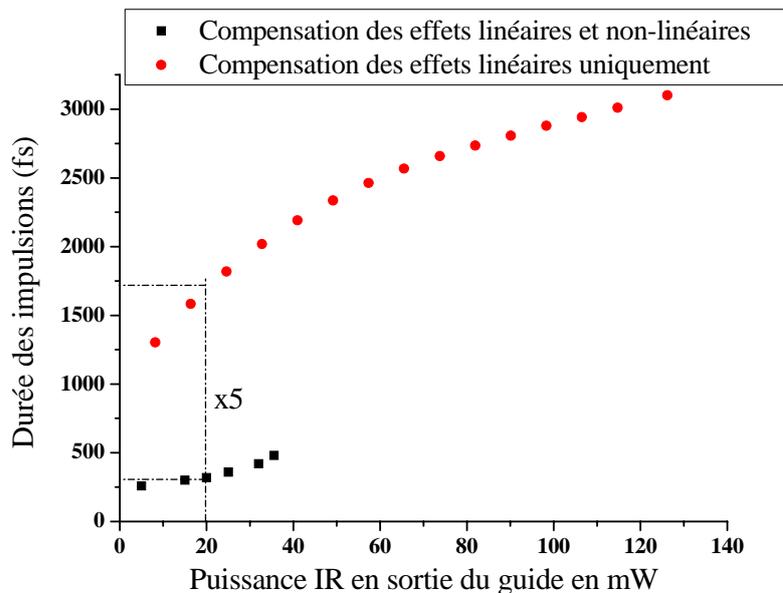


Figure 6 : Evolution de la durée des impulsions en sortie de système en fonction de la puissance émergente lorsque l'on compense les effets linéaires et non-linéaires (courbe noire) et lorsque l'on compense uniquement les effets linéaires (courbe rouge).

On constate que la configuration avec première fibre produit des impulsions approximativement 5 fois plus brèves que celles obtenues sans fibre. L'écart entre les deux configurations est encore plus fort que ce que prévoyait le modèle (coefficient 3). Ceci renforce la validité du choix de la configuration que nous avons adoptée avec pré-compensation linéaire et non-linéaire.

3) *Mesure du signal de fluorescence à deux photons*

L'ensemble des résultats expérimentaux précédents étant parfaitement conforme à ce qui était attendu, j'ai alors utilisé le montage avec première fibre pour produire et mesurer la fluorescence à deux photons en bout de guide d'image. Le schéma expérimental est alors le suivant :

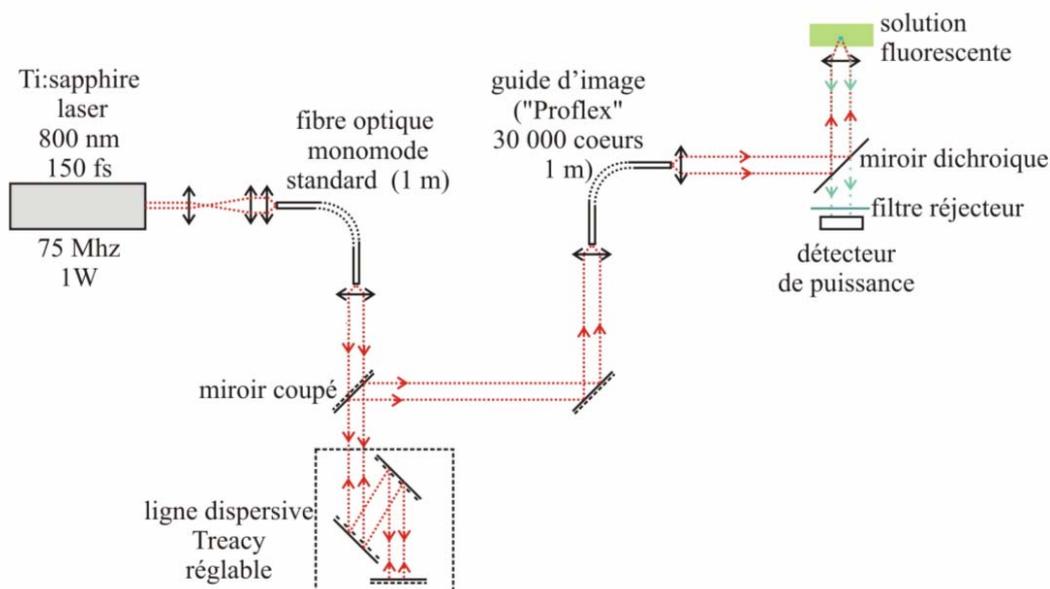


Figure 7 : Montage expérimental pour la production fluorescence à deux photons en bout de guide d'image. Le colorant utilisé est de la Coumarine 515 en solution (concentration 1M).

L'objectif de focalisation dans la cuve qui contenait la solution fluorescente était un objectif x32 métallographique à air non optimisé pour notre application. L'ouverture numérique effective de cet objectif est égale à 0,6 ce qui est faible par rapport aux ouvertures traditionnellement utilisées dans un microscope confocal ($ON > 1$).

Un spot de fluorescence à deux photons est alors apparu nettement observable à l'oeil comme le montre la photo suivante :

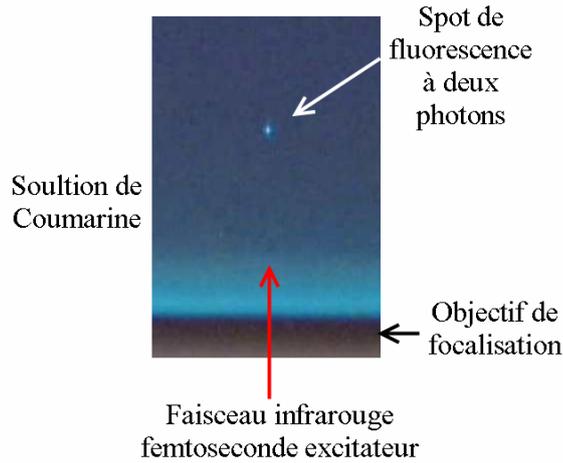


Figure 8 : Spot de fluorescence à deux photons obtenu après focalisation des impulsions brèves issues de notre ligne d'acheminement.

L'objectif collecte ensuite en inverse l'épifluorescence non-linéaire et un miroir dichroïque non optimisé, placé en amont de l'objectif, permet de rejeter la lumière infrarouge excitatrice. La fluorescence non-linéaire est alors envoyée vers un mesureur de puissance sur lequel est fixé un filtre réjecteur permettant de filtrer à nouveau les basses fréquences issues des réflexions parasites sur les différentes interfaces de verre. A partir de ce montage expérimental, il est alors possible de faire évoluer la puissance infrarouge en sortie de système en ayant optimisé au préalable la durée des impulsions en sortie du guide. J'ai alors relevé l'évolution de la puissance d'épifluorescence en fonction de la puissance infrarouge déposée à l'intérieur de la cuve contenant la solution colorée. Cette étude est illustrée par la courbe suivante :

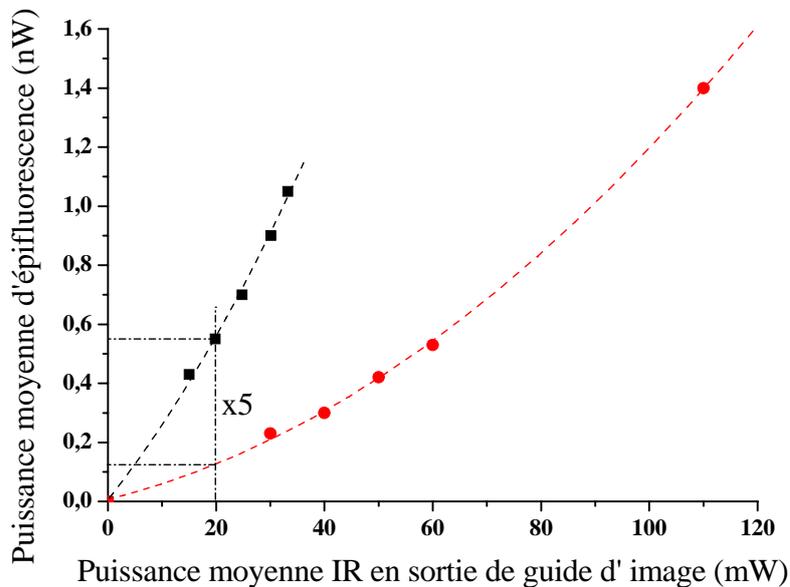


Figure 9 : Evolution de la puissance d'épifluorescence non-linéaire en fonction de la puissance infrarouge déposée à l'intérieur de la cuve à colorant. La courbe noire correspond aux mesures avec compensation linéaire et non-linéaire ; la courbe rouge correspond aux mesures avec compensation linéaire seule.

Le rapport des signaux de fluorescence entre la configuration avec ou sans compensation non-linéaire est à approximativement égal à 5.

Ce rapport est donc identique à celui qui relie les durées expérimentales. Ceci confirme expérimentalement le fait que le signal de fluorescence non-linéaire mesuré avec un détecteur intégrateur est inversement proportionnel à la durée d'impulsion (voir annexe G).

Il confirme encore une fois la pertinence de l'architecture choisie.

II. Mise au point de l'endomicroscope bi-photonique

1) Présentation du système complet

La dernière phase de mon travail a consisté en la mise en place du prototype complet avec système de formation d'image. Le montage complet est présenté sur la figure suivante :

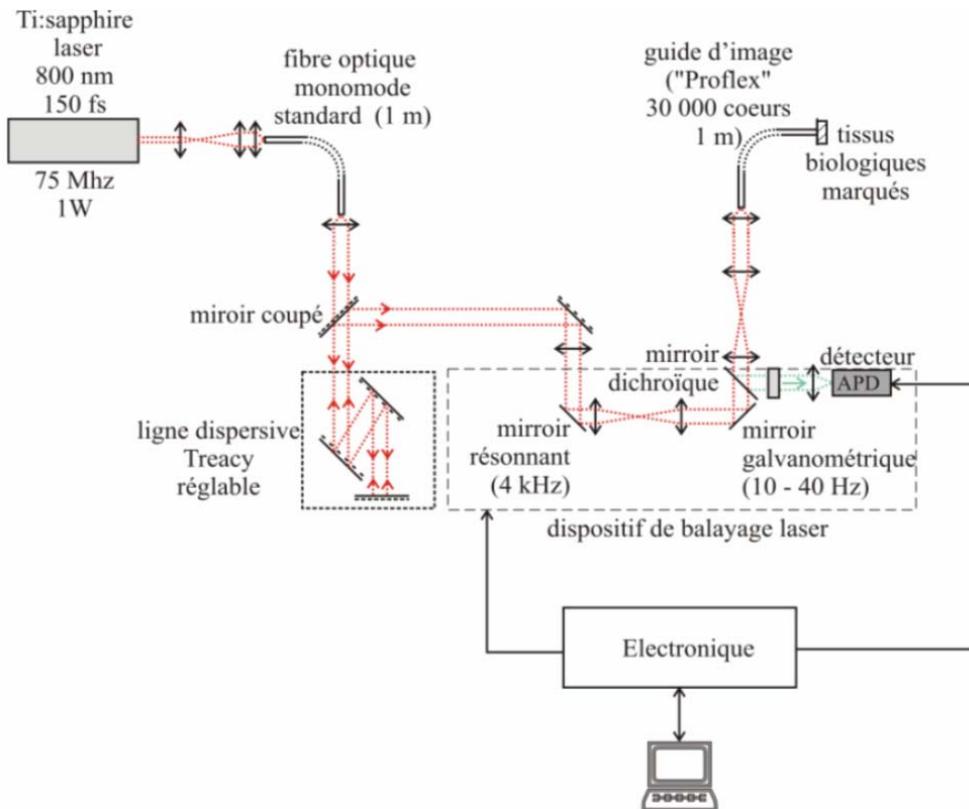


Figure 10 : Montage expérimental de l'endomicroscope non-linéaire

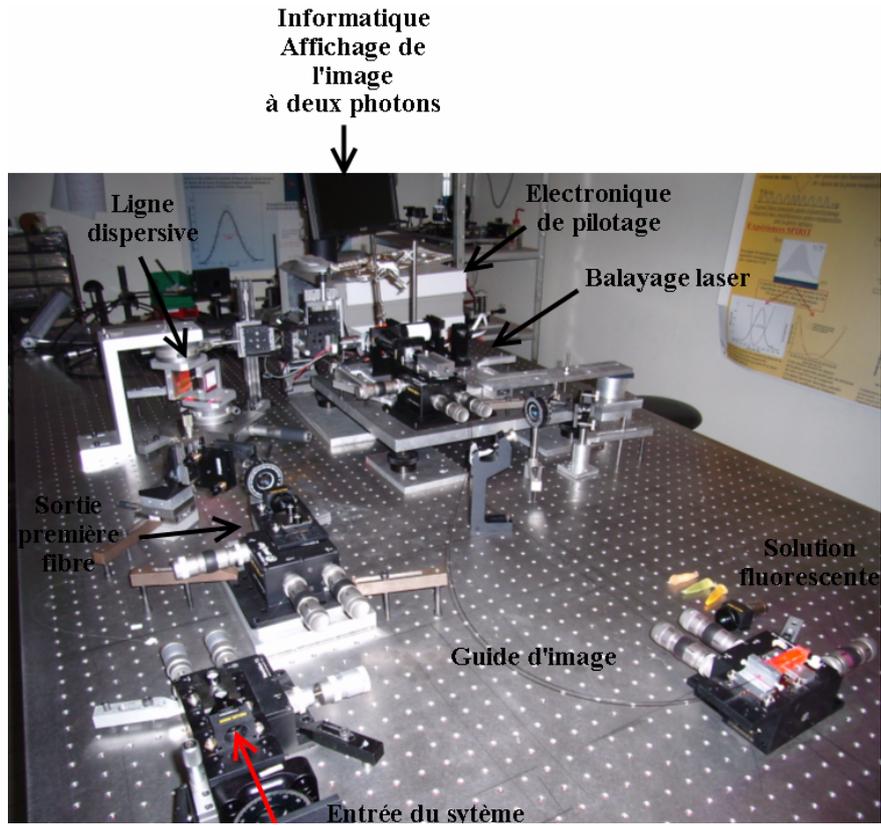


Figure 11 : Photo du prototype d'endomicroscope bi-photonique

Le dispositif d'acheminement d'impulsions intègre maintenant le dispositif de balayage laser. L'électronique de pilotage, le système d'acquisition et de traitement d'image temps réel (12 images par seconde) développés par MKT sont maintenant présents.

Le système de balayage laser est placé en amont du guide d'image. Il permet par rotations rapides de deux miroirs mobiles de modifier continuellement le cœur excité du guide d'image. Le premier miroir est un miroir résonnant à la fréquence de 4 KHz. Il permet de faire varier linéairement la position du faisceau infrarouge excitateur suivant une ligne comme le montre l'image suivante :

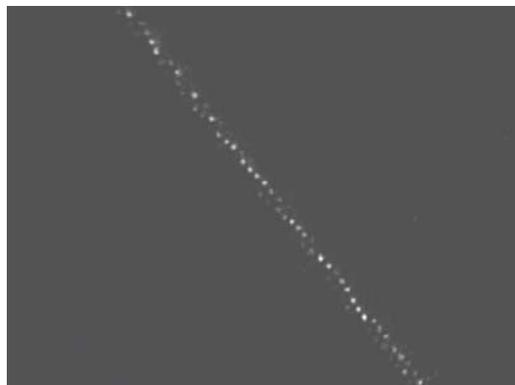


Figure 12 : Image à deux photons lorsqu'un seul des deux miroirs de balayage est en fonctionnement avant calibration de la disparité des cœurs.

L'image précédente, qui a été enregistrée avant calibration de la disparité des coeurs, permet de se faire une idée du niveau de disparité inter-coeur du signal de fluorescence non-linéaire détecté.

Le second miroir galvanométrique, de fréquence variable entre 10 et 40 Hz, fait varier la position du spot excitateur suivant une ligne orthogonale à la précédente, ce qui permet de balayer l'ensemble du guide d'image.

A l'autre extrémité, le guide d'image collecte en retour la lumière d'épifluorescence. Cette lumière est détectée par une photodiode à avalanche après avoir frappé l'élément dichroïque sans repasser par le système de balayage.

2) *Enregistrement d'images non-linéaires*

Une fois l'étape de calibration terminée, j'ai placé directement en contact avec la face de sortie du guide d'image, sans optique de focalisation dans un premier temps, une coupe histologique de tissu de colon humain biopsié marqué par de la rhodamine. La préparation du tissu est simple : un échantillon de tissu de colon est coupé puis trempé dans une solution alcoolique de colorant fluorescent pendant plusieurs minutes afin que le tissu s'imbibe de la solution. La solution fluorescente utilisée est ici une solution alcoolique de rhodamine B fortement concentrée.

L'endomicroscope a alors permis d'enregistrer des images à 2 photons pour seulement 10 mW de puissance infrarouge déposée sur le tissu. Un exemple d'image à 2 photons est présenté sur la figure 13 suivante. Pour comparaison, la figure 14 représente une image du même type de tissus donnée par un microscope à fluorescence linéaire non endoscopique.

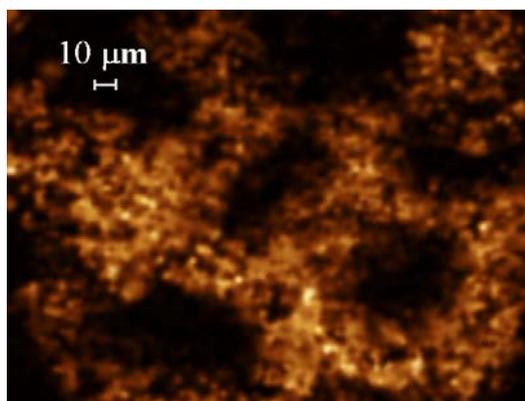


Figure 13 : Image de cryptes de colon humain donnée par notre endomicroscope bi-photonique.

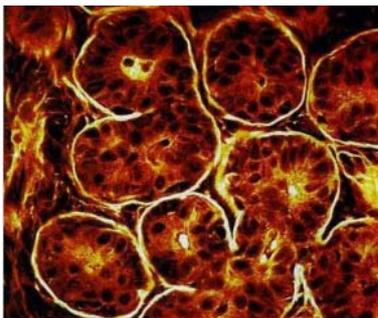


Figure 14 : Image de référence de cryptes de colon humain donnée par un microscope optique traditionnel.

J'ai pris la précaution de vérifier que l'image bi-photonique précédente disparaissait lorsque le laser était en régime continu puis réapparaissait instantanément lorsqu'on revenait en régime d'impulsions brèves. Notons également que le régime déclenché à modes synchronisés n'a pas conduit à une augmentation notable du signal.

Enfin, dans une dernière phase, j'ai installé une optique de focalisation non miniature non optimisée à l'extrémité du guide d'image afin de procéder à une imagerie sous la surface des tissus. Il n'a malheureusement pas été possible de capter un signal. On peut attribuer cela notamment au fait que l'optique de focalisation n'était pas du tout adaptée. Seuls quelques mW participaient à l'excitation des tissus (pour 10 mW sans l'optique). Par manque de temps, je n'ai pas eu la possibilité d'installer l'optique plus transparente qui m'avait servi pour la mesure préliminaire de la fluorescence non-linéaire (paragraphe II. 3.).

De très nombreuses optimisations d'autres composants sont également envisageables. Par exemple, la lame dichroïque était en fait un miroir diélectrique standard de réflectivité maximale à 532 nm de transmission sûrement modérée à 800 nm. Les miroirs du système de balayage étaient métalliques. Leur diamètre était légèrement insuffisant pour laisser passer la totalité du faisceau excitateur. Finalement, seulement 10 mW étaient disponibles en sortie de guide d'image pour une quarantaine de milliwatts avant introduction des éléments complémentaires.

Le bilan de toutes les optimisations envisageables, en englobant les optimisations de principe présentées à la fin du chapitre 8 (optimisation du diamètre de première fibre, correction de phase d'ordre 3), révèle une augmentation potentielle du signal détecté d'un coefficient au moins égal à 10 000. Ces optimisations permettront sans aucun doute la mise au point d'un outil d'observation "*In Vivo*" et "*In Situ*" d'organes profonds sous la surface des tissus, conformément à l'objectif qui m'avait été initialement proposé.

Conclusion et Perspectives B

Conclusion

En conclusion de ce travail, j'ai mis en place une ligne d'acheminement d'impulsions brèves au travers d'une fibre multicoeur servant de guide d'image pour un microscope endoscopique. Par la mise en forme temporelle et spectrale des impulsions issues d'un laser proche IR femtoseconde j'ai pu compenser les distorsions produites par la combinaison des effets dispersifs et non-linéaires lors de leur propagation dans la fibre optique. Les performances de ce type de ligne basée sur des étapes linéaires et non-linéaires ont été étudiées à partir d'un modèle de propagation d'impulsions dans les fibres. Les résultats numériques montrent que cette approche originale permet d'approcher les performances d'un microscope non-linéaire non fibré en terme de signal de fluorescence et de durée d'impulsions.

J'ai ainsi pu obtenir expérimentalement et directement à la sortie du guide d'image des impulsions énergétiques ($\sim 0,2$ nJ) de durée voisine de celle produites par le laser. L'association du montage de mise en forme avec une fibre multicoeur, un système de balayage laser et un système d'imagerie a permis de bâtir un endomicroscope non-linéaire à balayage proximal. La brièveté des impulsions alors obtenue permet de diminuer la puissance moyenne en sortie d'endomicroscope et par la même de limiter les photo-dommages des tissus biologiques analysés.

Expérimentalement, j'ai établi que les performances en terme de durée d'impulsions et de puissance d'épifluorescence sont cinq fois supérieures à celles obtenues à partir d'un endomicroscope ou seul l'effet linéaire de dispersion est pré-compensé. Nous avons ainsi pu obtenir les premières images non-linéaires de tissus de colon humain à puissance infrarouge modérée égale à 10 mW sans aucune tête optique en bout de guide d'image et à partir d'un système prototype non optimisé.

Perspectives

Une optimisation à 800 nm et dans le visible des éléments optiques de l'endomicroscope devrait permettre de réduire la puissance laser nécessaire en entrée ou inversement d'augmenter la puissance moyenne disponible en sortie de guide d'image. Cette optimisation permettrait d'obtenir des images de meilleure qualité et des images en profondeur par

imagerie de fluorescence bi-photonique ou par imagerie par génération de seconde harmonique.

En effet, en plaçant en sortie de guide une optique adaptée et optimisée, il serait possible d'avoir un gain de 10 sur la puissance infrarouge transmise aux tissus et d'avoir un gain d'un coefficient 100 sur la puissance de fluorescence collectée en retour.

Les résultats de simulation et de mesure montrent que l'impulsion finale présente un profil complexe du fait de la non compensation de la dispersion d'ordre trois par la ligne dispersive à réseau. Ce profil non gaussien oblige alors à augmenter la puissance moyenne pour obtenir une image non-linéaire contrastée. Un prolongement de ce travail consisterait à remplacer la ligne Treacy par une mise en forme d'impulsion à masquage de phase qui permettrait, dans un premier temps, de compenser les dispersions chromatiques d'ordre élevé et, dans un second temps, de produire un profil temporel arbitraire à partir de masque de phase dynamique.

La réalisation d'une ligne adaptative capable de produire en bout de guide d'image une impulsion de profil arbitraire ouvre des potentialités importantes pour l'optimisation de l'interaction non-linéaire entre la lumière et le milieu biologique. Les perspectives d'applications innovantes sont nombreuses. Citons, par exemple, l'imagerie CARS, le contrôle cohérent et le contrôle optimal. L'association des techniques fibres et des techniques de mise en forme temporelle et spectrale pour l'imagerie biologique est encore peu explorée.

La caractérisation de guide d'image spécifique aux imageries non-linéaires a permis de soulever certains problèmes (couplage inter-cœurs, biréfringence...) liés à la complexité de la structure optique. Une solution technologique pour réduire certains de ces problèmes serait de remplacer le guide d'image constitué de cœurs guidant en silice dopée par un guide d'image à microstructure air-silice [75] qui permettrait éventuellement de mieux isoler les cœurs optiques adjacents. On peut alors envisager une structure carrée multicœurs homogène avec une très forte proximité des cœurs. Dans ce type de guide d'image microstructuré, on aurait alors en plus d'une haute densité de guides, une forte ouverture numérique due à la forte différence d'indice (entre 0,7 et 0,8). Ce dernier avantage est très important puisque une grande ouverture numérique conduit à utiliser une optique de focalisation et de collection de faible grossissement tout en gardant la possibilité de visualiser un grand champ.

CONCLUSION GENERALE

Mon travail de thèse était relatif au domaine des impulsions laser brèves, et a porté sur leur caractérisation, sur leur mise en forme et sur leur transport par des guides optiques spéciaux pour une application en microscopie de substances biologiques.

Sur le thème de la caractérisation d'impulsions courtes objet de la partie A, j'ai reconsidéré les techniques pionnières d'autocorrélation à base de fluorescence bi-photonique pour en proposer une version en optique guidée. Une première réalisation en a montré tous les avantages. Les utilisateurs de systèmes lasers femtosecondes sont cependant aujourd'hui plus exigeants et souhaitent connaître le profil réel des impulsions qu'ils utilisent ou qu'ils recueillent dans leurs expériences. Dans ce contexte, j'ai fait évoluer une méthode imaginée à XLIM et nommée SPIRIT. Cette technique offre l'intérêt d'un traitement direct (non-itératif) rapide et sans ambiguïté des mesures, d'une bonne sensibilité et d'une calibration fiable. Ma première contribution a concerné l'adaptation du système SPIRIT aux mesures d'impulsions uniques, à l'illustration de ses capacités à reconstruire précisément la phase et à montrer par des modélisations son aptitude à analyser des impulsions complexes. Dans un second temps c'est la méthode elle-même qui a été revue et modifiée, donnant naissance à SPIRIT 2D, pour accéder à un ensemble plus complet de données. Dans cette évolution, les enregistrements bruts non traités visualisent déjà directement la dérivée des profils de phase recherchés. Le traitement des mesures, là encore direct, conduit à des reconstructions de profils d'impulsions avec une précision et un rapport signal à bruit améliorés. A titre d'exemples diverses impulsions préalablement mises en forme ont été retrouvées. Une version monocoup de SPIRIT 2D a également été mise au point et exploitée. L'originalité de ces recherches a été reconnue par des publications et des communications dans des conférences.

Mes études sur l'adaptation d'un microscope endoscopique à l'imagerie par des techniques non-linéaires ont été menées en parallèle. Les résultats sont rassemblés dans la partie B. Sans quitter le domaine des impulsions femtoseconde, je m'étais fixé comme but dans cette phase de pouvoir faire sortir d'un guide d'image multifibre de longueur métrique des impulsions infrarouges de faible énergie et de forte puissance crête. Ces impulsions laser sont nécessaires pour exciter la réponse non-linéaire de milieux biologiques éventuellement marqués, sans les endommager, pour en visualiser des parties ou des fonctions spécifiques. Mes efforts se sont orientés, d'une part sur la maîtrise de la propagation en régime non-linéaire et dispersif dans le guide optique et, d'autre part sur la mise en forme d'impulsions par des techniques linéaires et non-linéaires. J'ai utilisé un modèle qui m'a permis d'optimiser l'ensemble du montage à partir des paramètres des différents éléments mis à ma disposition. Des impulsions de 150 fs de durée et 10 mW de puissance ont ainsi été rendues disponibles directement à la sortie d'une fibre multicoeurs. Un système complet combinant laser, mise en forme, balayage laser, guide d'image et traitement a pu alors être assemblé grâce au soutien de la société Mauna Kéa Technologies pour une démonstration de principe. Il a produit pour la première fois à faible puissance moyenne (environ 10 mW) une image à haute résolution par fluorescence multiphotonique au travers d'un endomicroscope directement en contact avec des tissus de colon humain. L'ensemble du dispositif a fait l'objet d'un dépôt de brevet et laisse entrevoir l'obtention prochaine d'images de tissus "*In Vivo*" et "*In Situ*". De nombreuses recherches en biologie et en médecine pourraient bénéficier des avantages d'un tel instrument en évitant le recours à des biopsies voire à l'euthanasie d'animaux de laboratoires.

Au final, j'ai employé SPIRIT pour caractériser les impulsions issues d'un cœur du guide d'image de l'endomicroscope. Le résultat, conforme à mes attentes est illustré sur la figure suivante :

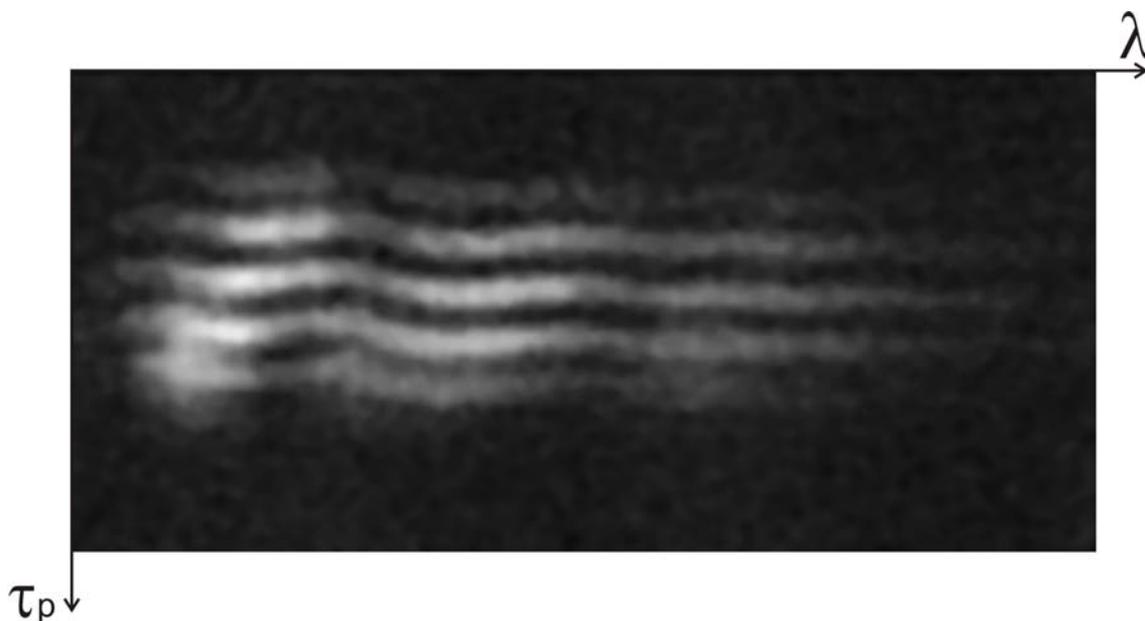


Figure 1 : Profil des battements spectro-temporels d'impulsions issues de l'endomicroscope

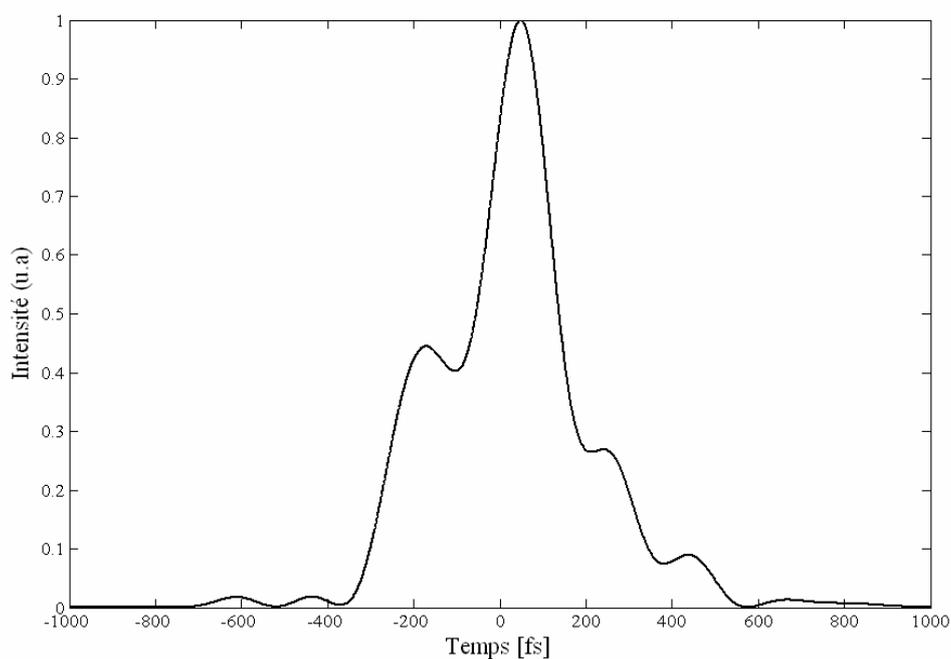


Figure 2 : Impulsion reconstruite

Cette mesure me permet de tracer un trait d'union qui fait rejoindre les deux volets de mes travaux.

ANNEXES

Annexe A : Notations, Conventions et Formulaire

Une impulsion lumineuse peut être représentée dans le domaine temporel par son champ électrique réel $e(t)$ qui est solution de l'équation de Maxwell.

Ce champ électrique temporel réel peut être décomposé en ondes monochromatiques à partir de la Transformée de Fourier (TF).

$$\tilde{e}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} e(t) \cdot \exp(i\omega t) \cdot dt \quad (\text{A.1})$$

A ce champ électrique dans le domaine fréquentiel peut être associé un champ électrique temporel analytique complexe :

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \cdot \int_0^{\infty} \tilde{e}(\omega) \cdot \exp(-i\omega t) \cdot d\omega \quad (\text{A.2})$$

tel que $e(t) = \Re(E(t))$. Une transformée de Fourier $\tilde{E}(\omega)$, peut être associé à ce champ analytique complexe :

$$\tilde{E}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \cdot \exp(i\omega t) \cdot dt = |\tilde{E}(\omega)| \cdot \exp(i\varphi(\omega)) \quad (\text{A.3})$$

Quelle que soit le type de représentation (temporelle ou spectrale), on définit complètement l'impulsion optique à partir du champ analytique complexe.

Ce champ $\tilde{E}(\omega)$ est alors nul pour les fréquences négatives et est égal à $\tilde{e}(\omega)$ pour les fréquences positives. La quantité $I(\omega) = \tilde{E}(\omega) \cdot \tilde{E}^*(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|^2$ décrit le poids des différentes composantes spectrales présentes dans l'impulsion. Cette quantité encore appelée densité spectrale peut être enregistrée à partir d'un spectroscopie conventionnel. Dans l'expression (A.3), la quantité $\varphi(\omega)$ représente la phase spectrale.

Dans le domaine temporel, le signal analytique est généralement décrit de la manière suivante :

$$E(t) = |E(t)| \cdot \exp[i(\varphi_0 + \varphi(t) - \omega_0 \cdot t)] \quad (\text{A.4})$$

Cette expression signifie que le champ électrique d'une impulsion optique peut être défini à partir d'une enveloppe temporelle et d'une porteuse contenant l'information de phase temporelle. Une impulsion optique est représentée sur la figure A.1.

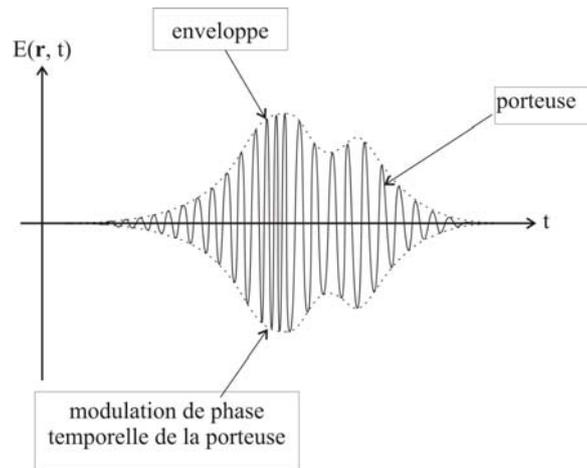


Figure A 1 : Représentation du champ électrique d'une impulsion courte optique dans le domaine temporel

Dans l'expression (A.4), l'enveloppe de l'impulsion temporelle est décrite à partir de la connaissance de $|E(t)|$. Cette enveloppe permet de définir l'intensité instantanée $I(t) = |E(t)|^2$. Dans cette expression (A.4), φ_0 représente la phase à l'origine, $\varphi(t)$ la phase temporelle et ω_0 la fréquence centrale.

Annexe B : Généralités sur l'autocorrélation d'ordre 2 - Limitations.

B.1. Définition du produit d'autocorrélation intensimétrique d'ordre 2

Les méthodes d'autocorrélation temporelle de second ordre ont été les premières techniques de caractérisation d'impulsions courtes à faire leur apparition. Elles sont basées sur un effet non-linéaire de génération de seconde harmonique ou de fluorescence bi-photonique. Ces méthodes non-linéaires ne permettent pas un affichage direct du profil temporel $I(t)$ de l'impulsion étudiée mais seulement un affichage du profil intensimétrique de la fonction d'autocorrélation d'ordre 2, $G^{(2)}(\tau)$:

$$G^{(2)}(\tau) = \frac{\int I(t).I(t + \tau).dt}{\int I^2(t).dt} \quad (\text{B.1})$$

Dans cette expression, $I(t)$ représente l'intensité du profil de l'impulsion et $I(t + \tau)$ l'intensité du profil d'une impulsion jumelle retardée de τ .

D'après cette expression, il est nécessaire pour obtenir la trace d'autocorrélation de travailler avec deux impulsions dont l'une est retardée d'un temps τ par rapport à l'autre. Dans le cas d'un autocorrélateur intensimétrique traditionnel, dont le schéma est présenté en figure B.1, l'impulsion à étudier est dédoublée dans un interféromètre de type Michelson dont un des bras est à retard continûment variable.

L'impulsion à étudier et son impulsion jumelle sont focalisées dans un cristal doubleur de fréquence. L'impulsion issue du bras à délai variable permet de balayer temporellement l'impulsion à caractériser. Lorsque les deux impulsions répliques sont synchrones, on obtient une génération de seconde harmonique maximale et l'intensité à la fréquence double est enregistrée par un détecteur intégrateur. Lorsque les deux impulsions se désynchronisent, l'intensité de seconde harmonique diminue.

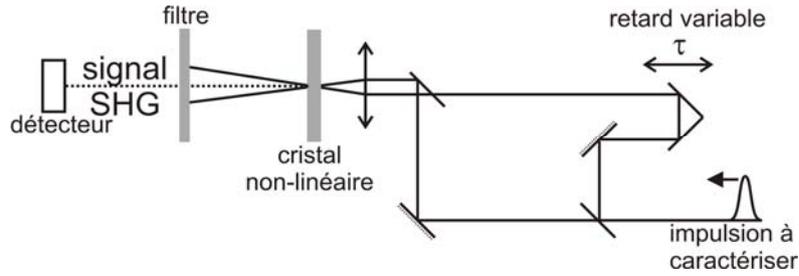


Figure B.1 : Schéma de principe de l'autocorrélateur SHG

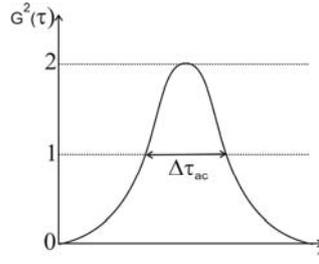


Figure B.2 : Allure du signal produit par génération de seconde harmonique en configuration non colinéaire sans fond continu.

Le signal mesuré est alors directement proportionnel à la fonction d'autocorrélation de l'impulsion :

$$S(\tau) \propto G^{(2)}(\tau) \quad (\text{B.2})$$

Dans ce type d'autocorrélateur le rapport de contraste est égal à 2 sous réserve que la génération de fréquence se fasse de manière non-colinéaire ou par accord de phase colinéaire en type II. Aucun signal parasite de fond ne vient alors perturber la mesure.

On peut ainsi déterminer la mesure temporelle de la largeur à mi-hauteur en intensité de la fonction d'autocorrélation $\Delta\tau_{ac}$.

Si on connaît le profil temporel de l'impulsion étudiée $I(t)$, on peut en déduire la largeur à mi-hauteur en intensité de l'impulsion à caractériser. Pour illustrer cette idée, supposons que le profil intensimétrique de l'impulsion est gaussien : $I(t) = |E(t)|^2 = \exp(-t^2)$. A partir de l'expression (B.1), la fonction d'autocorrélation s'exprime de la manière suivante :

$$G^{(2)}(\tau) = \frac{\int \exp(-t^2) \cdot \exp(-(t+\tau)^2) \cdot dt}{2 \cdot \int \exp(-t^2) \cdot dt}$$

Or, on sait que :

$$\int_0^{+\infty} \exp(-t^2) \cdot dt = \frac{1}{2} \cdot \sqrt{\pi}$$

Alors

$$\int \exp(-t^2) \cdot \exp(-(t+\tau)^2) \cdot dt = \frac{1}{2} \cdot \sqrt{\pi} \cdot \exp\left(-\frac{\tau^2}{2}\right) \cdot \sqrt{2}$$

$$\int \exp(-t^2).dt = \frac{\sqrt{2}.\sqrt{\pi}}{2}$$

$$G^{(2)}(\tau) = \exp\left(-\frac{\tau^2}{2}\right)$$

On s'aperçoit alors que la trace d'autocorrélation d'une impulsion gaussienne est elle-même une gaussienne de durée $\sqrt{2}$ fois plus grande que celle de l'impulsion. Par mesure de la grandeur $\Delta\tau_{ac}$, on peut trouver la durée $\Delta\tau$, représentant la durée à mi hauteur en intensité de l'impulsion étudiée : $\frac{\Delta\tau_{ac}}{\Delta\tau} = K$, où K représente une constante qui dépend du profil de l'impulsion. Si le profil est Gaussien alors $K=1,414$; si le profil est en sécante hyperbolique alors le rapport vaut 1,543.

B.2. Limitations des techniques d'autocorrélations du second ordre

Quelle que soit la technique d'autocorrélation utilisée, elle n'apporte la plupart du temps qu'une information approchée sur la durée et sur la forme de l'impulsion testée. En effet, comme nous venons de le voir, pour connaître la durée temporelle de l'impulsion étudiée, il est nécessaire de faire une hypothèse sur la forme du profil temporel de l'impulsion.

La fonction d'autocorrélation de second ordre est symétrique par construction et ce, quelle que soit l'impulsion.

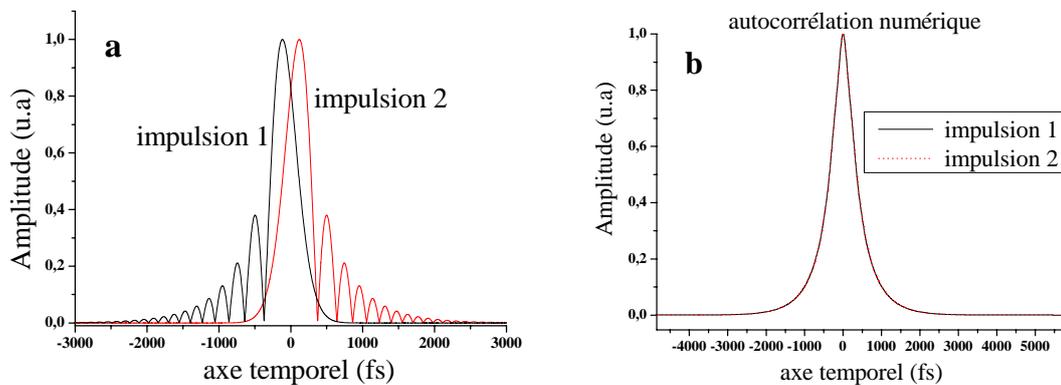


Figure B.3 : a. Profils temporels numériques avec phases spectrales d'ordre 3 opposées. b. Autocorrélation numérique

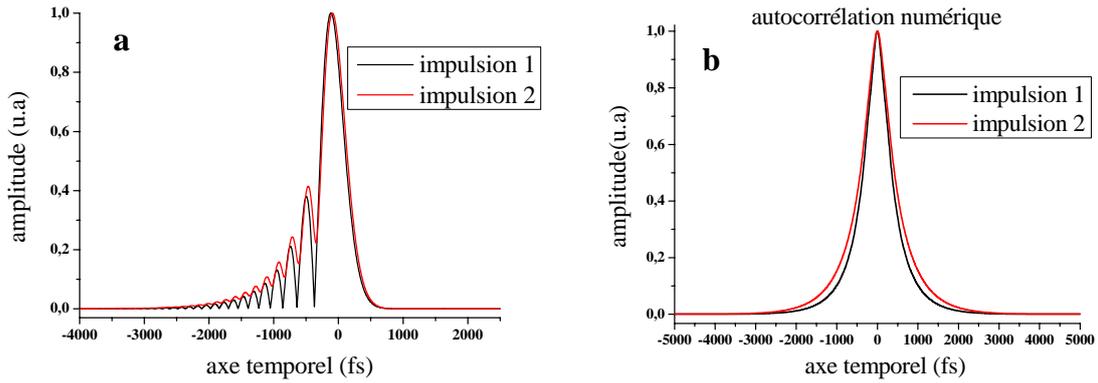


Figure B.4 : a. Profils temporels numériques avec phase spectrale d'ordre 3 pure et avec phase spectrale d'ordre 2. b. Autocorrélation numérique de ces impulsions

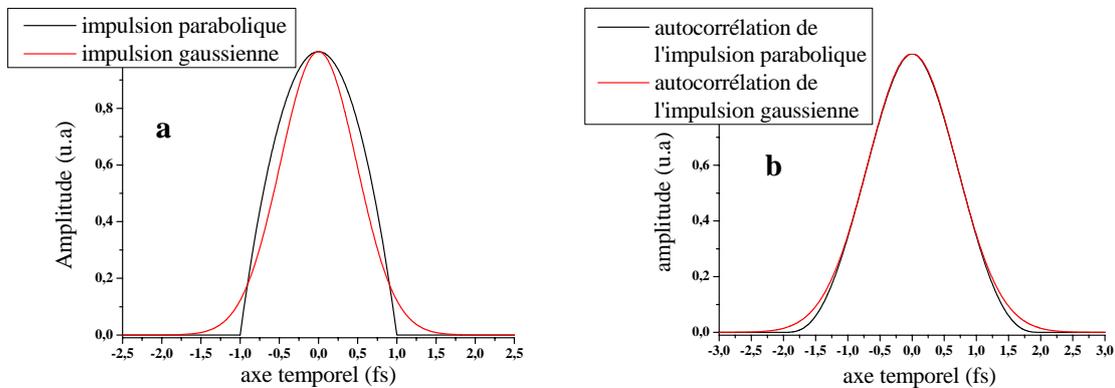


Figure B.5 : a. Profils temporels d'une impulsion gaussienne et d'une impulsion parabolique. b. Traces d'autocorrélation correspondant à chacun des profils

Ainsi l'autocorrélation d'ordre deux ne permet pas d'avoir une information sur le sens d'écoulement du temps puisqu'elle est identique pour une impulsion présentant une modulation de phase positive ou négative. Sur la figure B.4 et B.5, on se rend compte que les durées à mi hauteur en intensité peuvent être pratiquement identiques pour des impulsions présentant des profils temporels nettement différents. Pour s'apercevoir des différences, il faut résoudre précisément les ailes de la trace. C'est pour cette raison que des autocorrélateurs intensimétriques de troisième ordre sont apparus [76]. Cependant, ce genre de techniques nécessite d'avoir des impulsions incidentes de haute énergie et n'existent aujourd'hui que sous la forme d'autocorrélateurs multicoups.

Annexe C : Méthodes de reconstruction indirecte mettant en œuvre un algorithme itératif

C.1. Méthode TIVI [77, 78]

La méthode TIVI (Temporal Information Via Intensity) a été mise au point par Peatross et A. Rundquist [34] qui ont montré dans leurs travaux qu'il était possible de remonter au profil temporel d'une impulsion, en associant la mesure de la trace d'autocorrélation à celle du spectre via un algorithme itératif de réduction d'erreur. Ce dernier a été démontré par Fienup et al [79] et est présenté en figure C.1.

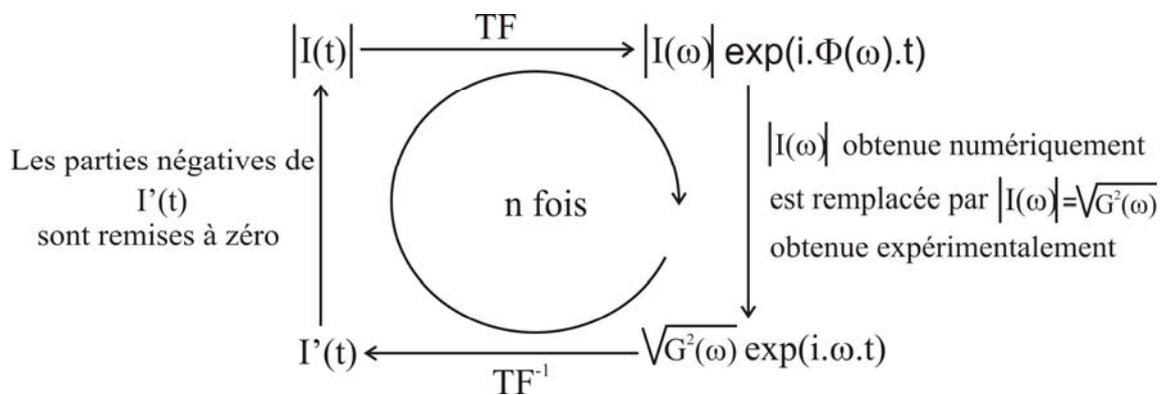


Figure C.1 : Algorithme de reconstruction de la technique TIVI

Dans cette technique, les auteurs relèvent expérimentalement la trace d'autocorrélation $G^2(\tau)$ de l'impulsion étudiée et lui appliquent une transformée de Fourier numérique. La transformée de Fourier de la trace d'autocorrélation correspond à l'intensité spectrale du signal à analyser $I(\omega)$. A partir d'un profil temporel supposé du champ réel $E(t)$, et après application de la transformée de Fourier, ils obtiennent la valeur de $|I(\omega)| \cdot \exp(i \cdot \phi(\omega) \cdot \tau)$. Dans cette expression, la valeur de $|I(\omega)|$ est remplacée par le profil obtenu expérimentalement. La transformée de Fourier inverse de cette nouvelle expression permet d'obtenir un nouveau profil temporel en intensité.

Si le profil en intensité temporelle présente des parties négatives, ces dernières sont alors remises à zéro et une nouvelle boucle de calcul est réitérée avec le nouveau profil temporel obtenu.

Cette technique nécessite alors de supposer que le profil en intensité de l'impulsion soit toujours positif pour pouvoir remonter au profil temporel exact de l'impulsion.

L'utilisation d'un algorithme itératif rend la technique longue à mettre en œuvre et ne permet pas, dans tous les cas, un affichage direct du profil de l'impulsion en temps réel.

De plus, si la technique est appliquée à partir d'une mesure d'autocorrélation de second ordre, il apparaît une ambiguïté sur le sens du temps, liée à la mesure de la trace d'autocorrélation.

Pendant, l'association de cette technique TIVI à une mesure de spectre de l'impulsion et à un algorithme de reconstruction itératif de type Gerchberg-Saxton [80] nous renseigne sur la phase spectrale de l'impulsion analysée. Dans ce cas précis, il est possible de reconstruire le profil de l'impulsion et de connaître sa phase spectrale.

Dans certains cas, la méthode TIVI ne converge pas vers une solution unique et nécessite de faire une seconde mesure d'autocorrélation en ajoutant une dispersion connue sur le trajet du faisceau.

C.2. Méthode FROG [11]

La technique Frequency Resolved Optical Gating (FROG) est une technique d'autocorrélation intensimétrique dont le signal à 2ω est résolu en fréquence, grâce à un spectroscopie à deux dimensions. Cette méthode spectrographique est souvent comparée à une partition musicale qui est elle-même un affichage en fréquence de la note de musique durant un intervalle de temps donné.

D'un point de vue optique, l'enregistrement du spectrogramme consistera à mesurer la densité spectrale pour différents intervalles de temps successifs de l'impulsion à caractériser.

Le principe de la technique repose sur la méthode d'autocorrélation intensimétrique. L'impulsion à analyser est dédoublée dans un interféromètre dont l'un des bras est composé d'une ligne à retard variable. Les deux impulsions répliques sont alors focalisées de manière non-colinéaire dans un cristal non-linéaire sommateur de fréquences. On relève, à partir d'un spectromètre à deux dimensions, le spectre du signal à 2ω pour chaque valeur du retard τ qui paramètre le produit d'autocorrélation. L'impulsion issue du bras à retard variable échantillonne le signal à analyser (l'échantillonnage temporel peut aussi être produit par une impulsion référence de durée plus courte et dont la phase et l'amplitude temporelles sont parfaitement connues (technique XFROG [81]).

Dans ce cas, l'expression du spectrogramme résultant s'écrit :

$$I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) \propto \left| \int_{+\infty}^{-\infty} E(t) \cdot g(t - \tau) \cdot e^{-i\omega t} \cdot dt \right|^2 \quad (\text{C.1})$$

Dans cette expression, $g(t - \tau)$ représente le signal temporel qui permet le découpage temporel du champ électrique $E(t)$ de l'impulsion étudiée. Dans la technique FROG, ce signal temporel n'est autre que l'impulsion à caractériser elle-même donc : $g(t - \tau) = E(t - \tau)$.

Enfin, une étape numérique de post-traitement permet de retrouver la structure cohérente de l'impulsion de départ à partir de la trace bidimensionnelle FROG. Cette reconstruction numérique est basée sur l'emploi d'un algorithme itératif [82] et est décrit plus en détail dans la suite de ce paragraphe. Cette technique permet une reconstruction complète en amplitude et en phase du champ électrique de l'impulsion.

C.2.1. Technique GRENOUILLE [12, 13]

La technique GRENOUILLE (GRating Eliminated No-nonsense Observation of Ultrafast Incident Laser Light E-fields) est la technique FROG adaptée à la mesure d'impulsions uniques.

Dans cette technique, l'impulsion à caractériser est spatialement élargie par une lentille cylindrique. Un bi-prisme de Fresnel permet de créer les deux impulsions jumelles inclinées l'une par rapport à l'autre. L'interaction entre ces deux impulsions jumelles a lieu dans un cristal non-linéaire épais. Cette interaction entre les deux impulsions jumelles se fait de manière non-colinéaire afin d'avoir une inclinaison du front d'onde entre les deux impulsions jumelles. Ainsi, il est possible d'avoir un retard temporel entre les deux impulsions répliquées. Le cristal non-linéaire a une double fonction : il joue le rôle de spectroscopie de par son épaisseur et il permet de coder le retard τ sur une variable d'espace transverse. Comme l'acceptance angulaire du cristal est faible, on obtient un codage angulaire des longueurs d'onde qui permet d'obtenir une séparation des différentes composantes spectrales.

Une dernière lentille cylindrique permet d'imager la distribution spatiale du signal générée à la seconde harmonique sur un détecteur intégrateur à deux dimensions, une caméra CCD par exemple. Le schéma de principe est représenté à la figure C.2.

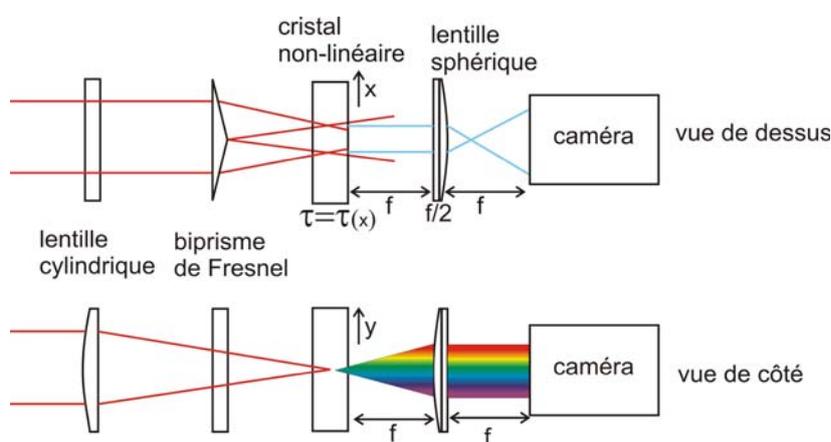


Figure C.2 : Schéma de principe de GRENOUILLE : Dans le plan horizontal, on affiche la distribution temporelle et dans le plan vertical, la répartition spectrale

Sur la caméra, on obtient alors une trace identique à celle obtenue avec la technique FROG.

Théoriquement, cette technique semble être simple à aligner et très compacte. Or, expérimentalement, la caractérisation des impulsions est erronée par la présence d'une phase spatiale dans le faisceau.

C.3. Technique ENSTA [83] et technique XPM [84]

Ces techniques permettent de reconstruire l'amplitude et la phase d'une impulsion brève à partir d'informations obtenues dans le domaine spectral.

Le principe de la méthode ENSTA repose sur l'analyse spectrale d'une impulsion intense se propageant dans un matériau non-linéaire qui peut être un morceau de verre par exemple. A partir d'un algorithme de reconstruction itératif, il est alors possible, à partir des données

expérimentales de reconstruire l'amplitude et la phase d'une impulsion brève et intense. Les données expérimentales nécessaires à cette reconstruction sont :

- le spectre de l'impulsion après propagation non-linéaire dans le morceau de verre et
- le spectre de l'impulsion initiale avant la propagation non-linéaire.

Expérimentalement, cette technique nécessite l'utilisation d'un seul spectroscopie et d'un morceau de verre.

Pour mesurer directement la phase spectrale de l'impulsion étudiée, il est nécessaire de supprimer toute source pouvant ajouter de la phase spectrale dans l'impulsion à caractériser. Il est donc utile de travailler avec un morceau de verre d'épaisseur faible afin de négliger l'effet de la dispersion chromatique qui est une source d'ajout de phase spectrale parabolique dans l'impulsion initiale. Ainsi, le seul effet considéré est l'effet non-linéaire d'automodulation de phase.

Le principe de la mesure est représenté sur la figure C.5, on mesure le spectre de l'impulsion avant la propagation non-linéaire, on relève alors $F(\omega, 0) = \sqrt{S(\omega, 0)}$, puis on mesure le spectre de l'impulsion après propagation non-linéaire. On enregistre alors $F(\omega, \Delta z) = \sqrt{S(\omega, \Delta z)}$, Δz étant l'épaisseur du verre traversé.

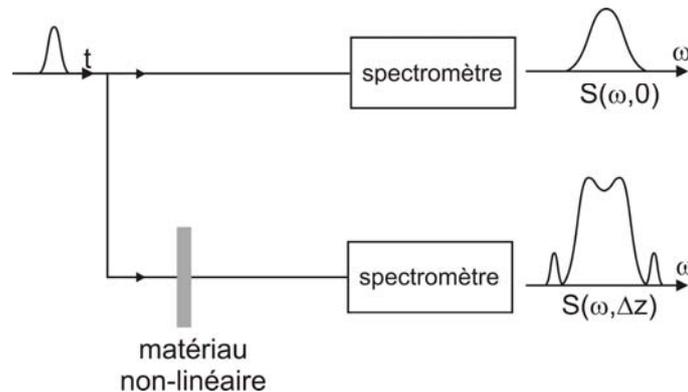


Figure C.5 : Schéma de principe de la technique ENSTA

Par un algorithme itératif type Gerchberg-Saxton [80], la connaissance de l'amplitude spectrale avant et après propagation dans le matériau non-linéaire permet de reconstruire l'amplitude et la phase spectrales de l'impulsion à caractériser.

Les données d'entrée de l'algorithme itératif sont alors :

- l'amplitude spectrale référence $F(\omega, 0)$,
- une phase nulle à l'origine et
- l'amplitude spectrale $F(\omega, \Delta z)$ après propagation dans le milieu non-linéaire.

Après application d'une Transformée de Fourier, d'une Transformée de Fourier inverse et après propagation non-linéaire dans un matériau par la méthode de "Split Step Method", on obtient l'amplitude spectrale $F(\omega, \Delta z)$ numérique. Cette valeur est alors comparée à l'amplitude spectrale obtenue expérimentalement. Si le résultat de simulation diffère du résultat expérimental, on pratique le chemin inverse en remplaçant la valeur de l'amplitude spectrale obtenue numériquement par la valeur expérimentale de l'amplitude spectrale. Par propagation inverse, on obtient une nouvelle amplitude spectrale initiale numérique qui est alors comparée à l'amplitude spectrale obtenue expérimentalement. Cette opération est itérée autant de fois qu'il est nécessaire pour obtenir une parfaite concordance entre les résultats

expérimentaux et les résultats de simulation. A partir de cet algorithme itératif, on peut remonter à l'amplitude et à la phase spectrales de l'impulsion étudiée.

Cette technique est limitée, dans ce cas précis, à des lasers amplifiés basse cadence qui possèdent une énergie assez élevée pour créer une non-linéarité dans un morceau de verre. Pour appliquer cette technique à des impulsions de faibles énergies, insuffisantes à la génération d'effets non-linéaires dans le morceau de verre, il est alors possible de remplacer celui-ci par une fibre optique. Pour rester dans les mêmes conditions de validité, la première solution proposée est de travailler avec une fibre optique de longueur égale à la longueur non-linéaire, qui elle-même doit être inférieure à la longueur de dispersion. La seconde solution est de travailler avec une fibre optique dont le zéro de dispersion correspond à la longueur d'onde de travail. Dans cette seconde solution, il faut également travailler avec une petite longueur de fibre pour éviter d'avoir un étalement spectral trop important et par la suite obtenir une dispersion de vitesse de groupe des différentes composantes spectrales créées.

Dans certains cas, il a été observé des ambiguïtés où des impulsions de profil et de phase temporels différents donnaient lieu aux mêmes données expérimentales. D'autre part, dans le cas d'impulsions pré-modulées, l'algorithme itératif semble ne pas avoir de solution. Pour remédier à ces problèmes de non-unicité et de non-convergence, une seconde approche de ce principe a été développée : la technique XPM. Dans cette méthode, on étudie la phase induite par une impulsion pompe intense (l'impulsion à caractériser), retardée d'un délai τ variable, sur une impulsion sonde de faible énergie (réplique de l'impulsion à caractériser) par automodulation de phase croisée dans un milieu non-linéaire de type Kerr instantané, en configuration pompe-sonde non-colinéaire. Le signal résultant de cette interaction est enregistré par un spectromètre à différents instants temporels. Dans ce cas, à partir du spectre initial de l'impulsion étudiée, des spectres relevés à différents instants et de l'algorithme itératif vu précédemment, on reconstruit l'amplitude et la phase de l'impulsion. Cette dernière technique perd cependant l'aspect monocoup de la technique ENSTA.

Annexe D : Evolutions de la technique SPIDER

Dans cette annexe, je ne rentre pas dans les détails de chaque évolution qu'à subit la technique SPIDER. Ainsi, seule une liste des différentes déclinaisons de chaque évolution est donnée ainsi que le numéro d'une référence bibliographique.

- Technique HOT-SPIDER : [85]
- Technique ZAP-SPIDER : Zero-Additional-Phase SPIDER [86]
- Technique SEA-SPIDER : Spatially Encoded Arrangement SPIDER [87]
- Technique 2DSI : Two-Dimensional Spectral Shearing Interferometry [88]

Annexe E : Dispersion chromatique de second ordre et Automodulation de phase

E.1. Dispersion chromatique [57]

La dispersion chromatique est la conséquence de la dépendance de l'indice de réfraction linéaire n de la fibre optique par rapport à la longueur d'onde. Ainsi, les différentes composantes spectrales d'une impulsion de spectre possède une largeur spectrale $\Delta\lambda$ se propagent avec des vitesses différentes, ce qui induit un étalement temporel de l'impulsion durant sa propagation.

D'un point de vue mathématique, les effets de la dispersion sont pris en compte par le développement en série de Taylor de la constante de propagation $\beta(\omega) = n(\omega) \cdot \frac{\omega}{c}$ autour de la fréquence centrale ω_0 de l'impulsion

$$\beta(\omega) = \beta_1 \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \cdot \beta_2 \cdot (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \cdot \beta_3 \cdot (\omega - \omega_0)^3 \quad (\text{E.1})$$

Sachant que $\varphi(\omega) = \beta(\omega) \cdot L$ pour une longueur de fibre L , on peut alors écrire la modulation de phase spectrale que subit une impulsion temporelle sur une telle longueur.

$$\varphi(\omega) = \varphi^{(1)} \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \cdot \varphi^{(2)} \cdot (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \cdot \varphi^{(3)} \cdot (\omega - \omega_0)^3 \quad (\text{E.2})$$

Dans cette annexe, je me limite uniquement aux termes de second ordre, on peut donc écrire :

$$\varphi(\omega) = \varphi^{(1)} \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \cdot \varphi^{(2)} \cdot (\omega - \omega_0)^2 \quad (\text{E.3})$$

Dans cette expression $\varphi^{(1)}(\omega_0)$ représente l'ordre 1 de la dispersion et son unité est en secondes. Ce terme caractérise une dérive linéaire de la phase spectrale, ce qui a pour conséquence de décaler temporellement l'impulsion. $\varphi^{(2)}(\omega_0)$ représente l'ordre 2 de la

dispersion et son unité est en secondes² par radian. Cet ordre définit une dispersion de vitesse de groupe. Pour la propagation d'impulsions dans les fibres optiques, il est beaucoup plus fréquent de décrire cette dispersion de vitesse de groupe par le coefficient de dispersion $D(\lambda)$:

$$D(\lambda) = +\frac{2\pi.c}{\lambda^2}.\beta_2 = -\frac{2\pi.c}{\lambda^2.L}.\varphi^{(2)} \quad (E.4)$$

Dans cette expression, la convention de signe est opposée à celle utilisée dans l'ouvrage d'Agrawal qui est la convention telecom.

L'unité usuelle de $D(\lambda)$ est en ps.nm⁻¹.km⁻¹. Aussi, suivant le signe de ce dernier coefficient, on parlera de dispersion normale ou anormale. Ainsi, si $D > 0$, la dispersion chromatique est dite normale, dans ce cas les paquets de fréquences rouges qui composent l'impulsion vont se propager plus vite que les paquets de fréquences bleues. De même si $D < 0$, on parlera de dispersion anormale et dans ce cas les paquets de fréquences bleues vont se propager plus vite que les paquets de fréquences rouges. Cette différence de propagation des paquets de fréquences de l'impulsion dans la fibre conduit à un élargissement temporel.

En effet, supposons le cas d'une impulsion gaussienne. Le champ électrique d'une telle impulsion s'écrit :

$$E(t) = E_0.\exp(-2\ln 2.\frac{t^2}{\Delta t^2}).\exp(i.\Psi(t)) \quad (E.5)$$

Dans cette expression, Δt représente la durée à mi-hauteur du profil en intensité (FWHMI). A cette expression peut lui être associée le champ électrique réciproque :

$$S(\omega) = S_0.\exp(-2\ln 2.\frac{\omega^2}{\Delta\omega^2}).\exp(i.\varphi(\omega)) \quad (E.6)$$

Dans cette expression, $\Delta\omega$ représente la largeur du spectre à mi-hauteur du profil en intensité.

On s'aperçoit alors que cette dernière expression se met sous la forme suivante lorsqu'elle a traversé un morceau de verre dispersif. Dans cette expression, on suppose que seul l'effet de dispersion d'ordre 2 joue un rôle dans cette propagation :

$$S(\omega) = S_0.\exp(-2\ln 2.\frac{\omega^2}{\Delta\omega^2}).\exp\left(i.\frac{1}{2}.\varphi''(\omega_0).(\omega - \omega_0)^2\right) \quad (E.7)$$

L'impulsion gaussienne acquiert au cours de sa propagation dans le matériau dispersif un phase spectrale parabolique, qui allonge temporellement l'impulsion.

La durée finale de l'impulsion peut être calculée à partir de l'expression approchée suivante :

$$\Delta t_f \approx \Delta\lambda_i.L.D \quad (E.8) \quad (\text{lorsque } L \gg LD)$$

Dans cette expression $\Delta\lambda_i = \frac{2\pi.c}{\omega_0^2} \cdot \Delta\omega_i^2$, représente la largeur spectrale FWHMI initiale de

l'impulsion avant sa propagation dans le matériau dispersif de longueur L, c représente la célérité de la lumière dans le vide, L la longueur totale de matériau dispersif traversé par l'impulsion et D représente le coefficient de dispersion du matériau déterminé à partir des coefficients de Sellmeier [89].

Prenons, l'exemple d'une impulsion gaussienne en limite de Fourier de durée FWHMI égale à 100 fs et de largeur spectrale FWHMI égale à 10 nm, se propageant dans 1 mètre de fibre optique dont le coefficient de dispersion est de -120 ps/(nm.km), alors l'impulsion aura une durée finale en sortie de fibre de 12 ps.

De même, il est possible de définir une longueur, en dessous, de laquelle la dispersion d'ordre 2 peut être négligée. Cette longueur est appelée longueur de dispersion et son expression est la suivante :

$$L_D = \frac{\Delta t_0^2}{|\beta_2|} \quad (\text{E.9})$$

Δt_0 représente la durée de l'impulsion initiale à 1/e en champ. Mais cette longueur de dispersion peut aussi s'écrire dans le domaine spectral de la manière suivante :

$$L_D \approx \frac{1}{|\beta_2| \cdot \Delta\nu^2} \quad (\text{E.10})$$

Pour une longueur de matériau L inférieure à cette longueur, l'effet de dispersion chromatique peut être négligé et l'impulsion ne s'élargira pas temporellement. Par contre, si la longueur du matériau est supérieure à L_D alors la dispersion ne peut plus être négligé. Reprenons notre exemple précédent de l'impulsion de 100 fs de longueur d'onde centrale 800 nm se propageant dans une fibre optique, alors pour cet exemple, la longueur de dispersion est égale à 9.10^{-8} mètres.

E.2. Automodulation de phase[57]

Le phénomène d'automodulation de phase ou effet Kerr optique apparaît lorsque le matériau transparent est soumis à l'action d'un champ optique intense. Dans ce cas, l'indice n du matériau devient dépendant de l'intensité du champ. Ce phénomène est considéré comme un processus instantané provenant de la déformation, par le champ optique, de la répartition de charge électronique des molécules de silice. L'indice du matériau se définit de la manière suivante :

$$n_{NL}(\omega, I(t)) = n(\omega) + n_2 \cdot I(t) \quad (\text{E.11})$$

Où $n(\omega)$ est l'indice de réfraction linéaire du matériau donnée par l'équation de Sellmeier, I est l'intensité du champ optique appliqué en W.m^{-2} et n_2 le coefficient non-linéaire de l'indice qui est relié à la susceptibilité de troisième ordre par la relation :

$$n_2 = \frac{3}{8.n_0} . \Re \left[\chi_{xxxx}^{(3)} \right] \quad (E.12)$$

Pour écrire cette expression, il est utile de supposer que le champ électrique est polarisé linéairement au cours de sa propagation dans la fibre. Dans ce cas la valeur de l'indice de réfraction non-linéaire varie d'une fibre à une autre. Il est typique de prendre une valeur de n_2 égale à $2,6.10^{-20} \text{ m}^2.\text{W}^{-1}$ à $1,55\mu\text{m}$ pour une fibre en silice dopée au germanium et de à $3,2.10^{-20} \text{ m}^2.\text{W}^{-1}$ pour la silice pure.

Une des conséquences directes de la variation non-linéaire de l'indice de réfraction est le déphasage auto-induit par un champ optique intense se propageant sur une distance L . Ce déphasage non-linéaire, proportionnel à l'intensité instantanée du champ, est donnée par l'expression suivante :

$$\Delta\phi_{\text{SPM}}(t) = -n_2.k_0.I(t).L \quad (E.13)$$

Ainsi, si on suppose un champ électrique d'expression :

$$E(t).\exp(i.\omega.t) \quad (E.14)$$

Se propageant dans une fibre optique de silice de longueur L alors ce champ s'écrit :

$$E(t).\exp(i.\omega.t - kz) \quad (E.15)$$

Donc, si on travaille en régime linéaire, c'est-à-dire à faible énergie (1 pJ) l'effet Kerr optique peut être négligé. Dans ce cas, l'expression (E.15) s'écrit :

$$E(t).\exp\left(i.\left(\omega.t - \frac{2.\pi}{\lambda}.n_0.L\right)\right) \quad (E.16)$$

Maintenant, en régime non-linéaire, c'est-à-dire que l'énergie des impulsions est telle qu'il n'est plus possible de négliger l'effet non-linéaire d'automodulation de phase, alors le champ électrique complexe de l'expression (F.15) s'écrit :

$$E(t).\exp\left(i.\left(\omega.t - \left(\frac{2.\pi}{\lambda}.n_0.L + \frac{2.\pi}{\lambda}.n_2.I(t).L\right)\right)\right) \quad (E.17)$$

Cette modulation de phase temporelle dépendante de l'intensité de l'impulsion elle-même (l'impulsion se module elle-même) conduit alors à un élargissement spectral sans modification de l'amplitude de l'enveloppe temporelle. En effet, si on écrit la fréquence instantanée dépendante de la phase temporelle via la formule suivante :

$$f(t) = \frac{1}{2\pi} \frac{\partial \Phi_{\text{SPM}}(t)}{\partial t} \quad (E.18)$$

Il y a donc génération de nouvelles fréquences et donc élargissement spectral.

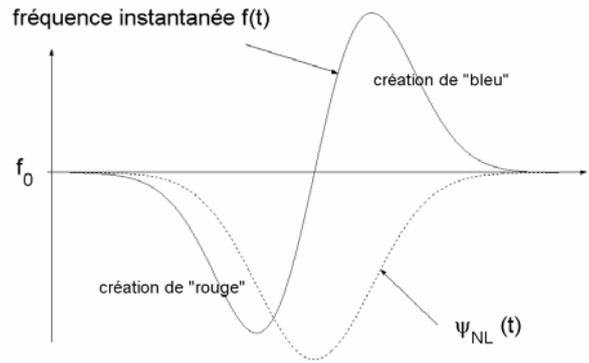


Figure E.1 : Auto-modulation de phase par effet Kerr ; création de nouvelles fréquences

D'après la figure E.1, cet effet conduit à un décalage des hautes fréquences (dites "bleues") sur le front descendant de l'impulsion et à un décalage des basses fréquences (dites "rouges") sur le front montant de l'impulsion. Lorsque les profils des impulsions sont symétriques par rapport au maximum de l'impulsion, l'élargissement spectral est généralement symétrique.

Comme pour l'effet de dispersion chromatique, il est aussi possible ici de définir une longueur en dessous de laquelle, l'effet d'automodulation de phase peut être négligé. Cette longueur se nomme longueur non-linéaire et s'exprime suivant la relation :

$$L_{NL} = \frac{\lambda_0}{(2\pi\gamma I_{max})} \quad (E.19)$$

Ainsi, si on reprend l'exemple d'une impulsion gaussienne de durée 100 fs issue d'un oscillateur laser Ti : Sa se propageant dans une fibre de silice standard de rayon en 1/e en champ égal à 3,3 μm , alors la longueur non-linéaire, si la puissance moyenne incidente est de 100mW, est égale à 5,7mm.

Annexe F : Ligne Treacy [72, 90, 91]

La ligne Treacy est illustrée à la figure F.1

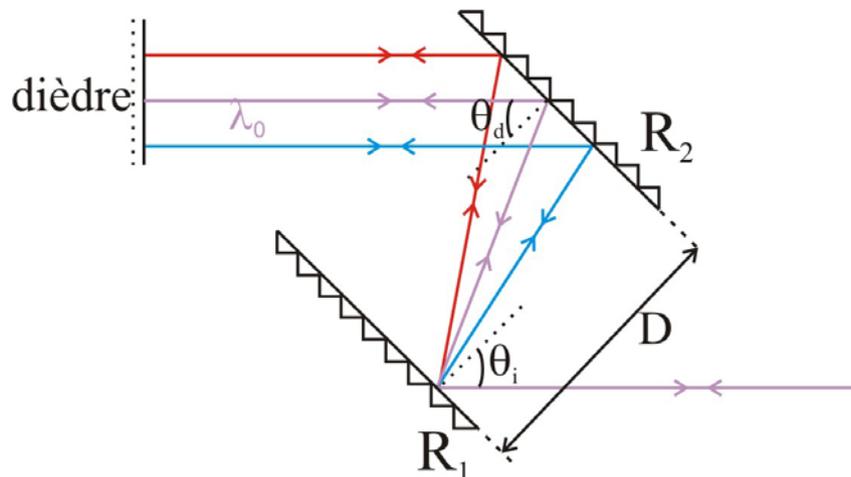


Figure F.1 : Schéma de principe d'une ligne Treacy. Ce type de ligne permet de compenser l'ordre 2 de la dispersion chromatique des fibres optiques présente dans notre endomicroscope, mais ce type de ligne permet de comprimer les impulsions en bout de chaîne amplifiée laser.

Ce système à base de réseaux parallèles permet de faire parcourir spatialement des chemins optiques différents aux composantes spectrales de l'impulsion, donc d'obtenir un délai de groupe dépendant de la pulsation. En effet, pour un faisceau incident sur un réseau de diffraction avec un angle d'incidence θ_i , l'angle de diffraction dépend de la longueur d'onde :

$$\sin \theta_i + \sin \theta_d = \frac{\lambda}{D} \quad (\text{F.1})$$

Où D représente la distance entre les traits du réseau.

Entre les deux réseaux, les composantes spectrales parcourent des chemins optiques différents. Après diffraction sur le réseau R_2 , les composantes spectrales sont spatialement dispersées, après réflexion dans un dièdre et après un second passage dans la ligne à réseaux,

le faisceau émergent possède une dispersion spatiale qui est nulle (pas de chromatisme latéral). Comme il est illustré sur la figure F.1, les paquets de fréquences rouges se propagent sur une distance plus grande que les paquets de fréquences bleues, en sortie de cette ligne, l'impulsion présente donc sur le front avant des composantes bleues et sur le front arrière des composantes rouges.

Cette ligne possède une dispersion dite anormale ($D < 0$), en effet les paquets de fréquence bleues sont en avance par rapport aux paquets de fréquences rouges. Comme pour la dispersion chromatique, ce type de ligne ajoute une modulation de phase spectrale parabolique à l'impulsion. Cette modulation s'écrit de la façon suivante [91] :

$$\varphi(\omega) = 2 \cdot \frac{\omega \cdot D}{c} \cdot \frac{\cos(\theta_i - \theta_d)}{\cos(\theta_i)} \quad (\text{F.2})$$

Un tel système permet donc de compenser la dispersion chromatique d'ordre deux des fibres optiques présentes dans notre système d'acheminement d'impulsions. C'est-à-dire qu'il est possible, à partir de la ligne montrée en figure F.1, d'ajouter un taux de dispersion d'ordre deux à l'impulsion qui soit égal au taux de dispersion d'ordre deux des fibres et de signe opposé.

A partir des trajets optiques, il est possible d'écrire les différents ordres de phase spectrale introduits [91] :

$$\varphi'(\omega_0) = \frac{D}{c} \cdot \frac{(1 + \sin(\theta_d) \sin(\theta_i))}{\cos(\theta_d)} \quad (\text{F.3}) : \quad \text{dispersion du premier ordre}$$

$$\varphi''(\omega_0) = -4 \cdot \pi^2 \frac{D}{\omega_0^3 \cdot d^2} \cdot \frac{c}{\cos^3(\theta_d)} \quad (\text{F.4}) : \quad \text{dispersion du second ordre}$$

$$\varphi'''(\omega_0) = 12 \cdot \pi^2 \frac{D}{\omega_0^4 \cdot d^2} \cdot \frac{c}{\cos^5(\theta_d)} \quad (\text{F.5}) : \quad \text{dispersion du troisième ordre}$$

On se rend compte de l'importance du tirage D (distance entre les réseaux) qui permet de modifier, principalement la dispersion de second ordre. Par contre, on s'aperçoit d'après l'expression (F.5), que le signe de la dispersion d'ordre 3 obtenue par ce type de ligne est positif. En d'autres termes, qu'il est impossible à partir de ce type de ligne de compenser l'ordre 3 de la dispersion donné par les fibres optiques. D'où la présence des rebonds dans l'impulsion finale en sortie de fibre endoscopique.

Annexe G : Intensité de fluorescence bi-photonique

L'intensité de fluorescence bi-photonique instantanée $I_f(t)$ est proportionnelle au carré de l'intensité instantanée excitatrice $I(t)$

$$I_f(t) \propto I^2(t) \quad (\text{G.1})$$

Pour produire la fluorescence à deux photons, on focalise le faisceau incident par un objectif de microscope d'ouverture numérique (ON) forte sur les molécules fluorescentes.

D'après la théorie des faisceaux gaussiens [92], le rayon de ceinture ω_0 au point focal image peut s'écrire de la façon suivante :

$$\omega_0 \approx \frac{\lambda}{\pi \cdot \text{ON}} \quad (\text{G.2})$$

L'intensité instantanée incidente peut s'écrire en fonction de la puissance instantanée incidente $P(t)$ sous la forme approchée suivante :

$$I(t) \approx \frac{P(t)}{S} \quad (\text{G.3})$$

S représente la surface transverse de la zone focale : $S = \pi \cdot \omega_0^2 = \pi \cdot \frac{\lambda^2}{\pi^2 \cdot \text{ON}^2}$. Dans ce cas, l'expression (G.1) devient :

$$I_f(t) \propto P^2(t) \cdot \left[\pi \cdot \frac{(\text{ON})^2}{\lambda} \right]^2 \quad (\text{G.4})$$

Le signal s_f^T mesuré par un détecteur quadratique intégrateur, sensible uniquement à la lumière de fluorescence à deux photons, dans un intervalle de temps T peut alors s'écrire sous la forme suivante:

$$S_f^T \propto (ON)^4 \cdot \int_0^T P^2(t) \cdot dt \quad (G.5)$$

Deux cas de figure peuvent se présenter :

- Utilisation d'une source laser continue : Dans ce cas, $P(t)$ est égale à la puissance moyenne P_{moy} et l'expression (H.8) s'écrit :

$$S_f^{T;\text{continu}} \propto (ON)^4 \cdot T \cdot P_{\text{moyen continu}}^2 \quad (G.6)$$

- Utilisation d'une source laser à impulsions brèves : Le laser impulsionnel délivrant des impulsions de durée τ avec un taux de répétition égal à f ($f \gg 1/T$). La puissance instantanée s'écrit alors, dans l'approximation d'un profil d'impulsion rectangulaire,

sous la forme suivante : $P(t) = P_{\text{ins tan tanée}} \approx \frac{P_{\text{moy}}}{\tau \cdot f}$ pour $t \in [0, \tau]$. Dans ce cas,

l'expression (G.5) s'écrit :

$$S_f^{T;\text{impulsionnel}} \propto (ON)^4 \cdot T \cdot \frac{P_{\text{moyen impulsionnel}}^2}{\tau \cdot f} \quad (G.7)$$

A partir de l'expression (G.6) et de l'expression (G.7), il vient que :

$$\frac{S_f^{T;\text{impulsionnel}}}{S_f^{T;\text{continu}}} \approx \frac{P_{\text{moyen impulsionnel}}^2}{P_{\text{moyen continu}}^2} \cdot \frac{1}{\tau \cdot f} \quad (G.8)$$

A titre d'exemple, considérons le cas du laser impulsionnel Ti : Saphir délivrant des impulsions de 100 femtosecondes à une cadence de 75 MHz. Dans ce cas, l'expression (G.8) peut s'écrire :

$$\frac{S_f^{T;\text{impulsionnel}}}{S_f^{T;\text{continu}}} \approx 10^{+5} \cdot \frac{P_{\text{moyen impulsionnel}}^2}{P_{\text{moyen continu}}^2}$$

Ainsi, à puissance moyenne identique, le régime impulsionnel est 100 000 fois plus efficace que le régime continu. A signal de fluorescence identique, il est nécessaire d'avoir une puissance moyenne en régime continu, environ trois cents fois supérieure à la puissance moyenne nécessaire en régime femtoseconde :

$$P_{\text{moyen continu}} \approx 300 \times P_{\text{moyen impulsionnel}}$$

L'utilisation d'un laser impulsionnel permet donc de travailler avec une puissance moyenne déposée sur les tissus beaucoup plus faible, ce qui permet de limiter la photodestruction de la cellule ou du tissu étudié.

D'après l'expression (G.7), nous pouvons également quantifier l'avantage de travailler avec une ouvertures numérique forte : L'intensité de fluorescence à deux photons est proportionnelle à la puissance 4 de l'ouverture numérique ; ainsi si on passe d'une ouverture numérique égale à 0,1 à une ouverture numérique égale à 0,3 on gagne un coefficient 100.

A puissance moyenne, à fréquence de répétition et à surface de focalisation identiques, le signal de fluorescence à deux photons est inversement proportionnel à la durée de

l'impulsion. Ainsi, travailler avec des impulsions de 1 picoseconde est approximativement 10 fois moins efficace que de travailler avec des impulsions de 100 femtosecondes.

Annexe H : Définition du guide d'image adapté pour une imagerie à deux photons

H.1. Introduction

Le guide d'image multicoeur est indéniablement l'élément optique le plus important de l'endomicroscope à balayage distal que nous nous proposons de mettre au point.

Le premier problème que j'ai rencontré vient du fait qu'au démarrage de l'étude il n'existait pas de guide d'image spécifiquement optimisé pour une utilisation à 800 nm en régime d'impulsions femtosecondes. J'ai donc dû définir le cahier des charges du guide d'image adapté une imagerie à deux photons.

Pour être capable de définir ce cahier des charges, j'ai tout d'abord utilisé deux guides standards (guide n°1 et guide n°2) optimisés à 488 nm pour une imagerie linéaire qui nous ont été confiés par la société MKT dès le démarrage de ce travail. La caractérisation de ces guides m'a permis de me familiariser avec ce type de composant peu courant. J'ai alors compris quels étaient les paramètres importants pour le bon fonctionnement du guide d'image à 800 nm en régime femtoseconde ce qui a débouché sur la rédaction du cahier des charges. Ce cahier des charges a été proposé au fabricant du guide (Fujikura) qui a alors procédé à la fabrication du guide idéal.

Cette étape de caractérisation préliminaire a également permis de guider le travail de simulation numérique qui se déroulait en parallèle en lui fournissant la plupart des paramètres réels importants.

H.2. Caractérisation des guides d'images

1) Caractéristiques géométriques

Comme le montre la photo suivante, qui a été réalisée au microscope optique, les coeurs du guide d'image forment une structure hexagonale compacte :

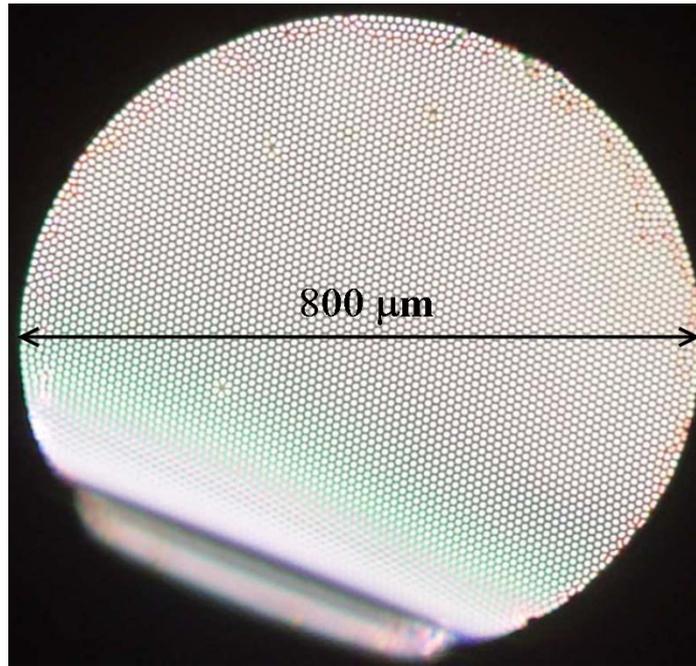


Figure H.1 : Guide n°1 présentant 6 000 coeurs. Le guide est protégé par une gaine mécanique non visible sur cette photo. Son diamètre total est de 1,5 mm ce qui lui confère une certaine souplesse (rayon de courbure minimal ≈ 10 cm)

L'allure de la partie basse du guide vient du fait qu'il a été mal clivé. Un polissage de la face d'entrée était systématiquement nécessaire pour éviter ce problème. L'homogénéité semble bonne malgré quelques défauts ponctuels localisés surtout sur la partie périphérique du guide.

Afin de disposer d'images mieux résolues, nous sommes passés à une imagerie électronique (MEB) réalisée à XLIM puis à une imagerie à force atomique (AFM) réalisée par le Professeur Renaud Bachelot du laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique (LNIO) de l'Université de Technologies de Troyes.

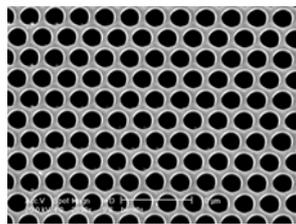


Figure H.2 : Image MEB du guide n°1 après attaque par l'acide HF pendant 5 secondes.

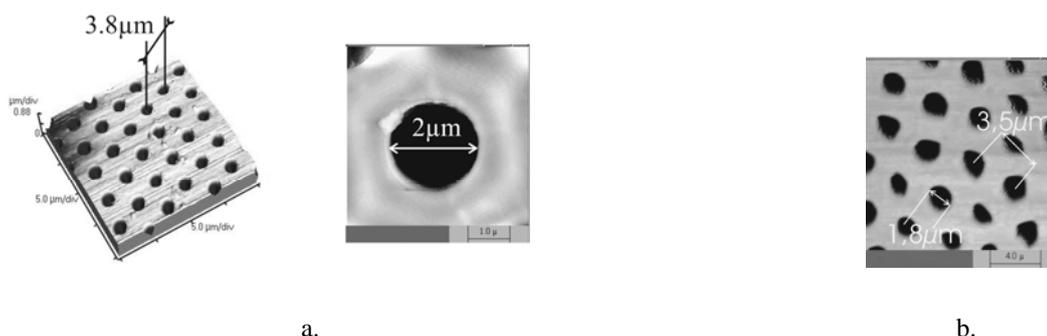


Figure H.3 : a. Images AFM après attaque par l'acide HF du guide n°1 ; b. Image AFM du guide n°2

Ces enregistrements permettent de mesurer avec précision la distance inter-coeur. Elles permettent de se rendre compte de l'homogénéité à courte échelle des deux guides :

- l'arrangement du guide n° 1 est très régulier et ses coeurs sont circulaires.
- l'arrangement du guide n° 2 est plus irrégulier et ses coeurs sont elliptiques.

2) Caractéristiques optiques

a) Evaluation de l'ouverture numérique

La mesure de l'ouverture numérique réelle des coeurs permet de guider l'optimisation de l'excitation des coeurs du guide. L'obtention d'une efficacité de couplage de la lumière égale à 50% dans un coeur unique de 2 μm passe par un choix attentif de l'optique d'injection.

La mesure de l'ouverture numérique permet aussi de se faire une idée du diamètre du mode guidé qui est un paramètre important pour la modélisation. Cette mesure s'est avérée impossible par d'autres techniques. Les clichés AFM donnent simplement une indication sur ce paramètre. Compte tenu de la petitesse des coeurs, l'appareil de mesure de profil d'indice de fibre optique, dont nous disposons à XLIM, n'a pas pu caractériser les guides d'image.

J'ai procédé à la mesure de l'ouverture numérique des guides à l'aide du montage suivant :

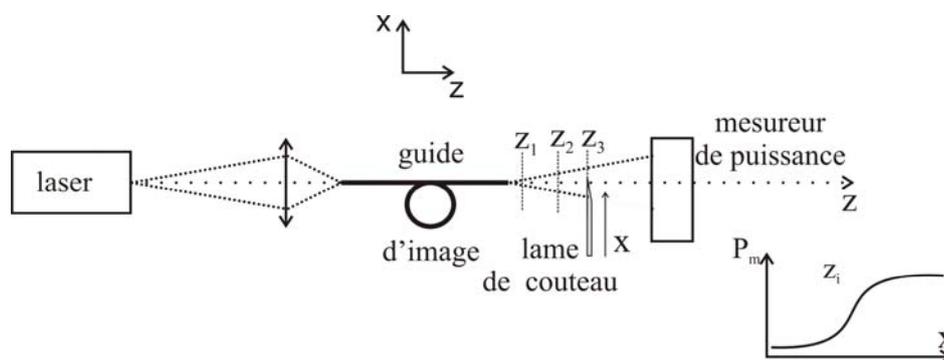


Figure H.4 : Mesure de l'ouverture numérique par diaphragmatique du faisceau émergent du guide d'image.

La mesure peut se faire soit en excitant un coeur unique (ce qui n'est pas évident tant que l'injection n'est pas optimisée) ou bien en éclairant simultanément tous les coeurs du guide. Dans ce cas, on observe un speckle formé de l'interférence des faisceaux sortants des différents coeurs à l'intérieur d'une ouverture numérique collective proche de celle des coeurs individuels.

Ces meures ont révélé une ouverture numérique supérieure à 0,3 ce qui correspond bien à des coeurs tout petits.

b) Comportement modal

Afin d'éviter la dispersion intermodale en régime d'impulsions femtosecondes, il est nécessaire que les coeurs soient monomodes. L'observation du champ lointain est suffisante pour se faire une idée du comportement modal du guide.

Malgré la petitesse de son coeur ($2\ \mu\text{m}$), le guide n°1 s'est avéré multimode à 800 nm. Ceci révèle un très fort confinement de la lumière dans le coeur qui est forcément associé à un très fort saut d'indice entre le coeur et la gaine en comparaison avec le cas d'une fibre standard de diamètre de coeur plus grand.

Le guide n°2 quant à lui est monomode à 800 nm.

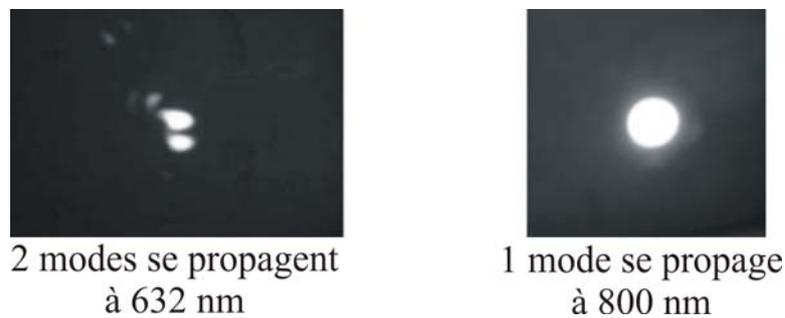


Figure H.5 : Champ lointain en sortie du guide d'image n°2 pour une longueur d'onde excitatrice de 632 nm et de 800 nm

c) Dispersion de vitesse de groupe

Pour cette mesure, j'ai utilisé un banc de mesure disponible au laboratoire qui fonctionne par interférométrie à courte longueur de cohérence. Il s'agit d'un interféromètre de Michelson. Un court tronçon de guide d'image est positionné dans un des bras de l'interféromètre. L'autre bras rempli d'air contient une ligne à retard motorisée qui permet la formation de l'interférogramme. Le dispositif est alimenté par un oscillateur femtoseconde accordable. La largeur de bande de la source ($\approx 10\ \text{nm}$) permet de former un interférogramme constitué d'un paquet de franges relativement étroit.

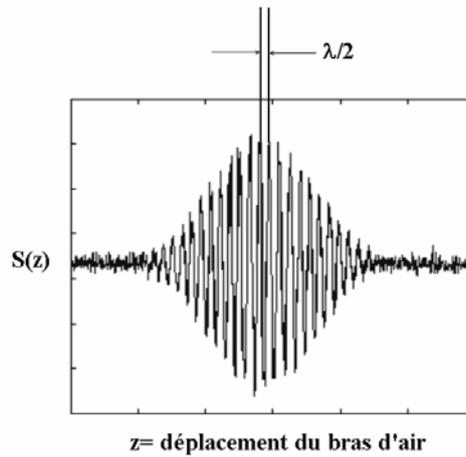


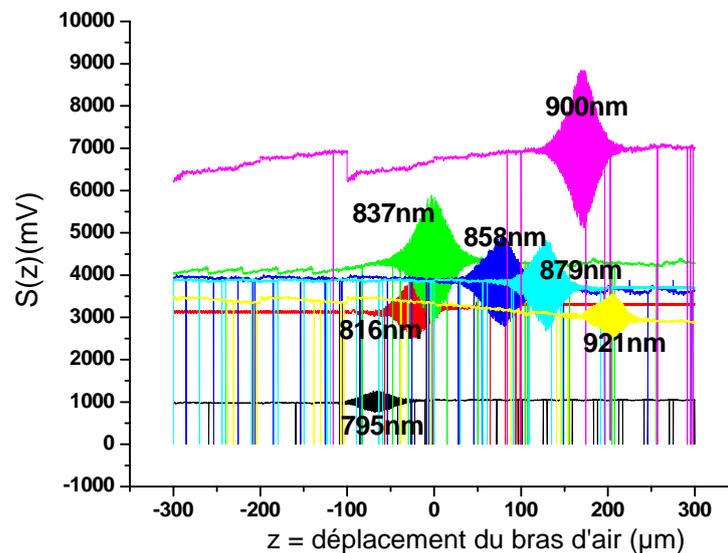
Figure H.6 : Exemple d'interférogramme.

La position du centre de l'interférogramme correspond à l'équilibre de temps de groupe des deux bras de l'interféromètre qui dépend lui même de la vitesse de groupe dans le guide d'image.

La procédure expérimentale consiste à relever l'évolution de la position d'équilibre de temps de groupe en fonction de la longueur d'onde en modifiant la longueur d'onde de la source accordable. On en déduit enfin la dispersion à l'aide de la formule suivante :

$$D = \frac{1}{L} \frac{dt_g}{d\lambda}, \text{ L étant la longueur de l'échantillon.}$$

J'ai obtenu les données expérimentales suivantes :



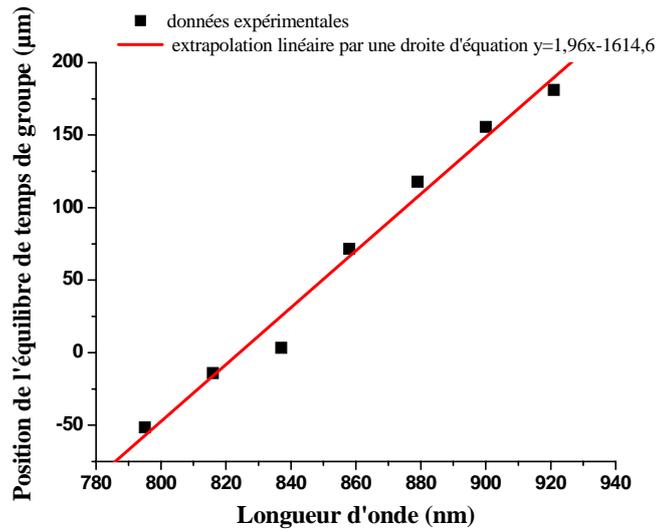


Figure H.7 : Evolution de la position d'équilibre de temps de groupe en fonction de la longueur d'onde pour le guide d'image n°1 après soustraction de la contribution due à l'objectif de microscope d'injection qui a été calibré préalablement.

Les données précédentes conduisent à une dispersion égale à $D=160$ fs/nm.m. Cette valeur est proche mais différente de la valeur correspondant à une fibre monomode standard à 800 nm (120 fs/nm.m).

La technique précédente ne permet pas de mesurer la dispersion d'ordre trois avec une précision suffisante. Par défaut, nous avons pris la dispersion d'ordre 3 d'une fibre monomode standard à 800 nm à partir d'informations que nous avons trouvées dans la littérature.

d) Mise en évidence de couplages inter-cœur

La proximité extrême des coeurs qui se trouvent à moins de 4 µm les uns des autres entraîne un fort risque de couplage. Ce phénomène de couplage apparaît surtout aux grandes longueurs d'onde comme l'atteste la photo du guide n°1 suivante :

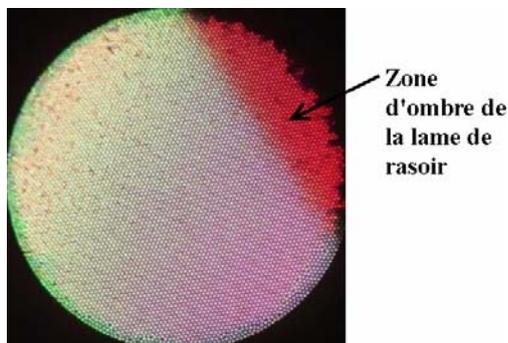


Figure H.8 : Image au microscope optique de la face de sortie du guide n°1 lorsqu'une lame de rasoir obture partiellement la face d'entrée éclairée en lumière blanche.

La photo précédente a été obtenue à l'aide du dispositif suivant :

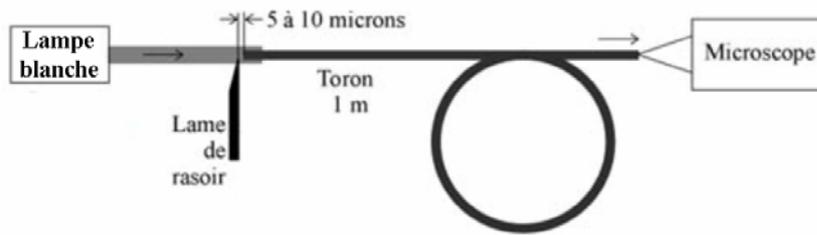


Figure H.9 : Dispositif permettant de mettre en évidence la présence de couplages inter-coeur.

Le guide n°1 présente donc de forts couplages. Les couplages viennent tout d'abord de la proximité des coeurs. Ils dépendent aussi de la similarité des coeurs qui s'échangent d'autant plus facilement l'énergie qu'ils sont semblables. Or, les images AFM ont révélé que le guide n°1 était très régulier. On peut en conclure qu'il est trop régulier du point de vue des couplages inter-coeur.

Les couplages sont surtout visibles dans le rouge. Ceci est particulièrement pénalisant pour notre application qui se situe justement à une longueur d'onde importante. La photo précédente prouve clairement que le guide n°1 n'est pas utilisable à 800 nm à cause des couplages inter-coeur.

Concernant le guide n°2 voici ce que nous savons obtenu à 800 nm :

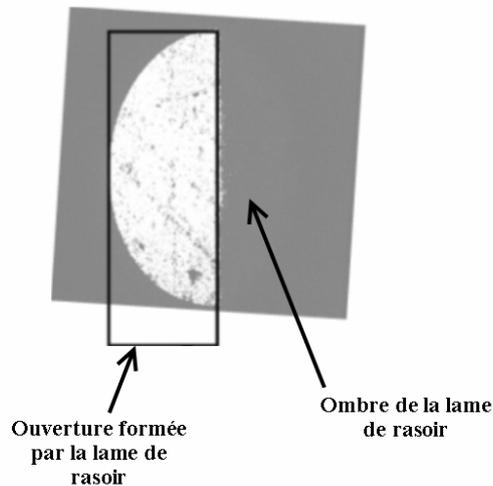
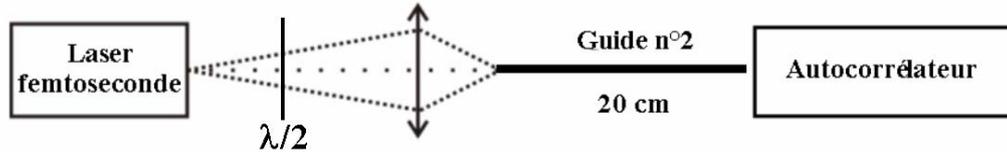


Figure H.10 : Image de la face de sortie du guide n°2 lorsqu'une lame de rasoir obture partiellement la face d'entrée éclairée par un faisceau laser à 800 nm à spectre étroit (laser continu : CW) ou à spectre plus large (laser à mode synchronisé : ML, 10 nm).

Le guide n°2 présente quant à lui des couplages modérés, non observables lors de cette expérience rudimentaire. Ceci est cohérent avec le fait que le guide n°2 est irrégulier ce qui réduit l'échange d'énergie entre coeur voisins malgré leur proximité.

e) Mise en évidence de la biréfringence des guides d'image

Le guide n°2 est très irrégulier, on peut donc s'attendre à ce qu'il présente une forte biréfringence. L'expérience suivante le confirme :



Dans cette manipulation, on prend soin de n'exciter qu'un seul coeur à la fois. J'ai pris un court tronçon de guide n°2 afin que l'impulsion ne s'allonge pas trop sous l'effet de la dispersion et de la non linéarité ce qui permet de la mesurer en sortie avec l'autocorrélateur.

Pour différentes positions de la lame demi-onde, j'ai obtenu les résultats suivants :

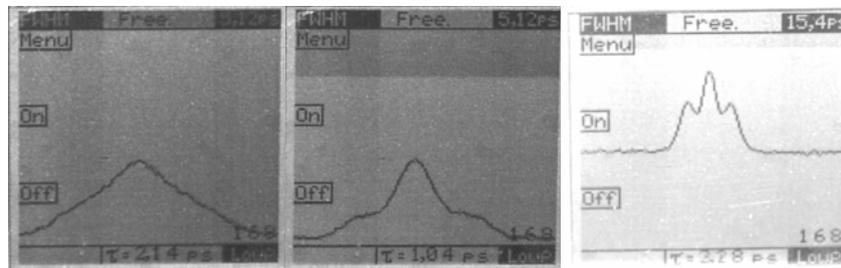


Figure H.11 : Profil de la trace d'autocorrélation en sortie de guide pour différentes orientations de la polarisation rectiligne d'entrée.

Ces résultats révèlent la présence de deux impulsions en sortie du guide d'image. Ces observations confirment la biréfringence du coeur excité.

Ensuite, j'ai étudié l'interaction entre la biréfringence et le phénomène de couplage. Pour cela, j'ai utilisé le montage suivant :

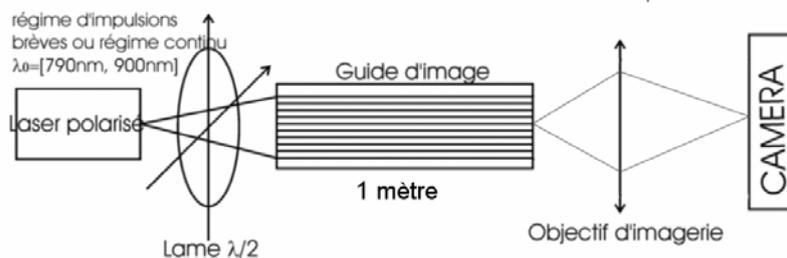


Figure H.12 : Montage expérimental utilisé pour la mise en évidence de l'influence de la polarisation sur les couplages inter-coeur.

En faisant tourner la lame demi-onde, j'ai observé le comportement suivant quelque soit le guide :

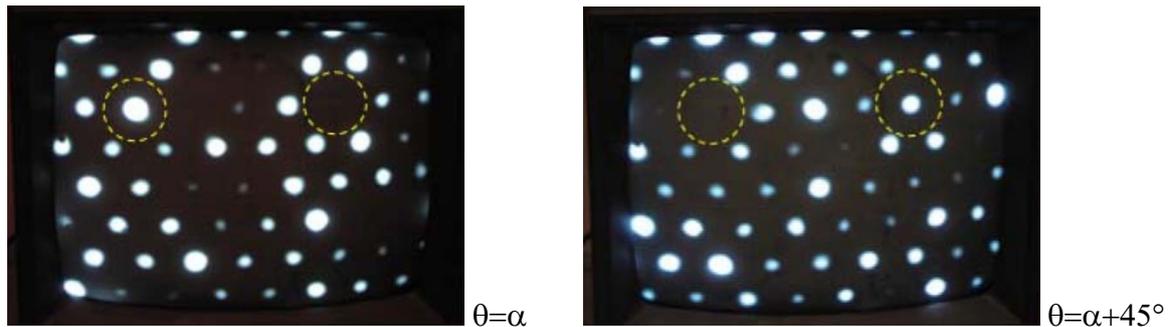


Figure H.13 : Mise en évidence du lien entre biréfringence et couplage inter-coeur. Image de la face de sortie du guide d'image n°1 ou 2 pour deux orientations de la polarisation rectiligne incidente séparées de 45°. Deux coeurs particuliers sont mis en évidence à l'aide de cercles pointillés. La source laser est continue.

On constate que la lumière passe étonnement d'un coeur vers ses voisins suivant la direction de polarisation. L'explication de ce phénomène est la suivante : en modifiant la direction de polarisation on modifie l'état de phase d'un coeur vis à vis de ses voisins. Or, les couplages font intervenir une condition d'accord de phase : deux guides ayant même vitesse de phase vont facilement échanger leurs énergies alors que deux guides ayant des vitesses de phase différentes vont être plus fortement isolés l'un de l'autre.

Le processus précédent est très net en régime continu à spectre étroit. Avec une source large bande (10 nm, laser à mode synchronisé), il est pratiquement absent tout du moins en apparence. Dans ce cas, pour un coeur donné, à l'intérieur du spectre plusieurs longueurs d'onde sont absentes car l'énergie à laquelle elles sont associées a couplé vers les coeurs voisins. Lorsque la polarisation tourne les longueurs d'onde éteintes changent mais le nombre de composantes éteintes varie peu. La densité spectrale et donc la puissance totale dans un coeur donné dépendent alors peu de la direction de polarisation. Les couplages existent mais leur dépendance à la polarisation se voit moins.

La biréfringence du guide n°2 était prévisible car les coeurs du guide sont elliptiques et l'arrangement est très irrégulier ce qui traduit l'existence de contraintes fortes déposées lors de la phase de fabrication du guide d'image. Le fait que le guide n°1 soit biréfringent était moins prévisible du fait de sa régularité.

Les résultats précédents montrent aussi que le guide n°2 n'est pas exempt de couplages contrairement à ce qu'une observation à grande échelle laissait croire.

Bilan de la caractérisation des guides d'image :

- Le guide n°1 présente une très grande régularité mais à cause de cela des couplages très forts apparaissent. Il est multimode à 800 nm. Il est inutilisable pour notre application.
- Le guide n°2 est irrégulier ce qui réduit les couplages mais fait apparaître une forte biréfringence. Il est monomode à 800 nm. Il est très difficilement utilisable pour notre application.

H.3. Optimisation du guide

Voici les grandes lignes du cahier des charges que nous avons vu apparaître :

- Distance inter-coeur proche de 4 μm .
- Caractère monomode.
- Absence de couplages inter-coeur.
- Biréfringence réduite.

J'ai participé à l'évaluation des paramètres opto-géométriques permettant de satisfaire à ces conditions. Ces paramètres concernent le profil d'indice de réfraction de la structure multicoeur : valeur exacte de la distance inter-coeur, diamètre du coeur et saut d'indice à l'interface coeur/gaine mais aussi disparité relative des coeurs (afin de minimiser les couplages).

Ce cahier des charges a été fourni au fabricant Fujikura qui a procédé à la fabrication du guide d'image à 800 nm.

Quelques mois plus tard je disposais d'un troisième guide qui fut celui que j'ai utilisé par la suite lors de la mise au point de l'endomicroscope non-linéaire et dont les caractéristiques expérimentales ont été prises en compte dans la partie simulation numérique (voir Chapitre 8 paragraphe I. 3.).

Références Bibliographiques et Netographie

1. J.C.M. Diels, et al., *Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy*. Applied Optics, 1985. **24**(9).
2. K. Oba, et al., *Femtosecond single-shot correlation system: a time-domain approach*. Applied Optics, 1999. **38**(17): p. 3810-3817.
3. Y. Takagi, et al., *Multiple- and single-shot autocorrelator based on two-photon conductivity in semiconductors*. Optics Letters, 1992. **17**(9): p. 658-660.
4. M. Raghuramaiah, et al., *A second-order autocorrelator for single-shot measurement of femtosecond laser pulse durations*. Sadhana, 2001. **26**(6): p. 603-611.
5. G Figueira, et al., *Mirrorless single-shot tilted-pulse-front autocorrelator*. J. Opt. Soc. Am. B, 2005. **22**(12): p. 2709-2714.
6. F. Salin, et al., *Single-shot measurement of a 52-fs pulse*. Applied Optics, 1987. **26**(21): p. 4528-4531.
7. J.A. Giordmaine, et al., *Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses*. Applied Phys Letter, 1967. **11**(7): p. 216-218.
8. A. Tünnermann, et al., *Single-shot autocorrelator for KrF subpicosecond pulses based on two-photon fluorescence of cadmium vapor at $\lambda=508$ nm*. Optics Letters, 1991. **16**(6): p. 402-404.
9. P. Viale, *Gestion des effets non-linéaires dans les fibres optiques à bande interdite photonique*, in Limoges. 2006, Université des Sciences et Techniques: Limoges.
10. M Large, et al., *Solution doping of microstructured polymer optical fibers*. Optics Express, 2004. **12**(9).
11. D. J. Kane, R.T., *Characterization of Arbitrary Femtosecond Pulses Using Frequency-Resolved Optical Gating*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1993. **29**(2): p. 571-579.
12. I.A. Heisler, R.R.B. Correia, and S.L.S. Cunha, *Characterization of ultrashort pulses by a modified grating-eliminated no-nonsense observation of ultrafast incident laser light E fields (GRENOUILLE) method*. Applied Optics, 2005. **44**(16): p. 3377-3382.
13. B. Khubchandani, et al., *Using GRENOUILLE to characterize asymmetric femtosecond pulses undergoing self- and cross-phase modulation in a polarization-maintaining optical fiber*. Optics Express, 2003. **11**(23): p. 3063-3073.
14. C. Dorrer, F.S., *Characterization of spectral phase modulation by classical and polarization spectral interferometry*. J. Opt. Soc. Am. B, 1998. **15**.
15. C. Dorrer, *Influence of the calibration of the detector on spectral interferometry* J. Opt. Soc. Am. B, 1999. **16**.
16. C. Dorrer, et al., *Spectral resolution and sampling issues in Fourier Transform spectral interferometry*. J. Opt. Soc. Am. B, 2000. **17**(10).
17. L. Lepetit, G. Cheriaux, and M. Joffre, *Linear technique of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy*. J. Opt. Soc. Am. B, 1995. **12**(12).
18. M. Takeda, *Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry*. J. Opt. Soc. Am. , 1982. **72**(1): p. 156-160.
19. P. Kockaert, M.H., P. Emplit, C. Froehly, *Complete Characterization of (Ultra)Short Optical Pulses Using Fast Linear Detectors*. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2004. **10**(1): p. 206-212.

20. P. Kockaert. *Caractérisation en amplitude et en phase d'impulsions optiques brèves et ultrabrèves à l'aide de détecteurs linéaires rapides*. in *Journées Nationales d'Optique Guidée*. 2003. Valence.
21. T. M. Shuman, et al., *Real-time SPIDER: ultrashort pulse characterization at 20 Hz*. Optics Express, 1999. **5**(6): p. 134-143.
22. C. Iaconis and I.A. Walmsley, *Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses*. Optics Letters, 1998. **23**(10): p. 792-794.
23. C. Dorrer, B.d.B., C. Le Blanc, S. Ranc, J.-P. Rousseau, P. Rousseau, J.-P. Chambaret, *Single-shot real-time characterization of chirped-pulse amplification systems by spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction*. Optics Letters, 1999. **24**(22): p. 1644-1646.
24. C. Dorrer, *Implementation of spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction with a simultaneously recorded reference interferogram*. Optics Letters, 1999. **24**(21): p. 1532-1534.
25. V. Messenger, et al., *Coherent measurement of short laser pulses based on spectral interferometry resolved in time*. Optics Letters, 2003. **28**(9): p. 743-745.
26. P. Tournois, *Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems*. Optics Communications, 1997. **140**: p. 245-249.
27. J.P. Olgivie, et al., *Use of coherent control for selective two-photon fluorescence microscopy in live organism*. Optics Express, 2006. **14**(2): p. 759-766.
28. A. Monmayrant, *Façonnage et caractérisation d'impulsion ultracourtes. Contrôle cohérent de systèmes simples*. 2005, P. Sabatier: Toulouse.
29. W. Denk, J.H. Strickler, and W.W. Webb, *Two photon laser scanning fluorescence microscopy* Science, 1990. **248**: p. 73-76.
30. J. Mertz, *Molecular photodynamics involved in multiphoton excitation fluorescence microscopy*. European Physical Journal D, 1998. **3**: p. 56-66.
31. A. Diaspro, *Confocal and two-photon Microscopy Foundations, Applications, and Advances*, ed. Wiley-Liss. 2002, New York.
32. P.N. Prasad, *Introduction to Biophotonics*, ed. W. inter-science. 2003, New Jersey.
33. T. Pons, et al., *Mechanisms of membrane potential sensing with second-harmonic generation microscopy*. J. Biomed Opt, 2003. **8**: p. 428-431.
34. J. Peatross and A. Rundquist, *Temporal decorrelation of short laser pulses*. J. Opt. Soc. Am. B, 1998. **15**(1): p. 216-222.
35. L. Moreaux, O. Sandre, and J. Mertz, *Membrane imaging by second-harmonic generation microscopy*. J. Opt. Soc. Am. B, 2000. **17**(10): p. 1685-1694.
36. L. Moreaux, et al., *Electro-optic response of second harmonic generation membrane potential sensors*. Optics Letters, 2003. **28**: p. 625-627.
37. J. Mertz, *Nonlinear microscopy: new techniques and applications*. Current Opinion in Neurobiology, 2004. **14**: p. 610-616.
38. J. Mertz and L. Moreaux, *Second harmonic generation by focused excitation of inhomogeneously distributed scattered*. Optics Communications, 2001. **196**: p. 325-330.
39. D.A. Dombeck, et al., *Optical recording of fast neuronal membrane potential transients in acute mammalian brain slices by second-harmonic generation microscopy*. J. Neurophysiol, 2005. **94**(5): p. 3628-3636.
40. D. Yelin and Y. Silberberg, *Laser scanning Third Harmonic Generation Microscopy in Biology* Optics Express, 1999. **5**: p. 169-175.

41. A. Zumbusch, GR Holtom, and X. Xie, *Three-Dimensional Vibrational Imaging by Coherent Anti-Stokes Raman Scattering*. Physical Review Letter, 1999. **82**: p. 4142-4145.
42. E.O. Potma, W.P. de Boeij, and D.A. Wiersma, *Nonlinear Coherent Four-Wave Mixing in Optical Microscopy* J. Opt. Soc. Am. B, 2000. **17**: p. 1678-1684.
43. M.D. Duncan, J. Reintjes, and T.J. Manuccia, *Scanning coherent Anti-Stokes Raman Microscope* Optics Letters, 1982. **7**: p. 350-352.
44. J-X. Cheng, et al., *Laser scanning Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy and Applications to Cell Biology*. Biophysical Journal, 2002. **83**: p. 502-509.
45. J.P. Olgivie, et al., *Fourier Transform coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy*. Optics Letters, 2006. **31**(4).
46. J.P. Olgivie, D.D., X. Solinas, J-L. Martin, E. Beaurepaire, M. Joffre, *Use a coherent control for selective two-photon fluorescence microscopy in live organisms*. Optics Express, 2006. **14**: p. 759.
47. B. Girard, *Lasers et Technologies Femtosecondes*, ed. Integrations. 2004, Saint Etienne.
48. B. Chatel, *Le contrôle cohérent de populations atomiques par des impulsions laser femtosecondes*. Quanta et photons, 2005: p. 133-139.
49. D. Meshulach and Y. Silberberg, *Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses*. Physical Review A, 1999. **60**: p. 1287-1292.
50. N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, *Single pulse coherently controlled non-linear Raman spectroscopy and microscopy*. Nature, 2002. **418**: p. 512.
51. OPTISCAN, <<http://www.optiscan.com.au/index.asp>>.
52. P.M. Delaney, M.R. Harris, and R.G. King, *Fiber-optic laser scanning confocal microscope suitable for fluorescence imaging*. Applied Optics, 1994. **33**(4): p. 573-577.
53. F Helmchen, et al., *A miniature Head-Mounted Two-Photon Microscope: High Resolution Brain Imaging in Freely Moving Animals*. Neuron, 2001. **31**(6): p. 903-912.
54. MKT, <<http://www.maunakeatech.com/index.cfm?action>>.
55. A.F. Gmitro and D. Aziz, *Confocal microscopy through a fiber-optic imaging bundle*. Optics Letters, 1993. **18**(8): p. 565-567.
56. B.A. Flusberg, M.R. Harris, and R.G. King, *Fiber-optic fluorescence imaging*. Nature Methods, 2005. **2**(12): p. 941-950.
57. G.P. Agrawal, *Nonlinear fiber optics*, ed. A. Press. 2001: Third Edition.
58. R.H. Stolen and C. Lin, *Self phase modulation in silica optical fibers*. Physical Review A, 1978. **17**(4): p. 1448-1454.
59. K.J. Blow and D. Wood, *Theoretical description of transient stimulated Raman scattering in optical fibers*. IEEE J. Quantum Electron, 1989. **25**: p. 2665-2673.
60. R. H. Stolen, et al., *Raman response function of silica-core fibers*. J. Opt. Soc. Am. B, 1989. **6**(6): p. 1159-1166.
61. J.C. Jung and M.J. Schnitzer, *Multiphoton endoscopy*. Optics Letters, 2003. **28**(11): p. 902-904.
62. SP Tai, et al., *Two-photon fluorescence microscope with a hollow-core photonic crystal fiber*. Optics Express, 2004.
63. G.J. Pearce, et al., *Hollow core PCF for guidance in the mid to far infra-red*. Optics Express, 2005. **13**(18): p. 6937-6946.
64. D.G. Ouzounov. *Nonlinear properties of hollow-core photonic bang-gap fibers*. in CLEO 2005. 2005. Baltimore.

65. D.G. Ouzounov, et al., *Delivery of nanojoule femtosecond pulses through large-core microstructured fibers*. Optics Letters, 2002. **25**(17): p. 1513-1515.
66. F Helmchen, DW Tank, and W. Denk, *Enhanced two-photon excitation through optical fiber by single mode propagation in a large core*. Applied Optics, 2002. **41**(15): p. 2930-2934.
67. M.T. Myaing, et al., *Enhanced two-photon biosensing with double clad photonic crystal fibers*. Optics Letters, 2003. **28**(4): p. 1224-1226.
68. L. Fu, X Gan, and M. Gu, *Nonlinear optical microscopy based on double clad photonic crystal fibers*. Optics Express, 2005. **13**(14): p. 5528-5534.
69. L. Fu, et al., *Nonlinear optical endoscopy based on a double clad photonic crystal fiber and a MEMS mirror*. Optics Express, 2006. **14**(3): p. 1027-1032.
70. S. Ramachandran, et al., *High-energy (nanojoule) femtosecond pulse delivery with record dispersion higher-order mode fiber*. Optics Letters, 2005. **30**(23): p. 3225-3227.
71. O.E. Martinez, *Grating and prism compressors in the case of finite beam size*. J. Opt. Soc. Am. B, 1986. **3**(1): p. 929-934.
72. S. Kane and J. Squier, *Grism-pair stretcher-compressor system for simultaneous second- and third-order dispersion compensation in chirped-pulse amplification*. J. Opt. Soc. Am. B, 1997. **14**(3): p. 661-665.
73. W Göbel, et al., *Miniaturized two-photon microscope based on a flexible coherent fiber bundle and a gradient-index lens objective*. Optics Letters, 2004. **29**(21): p. 2521-2523.
74. S.W. Clark, F. Ilday, and F.W. Wise, *Fiber delivery of femtosecond pulses from a Ti:sapphire laser*. Optics Letters, 2001. **26**(17): p. 1320-1322.
75. M.A. van Eijkelenborg, *Imaging with microstructured polymer fibre*. Optics Express, 2004. **12**(2).
76. G. Ramos-Ortiz, et al., *Third-order optical autocorrelator for time domain operation at telecommunication wavelengths*. Applied Optics Letters, 2004. **85**(2).
77. J. Peatross, et al., *Spectral-spatial measurements of fundamental and third-harmonic light of intense 25-fs laser pulses focused in a gas cell*. J. Opt. Soc. Am. B, 1998. **15**(1): p. 186-192.
78. J. W. Nicholson, et al., *Full-field characterization of femtosecond pulses by spectrum and cross-correlation measurements*. Optics Letters, 1999. **24**(23): p. 1774-1776.
79. J.R. Fienup, *Phase retrieval algorithms: a comparison*. Applied Optics, 1982. **21**: p. 2758-2769.
80. A. Rundquist, A Efimov, and D. Reitze, *Pulse shaping with the Gerchberg-Saxton algorithm*. J. Opt. Soc. Am. B, 2002. **19**(10): p. 2468-2478.
81. A. Yabushita, T Fuji, and T. Kobayashi, *SHG FROG and XFROG methods for phase/intensity characterization of pulses propagated through an absorptive optical medium*. Optics Communications, 2001(198): p. 227-232.
82. R. Trebino and D. Kane, *Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating*. J. Opt. Soc. Am. A, 1993. **10**(5): p. 1101-1111.
83. E. T. J. Nibbering, et al., *Spectral determination of the amplitude and the phase of intense ultrashort optical pulses*. J. Opt. Soc. Am. B, 1996. **13**(2): p. 317-329.
84. M. A. Franco, et al., *Characterization of ultra-short pulses by cross-phase modulation*. Optics Communications, 1997(140): p. 331-340.
85. C. Dorrer, P. Londero, and I.A. Walmsley, *Homodyne detection in spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction*. Optics Letters, 2001. **20**(19).

86. P. Baum, S. Lochbrunner, and E. Riedle, *Zero-additional-phase SPIDER: full characterization of visible and sub-20-fs ultraviolet pulses*. Optics Letters, 2004. **29**(2): p. 210-212.
87. E. M. Kosik, et al., *Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit*. Optics Letters, 2005. **30**(3): p. 326-328.
88. J.R. Birge, R. Ell, and F.X. Kärtner, *Two dimensional spectral shearing interferometry for few cycle pulse characterization*. Optics Letters, 2006. **31**(13): p. 2063-2065.
89. D. Marcuse, *Light Transmission Optics*, ed. V.N. Reinhold. 1982, New York.
90. S. Kane, J.S., J.V. Rudd, G. Mourou, *Hybrid grating-prism stretcher-compressor system with cubic phase and wavelength tunability and decreased alignment sensitivity*. Optics Letters, 1994. **19**(22): p. 1876-1878.
91. J.C. Chanteloup, *Contrôle et mise en forme des fronts de phase et d'énergie d'impulsions lasers brèves ultra-intenses*. 1998, Ecole Polytechnique: Palaiseau.
92. D. Dangoisse, *Les lasers*, ed. Dunod. 1998, Paris.