



Spectroscopie résolue en temps de la femtoseconde à la milliseconde

Laura Antonucci

► To cite this version:

| Laura Antonucci. Spectroscopie résolue en temps de la femtoseconde à la milliseconde. Physique
| [physics]. Ecole polytechnique X, 2014. Français. NNT: . tel-01094630v2

HAL Id: tel-01094630

<https://pastel.hal.science/tel-01094630v2>

Submitted on 12 Jan 2015

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

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



Thèse de doctorat de l'École Polytechnique

présentée par

Laura ANTONUCCI

pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique

TITRE :

Spectroscopie résolue en temps de la femtoseconde à la milliseconde

effectuée au Laboratoire d'Optique et Biosciences

et soutenue le 1^{er} octobre 2014 devant le jury composé de

<i>Rapporteurs :</i>	Lionel CANIONI	- LOMA (Université Bordeaux 1)
	Frédéric DRUON	- LCF (Institut d'optique)
<i>Examineurs :</i>	Fabien BRETENAKER	- LAC (Université Paris sud)
	Nicolas FORGET	- Fastlite
	Jan HELBING	- Physikalisch-Chemisches Institut (Université de Zürich)
<i>Directeurs :</i>	Manuel JOFFRE	- LOB (École polytechnique)
	Adeline BONVALET	- LOB (École polytechnique)

Thèse de doctorat de l'École Polytechnique

présentée par

Laura ANTONUCCI

pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique

TITRE :

Spectroscopie résolue en temps de la femtoseconde à la milliseconde

effectuée au Laboratoire d'Optique et Biosciences

et soutenue le 1^{er} octobre 2014 devant le jury composé de

<i>Rapporteurs :</i>	Lionel CANIONI	- LOMA (Université Bordeaux 1)
	Frédéric DRUON	- LCF (Institut d'optique)
<i>Examineurs :</i>	Fabien BRETENAKER	- LAC (Université Paris sud)
	Nicolas FORGET	- Fastlite
	Jan HELBING	- Physikalisch-Chemisches Institut (Université de Zürich)
<i>Directeurs :</i>	Manuel JOFFRE	- LOB (École polytechnique)
	Adeline BONVALET	- LOB (École polytechnique)

Remerciements

Je tiens à remercier Fabien Bretenaker, Lionel Canioni, Frédéric Druon, Nicolas Forget et Jan Helbing de m'avoir fait l'honneur de faire partie de mon jury de thèse. Je remercie en particulier Lionel Canioni et Frédéric Druon pour en avoir été les rapporteurs et Fabien Bretenaker pour avoir accepté la charge de président du jury.

Je suis très reconnaissante envers Jean-Louis Martin, directeur du Laboratoire d'Optique et Biosciences, pour m'avoir accueillie au sein de son laboratoire en qualité de "thésarde-ingénieur d'étude", ce qui a donné un tournant très positif à ma vie professionnelle.

La thèse a été dirigée par Manuel Joffre, que je remercie sincèrement et à qui la qualité du travail doit beaucoup. Ses vastes connaissances scientifiques et sa rigueur ont été des repères importants au cours de ce projet et m'ont permis de me risquer sur des terrains parfois complexes et variés avec la confiance de ne jamais me perdre. Il m'a fait partager le goût de creuser les détails dans le but d'atteindre une compréhension profonde des phénomènes. Ses qualités humaines et son subtil sens de l'humour ont très agréablement enrichi nos échanges.

Je veux également remercier Adeline Bonvalet d'avoir co-dirigé la thèse. Ses remarques précises, ses précieux conseils et sa grande compétence expérimentale ont été d'un soutien essentiel tout au long de ce travail. Grâce au dynamisme et à la bonne humeur qui la distinguent j'ai eu le plus grand plaisir à travailler avec elle.

Le projet est largement basé sur le travail de Xavier Solinas qui a réalisé toute la partie électronique de la méthode développée. Je remercie Xavier pour sa disponibilité, sa passion du travail soigné et surtout pour la patience qu'il a employée à m'apprendre les rudiments d'électronique nécessaires à la compréhension des prototypes testés.

Je veux aussi remercier Marten H. Vos qui a rendu possible l'expérience pompe-sonde sur les échantillons de *Rhodobacter Sphaeroides*, d'abord en préparant les échantillons, mais surtout en partageant avec moi sa profonde connaissance du centre réactionnel. Nos échanges ont également fait naître en moi un grand intérêt pour le processus de photosynthèse.

Les expériences au kilohertz ont largement profité du travail de Louis Daniault qui a développé l'interface expérimentale rendant l'acquisition des données simple et efficace. Je le remercie également, avec Adeline et Xavier, pour avoir enduré avec le sourire les mois difficiles de la manip

de "trois jours"...

Beaucoup d'autres personnes ont enrichi ce travail grâce aux échanges et aux discussions scientifiques. Je pense en particulier à Sergey Laptinok et Guillaume Labroille qui ont toujours stimulé mon travail avec leur curiosité et leurs idées intelligentes, notamment sur les questions de vitesse de calcul. Jean-Christophe Lambry mérite une remarque particulière sur ce dernier point pour m'avoir accordé un peu de son temps (et de celui de sa machine) afin de tester la vitesse de mes algorithmes de calcul.

Je tiens aussi à remercier Marten, Jean-Christophe et Sergey d'avoir mis à disposition leur laser à 93 MHz.

Également, je suis reconnaissante envers Michel Negrerie pour notre collaboration dans mes premières expériences au megahertz sur les échantillons de *Cytochrome*.

Le soutien technique du laboratoire a été déterminant pour la réussite de mon travail : je pense à Christelle Français et Laure Lachapelle pour toutes les démarches administratives, à Jean-Marc Sintès pour les conceptions mécaniques et à Simon Dadoun pour les questions informatiques.

Je voudrais enfin remercier tous les membres du Laboratoire d'Optique et Biosciences parce qu'ils contribuent, avec leurs qualités professionnelles et humaines à créer une ambiance de travail idéale.

Merci enfin à Kevin Cassou pour avoir rendu possible l'accomplissement de ce projet grâce à son soutien sans faille.

Table des matières

1	Introduction	1
2	Méthodes de balayage temporel	5
2.1	Applications	5
2.2	Etat de l'art	6
2.2.1	La ligne à retard	6
2.2.2	ASOPS : le balayage optique asynchrone	7
2.2.3	Le retard électronique	10
2.2.4	Le retard électronique avec asservissement des oscillateurs	12
2.2.5	Conclusions	13
2.3	AD-ASOPS : le balayage asynchrone avec fréquences de répétition arbitraires . .	14
3	Mise en œuvre expérimentale de l'AD-ASOPS	21
3.1	Détection des coïncidences	22
3.2	Description du montage expérimental	27
3.2.1	Détection des coïncidences	27
3.2.2	Comptage des impulsions	30
3.2.3	Calcul des retards	32
3.3	Procédure expérimentale	33
3.4	Distribution des retards sondés	37
3.4.1	Les retards possibles	42
3.4.2	La résolution de la mesure	43
3.4.3	Probabilité des PGCD entre N_1 et N_2	44
3.4.4	Distribution des compteurs aux coïncidences	46
3.5	Illustration de la méthode sur une dynamique nanoseconde	51
4	Mesure de la résolution temporelle	57
4.1	Caractérisation à l'aide du signal d'interférence	57
4.1.1	Mesure de la variance	57
4.1.1.1	La variance attendue	60
4.1.2	Influence du taux de coïncidence	63
4.1.2.1	Mesures avec sélection des coïncidences	66
4.1.2.2	Caractérisation de l'erreur de mesure à l'aide des coïncidences . .	69
4.1.3	Évolution de la résolution temporelle en fonction du retard	77
4.2	Expérience complémentaire de caractérisation : influence de la longueur de fibre .	79
5	Resultats sur échantillons biologiques au MHz	83
5.1	Mélange de fréquences dans un BBO	84
5.2	Expérience sur échantillons biologiques	90
5.2.1	Le centre réactionnel de <i>Rhodobacter Sphaeroides</i>	90
5.2.2	Mises en œuvre et résultats	95

6	Expériences au kHz	101
6.1	Principe de fonctionnement de l'AD-ASOPS kHz	102
6.2	Validation de l'AD-ASOPS kHz	103
6.2.1	Interférométrie spectrale	105
6.2.2	Problématiques	111
6.2.3	Résultats	112
6.2.3.1	Caractérisation de l'erreur de mesure à l'aide des coïncidences .	113
6.2.3.2	Résolution de la mesure	117
7	Conclusions	121
A	Implémentation du calcul des retards	123
B	Calcul de l'intégrale B	127
C	Effet d'un ou plusieurs modes vibrationnels sur l'erreur de délai	129
C.1	Modèle avec un mode de vibration	129
C.2	Modèle avec une somme de modes de vibration	133
D	Probabilité de détection de coïncidences	135
E	Mesures complémentaires de caractérisation du système AD-ASOPS	139
	Bibliographie	143

Introduction

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit a été réalisé au Laboratoire d'Optique et Biosciences. Une part importante des travaux menés dans ce laboratoire porte sur l'étude de phénomènes ultrarapides dans des systèmes biologiques.

En particulier, une des méthodes les plus largement utilisées à cet effet est la technique dite de spectroscopie pompe - sonde, dans laquelle deux impulsions optiques séparées d'un retard temporel variable sont utilisées pour examiner les processus qui surviennent pendant un phénomène dépendant du temps comme une réaction biochimique. La première impulsion est l'impulsion pompe qui déclenche la réaction, par exemple par la rupture d'une liaison chimique. La deuxième impulsion est l'impulsion sonde, qui vient sonder la réponse du système après un certain intervalle de temps suivant le début de la réaction. Avec l'augmentation de cet intervalle et par conséquent la progression de la réaction, la réponse du système à l'impulsion sonde varie. En balayant le retard temporel entre la pompe et la sonde, il est possible de reconstituer toute l'évolution de la réaction.

Pour ce qui concerne les échelles temporelles accessibles par les expériences pompe-sonde, la résolution temporelle est limitée en dernier ressort par la durée de l'impulsion de sonde. L'extension de la fenêtre de balayage, quant à elle, voit sa limite ultime imposée par la période de répétition du laser pompe, mais les caractéristiques techniques du système de balayage peuvent en raccourcir d'avantage l'ampleur.

Dans l'étude de phénomènes biologiques, qui sont à la base des thèmes de recherche développés au Laboratoire d'Optique et Biosciences, les réactions examinées présentent souvent des dynamiques multiéchelles, allant de la femtoseconde à la microseconde ou plus, pour lesquelles des systèmes de balayage spécifiquement conçus doivent être utilisés.

Un point de force de notre laboratoire, qui constitue une belle gamme d'opportunités d'expériences différentes pour les chercheurs, est la variété de systèmes lasers disponibles, en termes

de durées, d'énergies, de taux de répétition et de longueurs d'onde. Ainsi, pour garder cette flexibilité de montage dans la conception des différentes expériences pompe-sonde qui peuvent être envisagées, nous avons voulu développer une méthode de balayage qui soit :

- capable de sonder des fenêtres temporelles multiéchelle de la centaine de femtosecondes à la milliseconde,
- applicable à différents types de lasers,
- facilement déplaçable d'une expérience à une autre.

Le présent manuscrit reporte le travail de développement, validation et caractérisation d'une nouvelle méthode de balayage temporel, basée sur la technique bien connue de balayage asynchrone. Nous appelons cette nouvelle méthode AD-ASOPS pour Arbitrary Detuning Asynchronous Optical Sampling. Le Chapitre 2 présente un bref aperçu des techniques actuellement disponibles pour la réalisation de balayages temporels selon les différentes exigences expérimentales, et se termine avec la description du principe de fonctionnement de la nouvelle méthode que nous proposons.

Le Chapitre 3 présente la mise en œuvre expérimentale de l'AD-ASOPS selon les différentes étapes nécessaires à son fonctionnement. La faisabilité générale de la méthode y est également examinée pour évaluer les éventuelles limites d'utilisation et il sera démontré qu'avec un choix adapté des paramètres de mesure, la méthode ne présente essentiellement aucune limite d'application aux systèmes laser femtosecondes actuellement disponibles sur le marché. À la fin du chapitre, un premier exemple d'application de l'AD-ASOPS sur une dynamique nanoseconde sera illustré à l'aide d'une vidéo qui montre l'évolution des balayages successifs de la fenêtre temporelle analysée.

Le Chapitre 4 est le compte-rendu du travail principal de caractérisation de l'AD-ASOPS, avec une partie consacrée à l'étude de la résolution temporelle, qui a été menée en comparant plusieurs expériences complémentaires. Celles-ci ont été réalisées avec des montages expérimentaux utilisant différentes sources lasers disponibles au laboratoire, avec des taux de répétition s'étendant de 5 à près de 100 MHz.

Ensuite, le Chapitre 5 présente l'application de l'AD-ASOPS à une expérience pompe-sonde réalisée directement avec deux oscillateurs. Cette réalisation, que nous appelons l'AD-ASOPS MHz, nous a permis d'étudier des échantillons biologiques en utilisant comme laser sonde un oscillateur Ti:Saphir classique et comme laser pompe un oscillateur à impulsions à dérive de

fréquence ayant un taux de répétition environ 15 fois plus faible.

Le Chapitre 6 valide une simplification de la méthode de Bedenbeck et al. [1] pour le cas kHz, c'est à dire en appliquant la méthode AD-ASOPS à deux systèmes laser amplifiées. Pour la distinguer de la mise en œuvre au megahertz, nous appelons cette approche l'AD-ASOPS kHz.

Enfin, le chapitre conclusif (Chapitre 7) analyse les perspectives du travail et les développements envisagés pour les futures utilisations de la méthode AD-ASOPS.

Méthodes de balayage temporel

Sommaire

2.1 Applications	5
2.2 Etat de l'art	6
2.2.1 La ligne à retard	6
2.2.2 ASOPS : le balayage optique asynchrone	7
2.2.3 Le retard électronique	10
2.2.4 Le retard électronique avec asservissement des oscillateurs	12
2.2.5 Conclusions	13
2.3 AD-ASOPS : le balayage asynchrone avec fréquences de répétition arbitraires	14

2.1 Applications

L'étude de phénomènes dépendant du temps demande d'effectuer l'analyse de la réponse de l'échantillon considéré pendant un intervalle de temps d'intérêt à partir d'une origine de temps, correspondant généralement à l'instant d'excitation de l'échantillon. Dans le cas particulier de phénomènes ultrarapides, la réponse de l'échantillon peut être étudiée par la méthode dite pompe-sonde dans laquelle deux impulsions femtosecondes sont utilisées respectivement pour exciter et pour sonder une caractéristique particulière de l'échantillon. La réponse temporelle complète est alors reconstruite en répétant un grand nombre de fois la mesure, tout en faisant varier de façon contrôlée le retard entre les deux impulsions dans l'intervalle temporel d'intérêt¹. Selon le type d'échantillon et les moyens à disposition, il existe plusieurs méthodes pour réaliser ce balayage temporel.

1. Si l'on excepte les méthodes monocoup qui n'entrent pas dans le cadre de ce travail.

2.2 Etat de l'art

2.2.1 La ligne à retard

Une méthode de balayage largement utilisée consiste dans l'emploi d'une seule source laser. Comme représenté Figure 2.1 les deux impulsions sont alors obtenues par la séparation du faisceau principal en deux bras secondaires et le balayage temporel est réalisé par balayage spatial d'une ligne à retard positionnée sur l'un des deux bras. Ce balayage est ainsi réalisé

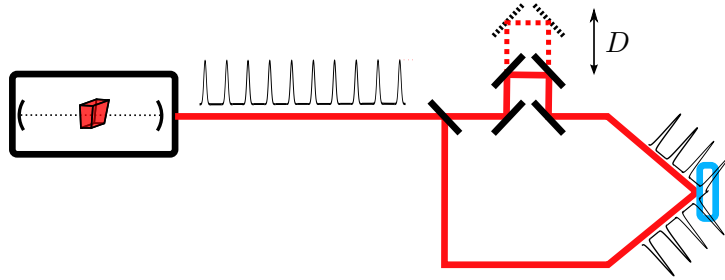


FIGURE 2.1 – *Méthode de balayage temporel par ligne à retard. La boîte représente l'oscillateur à l'origine du train d'impulsions laser. Le rectangle bleu clair indique l'échantillon.*

à l'aide d'un rétro réflecteur placé sur le trajet du faisceau, dont la translation D permet de produire un retard ΔT obéissant à la relation :

$$\Delta T = \frac{2D}{c}, \quad (2.1)$$

où c est la vitesse de la lumière. Cette méthode est bien adaptée à des retards limités à la nanoseconde, mais pour accéder à des retards plus longs il est généralement impératif d'utiliser d'autres techniques [2]. En effet, une nanoseconde correspondant à un déplacement d'environ 15 cm, des problèmes d'encombrement et de stabilité d'alignement sont rapidement rencontrés pour des retards plus longs. Il est possible de limiter le problème d'encombrement en construisant des déplacements multipassages, mais cela peut compliquer sensiblement le montage et son alignement. De plus, cela ne donne pas une réponse adéquate pour les très grands retards : si par exemple on voulait couvrir par cette méthode une fenêtre temporelle d'une milliseconde, il serait nécessaire de disposer d'une ligne à retard permettant un déplacement de 150 km !

Il y a d'autres désavantages liés à l'utilisation d'une ligne à retard pour de grandes dynamiques temporelles, comme par exemple le désalignement et la perte de mise au point. Les cubes rétro réflecteurs réduisent les problèmes de désalignement mais pas la perte de mise au point, qui

devient importante quand la plage spatiale balayée est une fraction significative du paramètre confocal du faisceau. Pour des applications où l'intensité lumineuse sur l'échantillon est critique et doit rester constante pendant le balayage, ce phénomène est fortement limitant.

Enfin, une autre limitation de la méthode de la ligne à retard est imposée par la vitesse et la fréquence de balayage qui restent modérées, principalement à cause des vibrations mécaniques. Or, les avantages d'un balayage rapide sont bien établis [3], avec notamment le décalage de la fréquence d'acquisition des données par rapport à la bande de bruit du laser. Un autre avantage lié à la vitesse de balayage est la possibilité de visualiser en temps réel les données acquises, ce qui permet à l'expérimentateur d'optimiser plus aisément l'expérience.

2.2.2 ASOPS : le balayage optique asynchrone

Une méthode alternative de balayage temporel entre les faisceaux pompe et sonde, qui a l'avantage de surmonter les limitations de la ligne à retard, est l'échantillonnage optique asynchrone ou ASOPS, pour ASynchronous Optical Sampling [2, 4, 5, 6, 7, 8, 9]. Le schéma de

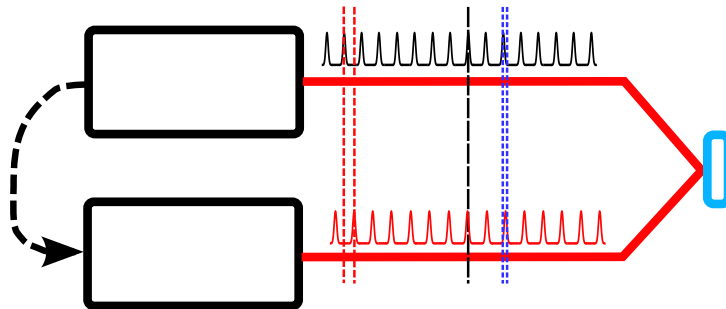


FIGURE 2.2 – Schéma de fonctionnement de l'ASOPS : le balayage temporel est réalisé grâce à la faible différence de fréquences de répétition des deux lasers. La ligne noire indique une coïncidence temporelle entre deux impulsions qui donne lieu à un retard nul, les lignes rouges et bleues indiquent deux retards différents entre deux couples d'impulsions. La flèche en pointillés entre les deux oscillateurs représente un éventuel asservissement en fréquence de répétition.

fonctionnement est synthétisé Figure 2.2. Au lieu d'un seul laser séparé en deux bras parfaitement synchrones et décalés temporellement, cette méthode utilise deux lasers opérant à deux fréquences de répétition légèrement différentes pour réaliser une détection stroboscopique du phénomène à mesurer. En effet, cette différence entre les fréquences cause un glissement contrôlé d'un train d'impulsions par rapport à l'autre avec un balayage répétitif des retards sondés, le retard entre les couples d'impulsions pompe et sonde augmentant de façon linéaire entre zéro et la période de pompe. Le principe de fonctionnement de l'ASOPS est illustré Figure 2.3. La

fréquence de répétition de la pompe est indiquée par f_1 , celle de la sonde par f_2 et la différence entre les deux est $\Delta f = f_1 - f_2$. Les courbes en rouge après chaque impulsion de pompe re-

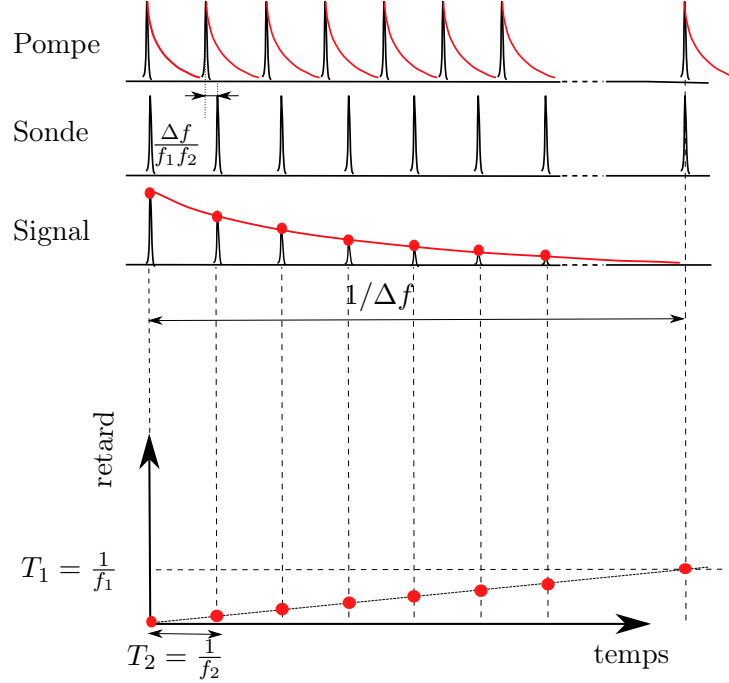


FIGURE 2.3 – *Principe de fonctionnement de l'ASOPS. Le signal échantillonné par les impulsions de sonde ayant un retard linéairement croissant par rapport aux impulsions de pompe, reconstruit la réponse ultra-rapide de l'échantillon sur une échelle temporelle étirée d'un facteur égal à $f_1/\Delta f$.*

présentent la réponse temporelle à mesurer - par exemple la population de l'état excité qui se répète périodiquement après chaque impulsion pompe. Chaque impulsion de sonde successive est retardée relativement à l'impulsion de pompe qui la précède d'une quantité liée à la fréquence de battement entre les deux lasers de sorte que le système est à chaque fois sondé à un retard croissant, ce qui est équivalent à incrémenter le chemin optique dans une ligne à retard conventionnelle. Le processus d'échantillonnage se répète à chaque fois que le retard cumulé est égal à la période du laser de pompe. La modulation du laser de sonde, liée par exemple à la création et à la décroissance de population dans l'état excité, se reproduit à la fréquence de battement du système Δf , comme illustré par le signal représenté Figure 2.3. En pratique, ce que l'échantillonnage par ASOPS produit est une transformée de l'axe des temps en un axe des retards, qui génère un étirement temporel du phénomène ultrarapide en étude par un facteur $f_1/\Delta f$. En ce sens, la technique ASOPS est une analogie optique de l'oscilloscope à échantillonnage. Comme conséquence de cette transformation des échelles temporelles, le phénomène ultra-rapide devient

aisément accessible aux systèmes électroniques d'acquisition de données.

La fréquence de balayage Δf peut être choisie arbitrairement et est uniquement limitée par la résolution temporelle souhaitée. La résolution temporelle est déterminée par la grandeur maximale parmi la durée d'impulsion, l'incrément du retard $\Delta f/(f_1 f_2)$, et la résolution temporelle limitée par la bande passante BW du système de détection du signal utilisé $\Delta f/(BW f_1)$. Des valeurs typiques pour des lasers Ti:Saphir sont une durée de 50-100 fs et un taux de répétition de 100 MHz, qui, pour garder l'incrément du retard inférieur à 100 fs, impose une fréquence de balayage inférieure à 1 kHz. Pour pallier cette limitation, de nombreuses équipes ont mis en place des expériences d'ASOPS en utilisant des lasers à taux de répétition de l'ordre du GHz [10, 11, 12, 13, 14]; cela permet en effet d'accéder à des taux de balayage plus rapides et de se débarrasser ainsi de toutes les sources de bruit au basses fréquences qui sont en général plus importantes. Enfin, les systèmes d'acquisition avec convertisseurs analogique-numérique à 14 bit ou plus, typiquement nécessaires pour mesurer à la limite du bruit du laser, présentent des bandes passantes pouvant être supérieures à 100 MHz, ce qui permet une résolution temporelle de l'ordre de 100 fs pour des valeurs typiques du taux de répétition et de la fréquence de balayage, comme par exemple respectivement 100 MHz et 1 kHz. Néanmoins, il s'agit ici de la résolution théorique, car la résolution effective peut être davantage limitée par la gigue temporelle entre les deux lasers, qui peut engendrer une déviation significative de l'évolution des retards par rapport à une simple loi linéaire. Dans le but de limiter cet inconvénient, presque toutes les expériences qui utilisent la technique de l'ASOPS stabilisent la différence de longueur entre les deux cavités avec des contrôles rétroactifs. Une façon répandue de réaliser cela est par l'utilisation d'un miroir monté sur une monture piézo-électrique dans un oscillateur laser et d'en asservir la position à l'aide d'une boucle à verrouillage de phase (PLL pour Phase Locked Loop). Les longueurs de cavité des deux oscillateurs sont rendues d'abord grossièrement équivalentes, avec la longueur de l'oscillateur asservi rendue finement ajustable par l'actuateur piézo-électrique. Un signal d'erreur est généré par un détecteur de phase entre les deux oscillateurs, qui compare la phase souhaitée à la phase réelle, et il est ensuite injecté dans un régulateur qui pilote le piézo-actuateur dans la cavité et qui ferme ainsi la boucle d'asservissement.

La méthode ASOPS est actuellement très utilisée dans de nombreuses applications différentes qui vont de la spectroscopie pompe-sonde ou du mélange à quatre ondes [7, 15, 16, 12, 17, 18], à la spectroscopie par transformée de Fourier dans le moyen infrarouge [9, 19] et dans l'infrarouge

lointain ou THz [20, 21, 22].

Un intérêt particulier a été suscité dans les dernières années par l'association de l'ASOPS aux technologies de peignes de fréquences [9, 23, 24, 25, 13, 26, 27]. Grâce à un contrôle très poussé des impulsions laser [28], obtenu par l'utilisation de techniques inspirées de la métrologie par peignes de fréquences [29], il est possible d'obtenir, en des temps d'acquisition très courts, de l'ordre de quelques microsecondes, des mesures spectrales ayant une résolution extrêmement élevée, de l'ordre de quelques GHz.

2.2.3 Le retard électronique

Dans beaucoup de cas, la technique du balayage asynchrone que nous venons de présenter a, parmi les nombreux avantages sur la méthode de la ligne à retard, celui d'élargir la fenêtre temporelle accessible, dans la mesure où elle correspond à la période du laser de pompe. En effet, pour toutes les applications utilisant des lasers femtosecondes conventionnels de taux de répétition de l'ordre de 100 MHz, les retards sondés peuvent ainsi atteindre la dizaine de nanosecondes, qui serait une valeur très délicate à obtenir avec une ligne à retard. Néanmoins, pour beaucoup d'échantillons, notamment biologiques, il est intéressant d'aller sonder des dynamiques de recombinaison d'états excités sur des échelles de temps encore plus longues, jusqu'à la milliseconde. Pour réaliser ce type d'études on a souvent recours à la technique dite du retard électronique, qui utilise deux sources laser amplifiées comme représenté Figure 2.4.

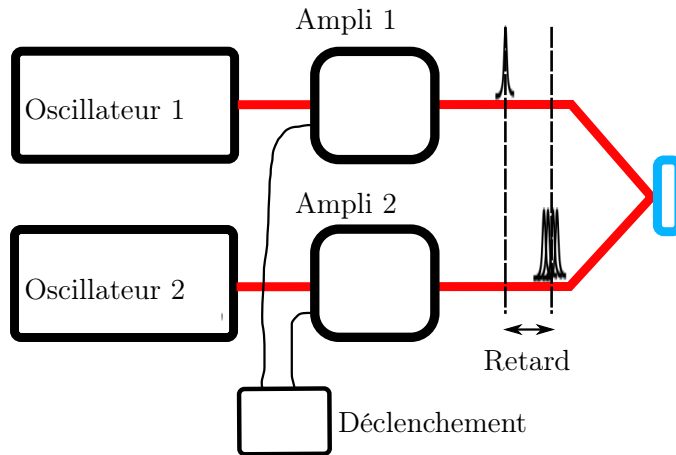


FIGURE 2.4 – Méthode de balayage temporel par déclenchement électronique.

Le processus d'amplification régénérative permet l'amplification de certaines impulsions extraites du train d'impulsions lumineuses ultrabrèves en provenance d'un oscillateur laser. L'am-

plificateur est lui aussi constitué d'une cavité résonnante dans laquelle l'impulsion à amplifier est injectée et piégée jusqu'à la complète extraction de l'énergie stockée dans le milieu amplificateur. L'ouverture et la fermeture de la cavité sont le plus souvent réalisées en associant un polariseur et une cellule de Pockels, qui est un dispositif équivalent à une lame d'onde dont le retard est piloté par une tension électrique [30].

Le balayage temporel est réalisé en décalant progressivement le déclenchement de l'amplification d'un des deux lasers. La période maximale d'étude est alors limitée par le taux de répétition des amplificateurs, souvent de l'ordre du kilohertz [31]. La Figure 2.5 montre un exemple de schéma de pilotage d'un système de balayage à retard électronique, inspiré de [1]. Le fonctionnement de chaque amplificateur laser nécessite un signal de déclenchement pour le

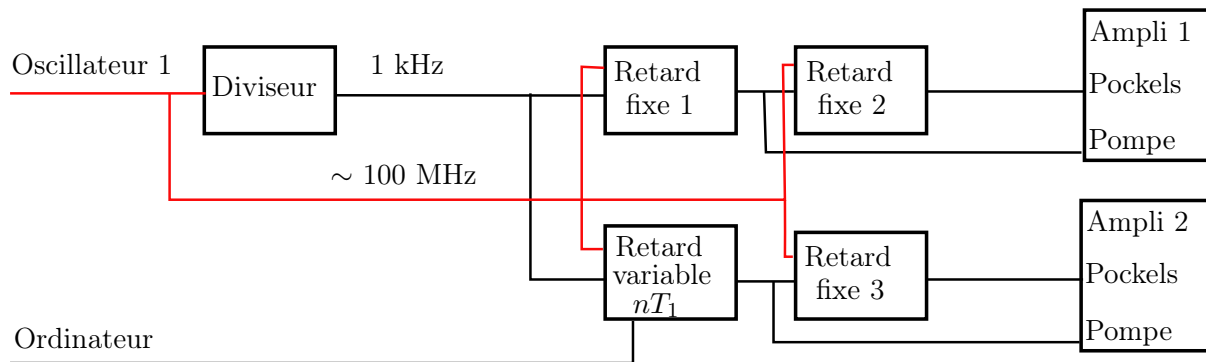


FIGURE 2.5 – Schéma fonctionnel de l'électronique de génération des signaux de déclenchement des amplificateurs (inspiré de [1]).

laser de pompe et un signal de déclenchement pour la cellule de Pockels. Un signal kilohertz commun est utilisé pour déclencher les deux systèmes : il est généré par un signal de photodiode dérivé d'un des deux oscillateurs (oscillateur 1 selon l'exemple en Figure 2.5), après passage à travers un diviseur digital qui en divise la fréquence par la valeur appropriée. À partir de ce signal, quatre déclenchements sont envoyés aux deux lasers de pompe et aux deux cellules de Pockels. Typiquement les générateurs de retard sont construits à partir de compteurs synchrones avec le signal issu du premier oscillateur, comme montré par les fils de connexion rouges de la Figure 2.5. Dans le cas général d'oscillateurs indépendants, la différence de taux de répétition naturellement présente entre eux génère une gigue temporelle (timing jitter) entre les impulsions amplifiées égale à la période de l'oscillateur le plus long, ce qui est généralement pour des lasers Ti:Saphir de l'ordre de la dizaine de nanoseconde. Ainsi le retard de l'impulsion en sortie de

l'amplificateur 2, est connu avec une incertitude de l'ordre de cette gigue, qui correspond donc à la résolution de mesure.

En pratique, pour l'étude de systèmes ayant une dynamique sur plusieurs ordres de grandeur (femtoseconde-milliseconde par exemple), il est fréquent d'avoir recours à des expériences complexes avec double banc de test : l'un par ligne à retard pour les mesures sub-nanoseconde et l'autre par décalage électronique pour les mesures plus longues, avec tout le désagrément dû à la nécessité de déplacer l'échantillon d'un banc à l'autre en conservant ses caractéristiques inaltérées et les conditions d'excitation inchangées [32].

2.2.4 Le retard électronique avec asservissement des oscillateurs

Une modification de la méthode du retard électronique permet d'améliorer sensiblement la résolution de mesure tout en gardant l'avantage de la longue période de balayage accessible. Comme illustré par la Figure 2.6, il s'agit d'introduire un verrouillage de phase entre les oscillateurs des deux sources laser asservies sur le même taux de répétition, selon la technique exposée en Section 2.2.2.

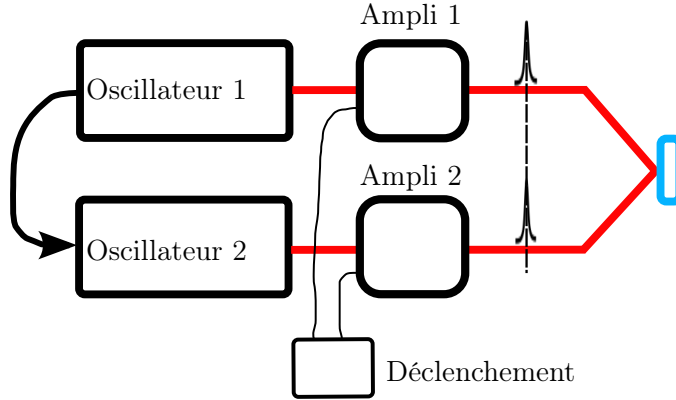


FIGURE 2.6 – *Méthode de balayage temporel par déclenchement électronique associée à l'asservissement des oscillateurs.*

En définitive, un balayage temporel fin, à l'intérieur de la période des oscillateurs, est réalisé par décalage de la phase relative entre les deux oscillateurs, tandis qu'un balayage grossier, par pas de la dizaine de nanosecondes et jusqu'à la période des lasers amplifiés, est réalisé par décalage du déclenchement d'un des amplificateurs. Le schéma de fonctionnement complet utilisé par [1] pour la mise en œuvre de cette méthode est montré Figure 2.7. Les signaux fournis par l'ordinateur sont le signal numérique, pour la communication des compteurs de déclenchement

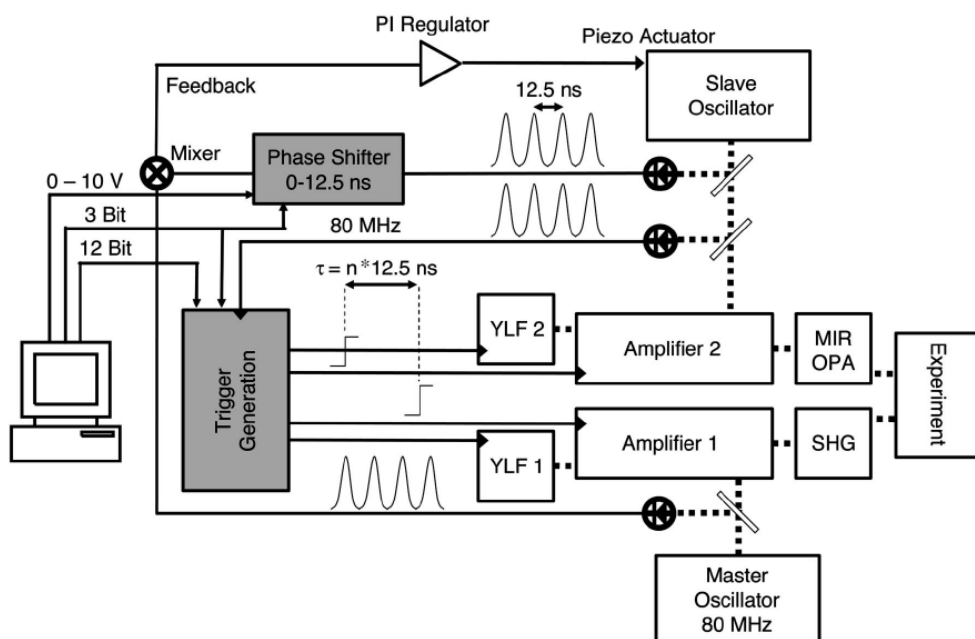


FIGURE 2.7 – Schéma de synchronisation et ajustement du retard entre deux systèmes laser femtosecondes (extrait de [1]).

des amplificateurs, selon le schéma présenté Figure 2.5, le signal analogique de phase pour le réglage de la boucle d'asservissement discrétisé sur trois pas plus grossiers communiqués par un signal numérique sur 3 bit. La résolution de mesure par retard électronique avec asservissement des oscillateurs qui a été démontrée expérimentalement est de l'ordre de la picoseconde [1, 33].

2.2.5 Conclusions

Nous venons de présenter l'état de l'art des différentes techniques actuellement utilisées pour la génération de couples d'impulsions laser ultra-brèves séparés d'un retard bien connu et variable, à la base des études de phénomènes ultra-rapides résolus en temps en particulier par spectroscopie pompe-sonde. La méthode de balayage temporel asynchrone, qui constitue l'alternative la plus diffusée à la méthode conventionnelle de ligne à retard optique, présente plusieurs avantages comme la réalisation du balayage sans déplacement de parties mécaniques, la grande vitesse d'enregistrement des signaux et la possibilité d'accéder à des fenêtres temporelles allant jusqu'à la période du laser. En contrepartie, les limitations de l'application classique de la méthode ASOPS sont liées à la nécessité d'avoir des oscillateurs de fréquence de répétition quasi-identiques ou de fréquences quasi-multiples [4, 34], ce qui demande l'utilisation d'oscillateurs

dédiés à l'expérience et oblige à une certaine rigidité très en amont dans la conception du montage, du moins pour ce qui concerne le choix des sources laser.

Le but de notre travail est précisément d'élargir le champ d'application du balayage asynchrone à des expériences utilisant des lasers à taux de répétition arbitraires, ce qui rend la méthode adaptable à des montages expérimentaux préexistants et ouvre en outre la voie à des mesures nouvelles par l'emploi de lasers très différents, comme par exemple les oscillateurs à dérive de fréquence. De plus nous voulons également élargir la fenêtre temporelle accessible au balayage asynchrone, réalisant des mesures avec des systèmes amplifiés et sondant ainsi des retards au-delà de la période de l'oscillateur laser. Pour cela une attention particulière est accordée à la méthode du retard électronique avec asservissement des oscillateurs, mais avec une volonté de proposer une méthode expérimentale beaucoup plus flexible et applicable à tous les systèmes laser Ti:Saphir conventionnels.

2.3 AD-ASOPS : le balayage asynchrone avec fréquences de répétition arbitraires

Nous allons démontrer une variante de l'ASOPS qui ne présente pas de limitations sur les fréquences de répétition des lasers utilisés et que nous avons appelée pour cela AD-ASOPS pour "Arbitrary Detuning ASynchronous Optical Sampling". Le principal avantage de l'AD-ASOPS consiste dans l'extrême flexibilité introduite et l'augmentation des opportunités d'expériences réalisables.

Comme le balayage asynchrone conventionnel, la méthode AD-ASOPS est basée sur la régularité remarquable du taux de répétition des oscillateurs. Parmi les différentes façons d'exploiter cette propriété, celle qui fait l'objet principal de ce manuscrit consiste dans la détection de coïncidences temporelles entre les trains d'impulsions afin de remonter à l'évolution temporelle de la phase relative entre les deux oscillateurs, que l'on appellera loi de phase.

La détection des coïncidences temporelles peut être réalisée de manière optique ou électronique. Dans la première approche il s'agit d'événements de coïncidence entre les impulsions laser elles-mêmes qui seront peu nombreux mais très précis. La loi de phase est alors obtenue par une simple interpolation linéaire. Dans la deuxième approche, les coïncidences sont recherchées entre des signaux électroniques générés à partir des trains d'impulsions. Elles seront beaucoup moins

2.3. AD-ASOPS : le balayage asynchrone avec fréquences de répétition arbitraires

précises mais d'autant plus nombreuses et la loi de phase pourra alors être calculée par régression linéaire. Pour la mise en œuvre de l'AD-ASOPS nous sommes en train de développer ces deux approches, qui peuvent être intéressantes selon les conditions d'application et la résolution voulue, mais pour l'instant nous nous sommes concentrés essentiellement sur la méthode par coïncidences optiques qui est actuellement beaucoup plus aboutie. Dans les perspectives futures nous envisageons également une méthode par mesure directe des retards, mais ceci dépasse le cadre du travail que nous souhaitons présenter ici.

Afin d'exposer le principe de fonctionnement de l'AD-ASOPS, considérons deux lasers de taux de répétition f_1 et f_2 . $T_1 = 1/f_1$ et $T_2 = 1/f_2$ sont les périodes respectives de chaque train d'impulsions. Nous appelons le laser de fréquence $f_1 < f_2$ la pompe et le laser de fréquence f_2 la sonde. Dans la méthode ASOPS conventionnelle, dont le principe de fonctionnement est représenté Figure 2.8(a), les deux fréquences sont très proches : $f_1 \sim f_2$. En conséquence, au cours du temps, le retard temporel entre les impulsions successives de pompe et de sonde subira un faible incrément linéaire. Si, par hypothèse, les deux trains d'impulsions sont initialement en coïncidence temporelle, jusqu'à ce qu'une nouvelle coïncidence se produise, le retard temporel entre les couples d'impulsions pompe-sonde successifs obéira à la simple loi suivante :

$$\Delta t_n = n(T_2 - T_1) \quad (2.2)$$

où n est le numéro de l'impulsion de sonde, $n = 0$ correspondant à la coïncidence initiale. L'intervalle d'échantillonnage est alors égal à $|T_2 - T_1| = \Delta f / (f_1 f_2)$, où $\Delta f = |f_2 - f_1|$ est la différence de taux de répétition entre les deux oscillateurs. Il est intéressant de remarquer que Δf est également la fréquence de balayage puisque la coïncidence suivante se produit après un temps égal à $1/\Delta f$. Étant donné que dans la méthode ASOPS l'intervalle d'échantillonnage détermine la résolution temporelle, il est nécessaire de choisir une fréquence de balayage qui soit très faible par rapport au taux de répétition du laser, typiquement de l'ordre du Hz ou du kHz.

Dans la variante AD-ASOPS, f_1 et f_2 peuvent avoir des valeurs arbitraires, avec une différence pouvant aller sans problème jusqu'à quelques dizaines de MHz. Par conséquent les retards temporels entre les impulsions varient de façon beaucoup plus importante, conservant néanmoins une loi linéaire, mais avec une pente qui peut être beaucoup plus élevée, comme le montre la droite bleue Figure 2.8(b). Le retard temporel évolue encore selon une loi similaire à celle décrite par l'éq. 2.2, mais avec la différence que maintenant, étant donné que le retard ne peut pas

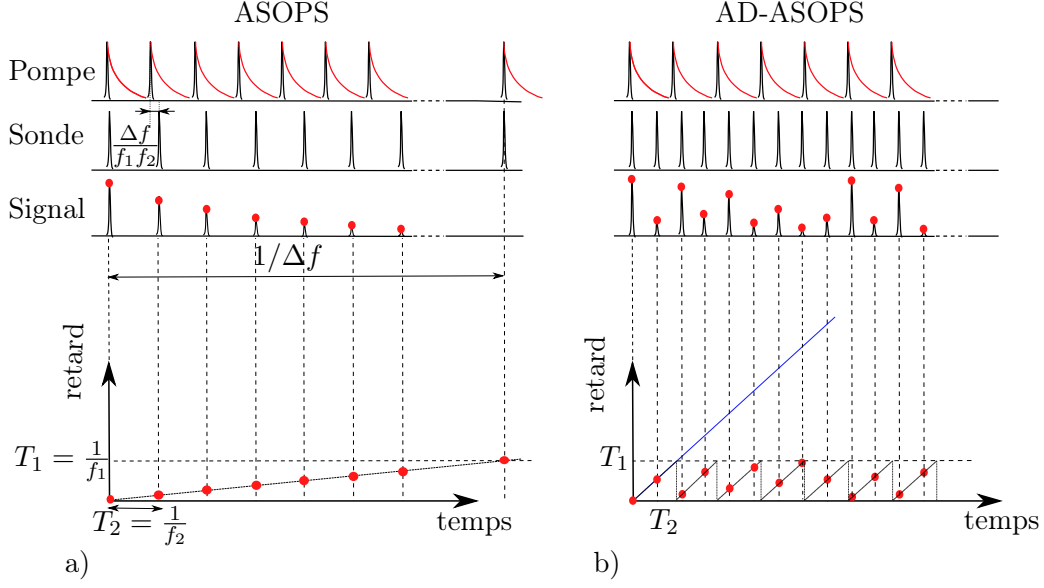


FIGURE 2.8 – (a) Principe de fonctionnement de l'ASOPS conventionnel, basé sur deux oscillateurs femtosecondes de taux de répétition très proches, qui génèrent une lente incrémentation linéaire du retard pompe-sonde. (b) Dans l'AD-ASOPS le retard augmente de façon beaucoup plus rapide mais toujours parfaitement linéaire, quoique repliée dans l'intervalle $[0, T_1]$.

être supérieur à la période du laser de pompe, la valeur effective du retard doit être repliée à l'intérieur de l'intervalle $[0, T_1]$. Cela peut être ainsi exprimé par :

$$\Delta t_n = n(T_2 - T_1)[T_1] = nT_2[T_1] \quad (2.3)$$

où $[T_1]$ représente l'opération modulo T_1 . En remplaçant T_2 par l'expression équivalente $f_1/f_2 \cdot T_1$ l'équation précédente devient :

$$\Delta t_n = n \frac{f_1}{f_2} T_1 [T_1]. \quad (2.4)$$

En connaissant le rapport des fréquences des deux lasers nous sommes alors capables de remonter au retard de chaque impulsion de sonde n .

Dans la pratique, toutefois, le système d'acquisition AD-ASOPS évalue le rapport entre les fréquences laser en détectant les coïncidences temporelles entre les deux lasers et en comptant en même temps le nombre d'impulsions écoulées pour chaque train d'impulsions, que nous appellerons respectivement N_1 et N_2 . Soit δt la valeur de la résolution de l'instrument pour la détermination des coïncidences. Comme illustré par le schéma de Figure 2.9, la relation exacte entre les compteurs des impulsions laser aux coïncidences et les périodes laser est alors $N_2 T_2 = N_1 T_1 + \delta t$,

2.3. AD-ASOPS : le balayage asynchrone avec fréquences de répétition arbitraires

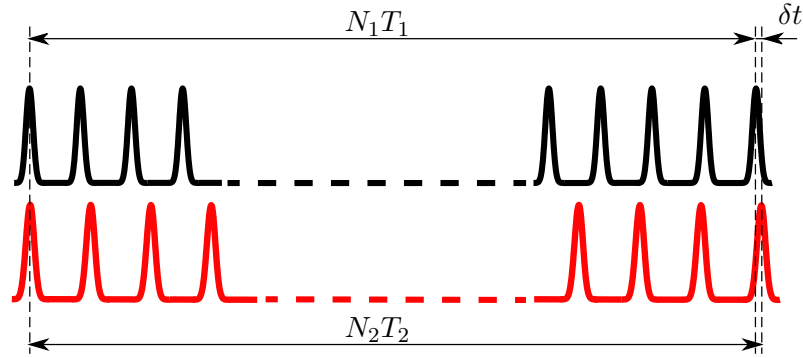


FIGURE 2.9 – Schéma illustrant la relation entre les compteurs des impulsions laser aux coïncidences et les périodes laser.

qui, en divisant par N_2T_1 , peut être réécrite comme :

$$\frac{T_2}{T_1} = \frac{f_1}{f_2} = \frac{N_1}{N_2} + \frac{\delta t}{T_1N_2}. \quad (2.5)$$

En d'autres termes, le système réalise une approximation du rapport entre les fréquences par le rapport entre les compteurs :

$$\frac{f_1}{f_2} \approx \frac{N_1}{N_2}. \quad (2.6)$$

Faisons l'hypothèse d'une résolution $\delta t = 1$ ps, ce qui est une valeur satisfaisante pour beaucoup d'expériences visées par notre méthode et en accord avec les principales méthodes concurrentes [1, 33]. Dans le cas de deux oscillateurs Ti:Saphir conventionnels, les fréquences des deux lasers sont telles que le taux de coïncidence moyen est de l'ordre d'1 kHz, ce qui signifie que $N_1T_1 = N_2T_2 \approx 1$ ms. Les valeurs des compteurs aux coïncidences, obtenues en divisant par la période des lasers (~ 10 ns), sont alors d'environ 10^5 pour les deux lasers. Nous pouvons ainsi évaluer le rapport $\delta t/T_1N_2 \approx 1$ ps/1 ms = 10^{-9} , qui correspond à la résolution avec laquelle la méthode AD-ASOPS peut déterminer le rapport des fréquences laser pour les paramètres expérimentaux indiqués.

Maintenant que nous avons évalué l'imprécision commise lors de l'approximation du rapport des fréquences par le rapport des compteurs, nous sommes en mesure d'introduire l'équation fondamentale de la méthode AD-ASOPS qui, découlant directement de l'éq. 2.4, exprime le retard associé à l'impulsion de sonde numéro n comme suit :

$$\Delta t_n = \left\{ n \frac{N_1}{N_2} \right\} T_1 \quad (2.7)$$

où $\{x\}$ représente la partie fractionnaire de x et n est compris dans l'intervalle $[0, N_2[$. Il en résulte que, afin de connaître le retard associé à chaque impulsion de sonde il sera nécessaire et suffisant de connaître les compteurs d'impulsions N_1 et N_2 , mesurés par la combinaison d'un système de détection de coïncidences et un algorithme de comptage d'impulsions, et la période T_1 du laser de pompe, déterminée par une mesure de la fréquence du laser avant chaque expérience, à l'aide d'un fréquencemètre.

Pour effectuer l'accumulation des données, on divise l'axe des retards en intervalles temporels dont la largeur est choisie par l'utilisateur de façon à obtenir un échantillonnage correct du signal expérimental. Ainsi le signal de sonde obtenu par l'impulsion numéro n est rangé dans la case temporelle la plus proche de la valeur de retard Δt_n calculée pour n variant entre 0 et $N_2 - 1$. L'ensemble de cette procédure est ensuite répété pour chaque paire de coïncidences. Même si le remplissage des cases évolue de manière apparemment quasi-aléatoire, contrairement au remplissage séquentiel de l'ASOPS, un ensemble de données satisfaisant peut être obtenu après un temps d'acquisition approprié.

Comme pour la méthode ASOPS conventionnelle, la précision dans la détermination des retards est limitée par deux facteurs : d'une part l'incertitude de la détection des coïncidences temporelles et d'autre part la déviation de l'évolution du système entre deux coïncidences par rapport à l'hypothèse de linéarité, ce qui est une conséquence de la gigue des oscillateurs laser. Par contre, dans l'AD-ASOPS, l'intervalle d'échantillonnage n'est pas dépendant de la différence entre les fréquences de répétition des lasers, qui n'a donc pas d'influence sur la résolution de la mesure. Néanmoins c'est la valeur du rapport entre les deux fréquences qui doit faire l'objet de deux réflexions majeures. En premier lieu ce rapport détermine l'intervalle moyen entre deux coïncidences, qui est lié, nous venons de le voir, à la résolution de la mesure. Une étude détaillée de cette question est reportée à la Section 4.1.2. Ensuite, le même rapport et notamment le plus grand commun diviseur (PGCD) entre le numérateur et le dénominateur joue un rôle dans l'évolution de l'échantillonnage. Nous approfondirons ce sujet dans le chapitre suivant (Section 3.4).

Notons enfin qu'une méthode proche de l'AD-ASOPS a été développée en télécommunications pour la mesure de ce que l'on appelle le diagramme de l'oeil par échantillonnage optique

2.3. AD-ASOPS : le balayage asynchrone avec fréquences de répétition arbitraires

asynchrone de signaux numériques [35]. Comme dans notre méthode, le signal est enregistré de façon brute et reconstruit *a posteriori* par la détermination de la phase temporelle de chaque acquisition. Le retard de chaque échantillon est évalué en calculant par transformée de Fourier discrète la fréquence de battement entre le signal échantillonné et le signal échantillonnant. En principe cette méthode pourrait être appliquée au cas d'expériences pompe-sonde, malgré le fait que la nature des signaux risque de rendre le traitement extrêmement complexe.

Mise en œuvre expérimentale de l'AD-ASOPS

Sommaire

3.1	Détection des coïncidences	22
3.2	Description du montage expérimental	27
3.2.1	Détection des coïncidences	27
3.2.2	Comptage des impulsions	30
3.2.3	Calcul des retards	32
3.3	Procédure expérimentale	33
3.4	Distribution des retards sondés	37
3.4.1	Les retards possibles	42
3.4.2	La résolution de la mesure	43
3.4.3	Probabilité des PGCD entre N_1 et N_2	44
3.4.4	Distribution des compteurs aux coïncidences	46
3.5	Illustration de la méthode sur une dynamique nanoseconde	51

L'objectif de ce chapitre est de présenter les choix techniques que nous avons effectués pour mettre en œuvre la méthode AD-ASOPS. Comme annoncé dans l'introduction, nous distinguons l'AD-ASOPS MHz et l'AD-ASOPS kHz selon que l'application de la méthode concerne deux oscillateurs ou deux systèmes amplifiés. Dans les deux cas, rappelons que, pendant qu'une expérience de type pompe-sonde est enregistrée, trois éléments sont nécessaires pour pouvoir reconstruire *a posteriori* le signal ordonné en fonction du retard entre les deux lasers :

1. la détection des coïncidences temporelles entre les deux trains d'impulsions des oscillateurs,
2. le comptage du nombre d'impulsions écoulées pour chacun des deux oscillateurs entre deux coïncidences,

3. le calcul du retard correspondant à chaque point d'acquisition, qui se déduit de la fréquence de répétition de la pompe.

Chacun de ces éléments est associé à des enjeux différents qui ont motivé les solutions techniques retenues pour la mise en œuvre et qui sont discutées dans la suite du chapitre.

Nous voulons attirer l'attention sur le fait que, jusqu'au chapitre 6, quand nous parlerons d'AD-ASOPS sans spécifier la fréquence d'utilisation, il sera sous entendu l'AD-ASOPS MHz. Néanmoins la plupart des principes de mise en oeuvre de l'AD-ASOPS MHz sont directement généralisables à l'AD-ASOPS kHz, dont les particularités seront présentées plus en détail au chapitre 6.

3.1 Détection des coïncidences

La détection des coïncidences entre impulsions ultracourtes est un enjeu commun à de nombreuses applications. Par exemple, la technique ASOPS conventionnelle nécessite également une détection des coïncidences entre les lasers de pompe et de sonde afin de déterminer le zéro du signal enregistré et déduire ensuite tous les retards successifs. Typiquement cette détection est réalisée à travers l'exploitation d'effets non-linéaires, comme la somme de fréquences [8, 16, 10]. Cette méthode est très générale et pourrait bien évidemment être utilisée aussi dans le cas de l'AD-ASOPS. Néanmoins nous avons choisi d'utiliser le fait que les lasers à notre disposition se recouvrent spectralement, et nous avons donc mis en place une méthode linéaire¹. Elle consiste dans la recombinaison colinéaire des faisceaux provenant des deux lasers utilisés comme pompe et sonde pour mesurer les interférences entre impulsions laser individuelles.

Considérons le champ électrique réel $E(t)$ d'une impulsion laser et sa transformée de Fourier inverse $E(\omega)$ définie par

$$E(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) \exp(i\omega t) dt \quad (3.1)$$

Nous associons également au champ réel $E(t)$ un champ complexe $\mathcal{E}(t)$ défini de sorte que $E(t) = \text{Re}\mathcal{E}(t)$, avec la condition que la fonction $\mathcal{E}(\omega)$ soit identiquement nulle pour ω négatif. On note

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{A}(t) \exp(i\varphi_0 - i\omega_0 t) \quad (3.2)$$

où $\mathcal{A}(t)$ est l'amplitude complexe, supposée réelle en $t = 0$ et ω_0 est la fréquence porteuse. Le

1. Les raisons pour un tel choix seront discutées en détail à la fin de cette section.

terme de phase φ_0 est appelé phase de la porteuse, ou phase absolue, ou encore phase CEP pour Carrier-Envelope Phase. Il décrit la différence de phase entre l'enveloppe et la porteuse. Remarquons qu'en raison de la dispersion chromatique pendant la propagation de l'impulsion dans la cavité laser, il y a une différence entre la vitesse de groupe, qui correspond à la vitesse de propagation de l'enveloppe, et la vitesse de phase, qui correspond à la vitesse de propagation de la porteuse. Cette différence génère une phase absolue qui varie d'une impulsion à l'autre [36], comme montré en Figure 3.1.

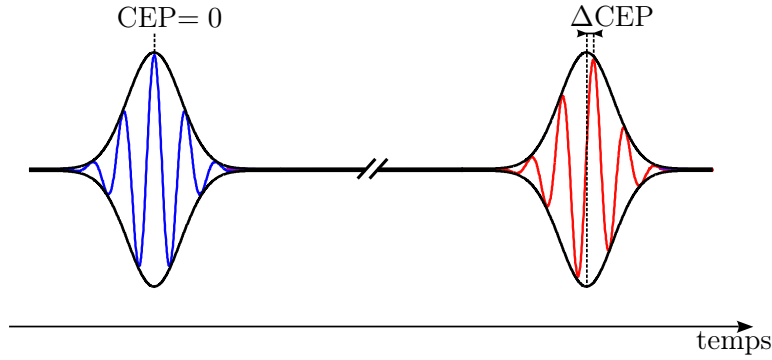


FIGURE 3.1 – Représentation du champ électrique associé à deux impulsions ultracourtes comme produit d'une enveloppe et d'une porteuse. La courbe en rouge et la courbe en bleu représentent deux exemples d'impulsions issues du même oscillateur mais ayant une phase absolue différente à cause de la dispersion chromatique.

Le champ électrique réel à la sortie d'un interféromètre où sont combinées deux impulsions $E_1(t)$ et $E_2(t)$ est la somme $E_{tot}(t) = E_1(t) + E_2(t - \tau)$, où τ est le retard entre les deux impulsions. Pour un détecteur dont le temps de réponse est lent par rapport à la durée des impulsions, tout en étant suffisamment rapide pour permettre de sélectionner une seule impulsion de chacun des deux trains d'impulsions, la quantité mesurée est simplement proportionnelle à l'énergie totale contenue dans la somme des deux champs associés à une seule impulsion du train d'impulsions et pourra donc s'écrire

$$S(\tau) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}_{tot}(t)|^2 dt. \quad (3.3)$$

En passant dans l'espace des fréquences à l'aide du théorème de Parseval-Plancherel, on obtient

$$S(\tau) = \frac{1}{2} \int_0^{+\infty} |\mathcal{E}_{tot}(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi}. \quad (3.4)$$

En remplaçant le champ total par sa définition, et en développant le carré du module de la somme, on obtient

$$\begin{aligned}
 S(\tau) &= \frac{1}{2} \int_0^{+\infty} |\mathcal{E}_1(\omega) + \mathcal{E}_2(\omega)e^{i\omega\tau}|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\
 &= \frac{1}{2} \int_0^{+\infty} |\mathcal{E}_1(\omega)|^2 + |\mathcal{E}_2(\omega)|^2 + \mathcal{E}_1^*(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)e^{i\omega\tau} + \mathcal{E}_1(\omega)\mathcal{E}_2^*(\omega)e^{-i\omega\tau} \frac{d\omega}{2\pi} \\
 &= \text{Cste} + \frac{1}{2} \int_0^{+\infty} \mathcal{E}_1^*(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)e^{i\omega\tau} \frac{d\omega}{2\pi} + c.c.
 \end{aligned} \tag{3.5}$$

Posons $f(\omega) = \mathcal{E}_1^*(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)$, grandeur dont la transformée de Fourier est la fonction de corrélation entre les deux champs

$$f(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}_1^*(t)\mathcal{E}_2(t-\tau)dt = \int_0^{+\infty} \mathcal{E}_1^*(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)e^{i\omega\tau} \frac{d\omega}{2\pi} \tag{3.6}$$

Le signal mesuré s'écrit alors

$$S(\tau) = \text{Cste} + \text{Re } f(\tau). \tag{3.7}$$

Il donne donc directement accès à la fonction de corrélation entre les deux champs électriques. Il faudrait *a priori* considérer les champs en sortie de l'interféromètre, mais remarquons que l'expression $f(\omega) = \mathcal{E}_1^*(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)$ nous permet d'affirmer que la fonction de corrélation ne dépend que de la différence de phases spectrales entre les deux impulsions. Dans le cas d'un interféromètre où la phase spectrale accumulée est la même dans chacun des deux bras, la fonction de corrélation en sortie de l'interféromètre sera donc identique à celle que l'on pourrait calculer avec les caractéristiques des impulsions à l'entrée de l'interféromètre. En d'autres termes on pourra négliger la dispersion subie par les impulsions dans l'interféromètre, tant qu'elle est identique dans les deux bras. C'est tout l'intérêt d'utiliser une mesure linéaire.

Nous pouvons enfin exprimer le signal en fonction de $g(\tau)$, fonction de corrélation des enveloppes :

$$S(\tau) = \text{Cste} + \text{Re } g(\tau) \exp(i\Delta\varphi_0 - \omega_0\tau) \tag{3.8}$$

Le résultat obtenu met en évidence l'oscillation du signal à la fréquence de la porteuse ainsi que l'influence de $\Delta\varphi_0$, différence des phases des porteuses des deux oscillateurs. Or si nous considérons des couples d'impulsions provenant de deux lasers différents, il est clair que la relation entre leur phase absolue sera en général aléatoire et variable d'un couple à l'autre.

Évaluons maintenant le signal d'interférence entre deux impulsions individuelles produites par les lasers du système AD-ASOPS, en nous appuyant sur la Figure 3.2. Si les deux impulsions ne se superposent pas temporellement le signal total mesuré sera simplement la somme incohérente des intensités des deux impulsions laser prises individuellement. Par contre, si les deux impulsions se superposent temporellement, l'interaction cohérente entre elles générera un phénomène d'interférence dont l'amplitude, dépendant de leur phase relative, sera, pour ce que nous venons de voir, aléatoire et variable. Considérons d'abord les deux impulsions dont le champ est

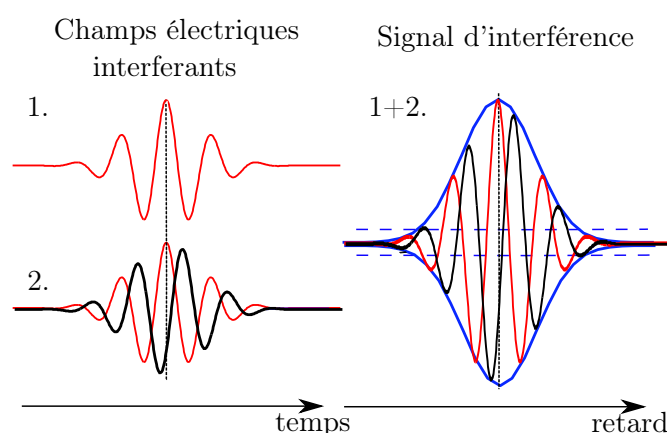


FIGURE 3.2 – Détection de coïncidences par interférence linéaire. En (1.+2.) sont montrés les signaux d'interférence en fonction du retard entre les impulsions illustrées en (1.) et (2.). La courbe rouge en (1.+2.) correspond à l'interférence entre deux impulsions ayant une phase relative nulle et représentées en rouge en (1.) et (2.). La courbe noire en (1.+2.) correspond à l'interférence entre deux impulsions ayant une phase relative non nulle et représentées en rouge en (1.) et en noir en (2.). L'enveloppe en bleu délimite la surface à l'intérieur de laquelle sont situés tous les signaux d'interférence possibles.

représenté par les courbes rouges sur la partie gauche de la figure en (1.) et (2.). Elles ont une différence de phase absolue et de retard nuls, ce qui donne lieu à une interférence constructive qui produit le maximum absolu du signal sur la partie droite de la figure (1.+2.). Les mêmes impulsions, décalées temporellement, produiraient un signal dont la valeur est illustrée en fonction du retard par la courbe rouge des signaux d'interférences. Considérons maintenant l'interférence entre l'impulsion schématisée par la courbe rouge en (1.) et une impulsion ayant une phase absolue différente comme par exemple montré par la courbe noire en (2.). Dans ce cas, selon le retard, le signal d'interférence peut prendre une valeur quelconque le long de la courbe d'interférence marquée en noir en (1.+2.). En conclusion, le signal d'interférence sera en général situé de façon

aléatoire à l'intérieur de l'enveloppe indiquée par la ligne bleue : dans la majorité des cas nous serons en présence d'interférences constructives ou destructives, même si, dans certains cas particuliers - par exemple quadrature de phase et retard nul - le terme oscillatoire de l'éq. 3.8 vaudra zéro et le signal sera la somme des deux signaux individuels comme dans le cas incohérent. En d'autres termes, après soustraction du terme constant, la valeur absolue du signal d'interférence sera la plupart du temps supérieure à une certaine valeur de référence et il suffira de considérer qu'une coïncidence temporelle est détectée à chaque fois que le signal mesuré dépasse un certain seuil.

Il nous semble important de souligner qu'il s'agit bien de l'interférence entre deux impulsions individuelles de lasers différents et non pas entre deux faisceaux laser différents. Dans ce dernier cas en effet, le signal mesuré est la moyenne des $S(\tau)$ produits par chaque paire d'impulsions en provenance des deux lasers : puisque les termes variables aléatoirement avec $\Delta\varphi_0$ ont une valeur moyenne nulle, le signal mesuré est tout simplement égal à la moyenne des sommes des intensités des deux impulsions laser individuelles. Pour cette raison il est parfois dit de façon impropre que deux lasers différents n'interfèrent pas entre eux même si l'interférence entre deux impulsions individuelles est parfaitement mesurable [37].

En conclusion, la raison pour laquelle notre choix de méthode de détection des coïncidences s'est arrêté sur les interférences linéaires est la simplicité de mise en œuvre, notamment grâce à la possibilité d'utiliser la propagation dans les fibres optiques. En effet, l'interférence entre deux impulsions réalise une corrélation du premier ordre qui, comme discuté plus haut, est sensible à la différence de phase et non pas à la phase spectrale en soi [38, 39]. Pour cette raison la fenêtre temporelle de détection des coïncidences est liée à la durée de la fonction de corrélation, mais elle est insensible à la durée des impulsions interférantes, qui dans notre expérience dépasse typiquement les 10 ps après propagation dans une fibre de 10 m. La seule vérification à faire dans notre système fibré est que les fibres parcourues par les impulsions en entrée d'interféromètre soient de la même longueur pour que la différence de phase spectrale soit bien nulle.

Nous allons maintenant présenter le montage expérimental pour la démonstration de l'AD-ASOPS, ce qui nous permettra de continuer notre discussion sur la détection des coïncidences de manière plus détaillée et quantitative.

3.2 Description du montage expérimental

Les différentes expériences qui seront présentées dans ce manuscrit ont été réalisées avec plusieurs lasers différents dans le but de montrer la généralité de la méthode ainsi que son extrême flexibilité, les couples de lasers utilisés à chaque fois pouvant même être situés dans deux salles expérimentales différentes. Le tableau 3.1 présente les différents oscillateurs utilisés. Dans la suite du texte, ils seront distingués par leur fréquence de répétition.

Oscillateur	Taux de répétition [MHz]
Synergy PRO (Femtolasers) - 15 fs	74.5
Fait-maison - 50 fs	93.0
Femtosource XL500 (Femtolasers) - 50 fs	5.1
Vitesse (dans Libra, Coherent) - 100 fs	80.1
Mai-Tai (dans Hurricane, Spectra Physics) - 100 fs	79.9

TABLE 3.1 – Table des différents oscillateurs utilisés dans les expériences présentées dans le manuscrit.

Pour tous, il s'agit d'oscillateurs femtosecondes Ti:Saphir parmi lesquels trois sont des lasers commerciaux ayant des taux de répétition standards autour de 80 MHz (Synergy Pro, Vitesse et Mai-Tai). Un oscillateur a été développé au laboratoire et comporte une fréquence de 93.0 MHz. Enfin le Femtosource XL500 est un oscillateur CPO (oscillateur à impulsions à dérive de fréquence - chirped pulse oscillator) qui se distingue des autres par sa fréquence beaucoup plus basse, égale à 5.1 MHz. Ce groupe de lasers testés représente une large part des différentes possibilités existantes pour la réalisation d'expériences pompe-sonde avec des lasers Ti:Saphir. Enfin les deux oscillateurs Vitesse et Mai-Tai sont intégrés dans deux ensembles laser amplifiés : le Libra (Coherent) et le Hurricane (Spectra Physics) respectivement. Ceux-ci ont été utilisés pour les expériences au kHz qui seront présentées au Chapitre 6.

Le montage expérimental est illustré Figure 3.3. Le balayage asynchrone est réalisé avec deux lasers femtosecondes différents, qui peuvent être situés à proximité, aussi bien que dans deux salles différentes.

3.2.1 Détection des coïncidences

Pour la détection des coïncidences, une petite fraction de chaque faisceau laser est amenée sur une même table d'expérience par deux fibres optiques monomodes de même longueur, tandis

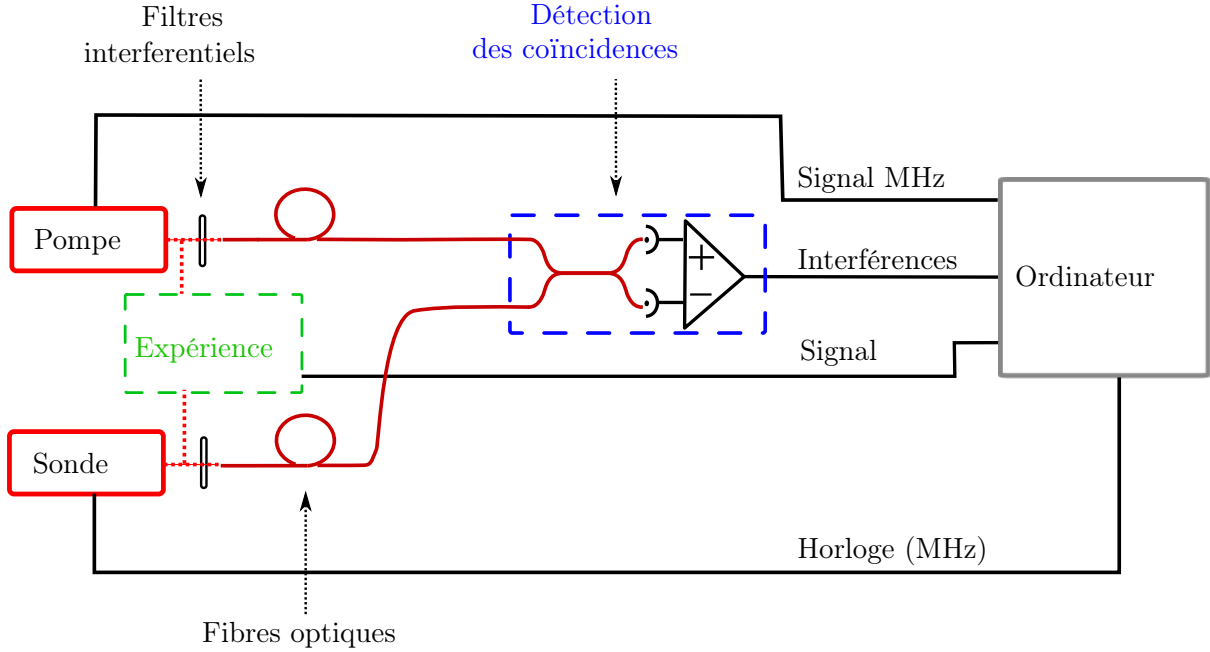


FIGURE 3.3 – Montage expérimental des expériences de démonstration et caractérisation de la méthode AD-ASOPS.

que les faisceaux principaux nécessaires à l'expérience pompe-sonde, symbolisée par le rectangle en pointillé vert, seront amenés à l'échantillon par un chemin optique dans l'air afin de conserver la durée ultrabrève des impulsions. Un coupleur fibré (Thorlabs, FC850-40-50-APC) recombine les impulsions des lasers pompe et sonde envoyées vers la détection des coïncidences (rectangle en pointillé bleu). Le signal d'interférence résultant, montré par le schéma de la Figure 3.4, est mesuré directement par un détecteur différentiel (Thorlabs, PDB 130A-AC), qui permet de doubler l'amplitude du signal mesuré par l'exploitation du déphasage de π entre les deux bras du coupleur, et d'annuler la partie constante du signal, du moins en théorie. Le signal analogique est ensuite converti en données digitales avec une carte d'acquisition analogique/digitale à 210 MS/s et 14-bit (Innovative Integration), déclenchée par un signal d'horloge à la fréquence f_2 généré par le laser sonde. Il est enfin comparé au seuil de coïncidence choisi afin de déterminer, pour chaque impulsion d'horloge, si le système est en état de coïncidence ou pas.

Avec ce montage, certains événements de coïncidence sont ratés à chaque fois que les deux impulsions sont en quasi-quadrature de phase. Il serait possible d'éviter cet inconvénient en utilisant un interféromètre à double quadrature [24, 40], mais nous avons jugé préférable d'utiliser le montage plus simple présenté ici et de tolérer une faible diminution du taux de coïncidences

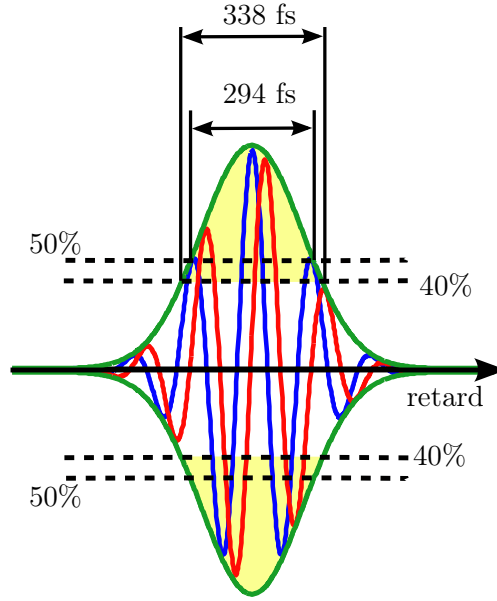


FIGURE 3.4 – *Signal d'interférence indiquant une durée des coïncidences, ou temps de cohérence, égale à 294 fs pour un seuil fixé à 50% de la valeur maximum, ou 338 fs pour un seuil à 40%. La surface en jaune indique les points de mesure donnant lieu à une détection de coïncidence.*

détectées. En particulier avec un seuil fixé typiquement à 40% du signal maximum environ 60% de toutes les coïncidences sont détectées. Une discussion plus exhaustive de la relation entre le niveau de seuil et le pourcentage de coïncidences détectées est reportée Section 4.1.1.1.

Pour déterminer la fenêtre de détection des coïncidences il est nécessaire de déterminer la durée de la fonction de corrélation $f(\tau)$. Celle-ci peut être évaluée à partir du produit des intensités spectrales $I_1(\omega)$ et $I_2(\omega)$ des deux impulsions. À partir des spectres mesurés expérimentalement nous avons pu calculer, pour les différents couples de lasers utilisés, la largeur spectrale à mi-hauteur de ce produit : $\Delta\nu_{1/2}(I_1 I_2) = 3.0$ THz FWHM (pour Full Width at Half Maximum). Cette valeur est quasiment la même pour tous les lasers testés et est beaucoup plus faible que les largeurs spectrales initiales. En effet, deux filtres interférentiels ont été placés juste en face de l'entrée des fibres optiques pour que les deux spectres se recouvrent correctement et que le contraste du signal d'interférence soit ainsi augmenté. Considérant un profil gaussien, une valeur de seuil fixée à 40% du maximum correspond à une fenêtre temporelle de 338 fs. Les détails du calcul de la largeur de la fenêtre de détection des coïncidences sont reportés section 4.1.1.1.

Nous pouvons observer que le choix du seuil de détection joue un rôle important pour deux paramètres de la mesure : le taux de coïncidences détectées et la largeur temporelle de la fenêtre de détection. Ces deux paramètres, comme cela sera analysé de façon plus détaillée dans la

section 4.1.2, conditionnent à leur tour la résolution de la mesure. Il nous suffira pour le moment de remarquer que le choix d'une valeur de seuil à 40% a été fait comme compromis optimal dans la plupart des expériences.

Jusqu'ici nous avons essentiellement discuté la réalisation de l'étape de détection des coïncidences selon la synthèse de la méthode AD-ASOPS reportée en début de chapitre. Les deux autres étapes de comptage des impulsions écoulées entre deux coïncidences et de calcul des retards sont réalisées par ordinateur.

3.2.2 Comptage des impulsions

Dans le cas MHz, le comptage des impulsions est assuré à l'aide de la carte d'acquisition Innovative Integration, dont le signal d'horloge est directement piloté par un signal de photodétection produit par le laser de sonde, comme représenté Figure 3.3. Ainsi, le numéro d'un l'échantillon d'acquisition donné correspond directement à la valeur du compteur du laser de sonde. Pour le laser de pompe, un diviseur de fréquence est utilisé pour produire un signal basculant entre deux valeurs à la fréquence $f_1/2$, qui sera appelé signal divisé par la suite. Comme montré Figure 3.5,

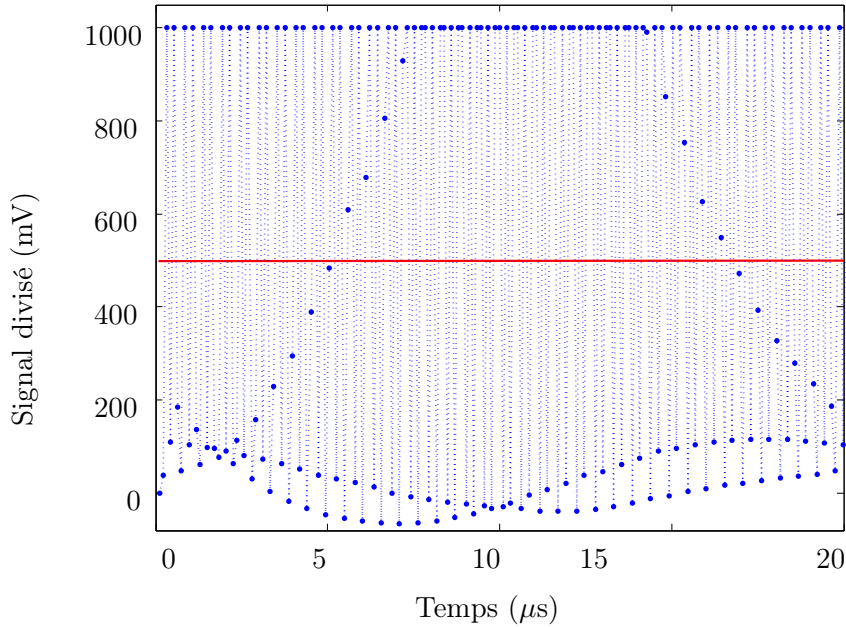


FIGURE 3.5 – *Signal divisé généré à partir du laser pompe à 74.5 MHz et échantillonné à 93.0 MHz. Le compteur du laser pompe est incrémenté à chaque changement d'état par rapport au seuil de 500 mV.*

lors d'une expérience avec les lasers à 74.5 MHz et à 93 MHz, le signal divisé, qui évolue entre le niveau haut (1000 mV) et le niveau bas (environ 0 mV), est échantillonné à la fréquence de l'horloge et digitalisé par comparaison avec un seuil fixé à 500 mV. Le compteur d'impulsions de pompe est incrémenté à chaque fois qu'un changement d'état entre deux points successifs est détecté. Dans le cas général, comme celui de la figure, le signal subit un sous-échantillonnage, mais cela n'est pas critique pour le but recherché, qui ne nécessite pas une reconstruction exacte du signal. Par contre il est important d'analyser ce qui se passe lors d'un échantillonnage tombant sur un front montant ou descendant du signal divisé. Comme on peut voir en Figure 3.5, le signal va prendre des valeurs intermédiaires entre les deux niveaux et la digitalisation sur les valeurs voisines du seuil présentera un certain degré d'incertitude. Pour prendre en compte ce problème il suffit de s'assurer que le signal divisé ne soit pas en phase avec la pompe, comme montré par la bascule B1 en Figure 3.6, mais décalé temporellement, comme par exemple B2, pour qu'au moment des coïncidences l'acquisition tombe au milieu d'un plateau. Bien évidemment le même

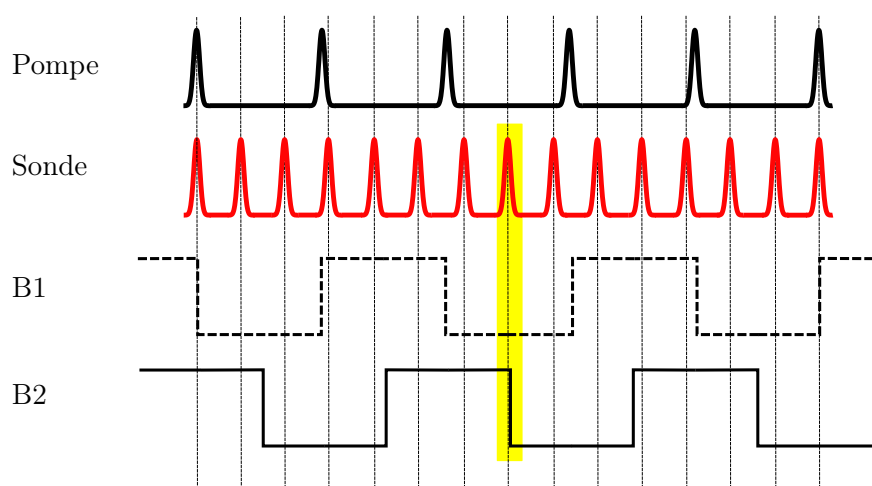


FIGURE 3.6 – Schéma de génération du signal divisé et son échantillonnage. Le signal divisé est construit à l'aide d'une bascule électronique à partir du train d'impulsions de pompe (en noir) et échantillonné à la fréquence du laser sonde (en rouge). B1 représente le signal divisé en phase avec le train de pompe et B2 le signal retardé d'une demi-période.

phénomène se produira sur des fronts de bascule entre deux coïncidences, comme a été mis en évidence dans le schéma de figure. Néanmoins, même si à un certain moment il peut se produire une erreur de comptage, l'erreur sera systématiquement rattrapée par l'acquisition suivante et avant l'arrivée de la prochaine coïncidence. Il est donc possible que pour un certain échantillon le compteur du laser pompe soit en avance ou en retard d'une unité, mais au moment de la lecture

effective des compteurs, qui est réalisée à chaque coïncidence, la valeur comptée sera toujours exacte. Or c'est uniquement au moment des coïncidences que la connaissance exacte du nombre d'impulsions de pompe est exploitée.

3.2.3 Calcul des retards

Avant chaque série de mesure la valeur de fréquence du laser de pompe est mesurée avec un fréquencesmètre. Cela nous permet de disposer de tous les éléments nécessaires au calcul des retards selon l'éq. 2.7. La carte d'acquisition Innovative fournit un flux continu de paquets de données à la fréquence de l'horloge, c'est à dire du laser sonde. Avant chaque arrivée du paquet suivant, ces données doivent être traitées afin de calculer le retard temporel et associer chaque signal à la case temporelle correspondante. Il est donc nécessaire de vérifier que le programme de traitement des données est effectivement capable de produire les retards individuels de chaque impulsion de sonde à la bonne fréquence, c'est-à-dire à environ 100 MHz. Plusieurs tests de programmation ont été faits jusqu'à l'optimisation finale de l'algorithme d'acquisition et calcul qui a été programmé en langage C++ pour être intégré au pilote de la carte d'acquisition Snap. Ce programme est dérivé d'un programme de test écrit en langage C et reporté en annexe A, avec une explication plus détaillée de l'implémentation du calcul au niveau de l'ordinateur.

Pour toutes les expériences de test présentées dans ce chapitre, l'acquisition et le traitement des données sont réalisés dans un ordinateur personnel de milieu de gamme ayant un processeur quatre cœurs (Xeon, Intel) à 2.33 GHz. Dans ce cas la vitesse maximale d'exécution est d'environ 37×10^6 échantillons/seconde, qui correspond à seulement 40% de la fréquence de répétition de la sonde. Nous avons alors été obligés d'ignorer 60% des paquets de données acquises pour pouvoir suivre le flux d'acquisition. Cela n'a aucun effet sur le signal moyenné et diminue seulement le taux d'acquisition effectif à environ 50 MHz. Il est clair que les progrès croissants des ordinateurs en vitesse de calcul associés à une parallélisation plus poussée de l'algorithme de détermination des retards permettront bientôt d'arriver à traiter les données à des centaines de MHz dans les ordinateurs personnels de milieu de gamme. En outre, une implémentation du programme de calcul en VHDL (VHSIC - Very High Speed Integrated Circuit- Hardware Description Language) est prévue pour que, à terme, toutes les opérations soient réalisées dans un FPGA afin que le temps de calcul ne pose plus de limites au taux d'acquisition.

3.3 Procédure expérimentale

Nous allons maintenant illustrer les différentes étapes de réglage et de mise en fonctionnement d'une expérience AD-ASOPS.

- Il est d'abord nécessaire de s'assurer que la puissance de chaque laser à injecter dans l'interféromètre pour la détection des coïncidences est de l'ordre de $5 \mu\text{W}$. Cette valeur est un compromis expérimental entre un niveau de signal de coïncidence aisément détectable et une densité d'énergie dans la fibre inférieure à la limite de génération d'effets non linéaires. Pour s'assurer de l'absence d'effets non linéaires il est d'ailleurs souhaitable de contrôler que le spectre des impulsions ne subit pas de distorsion après propagation dans la fibre.

- Le contrôle du spectre est utile également pour régler correctement les filtres interférentiels, notamment en ajustant l'angle d'incidence de façon à superposer les bandes spectrales des deux lasers utilisés comme pompe et sonde.

- L'étape suivante consiste dans le réglage de l'interféromètre pour la détection des coïncidences. Il s'agit d'ajuster le couplage des deux lasers dans les fibres de façon à avoir la même énergie propagée et maximiser le contraste du signal d'interférence. Pour ce faire, il faut visualiser le signal à la sortie d'un des deux bras de sortie du coupleur fibré. En pratique nous utilisons une seule photodiode du détecteur différentiel Thorlabs en débranchant l'une quelconque des deux fibres connectées. Ensuite un seul faisceau laser est injecté dans la fibre optique. En faisant cela avec un laser à la fois, le couplage du laser donnant lieu au signal plus élevé sera légèrement dégradé de façon à obtenir le même niveau de tension pour chacun des deux lasers. Pour vérifier que le niveau de contraste ainsi obtenu est satisfaisant, la fibre est à nouveau branchée au détecteur et l'interféromètre injecté par les deux lasers. Le signal doit montrer la présence nette de pics de coïncidence par rapport au bruit hors interférence, dû au fait que l'interféromètre n'est pas parfaitement équilibré. La Figure 3.7 représente les signaux enregistrés à l'aide d'un oscilloscope lors d'une expérience utilisant comme sonde le laser à 80.1 MHz et comme pompe le laser à 79.9 MHz. Les Figures 3.7 (a) et (b) montrent les signaux de détection différentielle obtenus en injectant séparément un laser à la fois. Idéalement, dans un système parfaitement équilibré, ces deux signaux auraient dû être nuls. La présence de pics de faible intensité indique un déséquilibre du coupleur 50-50 dont la source pourrait être le fait que les spectres laser, centrés à $800 \pm 5 \text{ nm}$, ne correspondent pas exactement aux spécifications du coupleur ($850 \pm 40 \text{ nm}$) et que pour cette raison le rapport de division de 50% n'est pas respecté. Pour assurer la

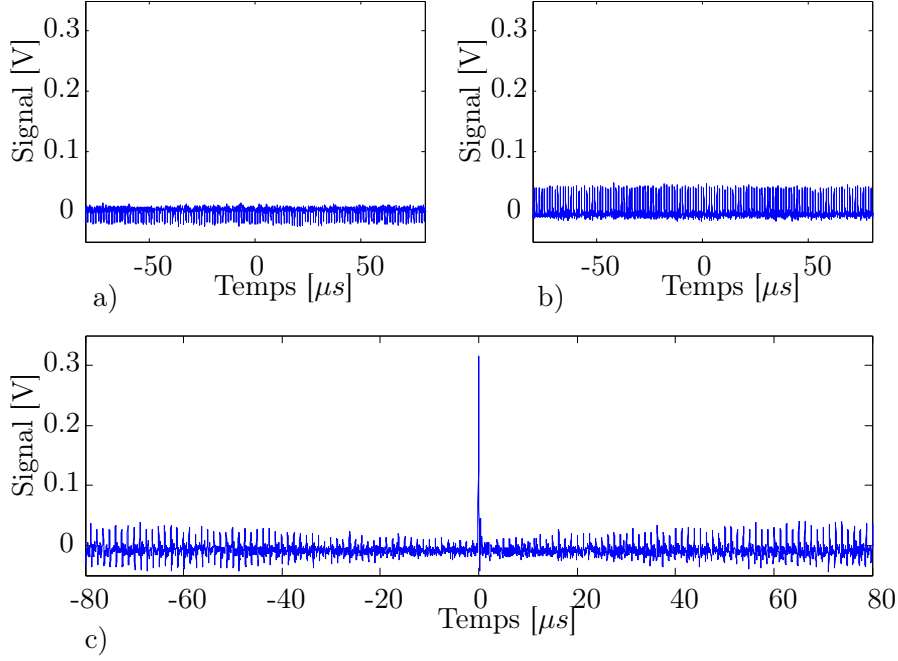


FIGURE 3.7 – Coïncidences entre les deux lasers oscillant à 80 MHz environ. Les traces (a) et (b) montrent les signaux détectés séparément pour chaque laser. La courbe (c) montre un pic d'interférence entre les deux lasers avec un bon contraste par rapport au bruit hors interférence.

conservation de l'énergie le déséquilibre est symétrique pour chacun des bras en entrée du coupleur, ainsi les deux signaux différentiels des Figures 3.7 (a) et (b) ont des signes opposés. Pour cette raison, même en prévoyant un détecteur différentiel avec amplificateurs variables pour chacune des photodiodes dans une prochaine évolution du système AD-ASOPS, on ne pourrait pas annuler le bruit résiduel d'un laser sans augmenter celui de l'autre laser et il serait impossible de compenser le déséquilibre du système. Néanmoins le pic d'interférence Figure 3.7 (c) montre un contraste largement suffisant pour garantir une détection aisée de la coïncidence. Pour la même expérience, la Figure 3.8 montre les acquisitions du signal de couplage enregistré sur une échelle de temps de plusieurs millisecondes. En particulier, la Figure 3.8 (a) met en évidence l'apparition de plusieurs pics de coïncidence pendant le temps d'acquisition. En effet, pour des impulsions laser d'environ 100 fs, séparées d'une période d'environ 10 ns, nous nous attendons à observer une coïncidence tous les $10 \text{ ns} / 100 \text{ fs} = 10^5$ tirs, ce qui équivaut à environ 1 ms. Des calculs rigoureux du taux de coïncidence en fonction du seuil de coïncidence choisi, qui seront détaillés Section 4.1.1, confirment cette prédiction d'environ 1 kHz, qui est en accord avec les observations de la Figure 3.8 (a). Nous attirons l'attention sur le fait que, puisque les oscillateurs sont en fonctionnement libre et que leur fréquence de répétition est soumise à de légères fluctuations, il

en est de même pour le taux de coïncidence, et la valeur de 1 kHz est donc une moyenne. Enfin, le bruit dû à l'équilibrage imparfait de l'interféromètre nous permet d'apprécier, sur une zone de quelque μs agrandie autour d'une coïncidence (Figure 3.8 (b)), le phénomène des battements entre les deux trains d'impulsions laser qui, avec une fréquence de $|f_1 - f_2|$ se retrouvent en coïncidence à l'échelle nanoseconde et forment ainsi les noeuds observables sur la Figure 3.8 (b). Nous pouvons ainsi mesurer une différence de fréquences entre les deux oscillateurs de l'ordre de 250 kHz. De plus, en correspondance de certains de ces noeuds, quand la coïncidence se réalise aussi à l'échelle femtoseconde, nous observons un pic d'interférence.

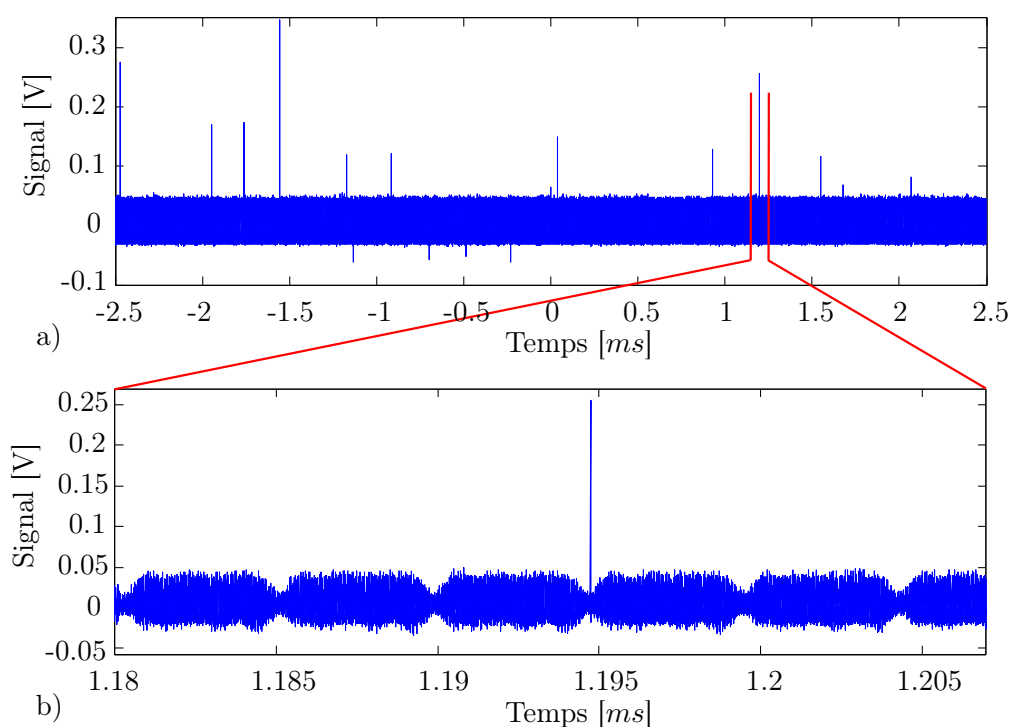


FIGURE 3.8 – Coïncidences entre les deux mêmes lasers de la figure précédente. La courbe (a) montre le signal acquis pendant quelques millisecondes, où sont observables plusieurs pics de coïncidence. Le zoom (b) met en évidence les battements entre les deux fréquences laser, indiquant une différence d'environ 250 kHz, et montre l'apparition d'un pic d'interférence en correspondance d'un noeud du signal.

- Avant de procéder au réglages de l'acquisition il est nécessaire de choisir soigneusement la longueur des câbles BNC qui connectent les différents signaux à la carte d'acquisition. Pour ce qui concerne le signal divisé, le câble est choisi d'une longueur telle qu'en cas de coïncidence, selon ce qui a été dit précédemment Section 3.2, la détection ne tombe pas sur un front de montée ou de descente, mais sur un plateau. Également, la longueur des câbles où se propagent

le signal de coïncidence et le signal pompe-sonde leur impose une arrivée simultanée à la carte d'acquisition. C'est seulement après cette adaptation qu'il est possible d'effectuer le réglage de

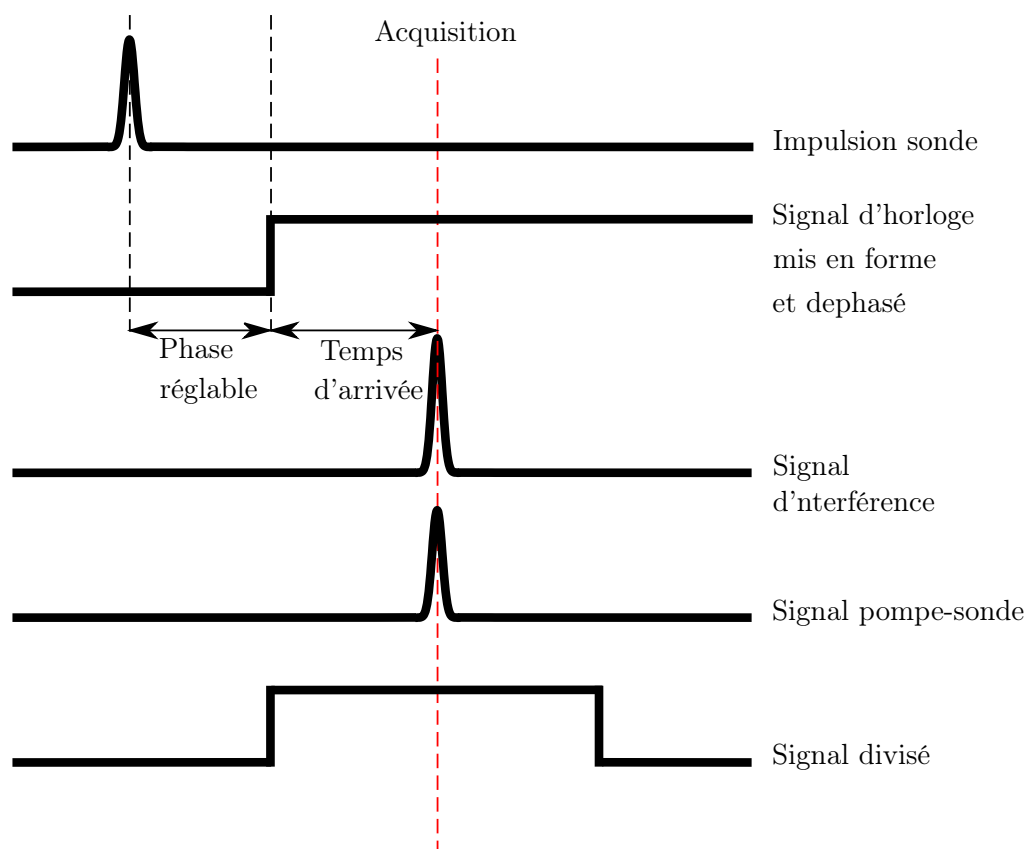


FIGURE 3.9 – *Diagramme temporel de l'acquisition. Le signal d'interférence et celui de pompe-sonde sont synchrones par rapport à l'horloge et l'instant de leur acquisition est réglé comme illustré par le diagramme. Le signal divisé, étant asynchrone par rapport à l'horloge a été représenté ici dans le cas particulier d'une coïncidence.*

la phase de l'acquisition par rapport au signal de l'horloge. La Figure 3.9 illustre le diagramme temporel de l'expérience.

- Pour procéder à cet ajustement de phase le détecteur Thorlabs est utilisé à nouveau en mode non-différentiel et l'interféromètre injecté uniquement par le laser qui déclenche l'horloge. La carte d'acquisition Innovative est fournie avec le logiciel Snap qui permet d'observer en temps réel le signal ainsi acquis. Au bruit de gigue près, le signal doit présenter un niveau constant. Le réglage de la phase de l'horloge se fait en maximisant ce niveau grâce à un code Matlab qui permet de piloter une boucle à verrouillage de phase sur la carte électronique qui génère le signal d'horloge. Ce signal est actuellement généré en envoyant à une photodiode la réflexion sur

une densité optique du laser à fréquence de répétition plus élevée. Pour une future version du système AD-ASOPS, il pourrait être possible d'utiliser un séparateur 90-10 (ou avec un autre rapport de séparation adapté) fibré qui enverrait une partie de l'énergie vers l'interféromètre et une autre partie vers une photodiode. En Annexe E nous décrivons l'influence du réglage de la phase de l'horloge sur le fonctionnement du système AD-ASOPS.

- A ce stade, une fois réinjecté le deuxième laser dans l'interféromètre et reconnecté correctement le détecteur différentiel, nous utilisons à nouveau le logiciel Snap pour visualiser le signal de coïncidence sur quelques millions de tirs, pour que ce soit statistiquement représentatif. Ce signal est analogue à celui obtenu par un oscilloscope Figure 3.8 (a) mais cette fois il est enregistré par la carte d'acquisition Innovative. Cela permet de choisir les seuils haut et bas pour la détection des coïncidences qui seront communiquées au programme de calcul à travers l'interface de mesure. Cette interface a été programmée à partir du logiciel Snap, en le modifiant pour intégrer à sa partie acquisition la partie traitement des données nécessaire à la méthode AD-ASOPS, avec notamment le comptage des impulsions et le calcul des retards (Annexe A).

- En plus du seuil de détection des coïncidences il est nécessaire de fournir d'autres paramètres de calcul qui sont la taille du paquet d'acquisition et le nombre de cases temporelles dans lesquelles sera moyenné le signal. Après quoi l'acquisition peut être lancée. Le système est alors capable de déterminer pour chaque signal mesuré la case temporelle relative à son retard et, après un temps de moyennage adéquat à la résolution voulue, sortir la dynamique de l'expérience.

- Comme dernière étape, un code Matlab gère la visualisation *a posteriori* des données enregistrées.

3.4 Distribution des retards sondés

Nous avons vu (par exemple Figure 3.8) que le taux de coïncidence moyen pour deux trains d'impulsions ayant un spectre de 3.0 THz FWHM et un taux de répétition de 74.5 MHz et 93.0 MHz, présente une dispersion avec une moyenne qui peut être estimée à environ 1 ms. Cette situation ne pourrait pas convenir à une application de la méthode ASOPS conventionnelle parce que dans ce cas, l'intervalle d'échantillonnage, égal à la différence des périodes laser, serait de 2.43 ns en moyenne. Cette valeur est déjà trop élevée pour la plupart des expériences pompe-sonde qui nous intéressent, et sa dispersion, n'étant pas prise en compte par la méthode, constituerait une composante importante du bruit de la mesure. Nous nous demandons alors si la version

AD-ASOPS du balayage asynchrone permet une application satisfaisante au cas expérimental en question et, de façon plus générale, nous voulons déterminer quels sont les retards accessibles par AD-ASOPS selon les paramètres expérimentaux utilisés.

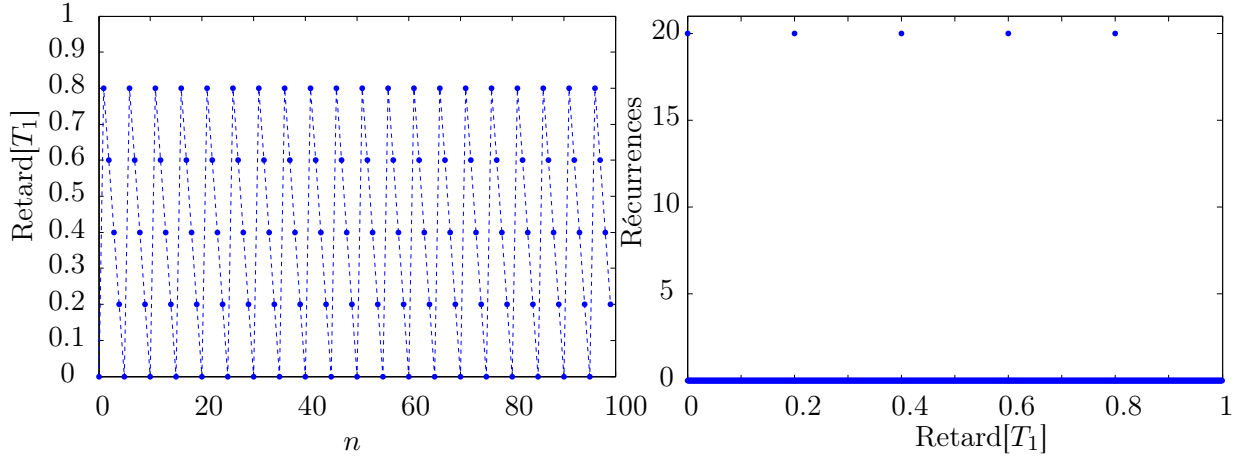


FIGURE 3.10 – Simulation de la distribution des retards obtenus avec un rapport $f_1/f_2 = 4/5 = 0.8$ et un axe des retards divisé en 2^8 cases temporelles. (a) Retards obtenus à chaque impulsion de sonde n . (b) Histogramme des retards obtenus après 100 impulsions de sonde : seulement cinq valeurs du retard concentrent l'ensemble des mesures.

Imaginons le cas particulier où les fréquences des deux lasers sont dans un rapport f_1/f_2 rigoureusement égal à $4/5$. Au cours de l'accumulation du signal, à chaque repliement de la droite $n(T_2 - T_1)$ dans l'intervalle $[0, T_1]$, les retards obtenus retomberont toujours sur les mêmes valeurs. Les données représentées Figure 3.10 sont les résultats de simulations effectuées pour calculer les retards entre deux oscillateurs ayant des fréquences de répétition dans un rapport de $4/5$. Dans ce cas, il est clair que la méthode AD-ASOPS ne marchera pas.

Le cas considéré est fort heureusement peu plausible. En effet le rapport f_1/f_2 est un nombre réel. L'ensemble des nombres réels, constitué de l'union de l'ensemble des nombres rationnels et de l'ensemble des nombres irrationnels, est non-dénombrable [41]. Puisque les nombres rationnels sont, quant à eux, dénombrables, la probabilité qu'un nombre réel pris au hasard soit un nombre irrationnel est voisine de 100%. Que se passe-t-il alors si les deux fréquences sont dans un rapport proche du précédent mais irrationnel, comme par exemple $f_1/f_2 = \sqrt{0.641} \sim 0.8$. Les résultats des simulations relatives à ce cas sont montrés Figure 3.11. Cette fois, à chaque repliement de la courbe des retards, de nouvelles valeurs sont obtenues (Figure 3.11.a). Après 100 impulsions de sonde 84 retards différents sont sondés (Figure 3.11.b) et après 316 impulsions de sonde (Figure

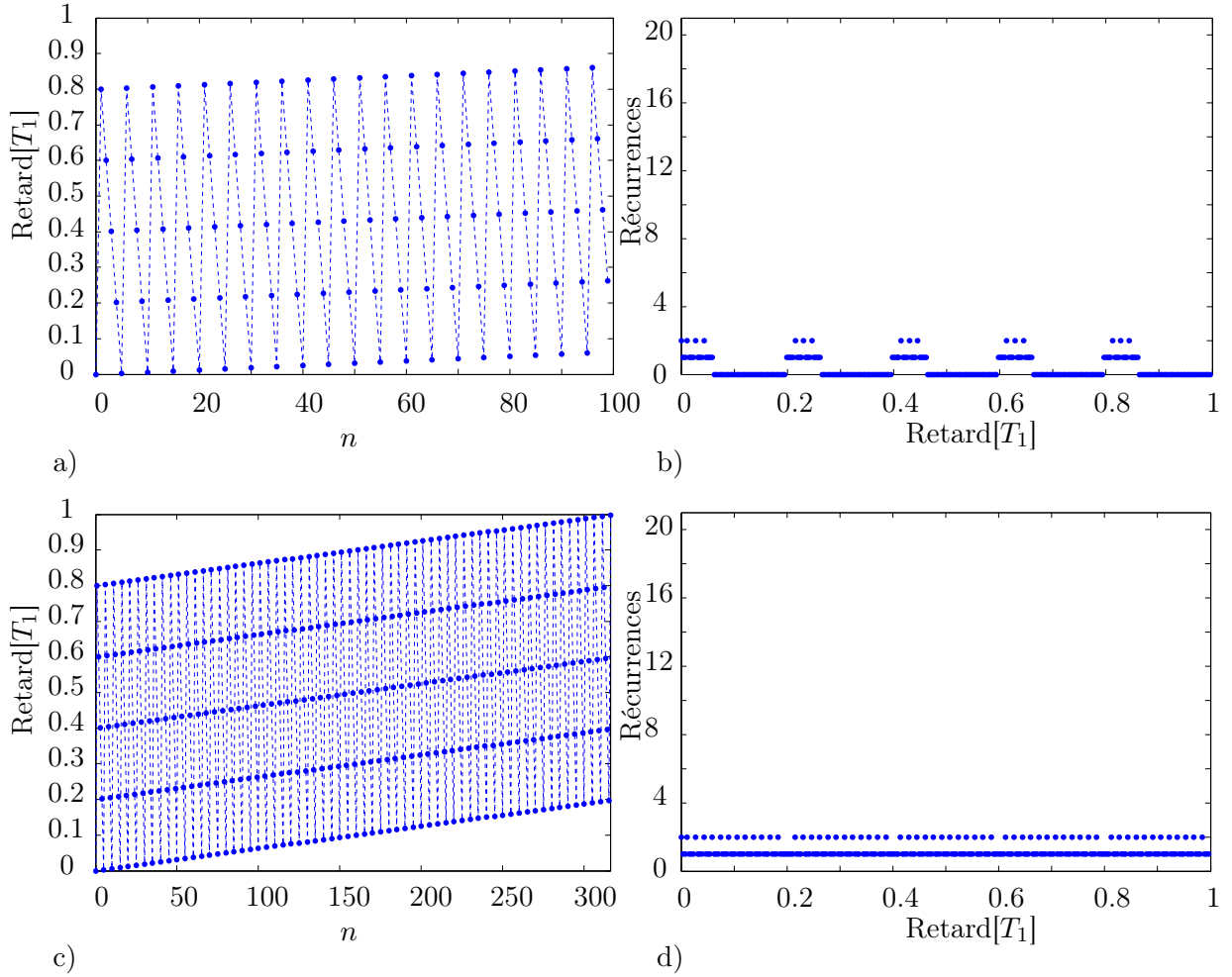


FIGURE 3.11 – Simulation de la distribution des retards obtenus avec un rapport irrationnel $f_1/f_2 = \sqrt{0.641} \sim 0.8$ et un axe des retards divisé en 2^8 cases temporelles. (a) Retards obtenus après les 100 premières impulsions de sonde n . (b) Histogramme des retards obtenus après 100 impulsions de sonde : 84 retards affichent un nombre d'occurrences différent de zéro. (c) Retards obtenus après 316 impulsions de sonde n . (d) Histogramme des retards obtenus après 316 impulsions de sonde : toutes les 2^8 cases composant l'axe des retards accumulent un nombre d'occurrences différent de zéro.

3.11.c et 3.11.d) chacune des 2^8 cases temporelles a fait l'objet d'au moins une mesure. Nous pouvons généraliser le résultat obtenu à tous les cas où le rapport entre les deux fréquences laser est un nombre irrationnel.

Dans la pratique, toutefois, nous savons que le système d'acquisition AD-ASOPS évalue le rapport entre les fréquences laser en l'approximant avec le rapport entre les compteurs N_1 et N_2 aux coïncidences. Répétons alors une dernière fois les simulations en utilisant maintenant des valeurs expérimentales : $N_1/N_2 = 74372/92764 \sim 0.8$.

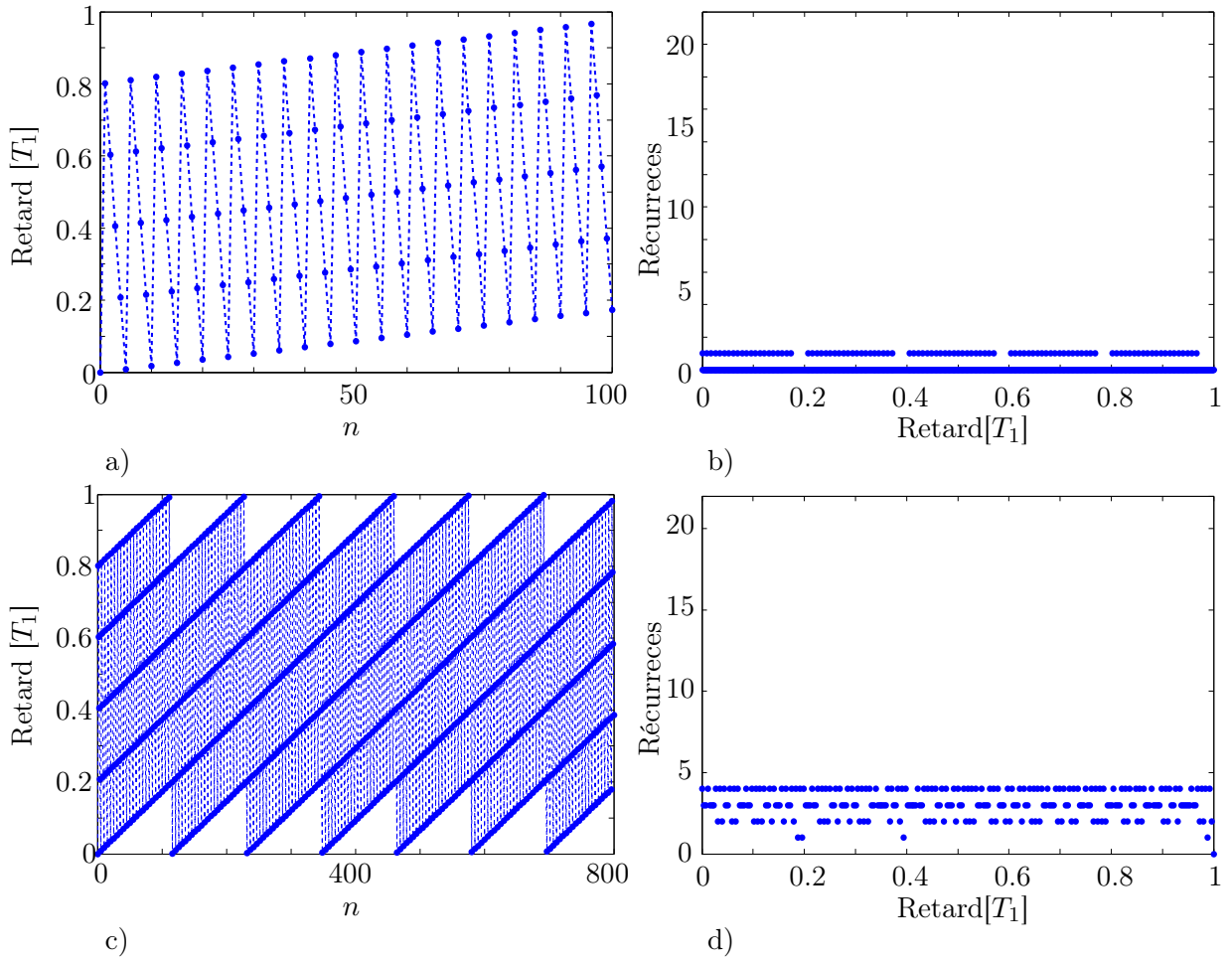


FIGURE 3.12 – Simulation de la distribution des retards obtenus avec un rapport rationnel $N_1/N_2 = 74372/92764 \sim 0.8$ et un axe des retards divisé en 2^8 cases temporelles. (a) Retards obtenus à chaque impulsion de sonde n . (b) Histogramme des retards obtenus après 100 impulsions de sonde : le nombre de retards avec occurrence différent de zéro est plus élevé par rapport aux deux exemples précédents. (c) et (d) Retards obtenus et histogramme des retards obtenus après 800 impulsions de sonde : chacun des 2^8 retards accumule un nombre d'occurrences différent de zéro.

Les résultats sont exposés Figure 3.12. Ils sont sensiblement proches du cas du rapport irrationnel et un grand nombre de retards distincts peuvent être obtenus, jusqu'à ce que tous les retards possibles de l'échelle temporelle considérée soient échantillonnés après 800 impulsions de sonde. Nous voulons étudier le remplissage de l'histogramme des retards, pour nous assurer qu'après un certain nombre d'échantillons tous les retards seront sondés environ le même nombre de fois. Pour ce faire, nous avons répété les calculs pour des valeurs croissantes du nombre d'échantillons et nous avons tracé l'histogramme des histogrammes des retards, comme celui de la Figure 3.12 (d). La Figure 3.13 représente quatre histogrammes ainsi obtenus. Les graphes en noir, rouge, vert et bleu, représentent respectivement des histogrammes calculés après 800, 8000, 50000 et 100000 points de mesure. La largeur relative de chaque histogramme nous donne

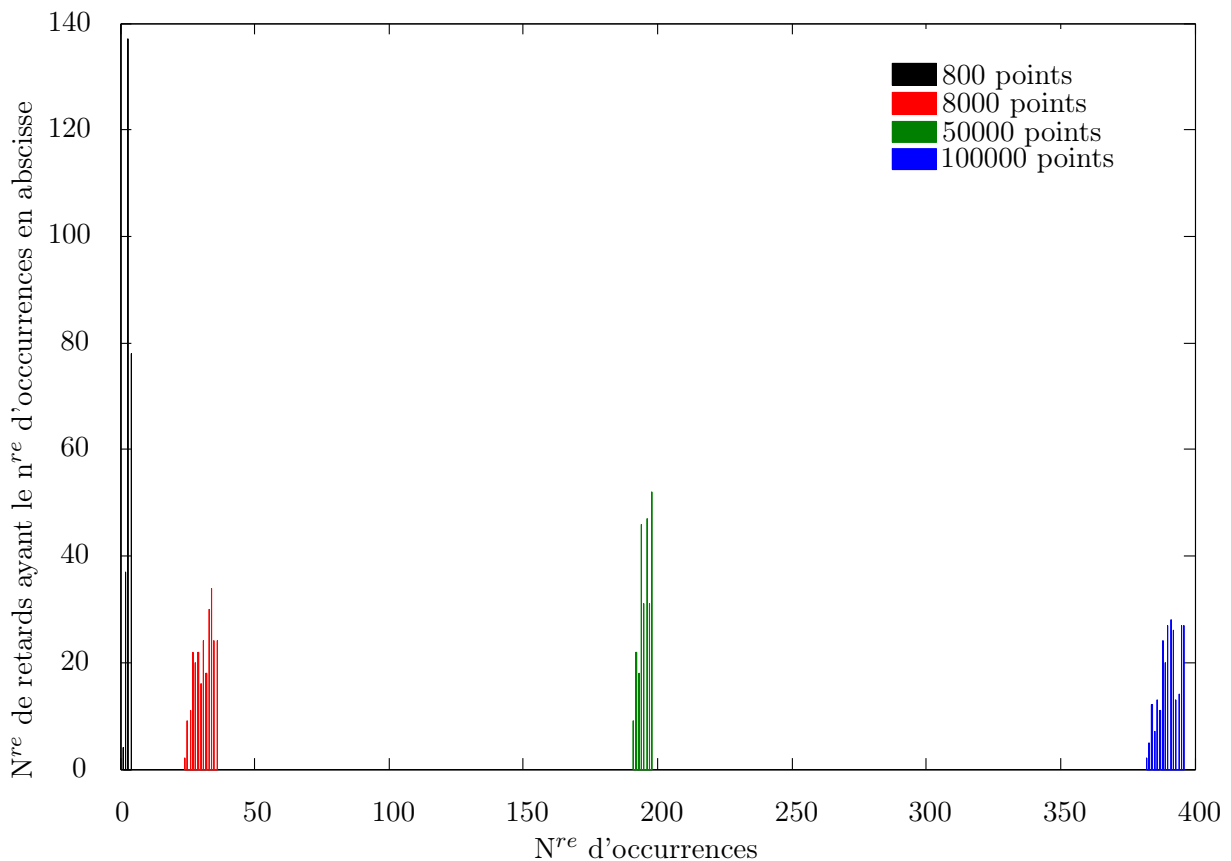


FIGURE 3.13 – *Histogrammes des occurrences des retards sondés. En noir, rouge, vert et bleu, sont représentés respectivement les histogrammes calculés après 800, 8000, 50000 et 100000 points de mesure.*

l'information sur la distribution du nombre d'occurrences pour chaque retard sondé. Plus la largeur est grande plus les nombres d'échantillonnages pour les différents retards seront différents. Dans notre cas la largeur relative vaut 1.2 après 800 tirs, 0.4 après 8000 tirs, 0.036 après 50000 et encore 0.036 après 100000 tirs. Ces valeurs nous indiquent qu'au fur et à mesure que le temps d'acquisition augmente, le taux d'échantillonnage devient relativement uniforme avec la valeur du retard. Nous pouvons en conclure que tous les retards sont sondés un nombre de fois similaire, ce qui signifie que le niveau de bruit sera approximativement homogène sur l'ensemble des retards. Par conséquent, la méthode AD-ASOPS fonctionne pour le cas expérimental étudié.

Nous voulons maintenant déterminer de manière plus systématique quels sont les paramètres qui conditionnent les retards pouvant être sondés par la méthode AD-ASOPS.

3.4.1 Les retards possibles

Revenons au calcul du retard associé à l'impulsion numéro n . Étant donnés les compteurs N_1 et N_2 deux nombres entiers, nous appelons p le plus grand commun diviseur entre eux (PGCD), de sorte à pouvoir définir m_1 et m_2 premiers entre eux vérifiant $N_1 = p \cdot m_1$ et $N_2 = p \cdot m_2$. Il est alors avantageux de réécrire l'éq. 2.7 sous la forme :

$$\Delta t_n = \left\{ n \frac{N_1}{N_2} \right\} T_1 = \left\{ n \frac{m_1}{m_2} \right\} T_1 = (nm_1[m_2]) \frac{T_1}{m_2} \quad (3.9)$$

où $nm_1[m_2]$ représente la valeur de l'entier nm_1 modulo m_2 . Les retards sondés sont donc tous de la forme kT_1/m_2 où k est nécessairement un nombre entier appartenant à l'intervalle $[0, m_2[$. Pour déterminer la distribution des retards sondés, considérons deux impulsions de sonde n et n' associées au même retard $\Delta t_n = \Delta t_{n'} = kT_1/m_2$, où n et n' sont deux nombres entiers dans l'intervalle $[0, N_2[$. D'après l'éq. 3.9, on a donc la relation

$$nm_1[m_2] = n'm_1[m_2] = k \quad (3.10)$$

qui peut encore s'écrire

$$(n - n')m_1[m_2] = 0. \quad (3.11)$$

Cela signifie que $(n - n')m_1$ est un multiple de m_2 , où encore que m_2 divise le produit $(n - n')m_1$. Comme m_1 et m_2 sont premiers entre eux, on en déduit que m_2 divise $(n - n')$. Il existe donc un entier l tel que $n' = n + lm_2$. On en conclut que le retard kT_1/m_2 sera atteint de manière

périodique, avec une période égale à m_2 , lorsque n décrit l'intervalle $[0, N_2[$. Donc si une valeur de k est réalisée, le retard correspondant sera atteint exactement p fois, car $N_2 = pm_2$. Comme n prend N_2 valeurs possibles, on peut en déduire que le nombre de valeurs de k qui seront effectivement réalisées est égal à $N_2/p = m_2$. Comme $k \in [0, m_2[$ ne peut prendre que m_2 valeurs différentes, on en déduit que chaque valeur du retard kT_1/m_2 est réalisée exactement p fois. La distribution des retards accessibles est donc parfaitement uniforme.

3.4.2 La résolution de la mesure

Après avoir démontré que m_2 est le nombre de retards obtenus, nous pouvons faire des considérations sur la résolution de mesure accessible par l'échantillonnage inhérent à la méthode AD-ASOPS. En particulier nous voulons évaluer si le nombre de retards accessibles peut constituer une limitation à la résolution et éventuellement dans quelles circonstances cela peut arriver.

Soit δt la résolution souhaitée. Nous pouvons affirmer que, si $m_2 \geq T_1/\delta t$, alors un seul balayage réalisé entre un seul couple de coïncidences est satisfaisant dans le sens où tout l'intervalle temporel est sondé au moins une fois avec un pas inférieur à la résolution de mesure voulue.

Nous allons par conséquent évaluer dans quel cas $m_2 \geq T_1/\delta t$. D'après la définition de m_2 cela revient à dire :

$$N_2/p \cdot \delta t \geq T_1$$

ce qui implique la condition suivante sur le PGCD entre N_1 et N_2 :

$$p \leq N_2/T_1 \cdot \delta t \quad (3.12)$$

En substituant dans l'éq. 3.12 les valeurs précédemment discutées dans le cas d'une expérience pompe-sonde avec deux oscillateurs Ti:Saphir conventionnels ayant un taux de répétition de l'ordre de 100 MHz, pour laquelle $N_2 \approx 10^5$ et $T_1 \approx 10$ ns, on déduit que pour qu'une mesure utilisant un seul couple de coïncidences ait une résolution d'au moins 1 ps, il est nécessaire que le PGCD entre les compteurs aux coïncidences soit :

$$p \leq 10 \quad (3.13)$$

Dans le cas d'une expérience utilisant un oscillateur à ~ 100 MHz et un oscillateur longue cavité à ~ 5 MHz, comme dans l'expérimentation présentée au chapitre 5, les valeurs de N_2 et T_1 sont de l'ordre de 5×10^5 et 200 ns. Substitués dans l'éq. 3.12, la condition pour une mesure satisfaisante est alors :

$$p \leq 2. \quad (3.14)$$

3.4.3 Probabilité des PGCD entre N_1 et N_2

Nous voulons évaluer, pour les deux cas expérimentaux exposés dans la section précédente, quelle est la probabilité pour qu'un couple de coïncidences produise directement un échantillonnage de l'échelle temporelle avec un pas inférieur à la résolution souhaitée, et que les cases temporelles avec lesquelles l'axe des retards est divisé soient assez fines pour ne pas diminuer la résolution de la mesure.

Le théorème de Cesàro, en théorie des nombres, établit que la probabilité que deux nombres entiers choisis au hasard soient premiers entre eux, où en d'autres termes que leur PGCD soit 1, est égale au produit suivant :

$$\prod_n^{\infty} \left(1 - \frac{1}{n^2}\right) = \frac{6}{\pi^2} \approx 61\% \quad (3.15)$$

où n parcourt l'ensemble des nombres premiers. De manière plus générale, on peut montrer [42] que la probabilité $P(h)$ que le PGCD entre deux entiers soit h est :

$$P(h) = \frac{6}{h^2 \pi^2} \quad (3.16)$$

où on retrouve le résultat de l'éq. 3.15 dans le cas $h = 1$. La probabilité $\Pi(q)$ que le PGCD entre deux entiers soit inférieur à une certaine valeur q est alors la somme de toutes le probabilité $P(h)$ pour $h \leq q$:

$$\Pi(q) = \sum_{h=1}^q \frac{6}{h^2 \pi^2}. \quad (3.17)$$

Dans le cas de l'expérience avec deux oscillateurs femtosecondes conventionnels (i.e. à 100 MHz),

on peut en déduire que la probabilité que l'inégalité 3.13 soit vérifiée et qu'un couple de coïncidences échantillonne l'axe des retards assez finement est de l'ordre de 94%. De même, dans l'expérience avec pompe à ~ 5 MHz et sonde à ~ 100 MHz, l'éq. 3.17 nous permet d'estimer qu'environ 82% des couples de coïncidences auront un PGCD entre les compteurs inférieur ou égal à 2 et produiront une division de l'axe des retards cohérente avec la résolution de mesure souhaitée. Les valeurs maximales de PGCD ont été obtenues en imposant comme résolution souhaitée 1 ps, mais selon l'expérience à réaliser, d'autres valeurs de résolution pourraient être demandées, ce qui implique des conditions plus ou moins strictes sur le PGCD. La Figure 3.14 illustre la courbe $\Pi(q)$ en fonction de la valeur maximum de PGCD acceptée, qui est reliée à la résolution visée.

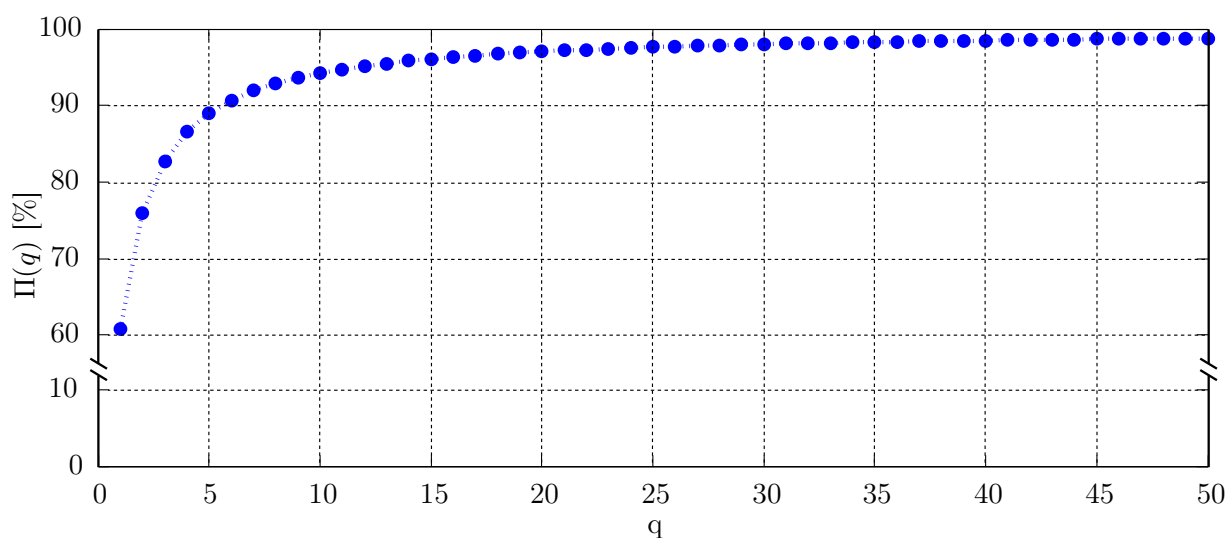


FIGURE 3.14 – Probabilité que le PGCD entre deux nombres pris au hasard entre 1 et une valeur tendant vers l'infini soit inférieur à l'entier naturel q . Pour $q=1$ cela revient au $\sim 60\%$ prévu par le théorème de Cesàro.

Pour conclure nous avons vérifié que la méthode AD-ASOPS a une probabilité élevée (entre 80% et 95% selon le couple d'oscillateurs utilisé) d'échantillonner l'axe des retards avec un pas plus fin que la picoseconde en utilisant un seul couple de coïncidences.

3.4.4 Distribution des compteurs aux coïncidences

Nous avons observé, Figure 3.8, que l'intervalle entre deux coïncidences successives n'est pas fixe mais présente une certaine distribution, due à la fluctuation des longueurs de cavité des lasers. Pour cette raison, à chaque coïncidence, les compteurs N_1 et N_2 , ainsi que leur rapport, peuvent prendre des valeurs différentes. Cela donne lieu à des fractions irréductibles m_1/m_2 différentes et par conséquent à l'obtention de retards différents. Ainsi, après un temps d'accumulation adéquat, l'axe des retards peut toujours être sondé avec un pas plus fin que la résolution souhaitée.

La Figure 3.15 illustre l'évolution typique du rapport entre les fréquences laser mesurée par AD-ASOPS.

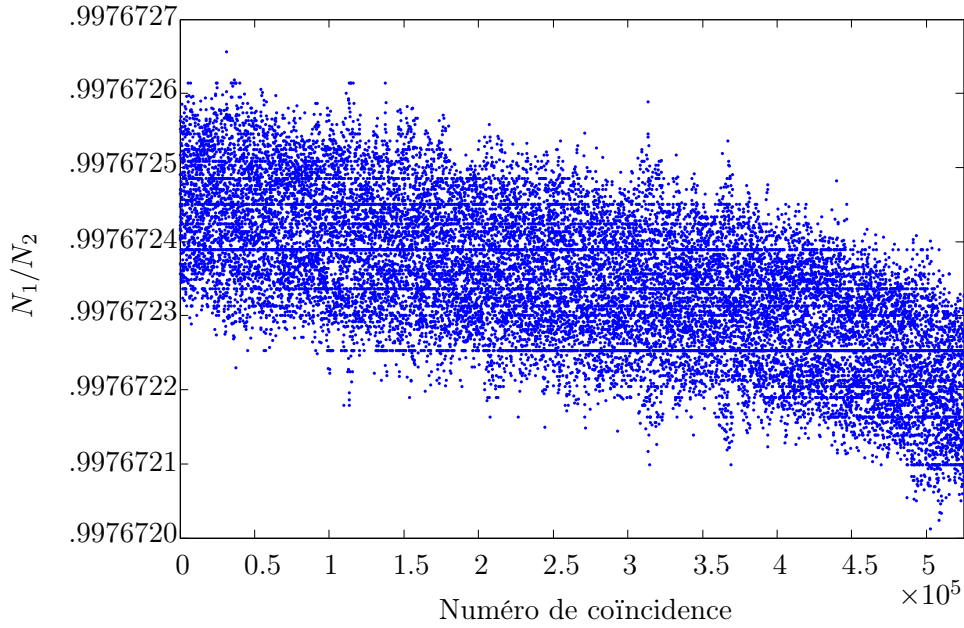


FIGURE 3.15 – *Exemple d'évolution du rapport des fréquences laser mesurée par AD-ASOPS pendant 5 minutes d'acquisition.*

La mesure en question a été faite avec les lasers à 80.1 MHz et 79.9 MHz, pendant un temps d'acquisition d'environ 5 minutes. La variation du rapport dans le temps fournit une description quantitative de la gigue des lasers. Elle montre en particulier une composante à haute fréquence, imputable aux vibrations mécaniques des miroirs dans la cavité. En effet l'écart-type est d'environ 10^{-7} , ce qui pourrait résulter d'une vibration des longueurs de cavités d'environ 100 nm. Nous savons que ces variations sont réelles et pas imputables à du bruit parce que nous

avons calculé (Section 2.3) une résolution de mesure de 10^{-9} . La composante basse fréquence de la variation du rapport entre les fréquences laser est à rechercher plutôt dans une déformation mécanique des cavités laser, résultant par exemple des variations thermiques de la salle pendant le temps d'acquisition.

Les lignes horizontales visibles Figure 3.15 suggèrent que certaines valeurs du rapport N_1/N_2 sont plus probables que d'autres, ce qui est bien mis en évidence par l'histogramme des rapports représenté Figure 3.16. Cet histogramme, composé de 500 cases de $1.3 \cdot 10^{-9}$ de largeur, donne

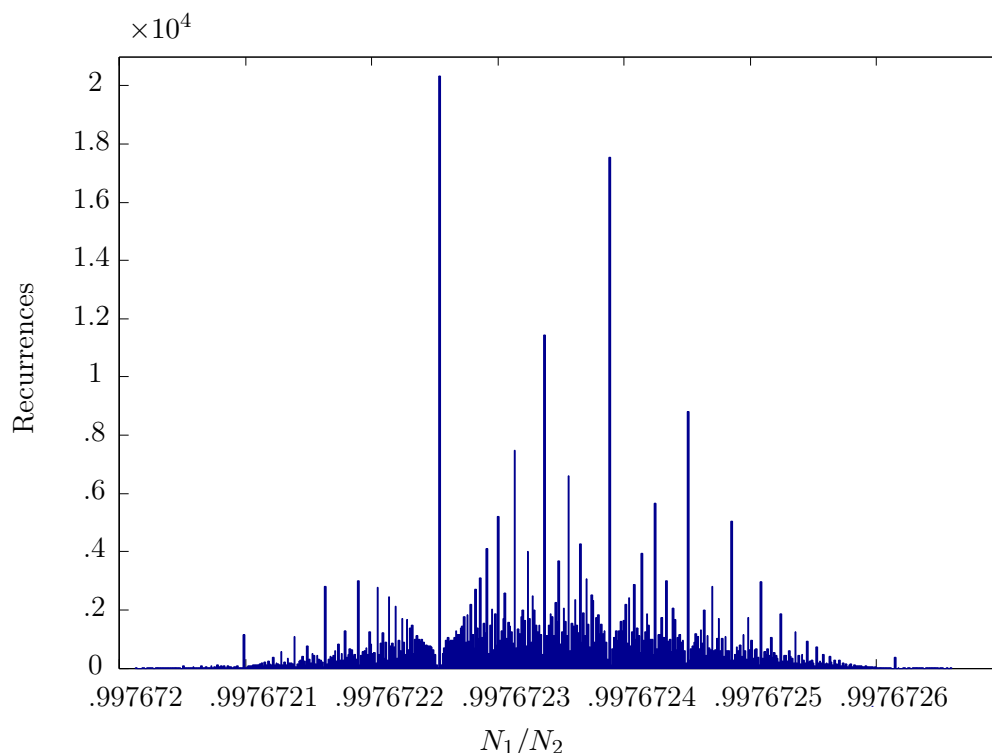


FIGURE 3.16 – Histogramme des valeurs du rapport des fréquences laser mesurées pendant 5 minutes d'acquisition. L'axe des abscisses est composé de 500 cases de largeur $1.3 \cdot 10^{-9}$

un aperçu de la distribution des nombres rationnels à neuf chiffres significatifs. En particulier, les valeurs plus probables sont à attribuer à des valeurs de N_1 et N_2 relativement petites, pour lesquelles la variation d'une seule unité cause une variation importante du rapport N_1/N_2 , ce qui justifie le trou dans la distribution autour de ces valeurs. À titre d'exemple, l'histogramme des valeurs de N_1 mesurées en correspondance des différents points de mesure de la Figure 3.15 pour lesquels $N_1/N_2 = .99767248$ (pic principal de la Figure 3.16) est reporté Figure 3.17. La valeur moyenne de cette classe de N_1 est 25951, ce qui équivaut à un intervalle de coïncidence très bref de seulement 0.3 ms.

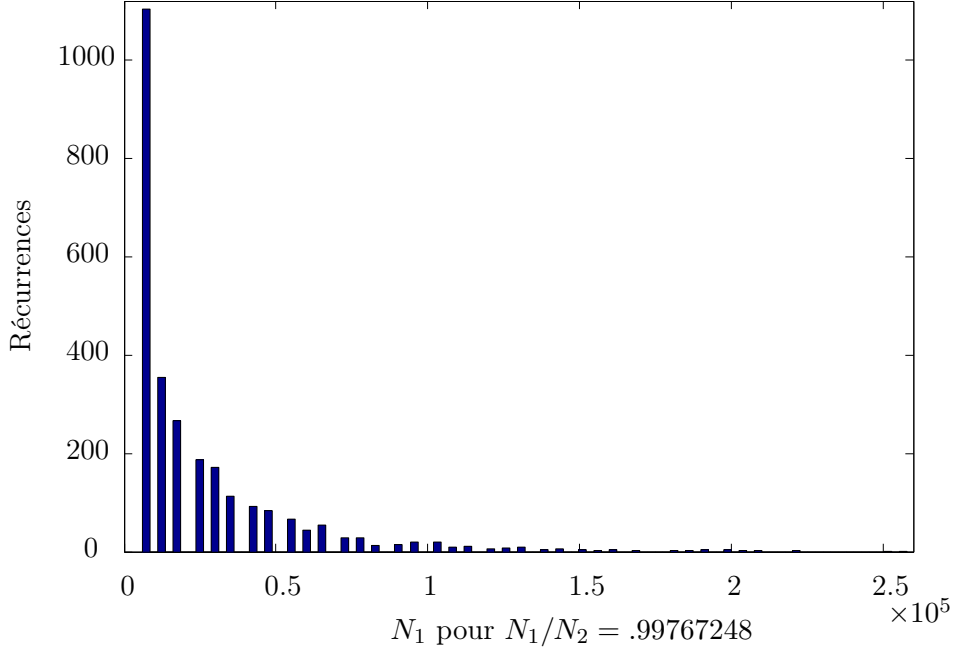


FIGURE 3.17 – *Histogramme des valeurs de N_1 correspondant aux différents points de mesure de la Figure 3.15 pour lesquels $N_1/N_2 = .99767248$. L'axe des valeurs de N_1 est divisé en 100 cases de 2500 points de largeur.*

Pour une expérience analogue mais utilisant les lasers à 74.5 MHz et 93.0 MHz, nous avons enregistré les compteurs laser N_1 pendant une minute d'acquisition. L'histogramme ainsi obtenu est reporté Figure 3.18, où l'axe des compteurs est divisé en cases de 410 unités. L'échelle logarithmique en ordonnée met en évidence une décroissance exponentielle par rapport à la valeur moyenne des compteurs, ce qui est lié à la distribution des intervalles entre coïncidences que nous discuterons en détail dans la Section 4.1.2.

Les valeurs des PGCD entre les compteurs du laser de pompe et du laser de sonde sont montrées Figure 3.19(a).

Pour des raison de clarté, seulement les valeurs correspondant aux 2000 premières coïncidences successives sont illustrées. La droite en rouge indique une valeur de PGCD égale à 10 et tous les points en dessous de cette droite indiquent des couples de coïncidences pour lesquelles l'intervalle d'échantillonnage est inférieur à 1 ps. L'histogramme des PGCD correspondant à l'intégralité des compteurs de la Figure 3.18 est représenté Figure 3.19(b). En très bon accord avec l'estimation théorique de la Section 3.4.2, environ 96% des couples de coïncidences génèrent des compteurs laser avec un PGCD inférieur à 10. Pour tous les PGCD supérieurs à 10 l'intervalle d'échantillonnage sera supérieur à la limite de détection des coïncidences : considérons par

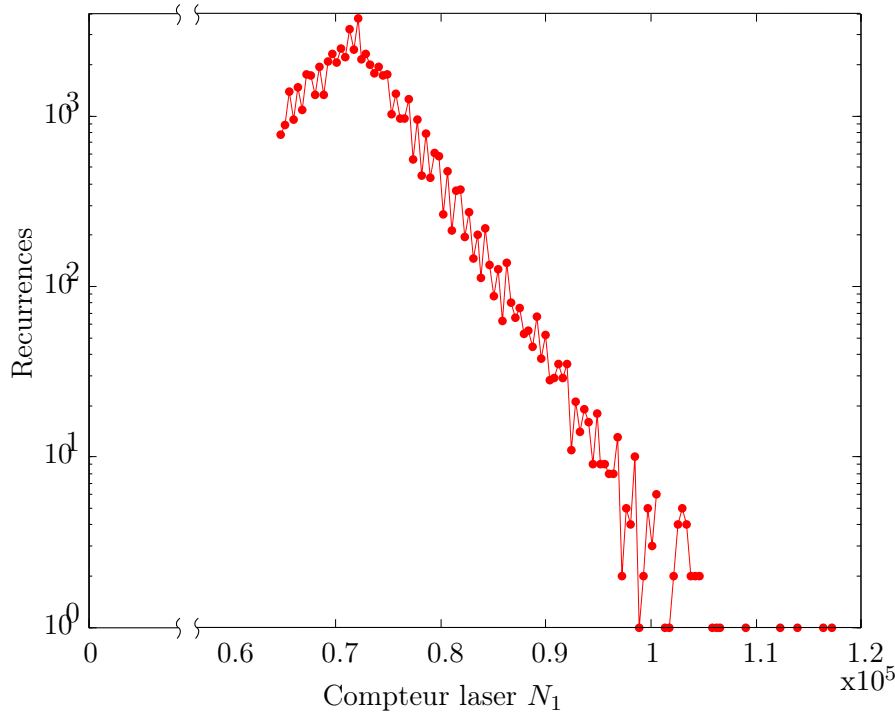


FIGURE 3.18 – *Distribution du compteur laser N_1 aux coïncidences pour les lasers à 74.5 MHz et 93.0 MHz.*

exemple le cas de $\text{PGCD} = 17$. Pendant une minute d'acquisition il se produit 63232 coïncidences, dont 24 ont un PGCD égal à 17 et cela toujours pour des compteurs respectivement égaux à 106148 et 85085 (~ 1 ms). Dans ce cas, m_2 est égal à 6244 et par conséquent, la période du laser 1 étant de 13.4 ns, l'intervalle d'échantillonnage est de $13.4 \text{ ns} / 6244 \simeq 2 \text{ ps}$. Ce sous-ensemble de mesures prises singulièrement ne sont alors pas capables d'avoir une résolution égale à la résolution de détection des coïncidences, qui constitue la limite ultime de la méthode AD-ASOPS. Mais, mis à part qu'il s'agit d'une situation moins fréquente que le cas avec pas d'échantillonnage plus fin que la résolution souhaitée, il faut considérer que prises dans leur ensemble toutes les mesures contribuent à l'affinage du pas d'échantillonnage.

Nous pouvons conclure que la méthode AD-ASOPS peut être appliquée à deux lasers ayant deux taux de répétition de 74.5 MHz et 93.0 MHz respectivement, et généraliser cela pour toutes les valeurs proches de ces fréquences qui sont typiques des oscillateurs Ti:Saphir standards. Pour les expériences impliquant l'oscillateur CPO à 5.1 MHz nous avons vu au chapitre 3 que la méthode continue d'être valable, bien que seulement 82% des couples de coïncidences donnent lieu à un balayage avec un pas temporel suffisamment fin, ce qui a été confirmé par les données

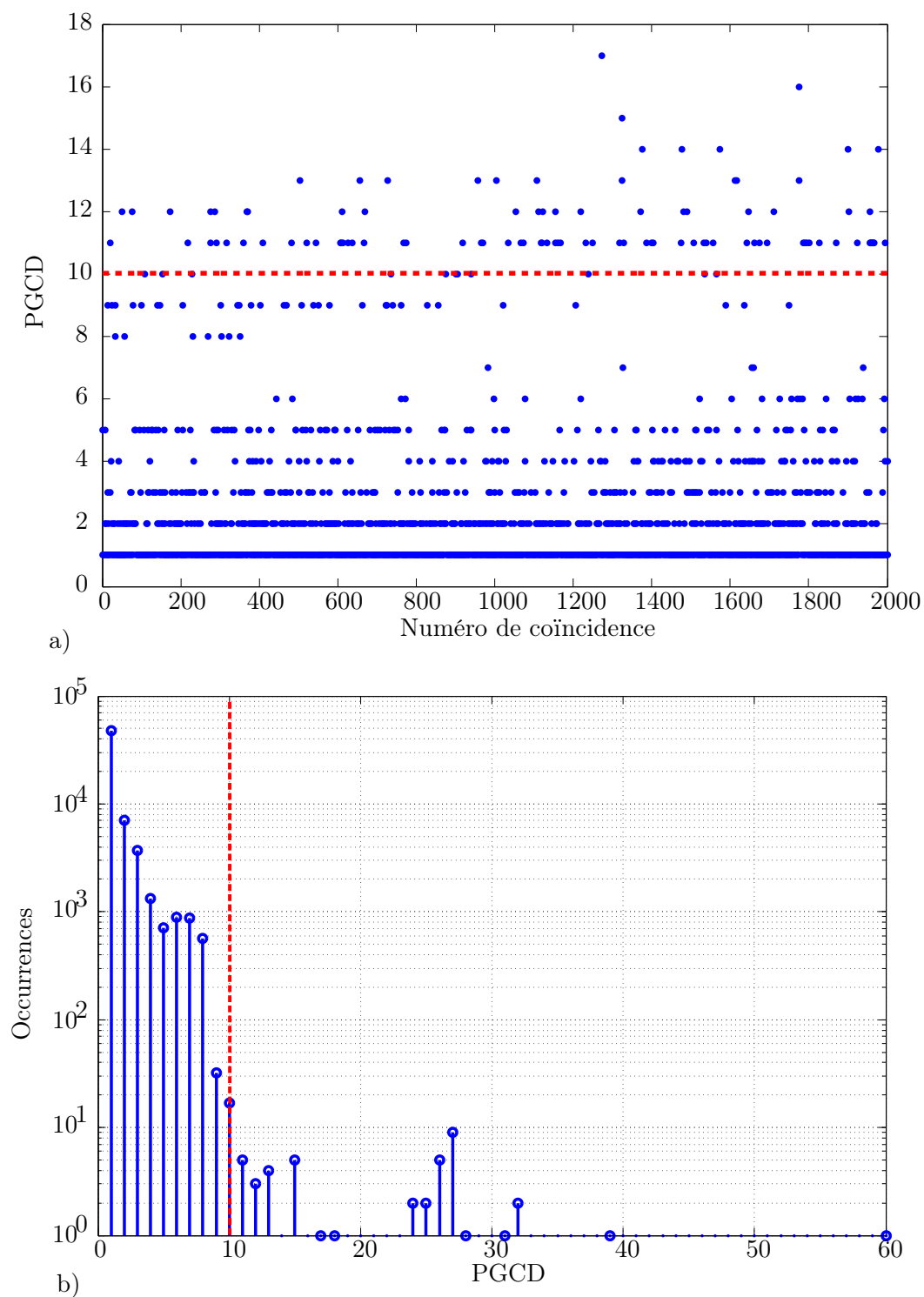


FIGURE 3.19 – (a) Valeurs des PGCD entre les compteurs du laser de pompe et du laser de sonde pour les 2000 premières coïncidences. (b) Histogramme des PGCD. La droite en rouge indique le PGCD égal à dix qui est la limite supérieure pour les couples de coïncidences donnant lieu à des balayages avec pas temporel inférieur à 1 ps.

expérimentales, reportées Figure 3.20, pour lesquelles 81% des couples de compteurs aux coïncidences présentent un PGCD inférieur ou égal à 2. En effet cela signifie que le temps d'attente pour un remplissage uniforme des cases temporelles de l'axe des retards sera plus élevé mais que la même qualité de mesure peut être obtenue.

3.5 Illustration de la méthode sur une dynamique nanoseconde

Comme premier exemple d'application de la méthode AD-ASOPS, nous allons présenter l'enregistrement d'une dynamique sur une échelle de temps longue, qui nous permet d'illustrer notre discussion sur la distribution des retards sondés [43]. Grâce au montage schématisé Figure 3.21 (a), nous avons mesuré la réponse temporelle d'une photodiode relativement rapide (temps de montée d'une nanoseconde), associée à celle de l'électronique d'acquisition, après excitation par des impulsions de pompe. Par rapport au schéma fondamental de la Figure 3.3, cela est obtenu en utilisant comme partie signal une simple photodiode qui mesure les impulsions de pompe amenées au détecteur par fibre optique.

Le signal analogique résultant est mesuré en utilisant la carte d'acquisition Innovative déclenchée à la fréquence de la sonde. Ensuite, les données expérimentales sont réarrangées en fonction du retard entre la pompe et la sonde, mesuré avec le montage de détection des coïncidences. La Figure 3.22 montre les résultats expérimentaux obtenus pour un total de 10^6 impulsions laser (équivalent à seulement 10.8 ms d'acquisition) et triés sur 2^{14} cases temporelles de largeur 816 fs.

Pour vérifier que la mesure AD-ASOPS est correcte et n'introduit pas d'artefacts ou d'erreurs systématiques, nous l'avons comparée à une mesure indépendante selon le schéma de la Figure 3.21(b). Il s'agit d'une mesure directe du signal analogique de la photodiode pour laquelle le même laser est utilisé comme signal et comme horloge de sorte que l'acquisition consiste dans l'enregistrement d'un niveau idéalement constant pour chaque valeur de la phase de l'horloge. Dans la pratique, le niveau est soumis à un bruit résultant de la gigue de la boucle à verrouillage de phase de l'horloge. La mesure est effectuée en balayant la phase de l'horloge sur 500 pas de 22 ps chacun, et en enregistrant, pour chaque valeur de la phase, le signal moyenné sur 4096 tirs (44 μ s). La courbe résultante représentée avec des points rouges est en parfait accord avec la mesure précédente.

Nous avons réalisé une vidéo ([Lien Vidéo](#)) qui montre le remplissage progressif de l'histo-

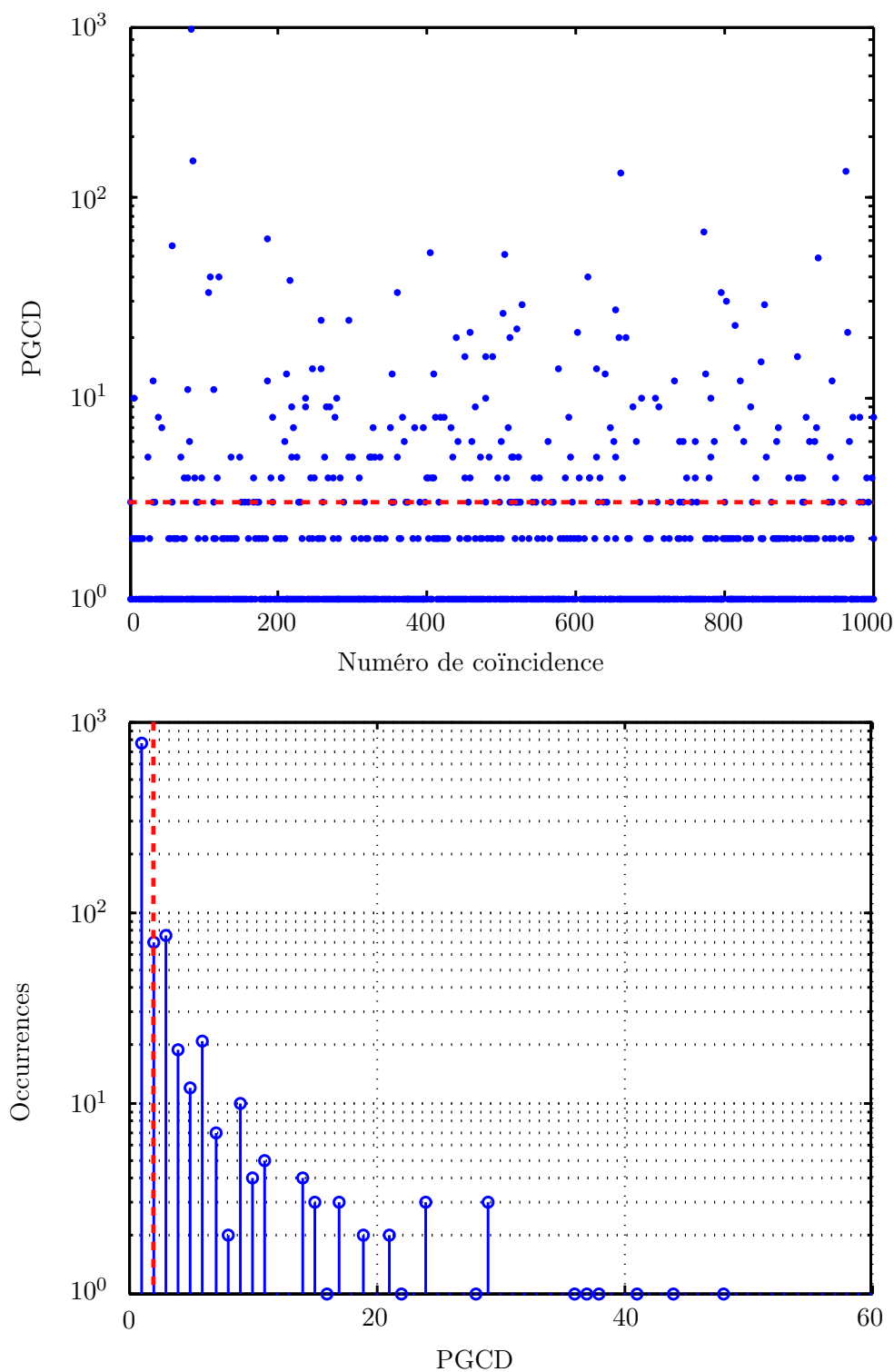


FIGURE 3.20 – (a) Valeurs des PGCD entre les compteurs du laser de pompe à 74.5 MHz et du laser de sonde à 5.1 MHz pour les 1000 premières coïncidences. (b) Histogramme des PGCD. La droite en rouge indique le PGCD égal à deux qui est la limite supérieure pour les couples de coïncidences donnant lieu à des balayages avec pas temporel inférieur à 1 ps.

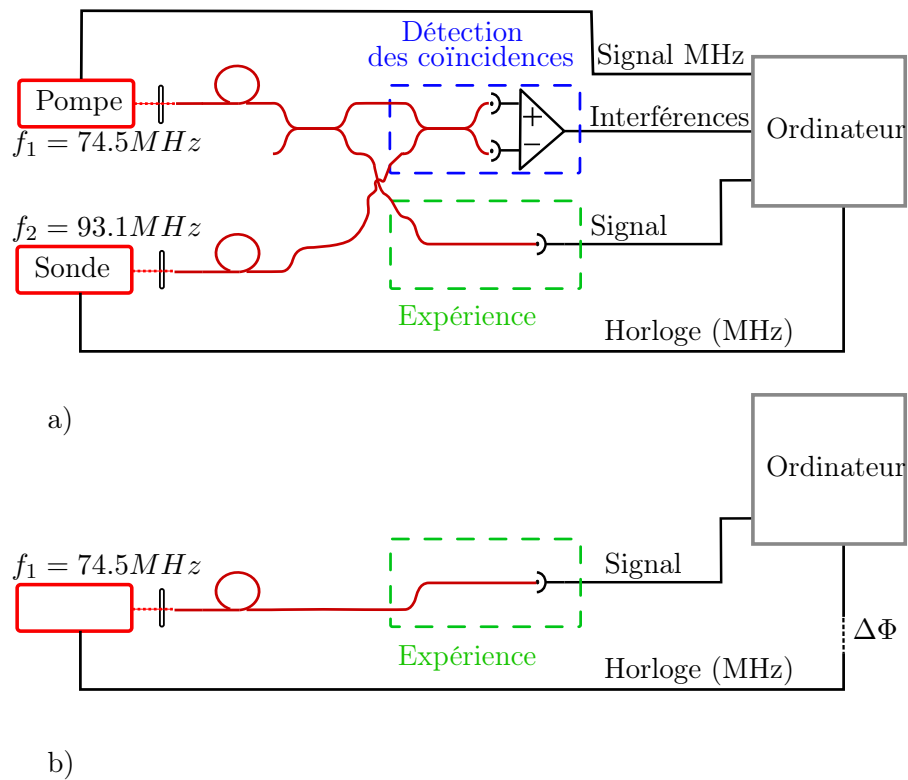


FIGURE 3.21 – Montages pour la mesure de dynamiques sur des temps longs. (a) Mesure AD-ASOPS de la réponse temporelle d’une photodiode et de la chaîne d’acquisition associée. (b) Mesure directe du signal analogique de la photodiode par balayage de la phase de l’horloge.

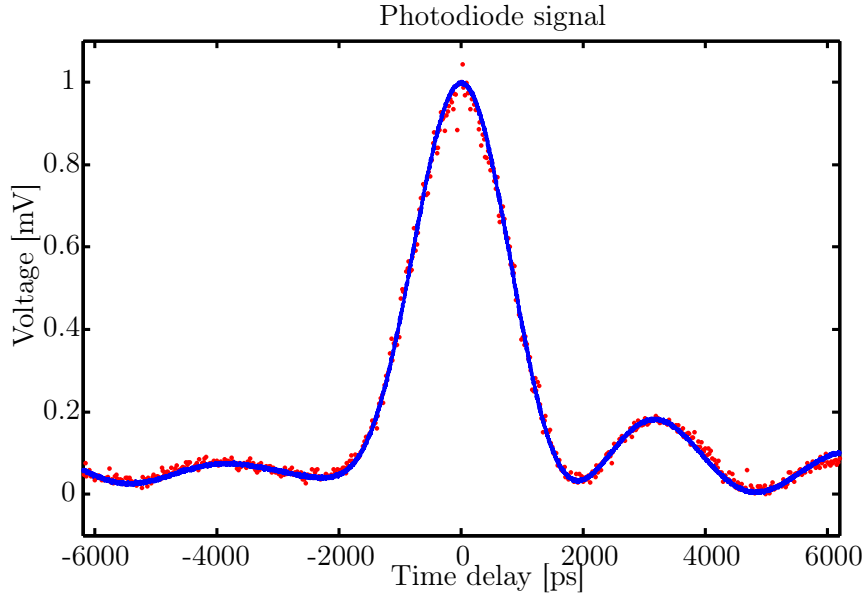


FIGURE 3.22 – Réponse temporelle de la photodiode excitée par le laser de pompe à la fréquence f_1 , acquise avec la carte d'acquisition déclenchée à la fréquence de sonde f_2 et triée selon la valeur du retard pompe-sonde (courbe bleue). Les données sont comparées avec une mesure directe réalisée avec un signal d'horloge déclenché à la fréquence f_1 , pendant que le retard entre excitation et acquisition est balayé de façon purement électronique (points rouges).

gramme et de la courbe du signal associé à l'expérience de Figure 3.21(a) avec un taux d'acquisition représenté sur une échelle temporelle exponentielle. La Figure 3.23 reporte six instantanés relatifs à l'accumulation du signal. Pour les premiers tirs laser, le comportement est similaire à celui de l'ASOPS, exception faite du fait que maintenant la fréquence de balayage est notablement plus élevée. Le premier balayage contient seulement cinq impulsions laser et il est pour cette raison extrêmement clairsemé, comme montré sur la Figure 3.23 (a). Le nombre de points, cinq, correspond au rapport entre la période de pompe ($T_1 = 1/74.5 \text{ MHz} \simeq 13.4 \text{ ns}$) et la différence de période entre la pompe et la sonde ($T_1 - T_2 \simeq 2.7 \text{ ns}$). Dans l'ASOPS cette dernière valeur correspond à l'intervalle d'échantillonnage et limite le choix des fréquences de répétition des lasers utilisés, tandis que dans l'AD-ASOPS elle n'intervient pas dans la détermination de la résolution de mesure. On peut aussi observer que le remplissage advient dans le sens des retards décroissants parce que T_1 dans notre cas est supérieur à T_2 . Les tirs lasers associés aux balayages suivants sont légèrement décalés temporellement - Figure 3.23 (b) et (c). Après un nombre approprié de balayages, toutes les cases temporelles sont sondées - Figure 3.23 (d). Dans la dernière partie de la vidéo, enregistrée en échelle temporelle exponentielle dans le temps du laboratoire, le nombre d'impulsions par case augmente, ce qui a comme conséquence d'améliorer

significativement le rapport signal sur bruit - Figure 3.23 (e) et (f).

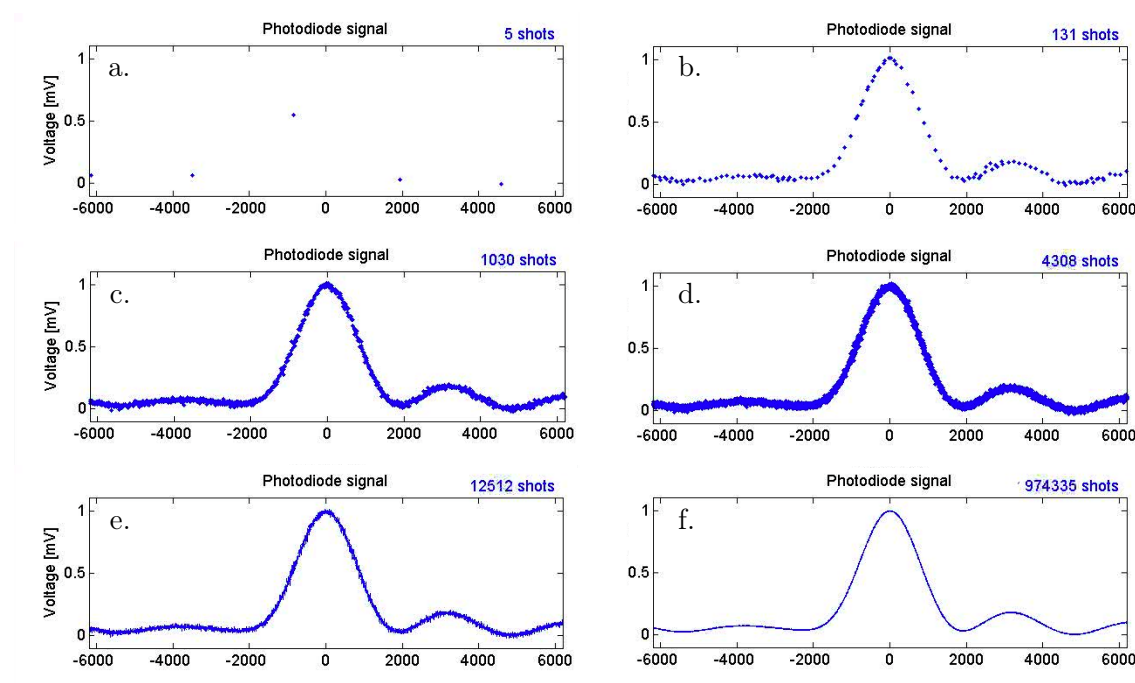


FIGURE 3.23 – Instantanés de la *video* du remplissage progressif de la courbe du signal associé à l'expérience de Figure 3.21(a). (a), (b) et (c) montrent des instants successifs où les premiers balayages remplissent graduellement toutes les cases temporelles de l'axe des retards. En (d), (e) et (f) l'augmentation progressive d'échantillons moyennés pour chaque case a comme conséquence une amélioration sensible du rapport signal sur bruit.

Il n'est pas superflu de remarquer que dans le cas de l'expérience en question, l'impulsion utilisée pour étudier la réponse temporelle de la photodiode et de l'électronique d'acquisition, a parcouru une fibre de 10 mètres et, à cause de la dispersion de vitesse de groupe, présente une durée d'environ 11 ps. La résolution temporelle de la mesure est alors limitée par cette valeur, mais étant donné que la réponse temporelle en étude est un phénomène de dynamique nanoseconde cette valeur est parfaitement acceptable. Bien évidemment, pour les expériences pompe-sonde qui nécessitent une résolution femtoseconde, il est préférable de laisser propager dans l'air les faisceaux laser destinés à la partie "expérience" du montage, tandis que la partie "détection des coïncidences" peut rester confinée dans le montage fibré.

Mesure de la résolution temporelle

Sommaire

4.1	Caractérisation à l'aide du signal d'interférence	57
4.1.1	Mesure de la variance	57
4.1.2	Influence du taux de coïncidence	63
4.1.3	Évolution de la résolution temporelle en fonction du retard	77
4.2	Expérience complémentaire de caractérisation : influence de la longueur de fibre	79

Il existe plusieurs approches pour caractériser la résolution temporelle de la méthode de mesure AD-ASOPS. La première consiste en l'évaluation de la variance du signal interférométrique enregistré au bout de la chaîne de mesure entre les impulsions des deux lasers. La deuxième est basée sur l'utilisation des compteurs lors des coïncidences pour déterminer l'écart quadratique moyen entre les valeurs expérimentales et les valeurs interpolées. Enfin la troisième approche repose sur la mesure de l'inter-corrélation non-linéaire des deux impulsions laser dans un cristal non-linéaire. Nous allons discuter plus en détail de cette dernière méthode au Chapitre 5, vu l'analogie avec l'expérience pompe-sonde qui en est le sujet principal. Dans le chapitre présent nous allons donc examiner en détail la caractérisation de notre méthode par les deux premières approches.

4.1 Caractérisation à l'aide du signal d'interférence

4.1.1 Mesure de la variance

Pour caractériser la résolution temporelle de la méthode AD-ASOPS, nous avons mesuré le signal interférométrique entre les deux faisceaux laser à l'aide d'un second interféromètre [43]. La Figure 4.1 schématise le montage expérimental. Les premiers résultats présentés ont été

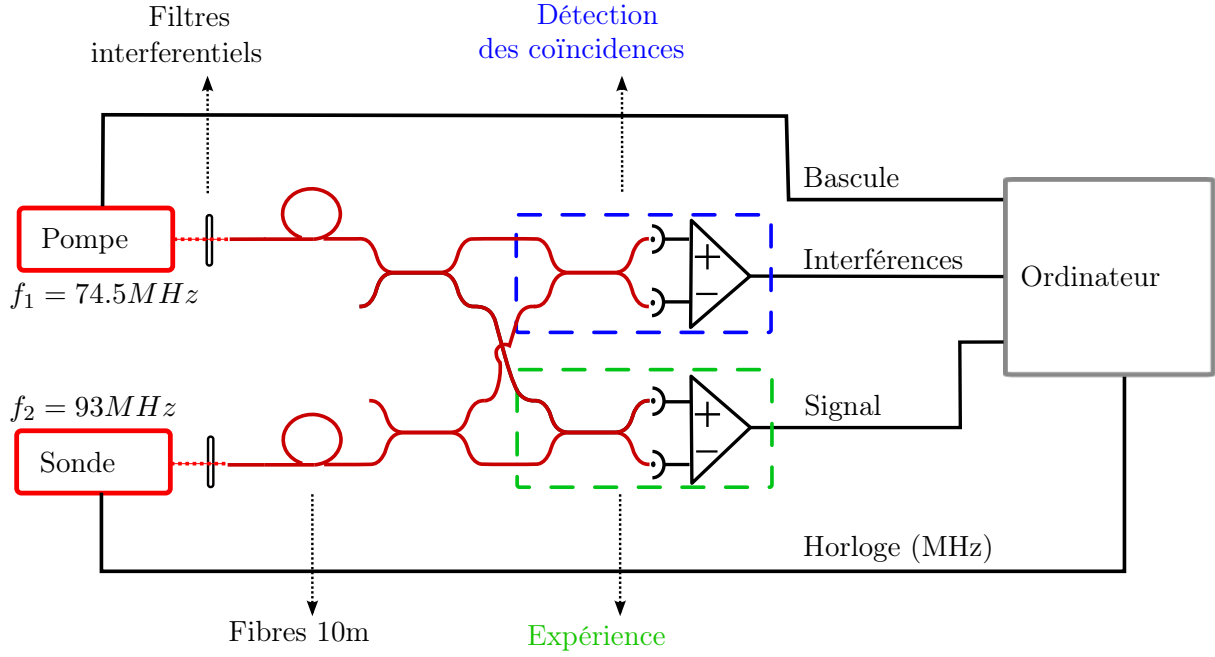


FIGURE 4.1 – Montage expérimental pour la caractérisation de la résolution temporelle de la méthode AD-ASOPS par la mesure de la variance du signal interférométrique.

obtenus avec le laser à 74.5 MHz et celui à 93.0 MHz. À l'intérieur du rectangle vert, la partie de l'expérience qui produit le signal à mesurer reproduit exactement le système de détection des coïncidences. Toutefois, à la place du signal binaire généré pour la détection des coïncidences, nous utilisons ici le signal analogique complet produit par l'amplificateur différentiel. Le signal mesuré pourra être positif ou négatif selon que les deux faisceaux interfèrent constructivement ou destructivement. Pour éviter que l'accumulation des données ne produise un signal moyen égal à zéro nous accumulons non seulement le signal mais également son carré afin de pouvoir calculer la variance du signal pour chaque case temporelle. La variance est ainsi déterminée par la relation

$$\frac{\sum_{i=1}^n \left(x_i - \frac{\sum_{j=1}^n x_j}{n} \right)^2}{n} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i^2}{n} - \left(\frac{\sum_{i=1}^n x_i}{n} \right)^2, \quad (4.1)$$

où x_i est le signal correspondant à l'acquisition numéro i associée à la case temporelle considérée, et n le nombre d'acquisitions effectuées. La courbe résultant de la variance ainsi enregistrée est affichée Figure 4.2. Représentée en échelle semi-logarithmique, elle illustre clairement le succès de la méthode et permet d'en apprécier la grande dynamique accessible. Les données ont été rangées sur un axe des retards composé de 2^{17} cases temporelles, qui correspondent à une largeur de case

de 102 fs. Elles ont été moyennées sur un total de 1.5×10^9 impulsions laser, correspondant à un temps d'acquisition total de 41 secondes (à la place des 16 secondes qui auraient été suffisantes si l'ordinateur avait été assez rapide pour traiter toutes les impulsions laser). La fenêtre temporelle a été représentée entre $-T_1/2$ et $T_1/2$. Le pic principal, présenté en échelle temporelle agrandie dans l'encart de droite, démontre une résolution meilleure que 400 fs FWHM.

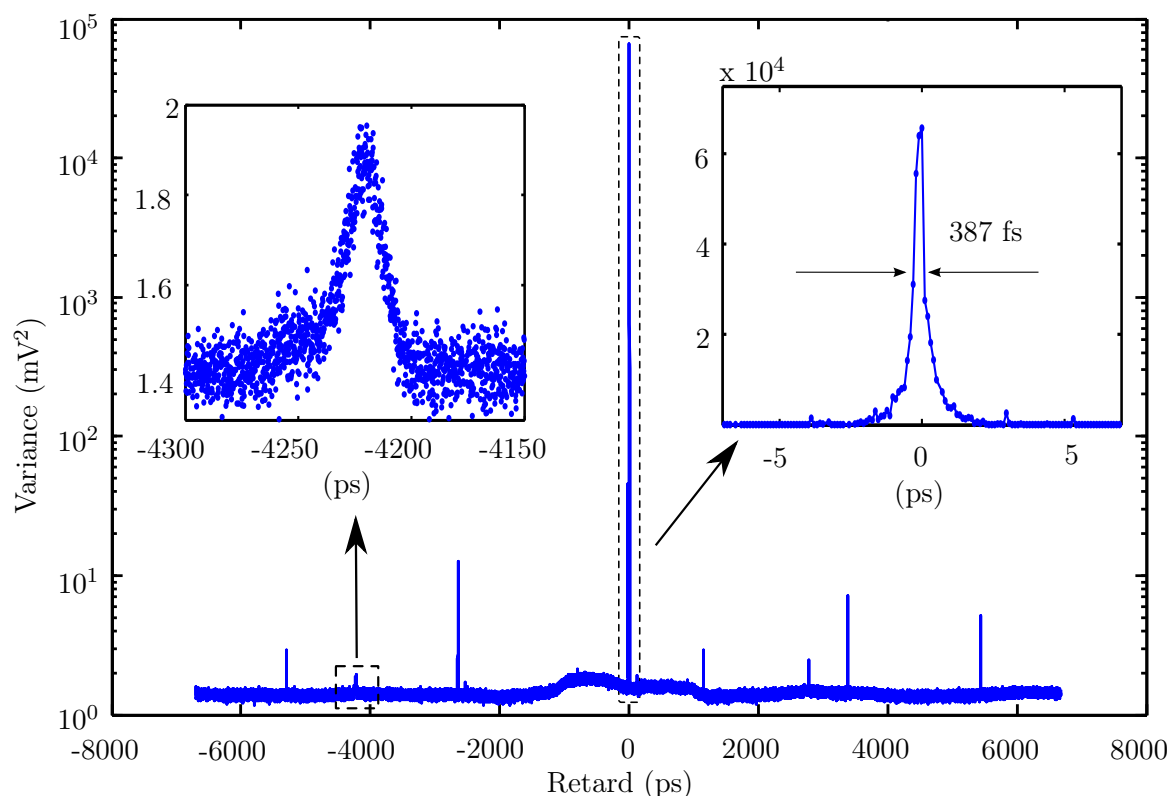


FIGURE 4.2 – Courbe semi-logarithmique de la variance du signal interférométrique résultant du moyennage de 1.5×10^9 tirs laser. L'encart de droite montre un zoom du pic principal qui met en évidence la résolution temporelle (échelle linéaire). L'encart de gauche agrandit un petit pic secondaire observé à 4 ns de retard (modulo T_1) par rapport au pic principal (échelle linéaire).

Il est remarquable qu'une résolution temporelle sub-picoseconde soit obtenue en utilisant deux oscillateurs en fonctionnement libre avec un montage fibré de mise en œuvre très simple. Nous allons maintenant faire une brève digression pour comparer ce résultat avec la résolution attendue en théorie.

4.1.1.1 La variance attendue

Le signal attendu en sortie d'une chaîne de mesure est le produit de convolution entre la fonction de transfert de l'appareil de mesure et le signal à mesurer.

Considérons d'abord la fonction de transfert de l'appareil. Dans notre cas, pour une valeur donnée du retard τ , la fonction de transfert peut être caractérisée à l'aide de la probabilité $\mathcal{P}(\tau)$ de détection d'une coïncidence :

$$\mathcal{P}(\tau) = \mathcal{P}(|\operatorname{Re} g(\tau) \exp(i(\Delta\varphi_0 - \omega_0\tau))| > \varepsilon) \quad (4.2)$$

où ε est la valeur du seuil de détection choisie, et $g(\tau)$ est la fonction de corrélation des enveloppes introduite au Chapitre 3 (voir éq. 3.8). Il s'agit d'une grandeur probabiliste car la différence de phase absolue $\Delta\varphi_0$ est une variable aléatoire pouvant prendre n'importe quelle valeur comprise entre $-\pi$ et π . Faisons l'hypothèse d'impulsions gaussiennes de durée RMS Δt . Les champs associés ont alors des durées RMS $\Delta t\sqrt{2}$ et leur produit de corrélation $g(\tau)$ est associé à une durée RMS Δt_c encore multipliée par $\sqrt{2}$, soit $\Delta t_c = 2\Delta t$. On a donc :

$$g(\tau) = \exp\left(-\frac{\tau^2}{2\Delta t_c^2}\right) = \exp\left(-\frac{\tau^2}{8\Delta t^2}\right) \quad (4.3)$$

Nous pouvons alors développer l'éq. 4.2 comme suit :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\tau) &= \mathcal{P}(e^{-\frac{\tau^2}{8(\Delta t)^2}} |\cos \Delta\varphi_0| > \varepsilon) \\ &= \mathcal{P}(|\cos \Delta\varphi_0| > \varepsilon e^{\frac{\tau^2}{8(\Delta t)^2}}) \\ &= \mathcal{P}\left(|\Delta\varphi_0| < \arccos(\varepsilon e^{\frac{\tau^2}{8(\Delta t)^2}})\right) \\ &= \frac{\arccos(\varepsilon e^{\frac{\tau^2}{8(\Delta t)^2}})}{\pi/2} & |\tau| \leq \tau_{max} \\ &= 0 & |\tau| > \tau_{max}, \end{aligned} \quad (4.4)$$

où τ_{max} est défini par la relation $\varepsilon e^{\frac{\tau^2}{8(\Delta t)^2}} = 1$. Comme mentionné précédemment, Section 3.2, la largeur spectrale FWHM des impulsions initiales est de 3.0 THz. Sachant que pour une

gaussienne limitée par transformée de Fourier, on a les équations suivantes :

$$\frac{\Delta\omega_{FWHM}}{2\pi} \cdot \Delta t_{FWHM} = 0.44 \quad (4.5)$$

$$\Delta t_{FWHM} = \Delta t \sqrt{8 \cdot \ln 2} \quad (4.6)$$

nous pouvons évaluer la durée des impulsions de départ à $\Delta t = 62.5$ fs RMS, qui correspond à 147 fs FWHM. La largeur temporelle $2\tau_{max}$ de la fenêtre de détection est déterminée par la relation

$$2\tau_{max} = 4\Delta t \sqrt{2 \ln \frac{1}{\varepsilon}} \quad (4.7)$$

soit $2\tau_{max} = 338$ fs lorsque le seuil de détection des coïncidences est fixé à $\varepsilon = 0.4$. On obtient alors la probabilité $\mathcal{P}(\tau)$ représentée par la courbe bleue Figure 4.3.

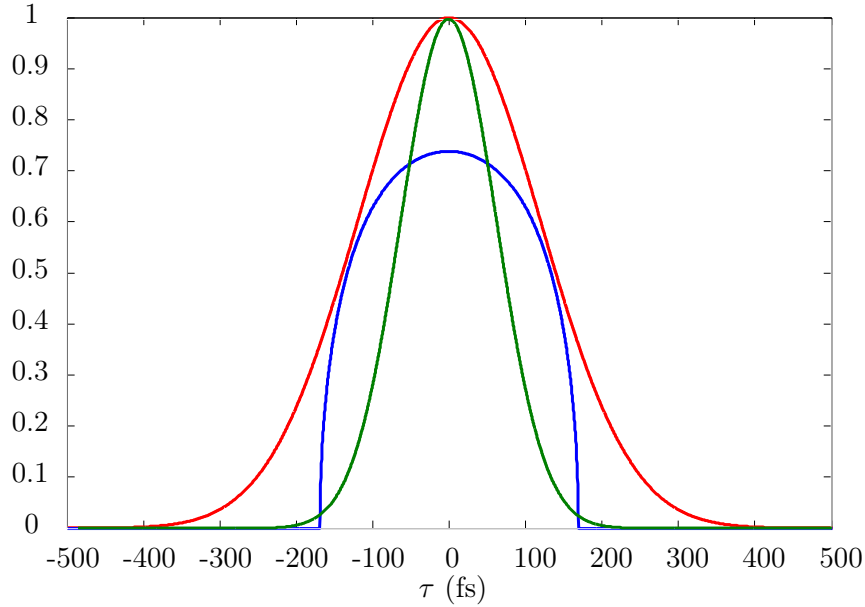


FIGURE 4.3 – Détermination du signal attendu en sortie de la chaîne de mesure : fenêtre de détection du système de mesure (en bleu, 338 fs de largeur aux pieds), variance théorique du signal (en vert, 147 fs FWHM), variance attendue (en rouge, 280 fs FWHM) calculée comme la convolution entre le signal interférométrique et une porte rectangulaire de largeur 102 fs.

Ensuite, le signal à mesurer est obtenu à partir du signal interférométrique :

$$S(\tau) = \text{Re } g(\tau) \exp(i\Delta\varphi_0 - \omega_0\tau) \quad (4.8)$$

qui correspond à l'éq. 3.8 mais sans le terme constant qui est éliminé grâce à la détection

différentielle. La durée FWHM de l'enveloppe de ce signal est 208 fs, ce qui donnera lieu à une largeur FWHM de la variance $\sqrt{2}$ fois plus courte (courbe verte Figure 4.3). Pour calculer le signal attendu, nous avons simulé la mesure en calculant $S(\tau)$ pour plusieurs valeurs de $\Delta\varphi_0$ aléatoires. Pour chacun des $S(\tau)$ nous avons fait la convolution avec la probabilité de détection d'une coïncidence $\mathcal{P}(\tau)$ (éq. 4.4). Ensuite, nous avons fait la convolution des différentes courbes $S(\tau) \otimes \mathcal{P}(\tau)$ avec une fonction rectangulaire de largeur 102 fs, pour tenir compte de la discrétisation de l'axe des temps en 2^{17} cases, comme décrit précédemment. Nous avons ainsi obtenu le signal interférométrique acquis. Enfin nous avons calculé la variance selon l'éq. 4.1, qui est illustrée Figure 4.3 par la courbe rouge. Elle présente une largeur FWHM de 280 fs.

Ces calculs nous montrent que, même si une résolution sub-picoseconde a bien été démontrée par la mesure, les 387 fs obtenus sont légèrement supérieurs à la valeur attendue. Nous envisageons deux raisons pouvant expliquer l'élargissement observé. En premier lieu, la gigue laser génère des fluctuations incontrôlées des taux de répétition entre deux coïncidences, qui ne sont pas prises en compte par l'algorithme de calcul des retards. Dans la suite du chapitre, des mesures de résolution temporelle en fonction de l'intervalle entre les coïncidences seront présentées pour évaluer le rôle de la gigue (section 4.1.2). Ensuite, contrairement à l'hypothèse d'absence de différence de phase spectrale entre les impulsions interférantes, il pourrait y avoir un certain déséquilibre dans la quantité de phase spectrale accumulée dans la propagation à travers les deux fibres optiques de 10 mètres, qui augmenterait la fenêtre de cohérence des deux lasers en interférence linéaire. Cela pourrait être dû à l'effet combiné d'une légère différence entre les deux impulsions initiales et de l'accumulation d'effets non-linéaires pendant la propagation dans les fibres. Néanmoins, pour ce qui concerne cette dernière hypothèse, nous avons effectué des calculs d'intégrale B afin d'évaluer le niveau de non-linéarité résultant de la propagation à travers les fibres et nous avons obtenu (voir Annexe B) une valeur de 1.44π , qui ne nous semble pas justifier la perte de résolution observée.

Les calculs que nous venons de faire pour évaluer la probabilité de détection des coïncidences nous permettent également de déterminer le pourcentage de coïncidences détectées par rapport au nombre total de coïncidences relatives à une certaine valeur de seuil. Pour un retard τ réparti aléatoirement à l'intérieur de la fenêtre de détection $[-\tau_{max}, \tau_{max}]$, la probabilité de détecter une coïncidence est simplement égale à la valeur moyenne de la fonction $\mathcal{P}(\tau)$ sur cet intervalle, qui est égale à 0.603. On détectera donc environ 60% des coïncidences.

Revenons enfin aux résultats expérimentaux. En s'éloignant du pic central, la Figure 4.2 met aussi en évidence des pics satellites que nous attribuons à des réflexions secondaires sur différentes interfaces du montage. Par exemple le petit pic montré dans l'encart de gauche a une position temporelle de -4223 ps (modulo T_1) et une durée de 18 ps, calculée par fit gaussien. Ces valeurs sont compatibles avec le retard et la dispersion de vitesse de groupe associés avec une propagation à travers 23.6 m de fibre optique, qui indiquent un double passage à travers la fibre de 10 mètres et le coupleur fibré de 1.67 m. Une étude systématique de l'influence de la propagation des faisceaux lasers dans la fibre optique sur la largeur et le retard des pics mesurés sera présentée en section 4.2.

4.1.2 Influence du taux de coïncidence

Nous avons répété l'expérience selon le schéma de la Figure 3.3 en remplaçant le laser fait maison à 93.0 MHz avec l'oscillateur à impulsions à dérive de fréquence à 5.1 MHz, en utilisant toujours le laser à 74.5 MHz mais cette fois comme laser de sonde. Les résultats obtenus sont reportés Figure 4.4. La courbe bleue correspond au pic principal de ces dernières expériences, tandis que la courbe rouge reporte le pic principal de l'expérience précédente. Nous observons une détérioration significative de la résolution temporelle obtenue, qui avec cette deuxième configuration correspond à une valeur FWHM de 4.8 ps.

La différence de résolution entre les deux expériences est extrêmement importante. Mais le résultat s'interprète simplement si nous analysons les taux de coïncidence relatifs aux deux situations.

Pour chaque impulsion de sonde, la probabilité qu'elle soit en coïncidence avec une impulsion de pompe est :

$$\int_0^{T_1} \frac{\mathcal{P}(\tau)}{T_1} d\tau, \quad (4.9)$$

où T_1 est la période du laser de pompe et $\mathcal{P}(\tau)$ est la probabilité de détection des coïncidences en fonction du seuil, que nous venons de calculer. Une estimation précise du taux de coïncidence est alors exprimée par la formule suivante :

$$\int_0^{T_1} \frac{\mathcal{P}(\tau)}{T_1} f_2 d\tau, \quad (4.10)$$

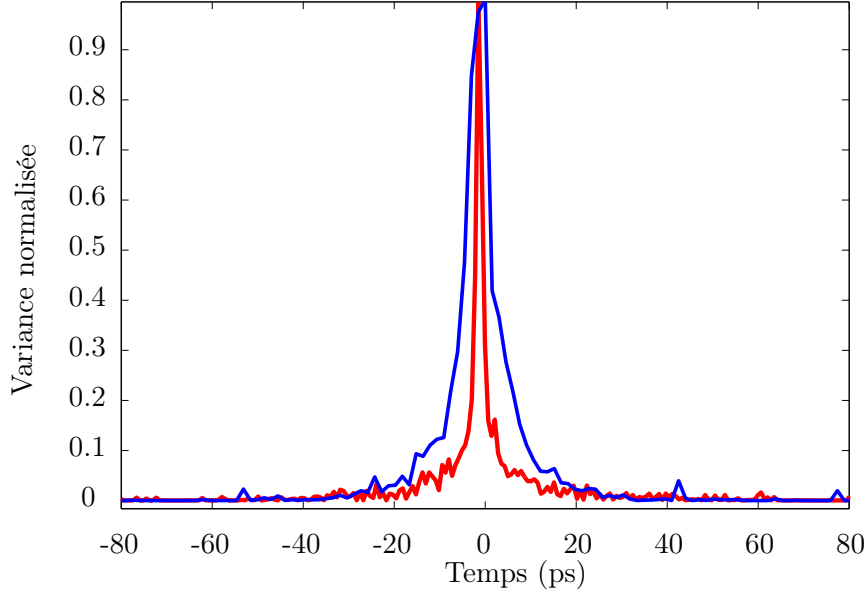


FIGURE 4.4 – Comparaison entre la résolution temporelle obtenue avec deux lasers de fréquences proches en rouge (91.0 MHz et 74.5 MHz) et deux lasers de fréquences très différentes en bleu (74.5 MHz et 5.1 MHz). Dans le premier cas la largeur du pic indique une résolution de 387 fs et dans le deuxième cas de 4.8 ps.

où f_2 est la fréquence de répétition de la sonde.

Considérons le cas de la pompe à 74.5 MHz et de la sonde à 93.0 MHz. Nous pouvons calculer un taux de coïncidence de 972 Hz pour un seuil de coïncidence fixé à 40%. Cela correspond à un intervalle moyen entre les coïncidences légèrement supérieur à 1 ms. En pratique, nous avons mesuré un taux de coïncidence moyen de 1.06 kHz, en bon accord avec l'estimation théorique.

La valeur que nous venons de calculer est une valeur moyenne et, contrairement à l'ASOPS conventionnel, il y a une large distribution d'intervalles de temps Δt_{coinc} possibles entre deux coïncidences successives. La densité de probabilité associée au cas en question est illustrée Figure 4.5 par les données bleues. Pour de grandes valeurs de l'intervalle, elle montre une décroissance exponentielle, avec une constante de temps d'environ 800 μs . Cette décroissance rapide nous assure que l'effet de la gigue laser, plus important pour les intervalles plus longs, reste limité. Remarquons enfin que cette décroissance exponentielle indique que la détection de coïncidences est un processus aléatoire sans effet de mémoire (à l'exception d'un petit intervalle de temps juste après une coïncidence), ce qui sera discuté plus en détail à l'Annexe D.

Pour le cas de la pompe à 5.1 MHz et de la sonde à 74.5 MHz nous observons une situation similaire au cas précédent, qui correspond à la même courbe de détection des coïncidences

$\mathcal{P}(\tau)$ calculée dans le cas précédent. En répétant les mêmes considérations, nous nous attendons à un taux de coïncidence moyen de seulement 54 Hz. Les données rouges de la Figure 4.5 montrent la densité de probabilité des Δt_{coinc} possibles dans cette deuxième situation. Elles affichent un intervalle moyen de 11.4 ms qui correspond à une fréquence de coïncidence moyenne de 87 Hz. L'écart entre cette valeur et la valeur attendue peut être imputé à deux raisons.

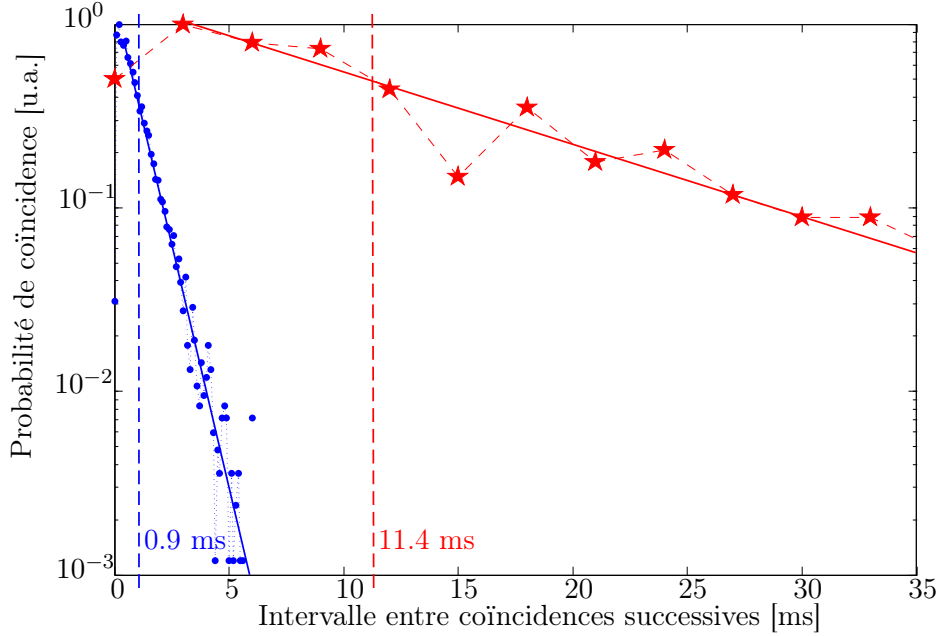


FIGURE 4.5 – Courbes semi-logarithmiques des fonctions de densité de probabilité de détection des coïncidences mesurées en fonction de l'intervalle de temps écoulé entre deux événements : les points bleus correspondent aux coïncidences entre le laser à 93.0 MHz et celui à 74.5 MHz, les étoiles rouges correspondent aux coïncidences entre le laser à 74.5 MHz et celui à 5.1 MHz. Pour les données bleues, elles ont été obtenues en déterminant l'histogramme des coïncidences par rapport au temps passé depuis la coïncidence précédente triées en cases temporelles de 100 μ s. Pour les données rouges les cases temporelles sont de 3 ms. Les données correspondant à un intervalle supérieur à 500 μ s pour les mesures en bleu et à 3 ms pour les mesures en rouge ont été ajustées à une fonction de décroissance exponentielle avec une constante de temps de 802 μ s (ligne bleue) et de 11 ms (ligne rouge).

La première cause possible est une sous-estimation de la fenêtre temporelle de détection des coïncidences. La deuxième est une valeur de seuil de détection des coïncidences inférieure au 40% utilisé en général. Notons qu'une diminution (ou augmentation) de ce seuil implique une augmentation (ou diminution) du pourcentage de coïncidences détectées par rapport au nombre total d'événements, mais aussi une augmentation (ou diminution) de la fenêtre de détection. En pratique, dans notre cas nous soupçonnons une sous-estimation de la fenêtre temporelle de détection des coïncidences, qui correspondrait à une impulsion initiale de 240 fs, plutôt que 147

fs. La phase quadratique nécessaire pour obtenir une telle largeur de convolution est de l'ordre de 10000 fs^2 ce qui paraît excessif pour être justifié par un mauvais alignement du compresseur à prismes à la sortie de l'oscillateur CPO. Nous optons plutôt pour une explication à rechercher dans des effets non linéaires pendant la propagation de l'impulsion issue du CPO dans les 10 mètres de fibre optique, qui ne seraient pas compensés dans la propagation de l'impulsion issue du femtosource. Ces considérations auraient nécessité des mesures supplémentaires pour être exhaustives, comme par exemple une méthode non-linéaire de détermination de la phase initiale de l'impulsion à l'entrée de la fibre. Cela n'a pas été fait parce qu'à l'époque des expériences la résolution visée pour la méthode AD-ASOPS était de l'ordre de la picoseconde et n'était donc pas limitée par la durée des impulsions. Toutefois, compte-tenu de ce que nous venons d'analyser nous pouvons affirmer que, dans le cas où les fréquences de répétition et le seuil de détection sont précisément connus, la mesure de la fréquence moyenne de détection des coïncidences peut constituer une méthode rigoureuse de mesure de la durée d'impulsion.

Enfin les données rouges de la Figure 4.5 relatives à des valeurs d'intervalle supérieures à 3 ms ont été ajustées à une fonction de décroissance exponentielle avec une constante de temps de 11 ms, ce qui implique un effet plus important de la gigue laser par rapport au cas précédemment analysé et qui justifie l'essentiel de la différence de résolution pour les deux mesures reportées Figure 4.4.

4.1.2.1 Mesures avec sélection des coïncidences

La Figure 4.6 montre les résultats obtenus en répétant plusieurs fois les mesures avec les lasers à 5.1 MHz et à 74.5 MHz. À chaque fois une valeur maximale d'intervalle différente entre coïncidences successives a été imposée : seulement les acquisitions entre coïncidences moins espacées que le seuil défini ont été utilisées pour la mesure. L'effet de cette sélection sur la résolution de la mesure est significatif : en resserrant l'intervalle entre coïncidences la largeur à mi-hauteur de la variance du signal mesuré diminue, l'amplitude mesurée augmente et les pieds de la courbe mesurée diminuent. La figure montre les résultats obtenus pour trois mesures pour lesquelles on impose respectivement $\Delta t_{coinc} < 5 \text{ ms}$, $\Delta t_{coinc} < 3 \text{ ms}$ et $\Delta t_{coinc} < 1 \text{ ms}$, où Δt_{coinc} est l'intervalle entre coïncidences successives. Le seuil de détection des coïncidences a été fixé, spécifiquement pour cette expérience, à 20% du signal maximal pour augmenter ainsi le taux de coïncidence et pouvoir garder des temps d'acquisition limités à respectivement environ 3, 4 et 5

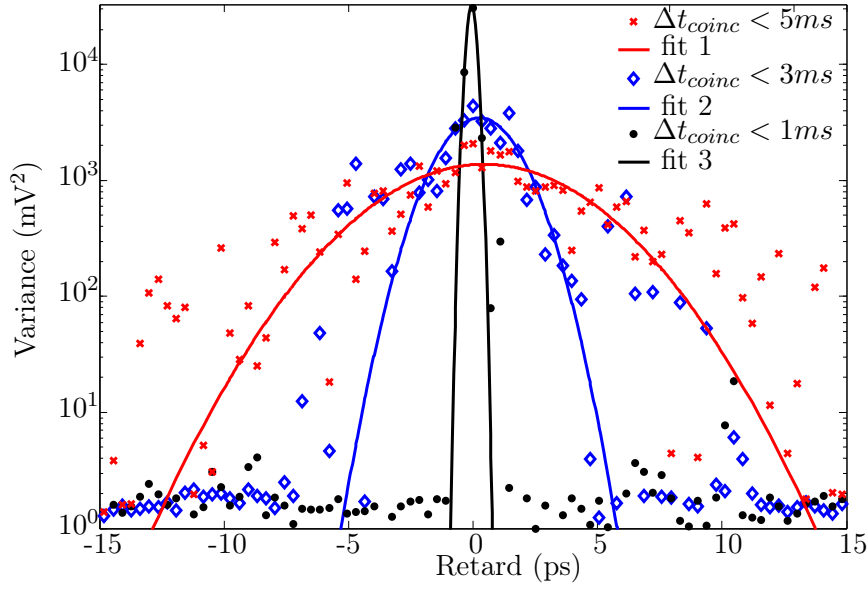


FIGURE 4.6 – *Effet du taux de coïncidence sur la résolution de mesure.* La figure montre les données et le fit gaussien relatifs à trois expériences de mesure AD-ASOPS avec sélection de l'intervalle entre coïncidences : en rouge $\Delta t_{coinc} < 5ms$ montre une résolution de ~ 5 ps ; en bleu $\Delta t_{coinc} < 3ms$ affiche une résolution de ~ 2 ps ; enfin en noir $\Delta t_{coinc} < 1ms$ la valeur de 440 fs se rapproche de la résolution théorique.

minutes pour les trois séries. L'intervalle moyen entre coïncidences pour ce groupe d'expériences descend alors à 3.5 ms. La figure montre que, pour une limite supérieure de Δt_{coinc} égale à 5 ms, nous retrouvons une résolution FWHM de ~ 5 ps, similaire à celle de la Figure 4.4 car seulement une petite partie des coïncidences a effectivement été ignorée. Par contre pour des coïncidences espacées au maximum de 3 ms, la résolution descend à ~ 2 ps. Enfin, pour un Δt_{coinc} inférieur à 1 ms la résolution est de 440 fs (FWHM du fit gaussien), qui se rapproche sensiblement de la limite théorique de largeur de la fenêtre de détection qui dans le cas de seuil à 20% est de 322 fs. Nous retrouvons la valeur de 1 ms comme intervalle limite à l'intérieur duquel l'effet de la gigue est limité.

Remarquons que dans le cas d'intervalles de temps longs entre coïncidences successives, des erreurs importantes de détermination du retard peuvent intervenir de manière sporadique. Ceci explique que l'on observe une variance non nulle, par exemple, pour des retards de 10 ps sur la courbe rouge ($\Delta t_{coinc} < 5$ ms). Comme seules ces rares erreurs contribuent au calcul de la variance, le petit nombre d'événements concernés explique le bruit important observé sur les données représentées en bleu et à fortiori en rouge. Il faut donc considérer les fits gaussiens comme un simple moyen d'évaluer la largeur de la distribution des retards et ne constituent

aucunement un modèle de distribution elle-même.

L'échelle semi-logarithmique de la Figure 4.6 met particulièrement en évidence l'évolution des pieds du signal enregistré avec les différentes sélections du Δt_{coinc} . Nous voulons maintenant évaluer quel est l'effet des pieds sur la résolution effective de la mesure et dans ce but nous avons calculé, Figure 4.7, l'intégrale des courbes précédentes par rapport au temps. Idéalement, pour un signal initial parfaitement gaussien, l'intervalle de temps nécessaire pour passer de 12% à 88% du maximum de l'intégrale correspond à la largeur à mi-hauteur de la courbe de départ. Nous allons donc calculer cet intervalle pour les courbes mesurées et sa valeur nous donnera

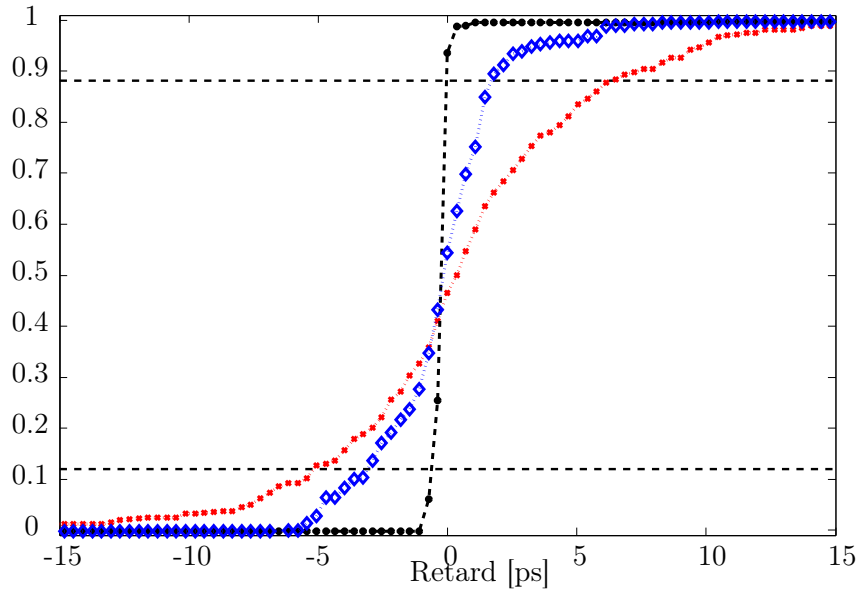


FIGURE 4.7 – Effet du taux de coïncidence sur la résolution temporelle. La figure montre les intégrales des courbes relatives à la Figure 4.6 : en rouge $\Delta t_{coinc} < 5\text{ms}$, en bleu $\Delta t_{coinc} < 3\text{ms}$ et en noir $\Delta t_{coinc} < 1\text{ms}$. Pour une définition de la résolution comme l'intervalle nécessaire pour passer de 12% à 88% du maximum de l'intégrale nous trouvons les valeurs suivantes : 12 ps, 4.5 ps et 0.6 ps respectivement.

l'écartement des mesures par rapport à une évolution gaussienne, ainsi qu'une estimation de la résolution de la mesure dans le cas d'une expérience pompe-sonde. Nous pouvons lire Figure 4.7 les intervalles de temps suivants : 12 ps pour $\Delta t_{coinc} < 5\text{ms}$, 4.5 ps pour $\Delta t_{coinc} < 3\text{ms}$ et 600 fs pour $\Delta t_{coinc} < 1\text{ms}$. Il en résulte que cette définition de la résolution est plus sévère et les valeurs ainsi obtenues sont sensiblement moins bonnes que celles obtenues par une résolution définie à la mi-hauteur de la variance. Néanmoins, il est plus rigoureux de tenir compte de ces valeurs moins favorables qui en pratique vont limiter l'intervalle minimum accessible par la mesure. Comme attendu, l'écart entre les deux manières de définir la résolution s'amplifie pour des intervalles

de Δt_{coinc} croissants, quand la réponse du système, plus affectée par la gigue des lasers, s'écarte d'avantage du fonctionnement gaussien.

En conclusion, à travers la sélection de l'intervalle maximal entre coïncidences successives il est possible de choisir la résolution souhaitée de la méthode, indépendamment du taux moyen de coïncidence, jusqu'à viser au mieux la fenêtre de détection des coïncidences. L'influence du taux moyen de coïncidence reste évidente sur l'augmentation du temps d'acquisition qu'une telle sélection implique.

4.1.2.2 Caractérisation de l'erreur de mesure à l'aide des coïncidences

La Figure 4.8 illustre l'origine de l'erreur de mesure, due à l'approximation linéaire de l'évolution du retard entre les impulsions de pompe et de sonde, ce qui correspond à considérer des systèmes laser parfaitement stables et exempts de gigue. La courbe noire montre un exemple

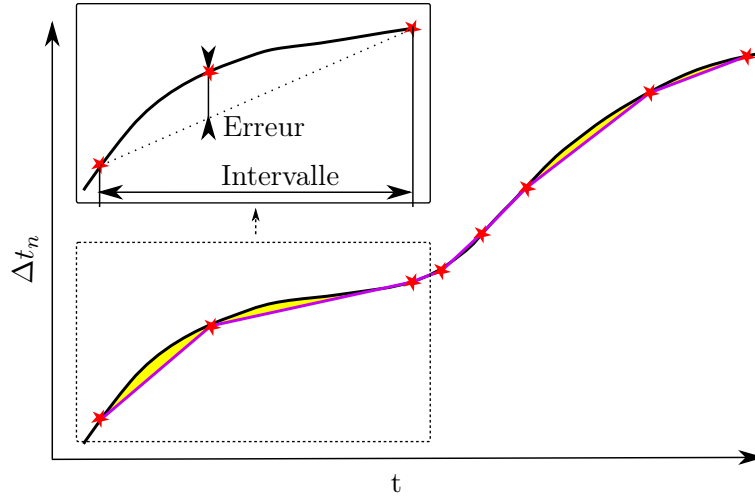


FIGURE 4.8 – Illustration de l'erreur de mesure (surface en jaune) due à l'approximation linéaire de l'évolution du retard relatif : la courbe noire est un exemple d'évolution du retard dans le temps, les étoiles rouges représentent des coïncidences et la ligne brisée violette montre le calcul de Δt par approximations linéaires.

d'évolution du retard Δt_n dans le temps, non replié à l'intérieur de l'intervalle $[0, T_1]$. Les étoiles rouges symbolisent des événements de coïncidence, et les traits violets montrent l'approximation faite par l'hypothèse d'une évolution linéaire du retard entre deux coïncidences. Les surfaces en jaune mettent en évidence l'erreur commise par une telle approximation. Conformément à ce

qui a été observé dans la Section 4.1.2.1, il est clair que, plus on sélectionne des coïncidences proches entre elles, plus l'approximation linéaire est à même de suivre l'évolution du système en limitant l'erreur commise. En contrepartie, de longs intervalles de temps peuvent s'écouler pendant lesquels l'appareil de mesure est simplement en attente de nouvelles coïncidences avec le bon écart temporel. Par conséquent, en composant avec le temps d'acquisition il est possible d'affiner la résolution de la mesure.

Pour évaluer de façon quantitative la relation entre l'erreur de mesure et l'intervalle entre les coïncidences, nous avons réalisé une expérience avec le laser à 74.5 MHz et celui à 79.9 MHz, et nous avons enregistré les compteurs aux coïncidences pendant 4 minutes, équivalents à 1.9×10^{10} tirs. En prenant ces valeurs par triplets, nous avons calculé l'erreur commise sur la coïncidence intermédiaire en considérant une évolution linéaire entre la première et la troisième coïncidence, selon le schéma de l'encart en Figure 4.8. Pour pouvoir évaluer des intervalles allant jusqu'à 1 seconde, alors que leur distribution tend vers zéro bien avant 4 ms - voir Figure 4.12 (a) - il suffit de considérer aussi des triplets de coïncidences non successives. La déviation standard de l'erreur calculée en fonction de l'intervalle entre la première et la troisième coïncidence est illustrée par la courbe rouge de la Figure 4.9 sur un axes des abscisse divisé en 4096 cases de largeur 0.049 ms. Le graphe en haut de la figure est en échelle linéaire, tandis qu'en bas de la figure le même graphe est reporté en échelle log-log. Les deux différentes représentations nous permettent d'apprécier les différentes zones d'évolution de l'erreur. En particulier l'échelle log-log permet une bonne observation de la montée pour des intervalles entre coïncidences inférieurs à 150 ms, tandis que l'échelle linéaire offre une meilleure visualisation du comportement oscillatoire de l'erreur autour de la valeur de plateau qui est atteinte pour des intervalles supérieurs à 150 ms. Pour analyser les sources mécaniques de l'erreur, nous avons développé un modèle simple prenant en compte l'oscillation des longueurs de cavité des deux oscillateurs selon une superposition discrète de modes propres sinusoïdaux. Les résultats du calcul, dont le détail est reporté en Annexe C, permettent d'exprimer la déviation standard de l'erreur selon la loi suivante :

$$\delta t = \sqrt{\frac{6}{5} \sum_n \delta t_n^2 \left(1 - \text{sinc}^2 \left(\frac{\Omega_n \tau}{2} \right) - \frac{1}{3} \sin^2 \left(\frac{\Omega_n \tau}{2} \right) \right)} \quad (4.11)$$

ou τ est l'intervalle entre coïncidences, n est l'indice relatif à chaque mode de vibration et Ω_n et δt_n sont les paramètres de chaque mode en termes de pulsation et d'amplitude de la variation

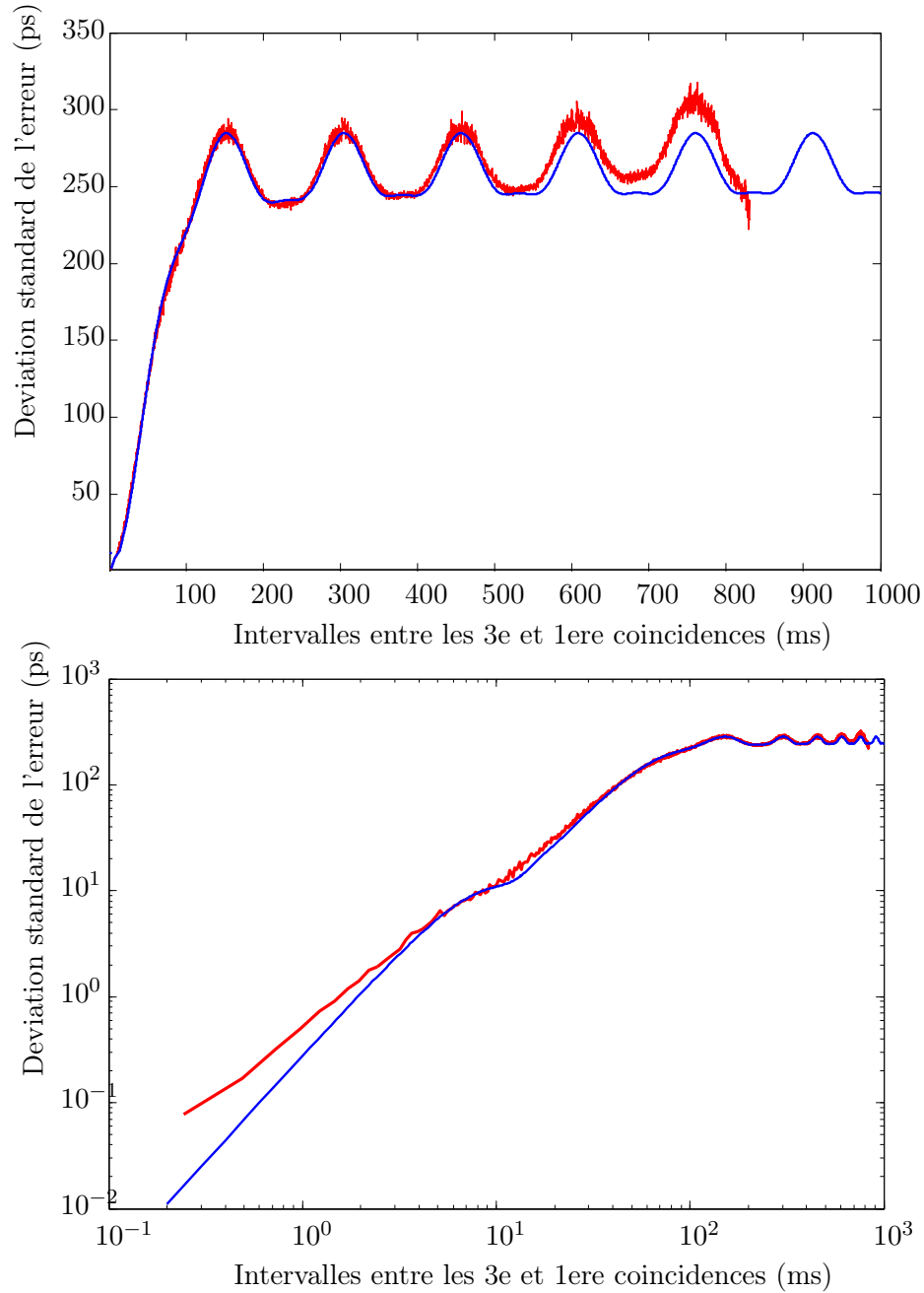


FIGURE 4.9 – Déviation standard de l'erreur de mesure calculée - courbe rouge - sur une expérience réalisée pendant 4 minutes, équivalent à 1.9×10^{10} tirs, avec le laser à 74.5 MHz et celui à 79.9 MHz. La courbe bleue représente le fit de la déviation standard calculé selon le modèle de vibration de la longueur d'une cavité d'un oscillateur décrit dans le texte.

de la période laser induite par le mode. Pour une évaluation plus directe, ces deux derniers paramètres peuvent être exprimés en termes d'amplitude de vibration (δL_n) et de fréquence de vibration (f_n) en appliquant les équations suivantes :

$$\delta L_n = L\Omega_n \sqrt{\frac{6}{5}} \delta t_n \quad (4.12)$$

$$f_n = \frac{\Omega_n}{2\pi} \quad (4.13)$$

où L est la longueur de cavité. Les paramètres utilisés pour obtenir la courbe bleue de la Figure 4.9 sont :

- MODE 1 : $\delta L_1 = 22$ nm, $f_1 = 110$ Hz ;
- MODE 2 : $\delta L_2 = 44$ nm, $f_2 = 13.15$ Hz ;
- MODE 3 : $\delta L_3 = 38$ nm, $f_3 = 6.57$ Hz.

Pour ce qui concerne l'écart entre les deux courbes de la Figure 4.9 pour les intervalles de coïncidences supérieurs à 550 ms, nous pouvons l'expliquer par des dérives lentes qui ne sont pas incluses dans le modèle et qui vont prévaloir pour les échelles de temps longues. Par ailleurs, l'écart observé entre la mesure et le modèle pour $\tau < 2$ ms (visible sur le graphe en échelle log-log) provient de la résolution finie de notre méthode, qui n'est pas prise en compte par le modèle. Dans ce régime, la résolution temporelle n'est donc plus limitée par la gigue temporelle des oscillateurs mais par la largeur de la fenêtre de détection des coïncidences. Notons toutefois que la résolution obtenue par la méthode discutée ici peut parfois être inférieure à la résolution intrinsèque, associée à la largeur de la fenêtre de détection, puisqu'on observe sur la Figure 4.9 des valeurs pouvant même être inférieures à 100 fs. Ceci provient du fait que lorsque l'intervalle entre coïncidences tend vers zéro, il existe de moins en moins de valeurs possibles pour les compteurs d'impulsions des deux lasers. Par un effet d'arrondi, on pourra ainsi obtenir des valeurs des compteurs associées à un alignement parfait des coïncidences, alors même que la coïncidence intermédiaire correspond à une paire d'impulsion décalée d'une quantité pouvant aller jusqu'à la largeur de la fenêtre de détection. Ceci illustre le fait que la valeur de la résolution obtenue par la méthode de mesure discutée dans cette section et reposant sur les mesures de coïncidences elles-mêmes constitue en fait une détermination d'une borne inférieure de la résolution temporelle, contrairement aux deux autres méthodes illustrées en Section 4.1.1 et en Section 5.1.

Enfin, pour des intervalles τ compris entre environ 10 et 20 ms, nous pouvons observer un

très léger écartement de la courbe de montée théorique par rapport à celle calculée expérimentalement : ceci est probablement dû à l'effet d'un mode vibratoire supplémentaire qui n'est pas pris en compte par le modèle. Néanmoins, malgré les petites différences observées, nous pouvons conclure que la comparaison entre les deux courbes de la Figure 4.9 montre un très bon accord du modèle avec les calculs issus des données expérimentales.

Comme démontré par le développement limité reporté en Annexe C, la courbe théorique que nous venons d'analyser a un comportement quadratique pour les intervalles proches de zéro. Nous avons alors voulu évaluer l'éventuelle amélioration apportée par le remplacement de l'approximation linéaire de l'évolution du retard par une approximation quadratique. Pour cela nous avons répété les calculs de déviation standard de l'erreur sur les coïncidences, mais cette fois nous avons calculé l'erreur selon le schéma de la Figure 4.10. En prenant quatre

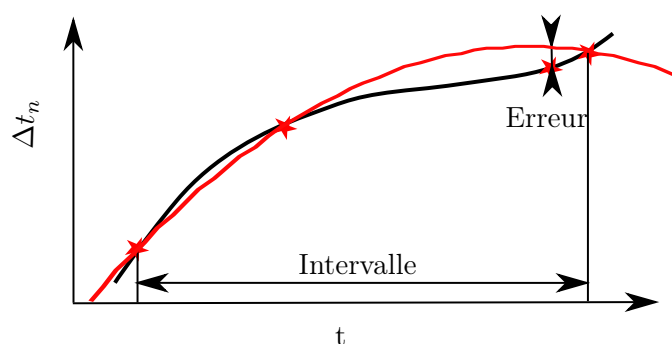


FIGURE 4.10 – Illustration du principe de calcul de l'erreur de mesure commis en faisant l'hypothèse d'évolution quadratique du retard entre les impulsions.

coïncidences successives, nous avons calculé le fit quadratique (en rouge) en utilisant la première, la deuxième et la quatrième coïncidence et nous avons calculé l'erreur en comparant le retard attendu selon le fit avec la troisième coïncidence. La Figure 4.11 représente la déviation standard de l'erreur obtenue en utilisant un fit linéaire et celle de l'erreur obtenue avec fit quadratique pour des intervalles entre coïncidences inférieurs à 8 ms. On peut observer que, bien que le fit quadratique limite la déviation standard pour les intervalles longs, au dessous d'une milliseconde, qui est la valeur moyenne de taux de coïncidence pour les lasers utilisés, les deux méthodes sont équivalentes.

Mais pour comparer plus rigoureusement les deux méthodes, il faut prendre en compte le fait que l'intervalle entre coïncidences est, dans le cas de la courbe bleue l'écart entre la troisième et

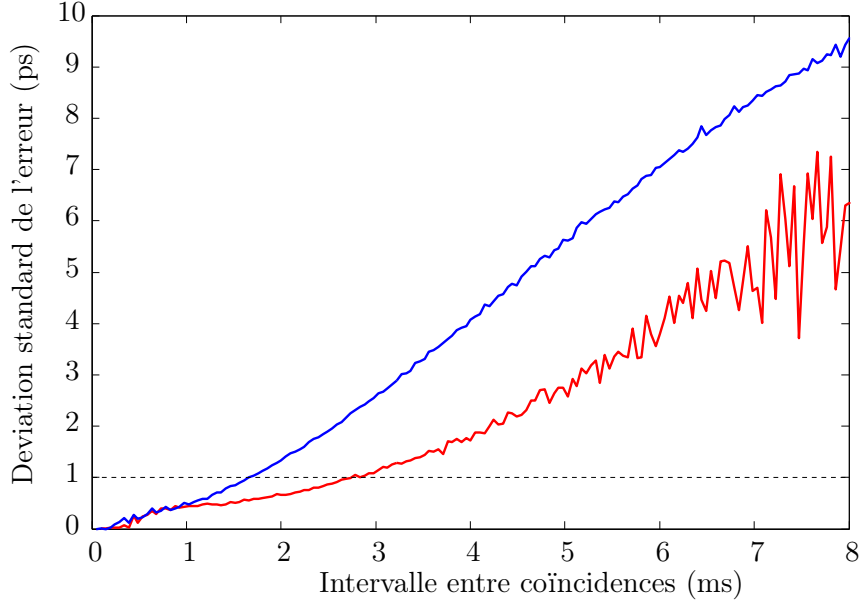


FIGURE 4.11 – Comparaison de la déviation standard de l’erreur calculée avec un fit linéaire - courbe bleue - avec celle de l’erreur calculée avec un fit quadratique - courbe rouge - pour des intervalles entre coïncidences inférieurs à 8 ms.

la première coïncidence, tandis que pour la courbe rouge il s’agit de celui entre la quatrième et la première. Pour cette raison, nous avons calculé, pour les deux méthodes, la déviation standard en fonction de l’intervalle maximal accepté entre les coïncidences :

$$\Delta t(T) = \sqrt{\frac{\int_0^T \delta t(\tau)^2 \mathcal{P}(\tau) \tau d\tau}{\int_0^T \mathcal{P}(\tau) \tau d\tau}} \quad (4.14)$$

où $\delta t(\tau)$ est la déviation standard de l’erreur calculée selon l’éq. 4.11, $\mathcal{P}(\tau)$ est la distribution de la valeur d’intervalle τ entre les coïncidences extrêmes, qui sera différente selon qu’il s’agit du cas linéaire ou du cas quadratique et T est l’intervalle maximal accepté entre les coïncidences extrêmes. La Figure 4.12 (a) représente l’histogramme des τ obtenus dans le cas de la méthode linéaire (courbe bleue) et de la méthode quadratique (courbe rouge). Dans le premier cas on retrouve la décroissance exponentielle déjà observée à la Figure 4.5. Dans le second cas, la densité de probabilité a une forme sensiblement différente car la méthode quadratique nécessite une coïncidence intermédiaire. La probabilité augmente donc initialement avec τ , comme discuté à l’Annexe D.

La Figure 4.12 (b), représente les courbes de déviation standard moyenne en fonction de l’intervalle maximal accepté, calculées selon l’éq. 4.14 pour le cas linéaire, en bleu, et le cas

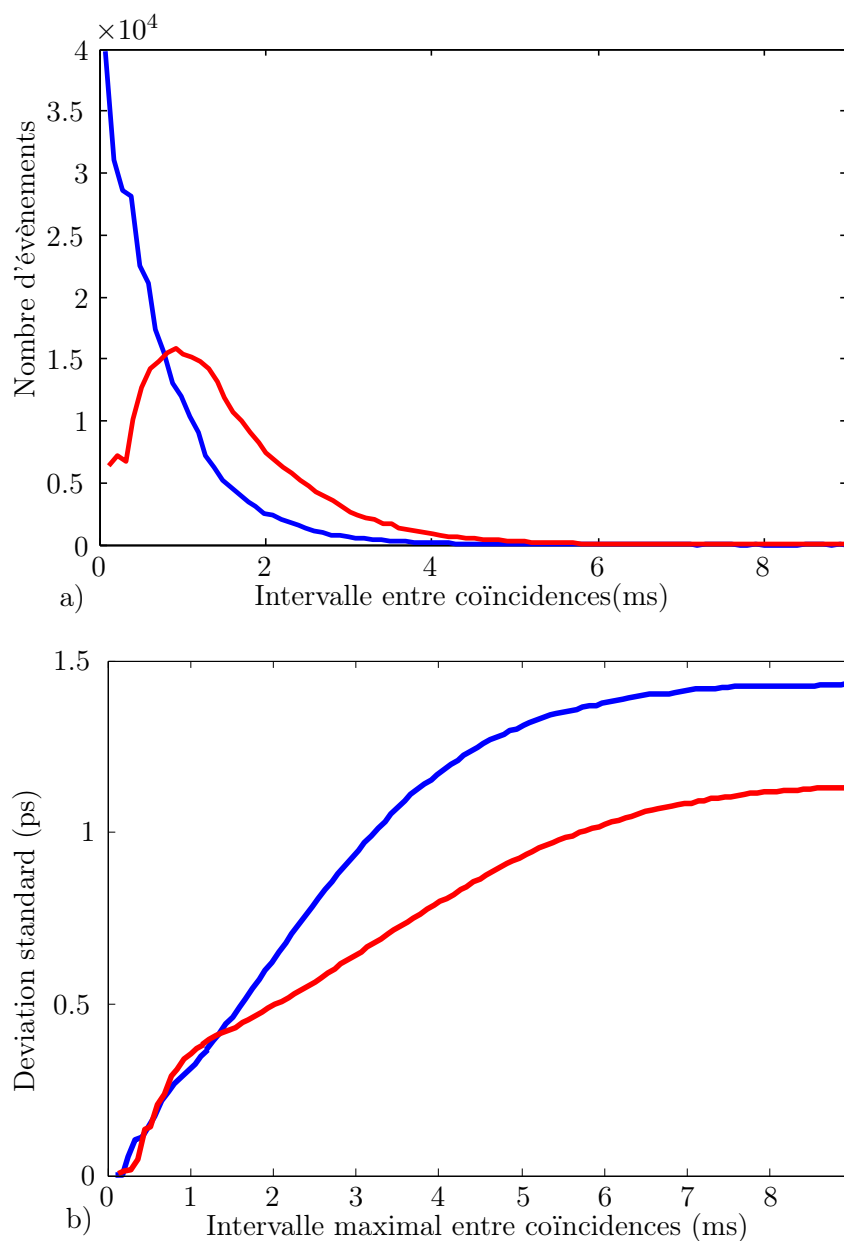


FIGURE 4.12 – (a) Histogramme des intervalles entre coïncidences dans le cas du calcul avec fit linéaire (courbe bleue) et avec fit quadratique (courbe rouge). L'axe des abscisses est divisé en cases temporelles de largeur égale à 0.1 ms (b) Déviation standard de l'erreur calculée avec fit linéaire (courbe bleue) et quadratique (courbe rouge).

quadratique, en rouge. Cette figure nous permet d'affirmer que l'hypothèse d'évolution parabo-

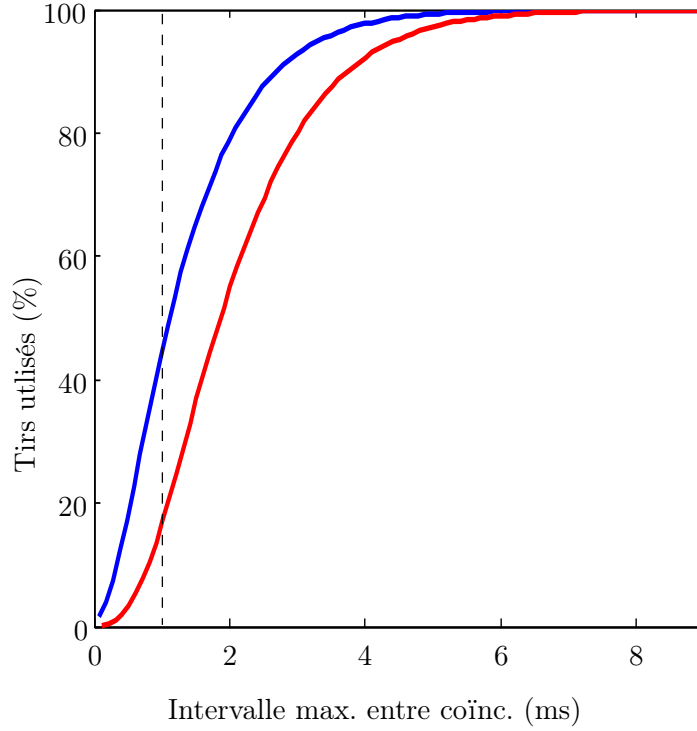


FIGURE 4.13 – *Pourcentage de tirs acceptés en fonction de l'intervalle maximal accepté entre les coïncidences. La courbe en bleu est obtenue pour un fit linéaire et la courbe en rouge pour un fit quadratique.*

lique du retard entre les impulsions améliore la précision avec laquelle les retards sont calculés. En effet, même si on observe le même type d'évolution de l'erreur de mesure moyen, avec une première phase de montée jusqu'à un plateau, celui-ci est supérieur dans le cas du fit linéaire (de l'ordre de 1.5 ps au lieu de 1 ps). Remarquons, toutefois, que, pour des valeurs d'intervalles inférieures à la milliseconde les erreurs sont comparables pour les deux méthodes.

Pour achever la comparaison entre les deux méthodes, il faut tenir compte du fait que, pour une valeur donnée de l'intervalle maximal entre coïncidences, il sera nécessaire d'être plus sélectif - et donc d'exploiter moins de tirs laser - dans le cas de la méthode quadratique. Ceci est illustré par la Figure 4.13 qui représente la fraction de tirs lasers utilisable en fonction de l'intervalle maximal entre coïncidences, déterminée à partir des densités de probabilité expérimentales de la Figure 4.12 (a). On observe ainsi que pour assurer un intervalle maximum de 1 ms, il faudra ne conserver que 17% des tirs dans le cas de la méthode quadratique contre 45% des tirs pour la méthode linéaire.

La Figure 4.14 représente la résolution finalement obtenue en fonction de la fraction de tirs pris en compte dans la mesure. On observe que si on souhaite conserver la totalité des tirs laser, la méthode quadratique sera préférable mais la résolution obtenue sera de l'ordre de 1 ps RMS. À l'inverse, si on s'autorise à être assez sélectif, la méthode linéaire sera préférable et permettra

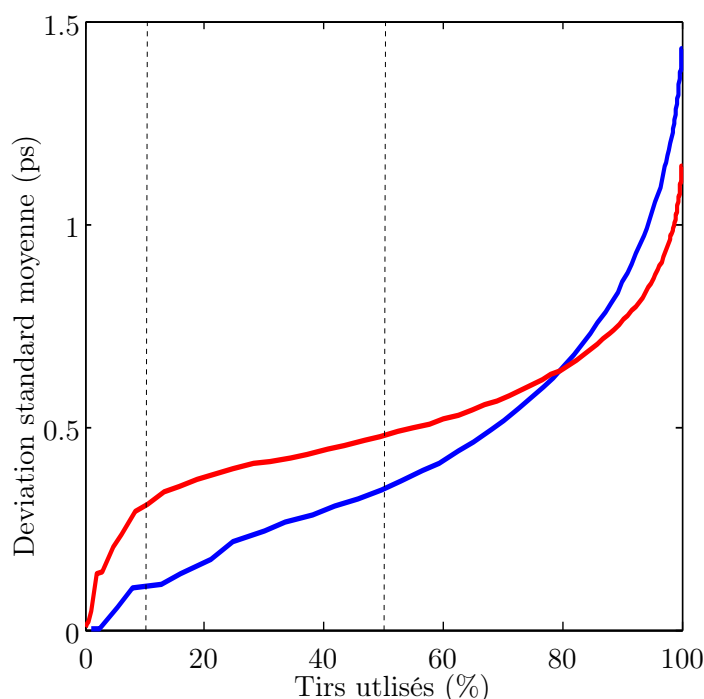


FIGURE 4.14 – Déviation standard de l'erreur en fonction du pourcentage de tirs acceptés. La courbe en bleu est obtenue avec un fit linéaire et la courbe en rouge avec un fit quadratique.

d'atteindre de meilleures valeurs de la résolution temporelle (de l'ordre de 100 fs RMS plutôt que 300 fs RMS pour 10% et de l'ordre de 350 fs RMS plutôt que 500 fs RMS pour 50%). C'est donc la méthode linéaire qui sera le plus souvent utilisée dans la suite de ce travail (à l'exception notable de certaines mesures du Chapitre 6 avec une sélection d'environ 50% des tirs).

4.1.3 Évolution de la résolution temporelle en fonction du retard

Dans la méthode ASOPS conventionnelle pour de larges valeurs de retard entre les impulsions de pompe et de sonde, la résolution temporelle peut se dégrader puisque les données correspondantes sont acquises loin de la coïncidence, déterminant l'origine des temps, et pour cette raison elles sont plus affectées par les erreurs dues à la gigue laser. Ce comportement n'est *a priori* pas attendu en AD-ASOPS parce que les retards temporels se réalisent de façon quasi aléatoire, plutôt que de manière séquentielle comme en ASOPS et la position par rapport au retard zéro

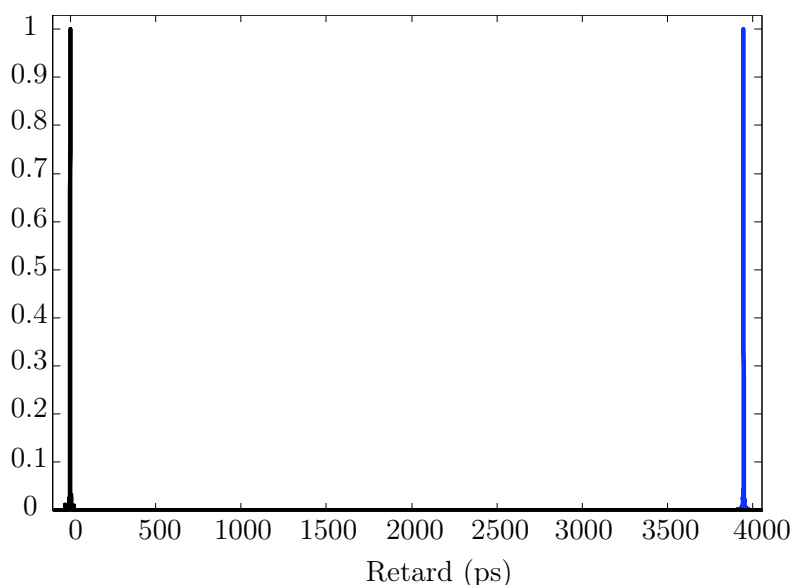


FIGURE 4.15 – Démonstration de l’homogénéité de la résolution temporelle AD-ASOPS sur toute la fenêtre temporelle de détection. En noir le signal enregistré selon le montage de la Figure 3.3. En bleu le signal mesuré en rajoutant 1.2 m de propagation libre dans l’un des deux bras de l’interféromètre. La seule différence entre les deux signaux est un décalage temporel du pic principal, correspondant au retard accumulé par le faisceau se propageant dans l’air.

n’est pas une indication de la distance relative à la coïncidence. Nous nous attendons naturellement à une dégradation de la résolution temporelle proportionnelle au temps écoulé entre la coïncidence et l’acquisition, mais l’effet de cette dégradation va être uniformément distribué sur l’ensemble des retards. Néanmoins il est intéressant de le vérifier expérimentalement. Pour faire cette démonstration nous avons à nouveau utilisé le montage de la Figure 3.3 avec les lasers à 93.0 MHz et à 74.5 MHz et nous avons introduit environ 1.2 mètres de propagation libre dans l’un des deux bras de l’interféromètre relatif au signal. Les résultats obtenus sont représentés Figure 4.15. Comme attendu, nous observons encore un pic étroit qui cette fois est décalé d’un retard de 3945 ps par rapport au pic obtenu sans propagation libre. La Figure 4.16 montre que, au décalage temporel près, les deux signaux sont exactement identiques, grâce au fait que la dispersion dans les optiques de collimation additionnelles est négligeable. Nous pouvons conclure que notre mesure de résolution temporelle est représentative pour l’ensemble de la fenêtre temporelle de détection.

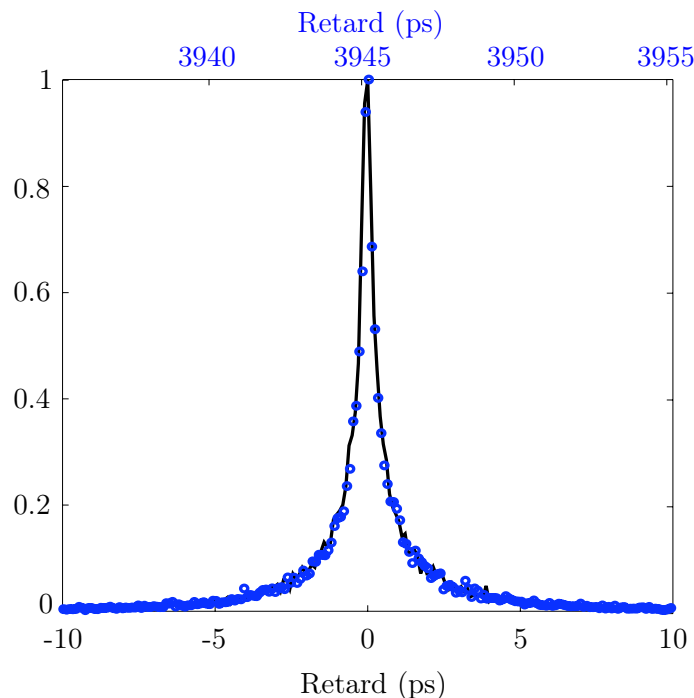


FIGURE 4.16 – Démonstration de l’homogénéité de la résolution temporelle AD-ASOPS sur toute la fenêtre temporelle de détection. Superposition des deux pics centraux selon deux axes des retards décalés entre eux : aucun élargissement du pic principal n’est appréciable.

4.2 Expérience complémentaire de caractérisation : influence de la longueur de fibre

Nous avons déjà affirmé auparavant que l’interférence linéaire étant sensible à la différence de dérive de fréquence des impulsions et non pas à la dérive elle-même, le pic du signal enregistré n’est pas dépendant de la longueur des fibres traversées, tant que le schéma reste symétrique. Evaluons par contre quel est le comportement du signal enregistré par le schéma simplifié de la Figure 4.17, en fonction de la longueur supplémentaire de fibre introduite dans le chemin de propagation du faisceau de pompe, représentée en vert dans la figure. Quatre fibres de longueurs différentes ont été testées dans le montage : 15.6 cm, 57 cm, 210 cm et 503 cm. Pour des raisons de clarté, seules les variances des signaux enregistrés avec une fibre de 57 cm (courbe rouge), 15.6 cm (courbe verte) et sans fibre (courbe bleue) sont illustrées Figure 4.18 et Figure 4.20. L’introduction d’une portion de fibre supplémentaire dans le chemin vers l’expérience génère un retard du signal acquis qui se traduit par un décalage dans l’axe des temps. Selon les spécifications fournies par le fournisseur des fibres, l’indice de groupe du coeur en silice dopée germanium est

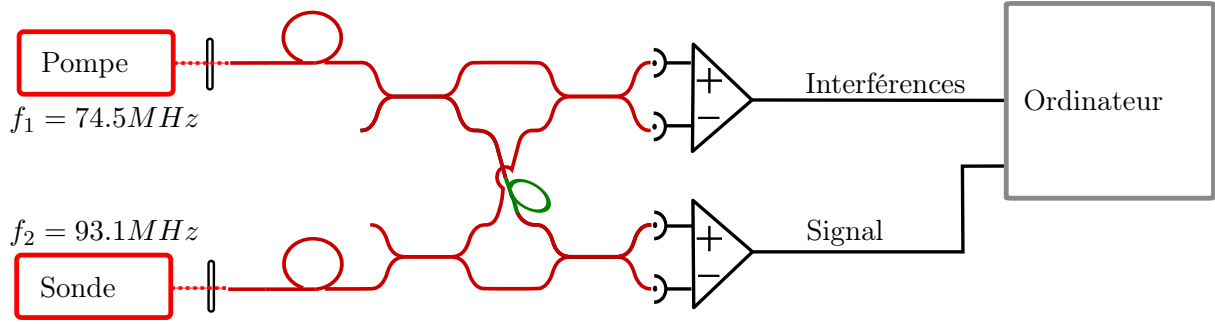


FIGURE 4.17 – Montage expérimental pour l’analyse de l’influence de la dissymétrie des chemins optiques parcourus par chaque laser avant d’arriver aux deux interféromètres. La fibre supplémentaire rajoutée dans l’un des deux chemins est représentée en vert.

d’environ 1.46 à 830 nm. Cette valeur est en bon accord avec les retards observés de 761.2 ps après 15.6 cm – pour une valeur théorique de 759 ps –, de 2774.5 ps après 57 cm – pour 2773 ps –, 10290 ps après 210 cm – pour 10220 ps – et 11210 ps (qui correspond à 24589.5 modulo T_1 – pour 24476 ps –) après 503 cm de fibre. La comparaison entre retards mesurés et calculs théoriques est illustrée Figure 4.19.

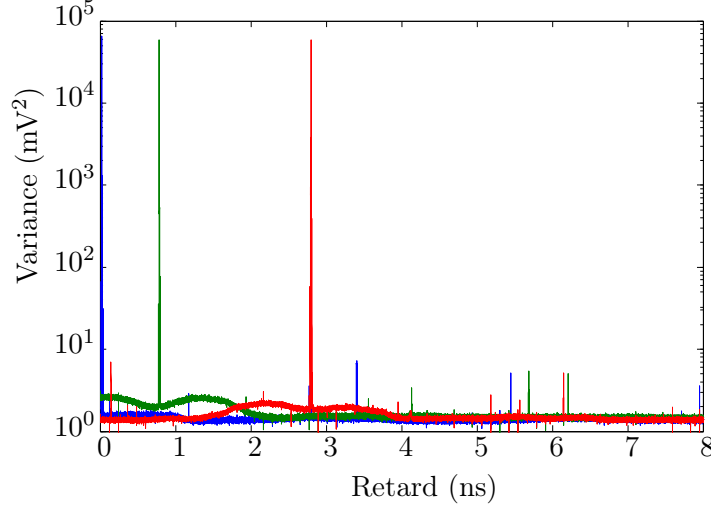


FIGURE 4.18 – Influence de la longueur de fibre. Le signal enregistré subit un retard proportionnel à la longueur de fibre supplémentaire introduite dans le montage.

Nous pouvons aussi observer que, contrairement à un retard nul du signal enregistré sans fibre, nous mesurons un retard de 22.56 ps, soit 0.46 cm en termes de longueur de fibre : cela correspond à la différence de chemin parcouru par les impulsions à partir de leur séparation, c’est à dire que ce retard mesure la différence cumulée de la longueur des bras des coupleurs

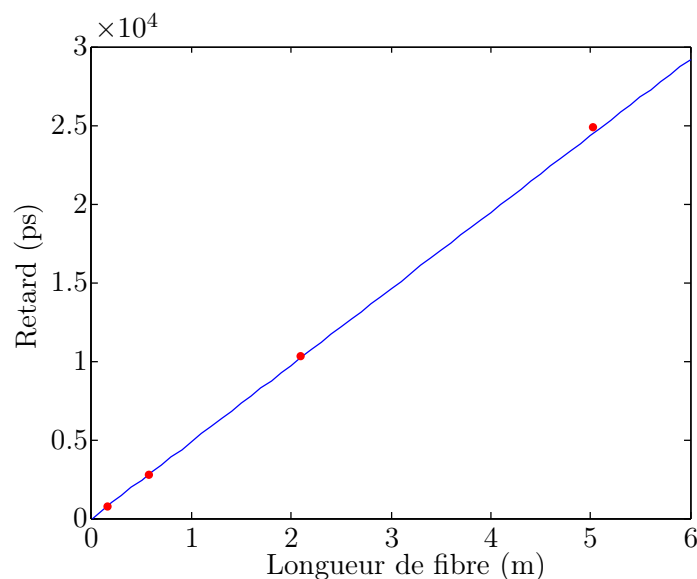


FIGURE 4.19 – Comparaison entre retards mesurés (points rouges) et calculs théoriques (courbe bleue) lors de l’insertion d’une longueur de fibre supplémentaire.

fibrés, ce qui est en accord avec les tolérances spécifiées par le constructeur.

Un deuxième paramètre affecté par l’introduction de la fibre verte est la largeur du pic de variance. En effet cette fibre, en introduisant une dissymétrie dans le montage, cause un allongement de la fonction de corrélation entre les deux impulsions. La Figure 4.20 compare les

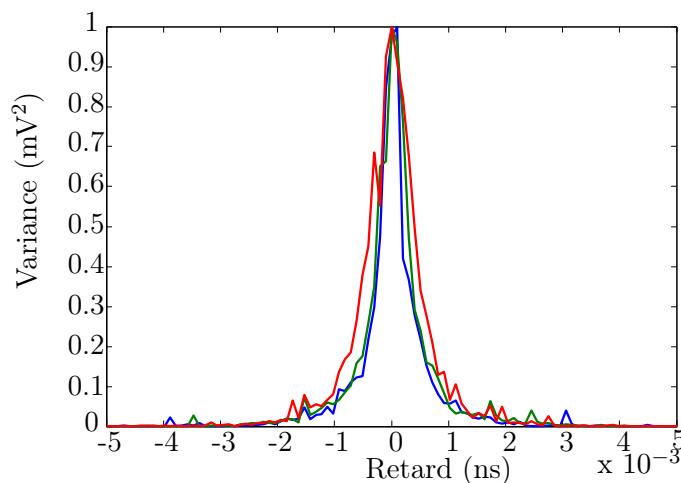


FIGURE 4.20 – Influence de la longueur de fibre. Le signal enregistré subit un élargissement proportionnel à la longueur de fibre supplémentaire introduite dans le montage.

pics normalisés et numériquement décalés de façon à être centrés par rapport au retard nul pour le montage sans fibre (pic bleu), avec 15.6 cm (pic vert) et avec 57 cm de fibre (pic rouge). Selon les spécifications du constructeur la dispersion totale (D_T) de la fibre est estimée à environ -120

ps/nm.km à 830 nm. Dans la limite d'une dérive de fréquence importante, l'élargissement $\Delta\tau$ dû à la propagation d'une impulsion de largeur spectrale $\Delta\lambda_0$ dans une fibre de longueur L peut être calculé selon la relation :

$$\Delta\tau = D_T L \Delta\lambda_0 \quad (4.15)$$

En considérant une largeur spectrale de 6.3 nm, équivalent à 3 THz, nous obtenons la courbe de la Figure 4.21 qui montre la durée temporelle attendue en fonction de la longueur supplémentaire de fibre (droite bleue). La comparaison avec les largeurs mesurées et reportées Figure 4.21 en

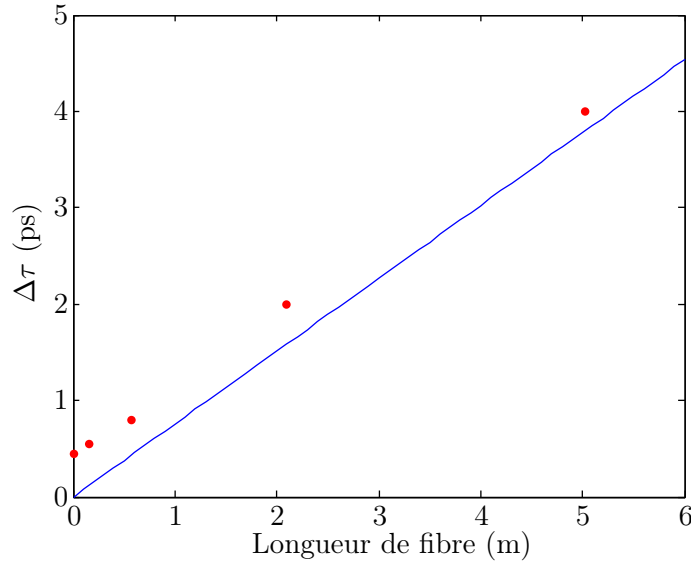


FIGURE 4.21 – Durée en fonction de la différence de longueur de fibre entre les chemins des faisceaux laser vers les interféromètres. La courbe bleue représente les valeurs théoriques attendues, les points rouges sont les données expérimentales.

points rouges montre un certain accord entre la théorie et les données expérimentales.

Après avoir présenté la caractérisation complète de l'AD-ASOPS MHz mis en œuvre au laboratoire, nous allons illustrer dans le chapitre suivant les résultats obtenus avec des expériences pompe-sonde réalisées par notre méthode de balayage asynchrone sur des échantillons biologiques. (Des mesures complémentaires, utilisées en phase de mise en œuvre du système AD-ASOPS pour le réglage de la phase du signal d'horloge - sont présentée en Annexe E).

Resultats sur échantillons biologiques

au MHz

Sommaire

5.1	Mélange de fréquences dans un BBO	84
5.2	Expérience sur échantillons biologiques	90
5.2.1	Le centre réactionnel de <i>Rhodobacter Sphaeroides</i>	90
5.2.2	Mises en œuvre et résultats	95

Nous avons vu que l'un des avantages majeurs de la méthode AD-ASOPS est la possibilité d'utiliser des lasers dont les fréquences de répétition ne sont soumises à aucune condition particulière. Grâce à cette caractéristique nous pouvons envisager de réaliser un balayage asynchrone avec l'oscillateur Ti:saphir conventionnel Synergy PRO à 74.5 MHz et l'oscillateur CPO XL 500 à 5.1 MHz pour une expérience de spectroscopie pompe-sonde sur des échantillons biologiques. La nouveauté de cette expérience est l'utilisation du laser à 5.1 MHz comme laser de pompe, qui permet une augmentation considérable de la fenêtre temporelle accessible. Par rapport aux cas avec oscillateurs classiques ayant un taux de répétition d'environ 100 MHz, notre montage permet d'investiguer la réponse dynamique de l'échantillon sur des temps environ vingt fois plus longs (200 ns plutôt que 10 ns). En particulier, la combinaison de l'AD-ASOPS avec le CPO ouvre la voie à de nombreuses possibilités d'applications sur des échantillons biologiques, qui en général, présentent un temps de retour à l'état fondamental bien supérieur à 10 ns. Toutefois, comme nous l'avons vu au chapitre 4, le plus grand désavantage d'utiliser deux fréquences de répétition très différentes est la diminution du taux de coïncidence qui a une influence directe sur la dégradation de la résolution de la mesure, due à un effet plus important de la gigue laser. Mais cet inconvénient est surmonté en choisissant le bon compromis entre la résolution temporelle souhaitée et la fraction des tirs conservés pour effectuer la mesure, au prix d'un temps

d'acquisition plus long.

5.1 Mélange de fréquences dans un BBO

La première expérience que nous allons présenter n'est pas une expérience pompe-sonde proprement dite, mais la mesure de la fonction d'inter-correlation non-linéaire des deux impulsions laser dans un cristal de β -barium borate (BBO) [44]. Le but de cette expérience est de tester un premier montage d'une mesure AD-ASOPS obtenue en développant dans l'air la partie du système destinée à l'enregistrement du signal. Cela permet de garder inchangées la durée et la puissance crête des impulsions laser, afin de réaliser des effets non-linéaires. De plus, cette expérience nous permet de vérifier la résolution de la méthode dans les conditions expérimentales qui seront ensuite adoptées pour l'expérience pompe-sonde sur des échantillons biologiques. Elle nous permettra notamment de valider la technique de sélection du taux de coïncidence minimum pour obtenir une résolution sub-picoseconde. Le montage est schématisé Figure 5.1. Par analogie

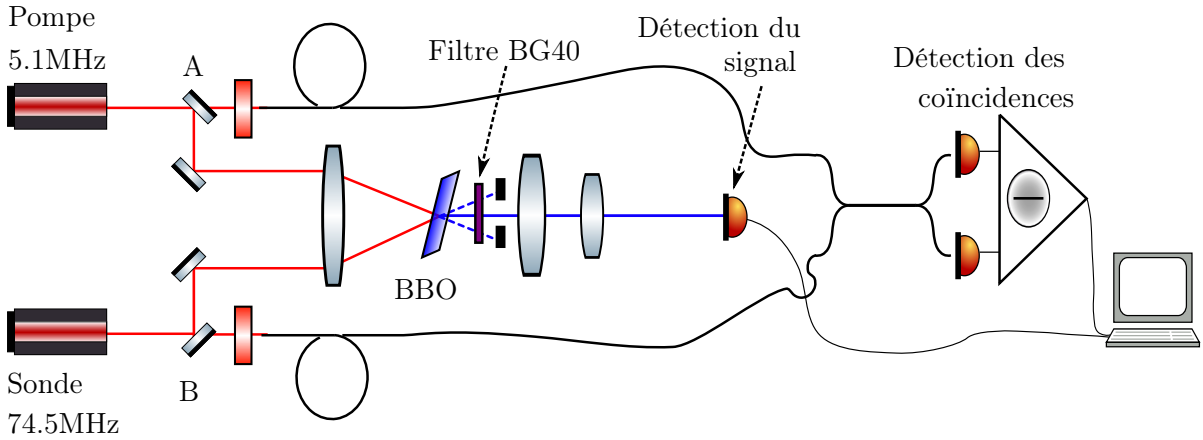


FIGURE 5.1 – Montage expérimental pour l'inter-correlation non-linéaire des lasers à 5.1 MHz et à 74.5 MHz. La partie de détection des coïncidences est réalisée par des composants fibrés tandis que la partie de génération du signal non-linéaire est réalisée après propagation libre dans l'air.

avec l'expérience qui sera présentée dans la section suivante nous appelons le laser à 5.1 MHz pompe et le laser à 74.5 MHz sonde. La partie relative à la détection des coïncidences est inchangée par rapport à la description faite au Chapitre 3. Comme montré par le schéma, cette partie du montage est injectée avec deux fuites optiques récupérées derrière les miroirs diélectriques A et B, qui présentent une transmission d'environ 1%. La mesure de la fonction d'inter-correlation

d'ordre deux est obtenue à l'aide d'un mélange de fréquences dans un cristal de BBO de type I par l'interaction des deux faisceaux laser dirigés dans le cristal en configuration non-colinéaire. Le faisceau incident à 800 nm est bloqué par un filtre bleu (Schott BG40), tandis que la seconde harmonique générée par chaque faisceau individuellement est bloquée mécaniquement à l'aide d'un iris de diamètre approprié. Le signal d'addition de fréquences qui nous intéresse est généré par le cristal non-linéaire selon la bissectrice de l'angle entre les deux faisceaux incidents et est ensuite focalisé sur une photodiode. La Figure 5.2 montre le signal typique enregistré en fonction

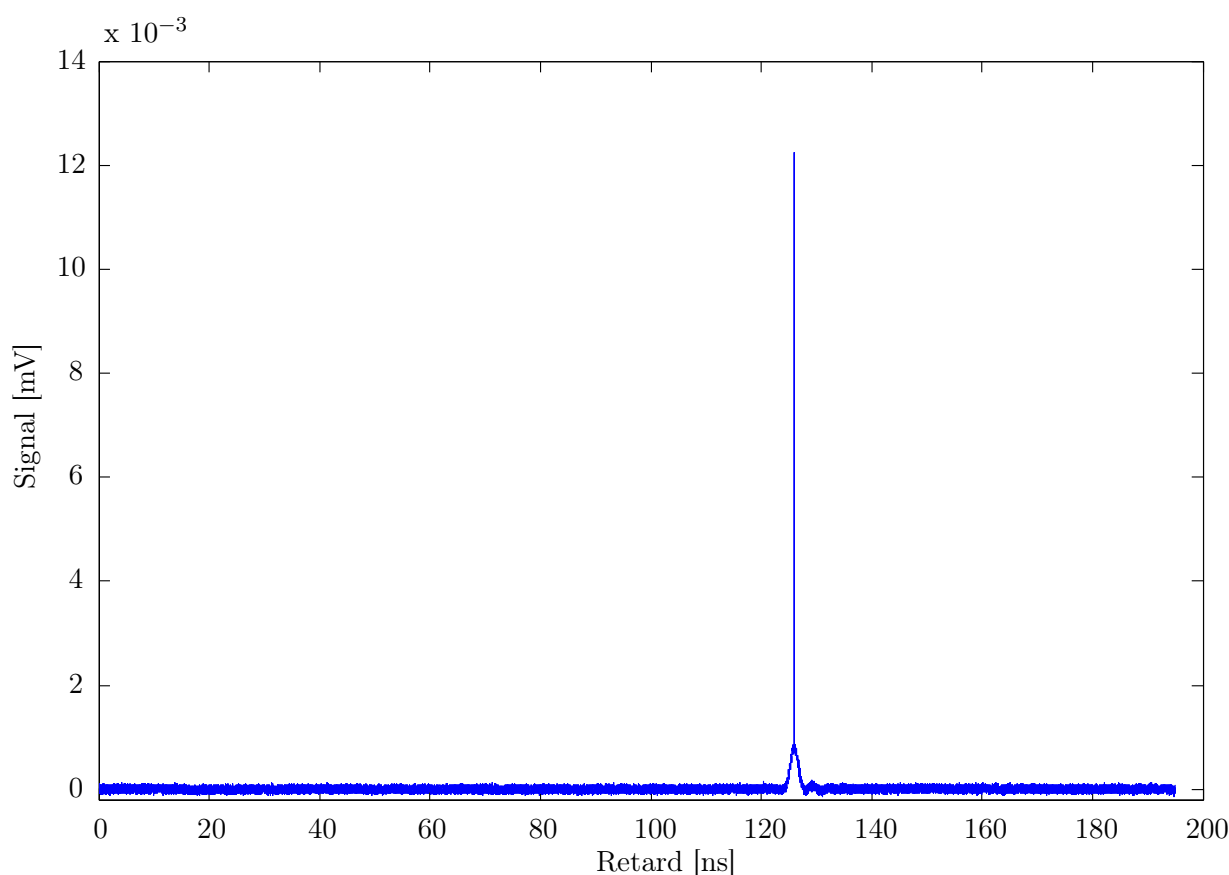


FIGURE 5.2 – *Signal typique d'inter-corrélation non-linéaire. Le pic apparaît à un retard de 125.89 ns, correspondant à la différence de chemin optique entre le montage de l'expérience pompe-sonde et le montage fibré de détection des coïncidences. Le piédestal nanoseconde est dû à la diffusion de la seconde harmonique des impulsions à 5.1 MHz.*

du retard pompe-sonde. La première observation sur laquelle nous voulons porter notre attention est le retard de 125.89 ns en correspondance duquel apparaît le pic correlation. Évaluons l'origine de ce retard. Il est assez intuitif d'en chercher l'origine dans une différence de chemin optique parcouru par les impulsions des deux lasers.

La Figure 5.3 montre trois schémas simplifiés de l'expérience, pour chacun desquels le détecteur différentiel C détecte une coïncidence entre les lasers de pompe et de sonde. a et b sont les chemins optiques parcourus respectivement par les impulsions de sonde et de pompe vers l'expérience de somme de fréquences après séparation de la fuite vers la détection des coïncidences. A

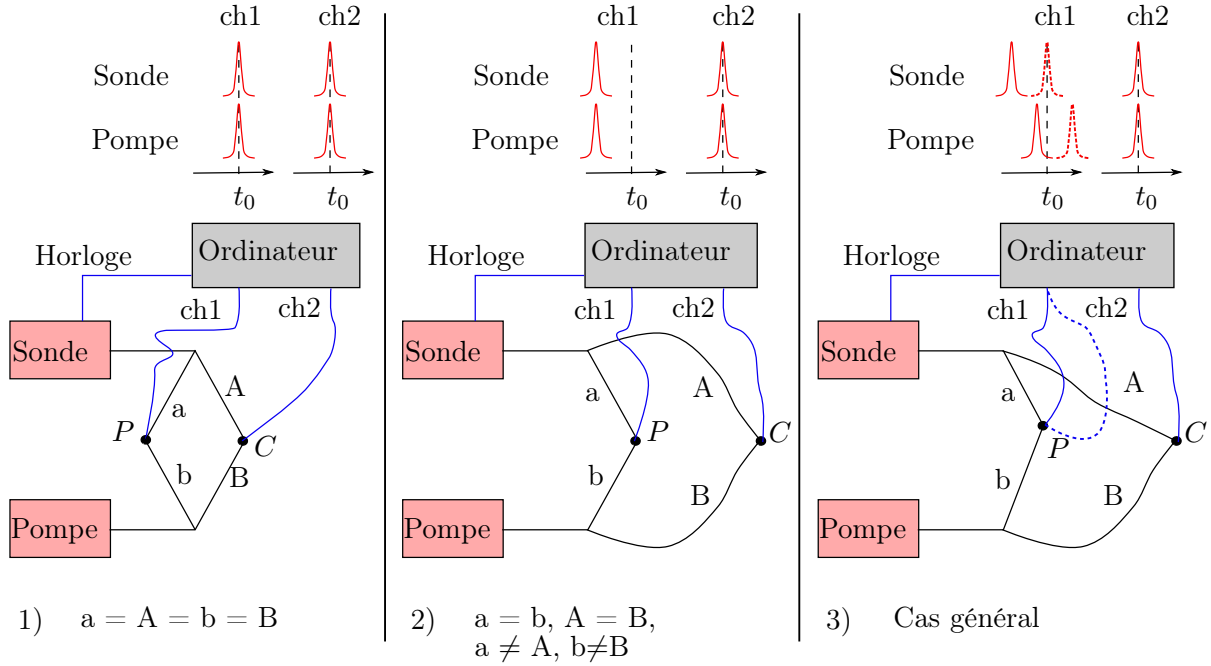


FIGURE 5.3 – Schémas simplifiés de l'expérience qui mettent en évidence l'effet du chemin optique des impulsions et du chemin électrique des signaux dans l'acquisition. La différence entre les trois schémas est discutée dans le texte.

et B sont les chemins optiques parcourus par les impulsions de sonde et de pompe respectivement vers la détection des coïncidences. Les lignes en bleu montrent les câbles BNC qui transportent les différents signaux jusqu'à la carte d'acquisition. Il peut se produire différentes situations au niveau du cristal de BBO et de l'acquisition par la photodiode P :

1. $a = A = b = B$: le montage est parfaitement équilibré, il n'y a aucune différence de chemin optique, les impulsions dans le BBO sont aussi en coïncidence et l'acquisition déclenchée à t_0 par l'horloge voit une coïncidence au niveau des deux voies 1 et 2, à condition que les deux câbles BNC soient de la même longueur ;
2. $a \neq A$ et $b \neq B$ mais $a=b$ et $A=B$: les deux impulsions qui interfèrent dans le coupleur fibré, correspondent à deux impulsions qui ont été (ou seront) en coïncidence dans le BBO,

mais elles n'y sont pas au moment de la coïncidence dans le coupleur. Par conséquent le signal acquis sur la voie 1 à t_0 est nul en général, sauf si les câbles BNC ont une différence de longueur qui compense la différence de chemin optique. Dans ce dernier cas il s'agira d'un signal de coïncidence.

3. Cas général : les deux impulsions qui interfèrent dans le coupleur ont un certain retard relatif à leur passage dans le BBO.

Le cas numéro 1 est une bonne approximation des expériences de caractérisation présentées au Chapitre 4 où les chemins parcourus sont fixés et quasi-symétriques grâce à la longueur des fibres. C'est le cas de plus simple implémentation et pour cette raison il a été choisi pour les expériences de démonstration. Dans les cas 2 et 3, il est nécessaire de bien choisir la longueur des câbles BNC pour qu'ils compensent la différence de chemin optique entre a et A et qu'au moment de l'acquisition t_0 sur la voie 1 il y ait un signal relatif à une impulsion de sonde. Cet ajustement est montré en Figure 5.3 (3) par les lignes en pointillé. Or, le retard en correspondance duquel l'on enregistre le pic de cross-corrélation, dans notre cas 125.89 ns, correspond au retard qu'ont les impulsions de pompe et de sonde sur la voie 1 au moment de l'acquisition t_0 où il y a une coïncidence sur la voie 2. Nous pouvons écrire :

$$|retard| = \frac{|a - b|}{c} \pm nT_2, \quad (5.1)$$

où c est la vitesse de la lumière dans les milieux traversés et nT_2 - avec T_2 la période du laser sonde - se justifie par le fait que, selon la longueur de câble choisie et la différence $A - a$, il peut se vérifier que l'impulsion sonde détectée en voie 1 ne soit pas celle correspondant à la coïncidence de la voie 2 mais une autre, n impulsions plus loin.

Vérifions l'origine du retard du pic observé dans la Figure 5.2, par un calcul approximatif. Dans notre cas nous avons une différence $A - a$ essentiellement due à la longueur de la fibre de 10 m, qui, en prenant comme indice de réfraction de la fibre 1.46 selon les spécifications du constructeur, produit un retard de $10 \cdot 1.46/c \sim 50$ ns environ égal à 3.5 périodes de sonde. Après avoir ajusté la longueur des câbles, nous observons entre P et la voie 1 un câble de 4 m plus court par rapport à celui entre C et la voie 2, ce qui revient à appliquer une ultérieure augmentation du retard relatif de $4m \cdot 5ns/m = 20$ ns (où 5m/ns est une approximation de la vitesse de propagation d'un signal dans un câble BNC) qui est environ égal à 1.5 périodes de sonde. Au total, l'impulsion de sonde sur la voie 1 arrive 5 impulsions (environ 67 ns) plus

tôt par rapport à la voie 2, ce qui correspond comme ordre de grandeur au retard du pic de corrélation : $195 - 126 = 69$ ns, où 195 ns est la période de pompe.

Nous remarquons aussi qu'à la base du pic de la Figure 5.2 un piédestal nanoseconde est visible. Celui-ci, analogue au pic de réponse de la photodiode montré Figure 3.22, est dû à une diffusion du signal doublé généré par les impulsions à 5.1 MHz. En effet, en changeant l'accord de phase il est possible de diminuer sensiblement le signal de somme de fréquences tout en laissant inchangé le signal de doublage. En plus, il s'agit bien d'un signal généré à la fréquence du laser plus lent parce que, dans le cas d'un signal généré à la fréquence de l'horloge il résulterait en un niveau différent de zéro sur toute la durée de la fenêtre temporelle.

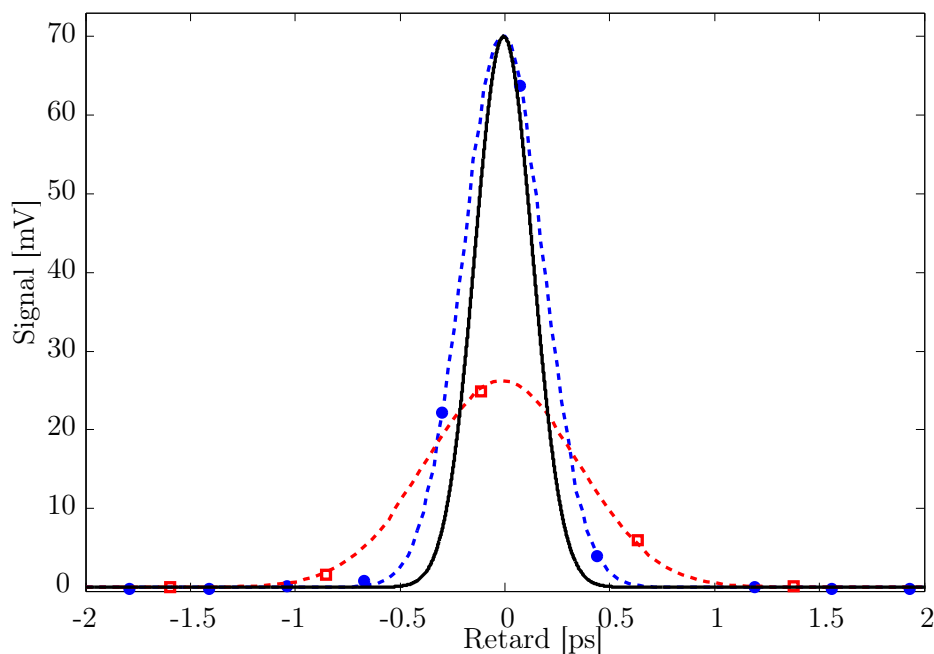


FIGURE 5.4 – Évaluation de la résolution temporelle de la mesure. La courbe noire (normalisée) montre le signal idéalement enregistré pour une impulsion en entrée de photodiode de 100 fs. Elle a une largeur FWHM de 210 fs. Les données représentées avec les points bleus, espacés de 370 fs, sont issues des enregistrements limitant l'intervalle entre les coïncidences à 0.5 ms maximum ; celles illustrées par des carreaux rouges, écartées de 740 fs, correspondent à un intervalle de 1 ms maximum. Les ajustements gaussiens montrent une largeur FWHM de 447 fs dans le premier cas et 857 fs dans le deuxième.

Évaluons maintenant la résolution temporelle de la mesure. Puisque la durée des deux impulsions fondamentales est sub-100 fs, nous nous attendons à un signal de corrélation du même ordre de grandeur. Pour ce qui concerne la détection des coïncidences, le calcul de la largeur de la fonction de corrélation a été réalisé à partir des spectres mesurés pour les deux impulsions

de départ, selon les mêmes considérations qu'en Section 4.1.1. La fenêtre de détection est alors de 416 fs, en sachant que le seuil de détection des coïncidences a été fixé pour cette expérience à 25% du signal maximum, afin d'avoir le meilleur compromis entre la fenêtre de détection et le taux de coïncidences. Dans ces conditions la mesure de la corrélation peut être utilisée pour évaluer la réponse temporelle du système AD-ASOPS, de manière analogue à ce qui a été présenté en Section 4.1.1. Pour une impulsion de 100 fs, une fenêtre de détection de 416 fs et un axe des retards divisé en 2^{19} cases temporelles de largeur 370 fs, le signal de corrélation attendu en sortie de chaîne de mesure dans le cas idéal d'absence de gigue laser présente une largeur FWHM de 419 fs, comme montré par la courbe noire de la Figure 5.4.

Nous avons réalisé deux séries de mesures, se distinguant par un intervalle maximum de temps entre coïncidences égal à 1 ms dans un cas et à 0.5 ms dans l'autre. Les données enregistrées sont représentées Figure 5.4 respectivement par des carreaux rouges et des points bleus, après recentrage autour du retard zéro. Les ajustements gaussiens, dessinés en pointillés, montrent des largeurs FWHM d'environ 850 fs et 450 fs. Nous pouvons comparer ces résultats avec ceux de la Section 4.1.2 pour lesquels il avait été suffisant de diminuer l'intervalle maximum entre coïncidences jusqu'à 1ms pour atteindre de près la limite théorique, tandis que maintenant il est nécessaire d'appliquer une sélection plus stricte pour se rapprocher de la résolution attendue. En effet nous estimons que, dans la mesure avec le BBO, la nécessité de descendre à un intervalle de 0.5 ms est due à différentes conditions de stabilité des deux oscillateurs. Il est important de remarquer que, dans le cas où une résolution de 850 fs est suffisante, il est possible de réduire sensiblement le temps d'acquisition parce que d'un côté la sélection des coïncidences est moins exclusive et de l'autre il est possible, en gardant quasiment la même résolution, de diminuer le nombre de cases temporelles dans lesquelles est divisé l'axe des retards afin de remplir l'histogramme des retards plus rapidement. À titre d'exemple, pour la Figure 5.4, les données rouges correspondent à un nombre total de 106 millions d'événements, correspondant à 1.4 secondes, enregistrés en 8 minutes d'acquisition, tandis que les données bleues représentent 97 millions d'événements, égaux à 1.2 secondes, enregistrés en un temps double. Dans le premier cas le temps effectif d'acquisition est environ 3 ‰ du temps d'acquisition total, tandis que dans le deuxième cas il est environ 1.5 ‰. Malgré une sélection aussi poussée, les durées de l'expérience restent largement acceptables. De plus, puisque dans le signal l'information qui demande un niveau élevé de résolution est centrée autour du retard zéro il est possible de créer un axe des

retards composé de cases temporelles de largeur variable par exemple de façon logarithmique. Il faut remarquer cependant que cela ne contribue pas à la diminution des temps attendus, puisque le remplissage des cases à retard faible reste analogue. Par contre le signal relatif aux retards plus longs est le résultat de moyennes réalisées sur de plus en plus de points de mesure et le rapport signal sur bruit qui en résulte est amélioré.

5.2 Expérience sur échantillons biologiques

Pour démontrer la méthode sur une expérience pompe-sonde, nous avons choisi d'étudier le transfert d'électrons et la recombinaison de charges dans un centre réactionnel (RC) photosynthétique grâce à la spectroscopie pompe-sonde résolue en temps [44].

5.2.1 Le centre réactionnel de *Rhodobacter Sphaeroides*

La bactérie pourpre *Rhodobacter Sphaeroides* est un phototrophe de structure relativement simple dont les nombreuses études sont essentiellement motivées par l'intérêt de comprendre le processus de photosynthèse. En particulier, le centre réactionnel est une protéine membranaire incorporant des pigments et autres cofacteurs, dans laquelle ont lieu les réactions électrogéniques de conversion d'énergie primaire liées à la photosynthèse.

La photosynthèse est un processus de conversion de l'énergie lumineuse, fournie par le soleil, en énergie chimique stockée sous la forme de macromolécules organiques appelées biomasse [45]. Elle est réalisée par différents organismes vivants. En particulier plantes, algues et cyanobactéries réalisent une photosynthèse oxygénique, basée sur la séparation des molécules d'eau par le biais d'énergie lumineuse :



Cela est réalisé à travers un processus en série, illustré Figure 5.5, qui lie deux photosystèmes différents : le photosystème II (PSII), qui utilise les photons pour produire l'extraction des couples électron-proton depuis les molécules d'eau, et le photosystème I (PSI) qui utilise la lumière pour fournir aux électrons-protons extraits de PSII l'énergie supplémentaire nécessaire pour compléter le processus de fixation du CO_2 . À la suite de cette chaîne d'événements, l'énergie est stockée dans un potentiel transmembranaire et un gradient de protons, qui permettent la

synthèse d'adénosine triphosphate (ATP), le coenzyme responsable dans tout organisme vivant

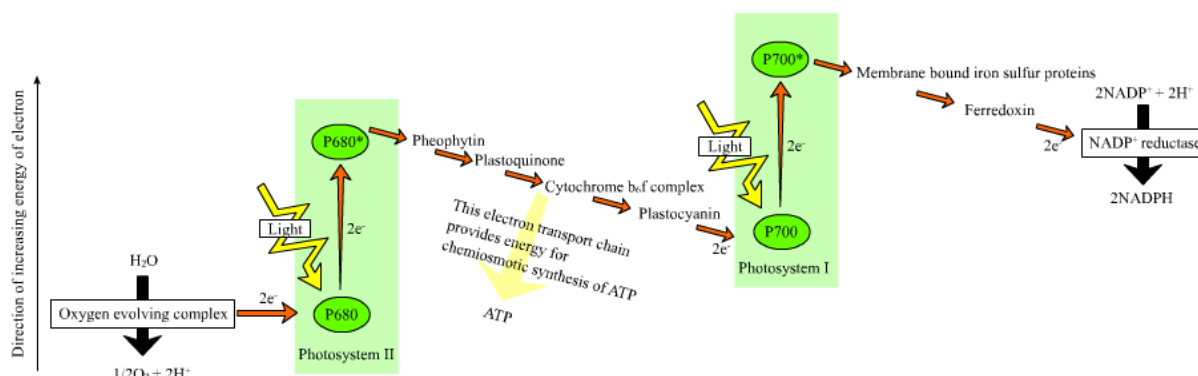


FIGURE 5.5 – Schéma simplifié des réactions de la photosynthèse oxygénique (<http://en.wikipedia.org/wiki/Photosynthesis>).

connu du stockage et du transfert entre cellules de l'énergie nécessaire aux réactions chimiques du métabolisme. Cette synthèse s'effectue dans une autre protéine membranaire, l'ATPase, elle-même non photosensible.

L'intérêt porté au processus de photosynthèse est justifié par de nombreuses raisons. D'abord, les photosystèmes de la photosynthèse, dont ceux des bactéries anoxygéniques comme *R. sphaeroides* qui ne séparent pas l'eau, peuvent être considérés comme des nanomachines moléculaires photovoltaïques à haut rendement, qui utilisent l'énergie lumineuse pour générer une séparation de charges électriques à travers une membrane isolante. Plusieurs aspects de ces systèmes peuvent inspirer des dispositifs photosynthétiques artificiels à haut rendement. Ensuite, les antennes et les composantes des photosystèmes qui capturent l'énergie solaire lumineuse et la transfèrent vers les centres réactionnels avec des pertes très faibles peuvent contribuer au développement de nouvelles technologies de concentration et conversion d'énergie solaire. Enfin, en liaison étroite avec les problématiques énergétiques et climatiques actuelles, la réaction photosynthétique qui attire principalement les intérêts scientifiques est la séparation des molécules d'eau et la génération d'hydrogène et d'électrons à haute énergie qui induisent la réduction du dioxyde de carbone. De ce point de vue en particulier PSII présente des potentialités très intéressantes.

La structure de PSII comme complexe dimérique isolé de la cyano-bactérie *Thermosynechococcus elongatus* est illustrée Figure 5.6 [46]. Chaque monomère contient 19 sous unités protéiques avec au milieu le centre réactionnel, composé des protéines D1 et D2, représentées respectivement en jaune et orange en Figure 5.6.

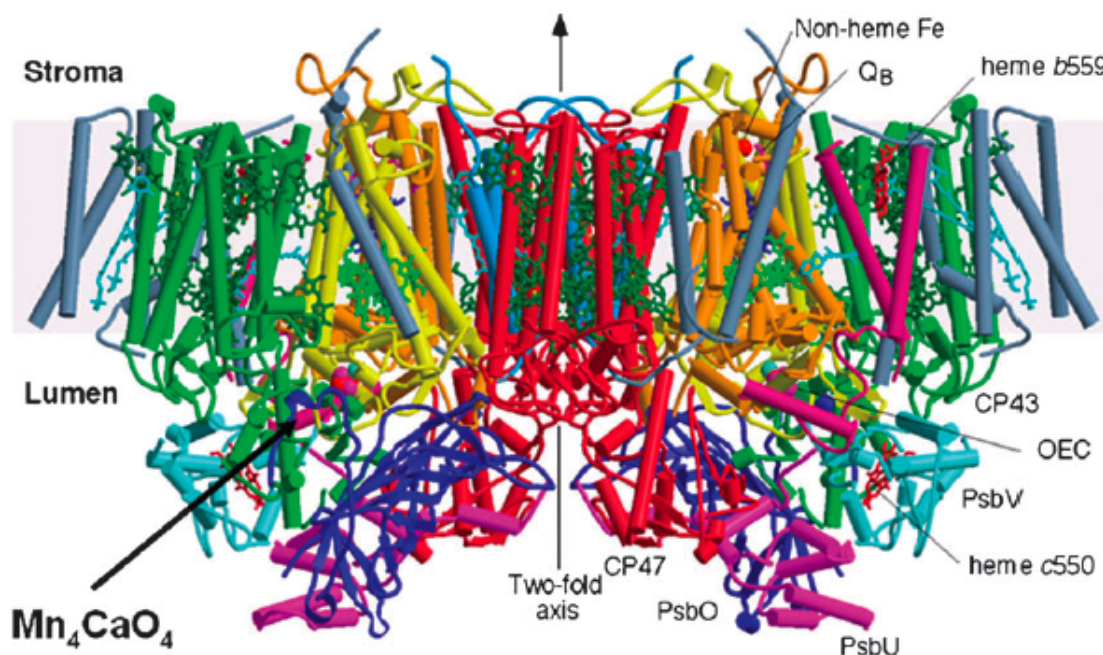


FIGURE 5.6 – Structure de PSII selon [46]. En jaune et orange sont représentées les protéines D1 et D2 qui constituent le centre réactionnel.

Les nombreuses informations obtenues par l'étude des systèmes photosynthétiques indiquent que leurs structures et leurs fonctionnalités sont similaires [47]. Par rapport aux plantes et aux systèmes cyano-bactériens, les centres réactionnels des bactéries pourpres, comme *R. sphaeroides*, sont bien caractérisés et ont une structure relativement simple. Grâce à la possibilité de contrôle des différents paramètres, notamment par manipulation génétique, ils constituent des modèles utiles pour l'étude des mécanismes impliqués dans chaque étape du transfert d'électrons. Ainsi ils permettent d'étudier les principes communs de structure, fonction et évolutions avec les centres réactionnels de PSII de plantes et algues.

La structure du RC de *R. sphaeroides* a été obtenue par diffraction de rayons X en 1984 [48, 49]. Il est composé de trois sous unités protéiques (L, M et H) et de dix cofacteurs : quatre bactériochlorophylles (*Bchls*), deux bactériophéophytines (*Bphes*), deux ubiquinones (*Q*), un fer non héminique (*Fe*) et une molécule caroténoïde. La Figure 5.7 (a) montre l'organisation des polypeptides L, M et H. Les sous unités L- et M- contiennent chacun cinq α -hélices transmembranaires (indiquées en Figure 5.7 (a) par A, B, C et D) qui forment des sites de repliement des cofacteurs qui réalisent le transfert d'électrons. Les cofacteurs, représentés Figure 5.7 (b), sont organisés selon deux branches appelées A et B (et dont les indices respectifs seront ap-

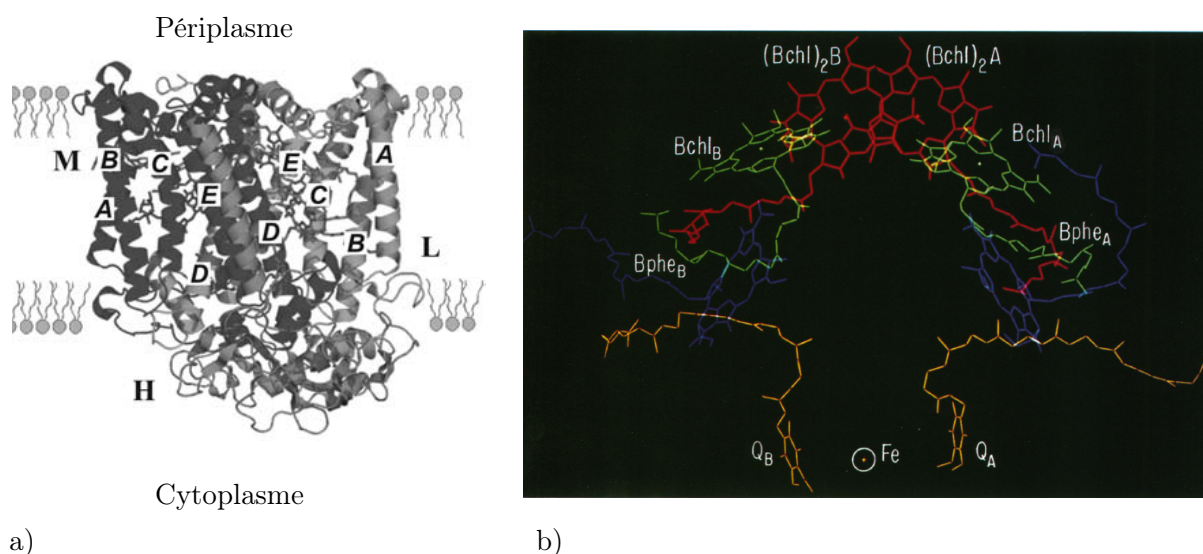


FIGURE 5.7 – Structure du centre réactionnel de *R. sphaeroides*, mettant en évidence le positionnement des cofacteurs. Le côté périplasmique de la membrane est proche du haut tandis que le côté cytoplasmique est proche du bas de la structure [49].

pelé par convention L et M), qui sont approximativement, mais pas complètement, symétriques l'une de l'autre selon l'axe vertical de la figure. $(Bchl)_2L$ et $(Bchl)_2M$ sont en forte interaction électronique et forment un dimère appelé P . Le sens de transfert d'électrons découle du donneur primaire P , suivi par $Bchl$, $Bphe$ et enfin l'ubiquinone Q . Le caroténoïde est lié à la sous-unité M- au voisinage de $Bchl$. Les monomères $Bchl$ sont appelés B_L ou B_M selon la branche à laquelle ils appartiennent, les monomères $Bphe$ H_L et H_M et les ubiquinones Q_L et Q_M .

Le spectre d'absorption du RC de *Rhodobacter Sphaeroides* est reporté Figure 5.8. La plupart

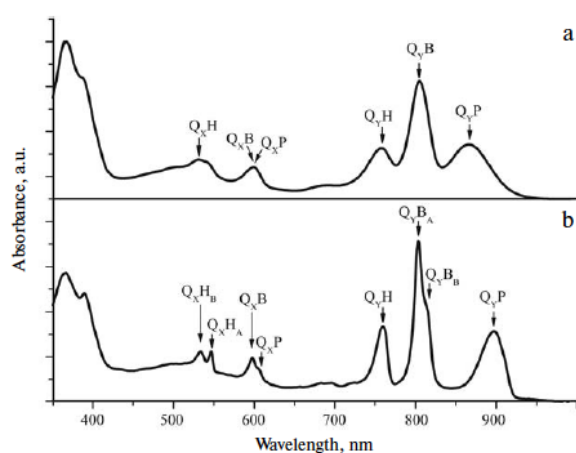


FIGURE 5.8 – Spectre d'absorption du RC de *R. sphaeroides* mesuré à 293 K (a) et 10 K (b) [50]

des cofacteurs ont des bandes d'absorption différentes dans le spectre d'absorption du RC. Ils absorbent dans le proche infrarouge, le visible et le proche ultraviolet. Dans la Figure 5.9 sont reportés plus particulièrement les spectres d'absorption de l'état PH_L et de l'état de séparation des charges $P^+H_L^-$ qui seront utilisés pour l'expérience qui est présentée dans la Section 5.2.2 et qui étudie le décalage de la bande à 800 nm.

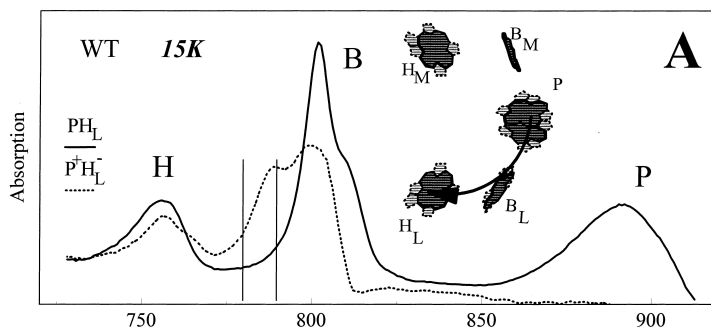


FIGURE 5.9 – Spectres d'absorption de l'état PH_L et de l'état de séparation des charges $P^+H_L^-$ [51]. Le décalage de la bande à 800 nm sera étudié par l'expérience présentée dans la Section 5.2.2.

Le transfert d'électrons procède exclusivement le long de la branche A, comme indiqué dans le schéma représenté Figure 5.10 pour le RC de *R. sphaeroides* de type sauvage. Le transfert

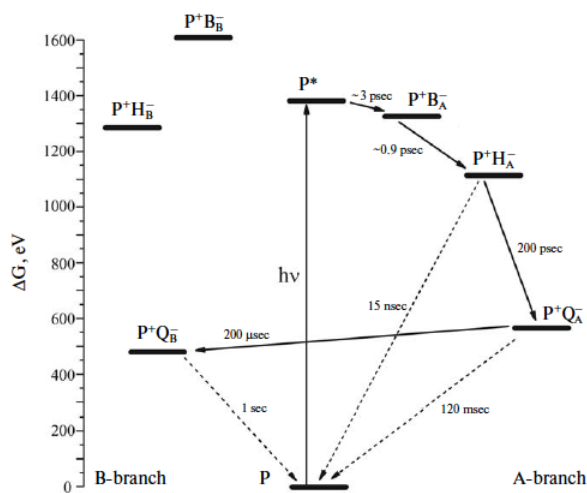


FIGURE 5.10 – Schéma de transfert d'électrons du RC de *R. sphaeroides* de type sauvage à 293 K. Image modifiée de [50]

transmembranaire d'électron est déclenché par la transition du dimère P vers l'état excité P^* . Le transfert d'électron de P^* à H_L se produit en environ 3 ps, en passant par un état intermédiaire

$P^+B_L^-$ de courte durée de vie. Le temps de recombinaison de l'état $P^+H_L^-$ est de l'ordre de 15 ns. Le transfert d'électron depuis H_L^- à l'ubiquinone Q_L se produit en 200 ps, et l'état avec charges séparées $P^+Q_L^-$ retourne à l'état neutre en 120 ms. Les vitesses de tous ces processus sont données à 293 K mais elles changent pour des températures plus basses.

Quand l'électron est transféré de P^* à B_L l'émission stimulée est réduite et un blanchiment de la bande B_L à 800 nm se produit (voir Figure 5.9), ainsi que la formation d'une bande B_A^- à 1020 nm.

Un transfert d'électron supplémentaire advient depuis la quinone primaire Q_L à la quinone secondaire Q_M sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de μ s. Le temps de recombinaison de l'état $P^+Q_M^-$ est supérieur à 1 s. Le transfert successif d'un deuxième électron depuis P^* complète la réduction de Q_M . Ensuite la soustraction de deux protons au cytoplasme permet la protonation durable de Q_M^{2-} et la formation d'ubiquinol (Q_MH_2). Enfin l'ubiquinol quitte le RC et est remplacé par un nouvel ubiquinone. L'état P^+ est réduit par un cytochrome c exogène, tandis que les protons pris du cytoplasme sont relâchés du côté periplasmique, générant ainsi un gradient de protons.

Pour notre expérience de spectroscopie pompe-sonde AD-ASOPS ultrarapide à la fréquence de 5 MHz, nous mesurons la dynamique de l'état intermédiaire de charge séparée $P^+H_A^-$ en suivant la formation et la décroissance du décalage électrochromique de la bande B à 780 nm, proche du maximum d'absorption induite [52]. L'expérience est réalisée sur le RC isolé de *R. sphaeroides* de type sauvage, contenant du caroténoïde et ayant le quinone accepteur Q_L pré-réduit. De cette manière, toute formation d'états de durée de vie supérieure à la période de 200 ns du laser de pompe est évitée. En particulier, la durée de vie du donneur P , présentant intrinsèquement une très longue décroissance, est fortement diminuée par un quenching efficace provoqué par le caroténoïde [53].

5.2.2 Mises en œuvre et résultats

La Figure 5.11 schématise le montage expérimental de spectroscopie pompe-sonde résolue en temps réalisée par AD-ASOPS sur un échantillon de RCs de *R. sphaeroides*. Toute la partie détection des coïncidences est identique à celle présentée dans la Section 5.1, tandis que des changements significatifs ont été apportés à la partie expérimentale développée en propagation libre. L'échantillon, contenu dans une cellule d'un millimètre de chemin optique, est placé dans

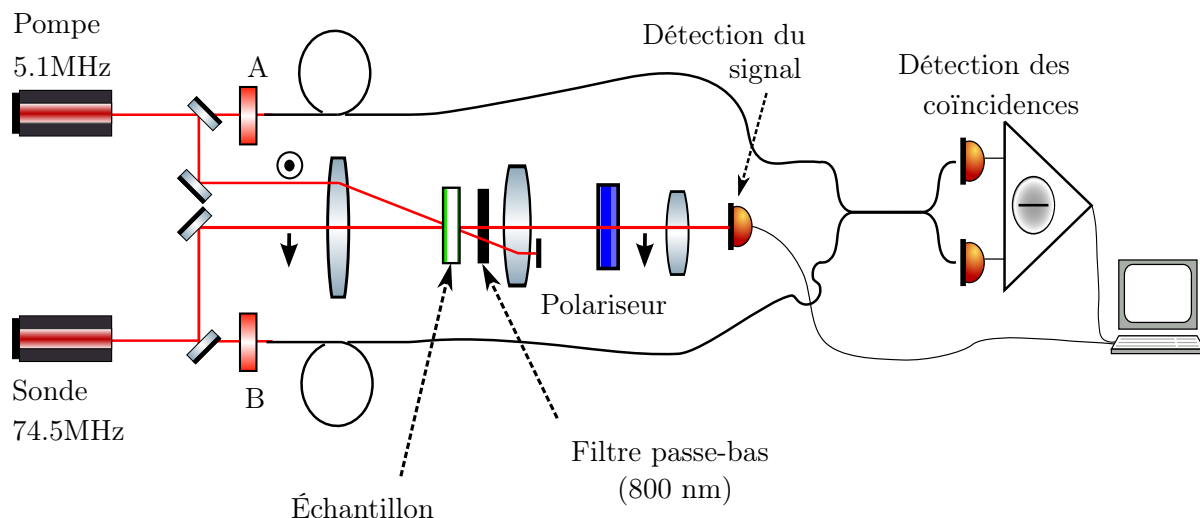


FIGURE 5.11 – Montage expérimental de spectroscopie pompe-sonde résolue en temps par AD-ASOPS, avec expérience pompe-sonde réalisée en propagation libre et montage fibré pour la détection des coïncidences.

une monture thermalisée à 10°C. La monture est maintenue en rotation à une fréquence d'environ 3 Hz sur un diamètre de 8 mm pour minimiser la dégradation de l'échantillon. Les centres réactionnels sont purifiés comme décrit en [54], et sont préparés en Tris à 20 mM, pH 8.0, avec 0.1% de LDAO, en utilisant comme agent réducteur du dithiothréitol (10 mM), de manière à obtenir une densité optique d'environ 0.5 à 800 nm. Les impulsions de pompe et de sonde, très proches spectralement, sont dirigées sur l'échantillon en configuration quasi-colinéaire avec des polarisations orthogonales de façon à pouvoir les distinguer aisément et rejeter la pompe avec un polariseur placé avant la photodiode. Les impulsions de pompe sont délivrées avec une durée de 50 fs, centrées à 800 nm, polarisées s et avec une énergie ajustée à 2 nJ. Les impulsions de sonde, d'une durée de 15 fs et centrées à 800 nm (avant filtre), sont au contraire polarisées p et ont une énergie de 50 pJ sur l'échantillon. Les deux faisceaux sont focalisés en utilisant une lentille de 100 mm de focale. Pour obtenir une sonde centrée à 780 nm, le maximum du décalage électrochromique, le faisceau de sonde transmis est filtré spectralement avec un filtre passe-bas rejetant toutes les longueurs d'onde supérieures à 800 nm. Le spectre de sonde ainsi obtenu est centré à 780 nm et a une largeur spectrale de 10 nm FWHM.

La technique AD-ASOPS présente une difficulté d'alignement par rapport à la technique de balayage par ligne à retard due au fait qu'il n'est pas possible de se situer au zéro temporel pour

optimiser la superposition spatiale des faisceaux de pompe et de sonde sur l'échantillon. Pour procéder à l'alignement nous avons donc conçu un montage mécanique capable de remplacer de façon suffisamment précise l'échantillon biologique par le cristal de BBO utilisé dans l'expérience précédente. Nous avons d'abord orienté son angle azimutal à 45° par rapport aux polarisations des faisceaux incidents. Les énergies de pompe et de sonde ont été équilibrées à l'aide de deux ensembles composés d'une lame demi-onde et d'un polariseur de Glan. Grâce au fait que la photodiode utilisée pour l'expérience principale à 800 nm est aussi capable de détecter jusqu'à 400nm, quoique avec moins de sensibilité, il est possible d'aligner spatialement les deux faisceaux incidents en visualisant le faisceau somme de fréquences généré à une fréquence moyenne d'environ 90 Hz, correspondant à la fréquence moyenne de coïncidence entre les deux oscillateurs. Après optimisation du signal de somme de fréquences, le cristal de BBO est remplacé par le centre réactionnel et les énergies sont réajustées. Enfin, un programme d'alignement fin permet de visualiser le signal pompe-sonde pendant l'acquisition en temps quasi-réel avec un taux de rafraîchissement de 1 Hz, de manière à pouvoir optimiser la superposition spatiale de la sonde et de la pompe.

La Figure 5.12 montre le signal d'absorption différentielle obtenu expérimentalement, après un temps d'acquisition total de seulement 4 minutes. Cependant, puisque le taux d'extinction de 10^{-3} du polariseur n'est pas suffisant pour annuler complètement la diffusion de la pompe sur la photodiode, il est nécessaire de procéder à une acquisition de 4 minutes supplémentaires avec faisceau de sonde bloqué, pour soustraire la fuite de la pompe au signal pompe-sonde et pouvoir ainsi profiter pleinement de la résolution de la méthode pour résoudre le temps de montée rapide. Cela dit, 8 minutes d'acquisition restent un temps d'acquisition très raisonnable pour l'obtention d'une dynamique sur plusieurs ordres de grandeur avec la richesse d'informations que nous allons discuter.

Les données enregistrées dans l'intervalle de temps entre -20 ps et 40 ps ont été obtenues en sélectionnant seulement les couples de coïncidences séparés par un laps de temps inférieur à 1 ms, ce qui correspond, d'après ce qui a été discuté en Section 5.1, à une résolution de 850 fs. Ceci explique, en raison du nombre plus limité de points de mesure, le rapport signal sur bruit dégradé par rapport aux données correspondant aux retards plus longs. Nous avons choisi une résolution de 850 fs comme compromis entre la résolution souhaitée et le temps d'acquisition, qui, étant étroitement lié au temps d'irradiation de l'échantillon, doit être limité pour préserver sa durée

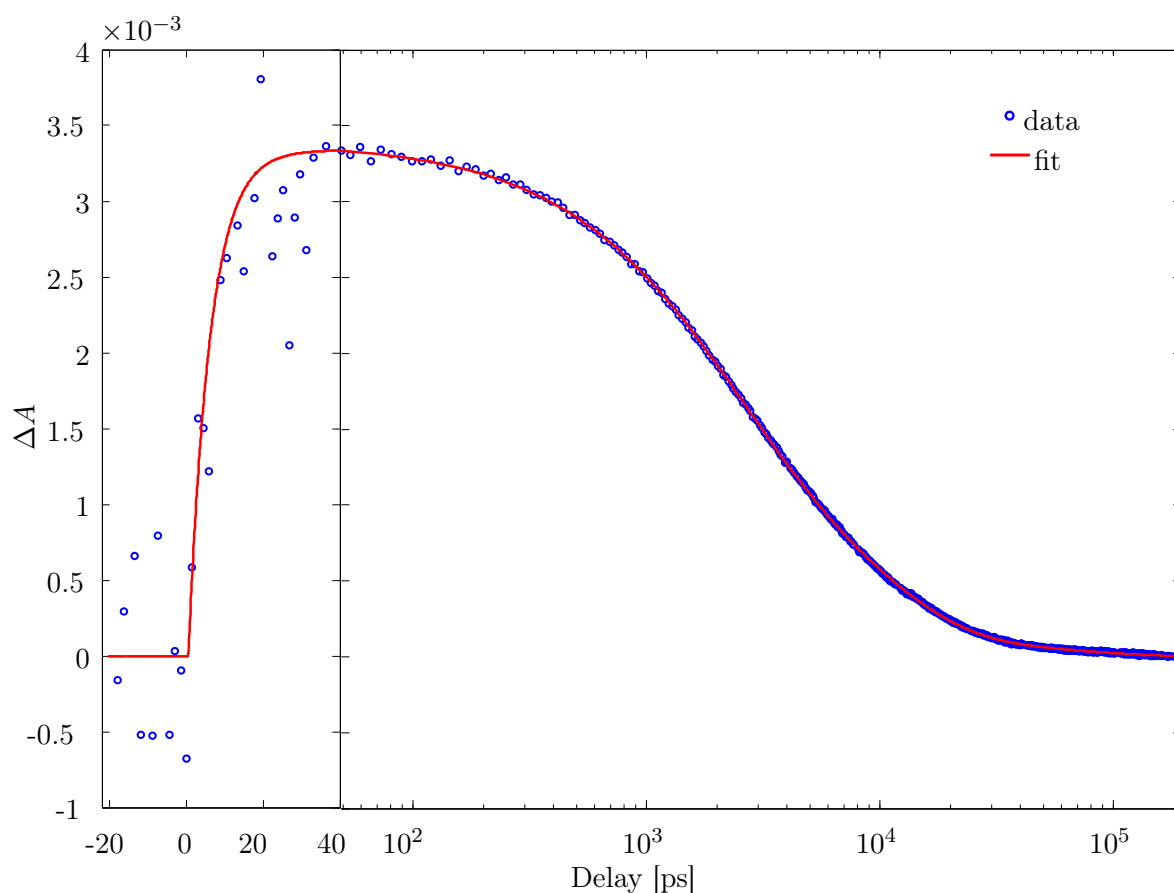


FIGURE 5.12 – Signal d'absorption différentielle résolue en temps dans RC. L'axe horizontal est linéaire dans l'intervalle $[-20 \text{ ps}, 40 \text{ ps}]$ et logarithmique dans l'intervalle $[40 \text{ ps}, 196 \text{ ns}]$. Les points bleus correspondent aux données moyennées en cases temporelles de 700 fs de largeur dans la partie linéaire du dessin, et de taille croissante dans la partie logarithmique, donnant lieu à un rapport signal sur bruit croissant avec le retard temporel. La ligne rouge montre un ajustement avec une croissance exponentielle de 3.7 ps et une décroissance tri-exponentielle avec constantes de temps de 2 ns (53%), 8 ns (42%) et 43 ns (5%).

de vie. Pour apprécier la variété des échelles de temps dans le système étudié, les résultats sont affichés sur une échelle linéaire jusqu'à 40 ps et ensuite logarithmique jusqu'à la limite de la fenêtre temporelle de 196 ns.

Analysons d'abord les données de décroissance. La courbe rouge est un ajustement tri-exponentiel qui correspond à trois constantes de temps égales respectivement à 2 ns, 8 ns et 43 ns, avec des amplitudes relatives de 53%, 42% et 5%. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus précédemment par des expériences réalisées avec sonde continue et pompe à faible taux de répétition [55, 56], où les cinétiques multiphasées étaient interprétées en termes de stabilisation graduelle de l'état $P^+H_L^-$. Notre résolution temporelle, associée à un excellent rapport signal sur bruit, nous permet en plus de déterminer plus précisément le taux de décroissance et l'amplitude relative de la composante plus rapide, qui indique probablement une recombinaison depuis un état thermiquement non-relaxé.

Pour ce qui concerne la zone de croissance, nos données peuvent être approximées par une montée exponentielle avec une constante de temps de 3.7 ps, ce qui est également en accord avec les mesures précédentes obtenues par spectroscopie pompe-sonde ultra-rapide conventionnelle avec ligne à retard mécanique et correspondant à la formation de l'état $P^+H_L^-$ [52, 57].

En conclusion, grâce à la flexibilité d'utilisation de notre nouvelle méthode AD-ASOPS nous avons pu réaliser une expérience de spectroscopie pompe-sonde sur un échantillon biologique avec une sonde à 74.5 MHz et une pompe à 5.1 MHz. Grâce au taux de répétition relativement bas de l'oscillateur CPO nous avons pu échantillonner une large fenêtre temporelle allant jusqu'à 200 ns, tout en gardant une résolution de quelques centaines de femtosecondes. De cette manière nous avons réussi à mesurer en une seule expérience le cycle complet de séparation et recombinaison de charge des centres réactionnels de *R. sphaeroides*. Nos résultats sont en bon accord avec des expériences reportées précédemment qui se différencient de notre méthode par le fait d'utiliser deux approches expérimentales différentes selon qu'il s'agisse de mesurer des échelles temporelles longues [55, 56] ou courtes [52, 58].

Expériences au kHz

Sommaire

6.1 Principe de fonctionnement de l'AD-ASOPS kHz	102
6.2 Validation de l'AD-ASOPS kHz	103
6.2.1 Interférométrie spectrale	105
6.2.2 Problématiques	111
6.2.3 Résultats	112

Les oscillateurs laser ne se révèlent pas toujours adaptés aux différentes exigences expérimentales et, en pratique, les expériences pompe-sonde sont souvent réalisées en s'appuyant sur des systèmes laser amplifiés. En effet, ces derniers permettent de mieux exciter et/ou sonder certains échantillons grâce au fait qu'ils délivrent un niveau de puissance plus élevé, ce qui peut être directement exploité ou bien utilisé pour créer d'autres longueurs d'onde par effets non-linéaires. De plus, pour de nombreux échantillons, notamment certains systèmes biologiques comme les protéines, le temps de retour à l'état fondamental pour les états excités peut être supérieur de plusieurs ordres de grandeur à la centaine de nanosecondes. Dans ces cas, il devient intéressant d'utiliser des systèmes laser amplifiés, qui présentent des taux de répétition plus bas par rapport aux oscillateurs et permettent ainsi de sonder des retards allant par exemple dans notre cas jusqu'à la milliseconde. Néanmoins nous avons vu au Chapitre 2 que les techniques conventionnelles de balayage par modification électronique du retard entre deux lasers amplifiés présentent une résolution temporelle limitée par la période des oscillateurs, tandis que les échantillons peuvent souvent présenter des dynamiques multi-échelles qui exigent également la capacité de sonder avec une résolution fine, picoseconde ou sub-picoseconde, pour des retards courts.

Dans le but de réaliser une étude spectroscopique multi-échelle, à partir de la centaine de femtosecondes jusqu'à la milliseconde, nous allons présenter une variante de la méthode AD-ASOPS adaptée aux systèmes laser amplifiés. À la différence des montages proposés par [1] et

[33], qui sont basés sur deux oscillateurs dont l'un est asservi sur l'autre, notre méthode ne requiert aucune condition spécifique sur les fréquences des oscillateurs utilisés et permet ainsi de réaliser des expériences, comme celle qui sera analysée dans la suite du chapitre, avec deux lasers complètement indépendants l'un de l'autre.

6.1 Principe de fonctionnement de l'AD-ASOPS kHz

Le principe de fonctionnement de l'AD-ASOPS kHz combine la méthode de l'AD-ASOPS à celle du retard électronique présenté en Section 2.2.3. Comme exposé auparavant, cette dernière technique réalise un balayage temporel d'une fenêtre allant jusqu'à la période de déclenchement des amplificateurs, avec un pas temporel limité à la période correspondant à la cavité la plus longue. Grâce à la méthode AD-ASOPS nous pouvons connaître la loi de phase entre les deux oscillateurs et en sachant identifier quelles impulsions générées au mégahertz sont amplifiées au kilohertz, nous sommes capables de déterminer *a posteriori* leur retard avec une grande précision.

Le schéma général pour une expérience pompe-sonde au kHz réalisée par AD-ASOPS est représenté Figure 6.1. Les détails seront discutés par la suite dans la description du cas appli-

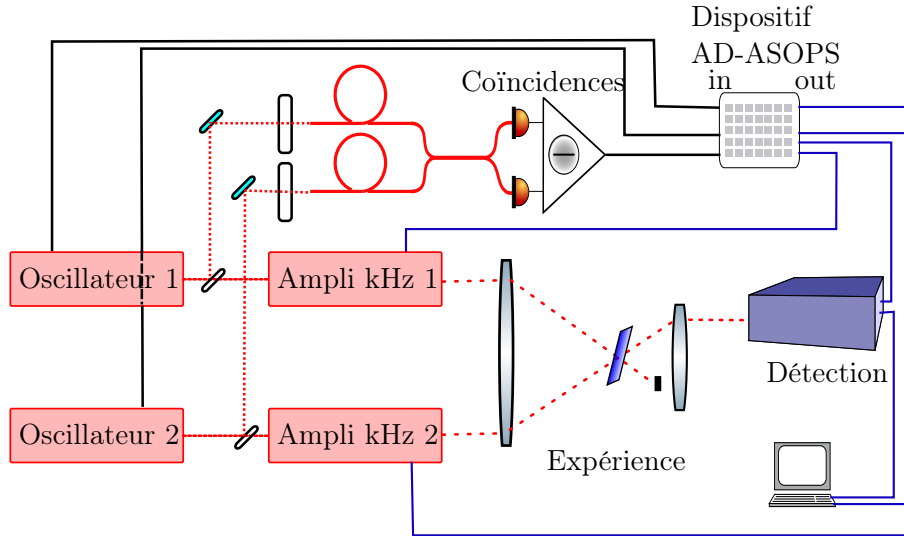


FIGURE 6.1 – Schéma du montage expérimental pour la réalisation d'une expérience pompe-sonde au kHz par AD-ASOPS.

qué, mais nous pouvons remarquer que le montage est encore une fois séparé en deux parties principales : l'une dédiée à la détection des coïncidences et l'autre à l'expérience pompe-sonde proprement dite.

Il est nécessaire de développer les mêmes mesures utilisées dans l'AD-ASOPS MHz pour connaître l'évolution des deux oscillateurs, notamment la détection des coïncidences et le comptage des impulsions entre deux coïncidences. La différence principale par rapport à l'AD-ASOPS MHz réside dans le pilotage des déclenchements des amplificateurs et du système de détection du signal mesuré, qui doit être synchronisé aux informations sur les compteurs relatifs aux impulsions qui sont effectivement amplifiées. Pour réaliser cette série de tâches, un prototype électronique, que nous appellerons dispositif AD-ASOPS, a été spécifiquement développé par Xavier Solinas (Figure 6.2).

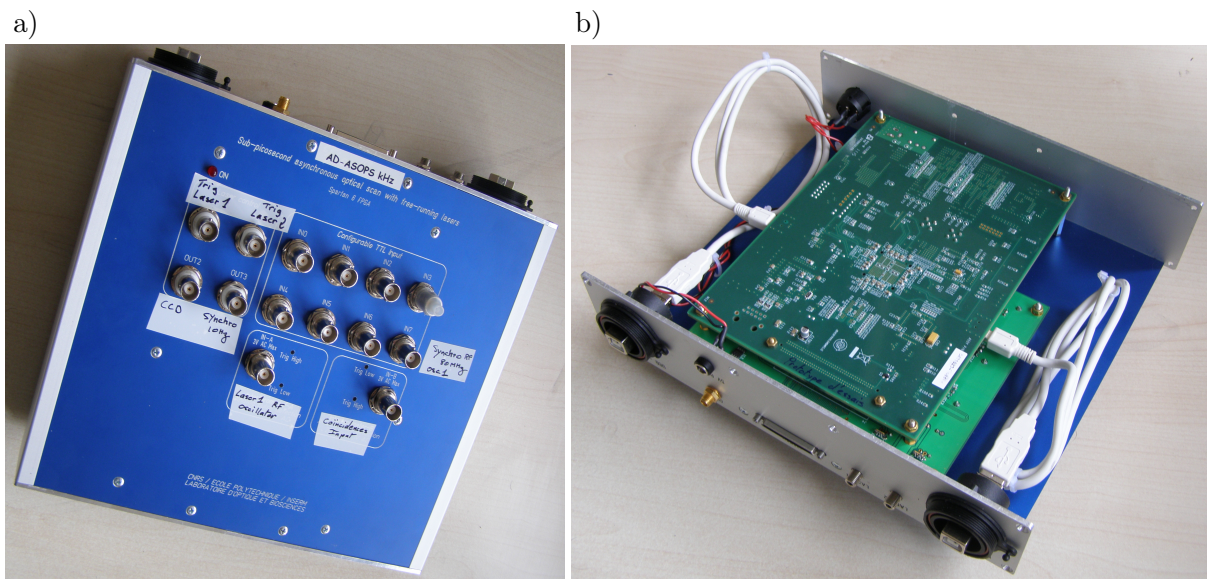


FIGURE 6.2 – (a) Dispositif AD-ASOPS. (b) Le système électronique est constitué d'une carte de développement Xilinx SP601 accueillant un FPGA Spartan 6 et d'une carte d'interface rapide développée au laboratoire.

6.2 Validation de l'AD-ASOPS kHz

Pour valider l'AD-ASOPS kHz nous voulons comparer les mesures de retard réalisées par cette technique avec des mesures obtenues par interférométrie spectrale. Contrairement au cas MHz, pour lequel la vitesse de transfert des données limite les expériences à de simples mesures d'énergie, dans le cas kHz nous pouvons en effet obtenir beaucoup plus d'information, par exemple à l'aide d'un spectromètre. La Figure 6.3 représente le schéma de réalisation de l'expérience de validation de la méthode AD-ASOPS kHz. Le montage utilise un laser Hurricane

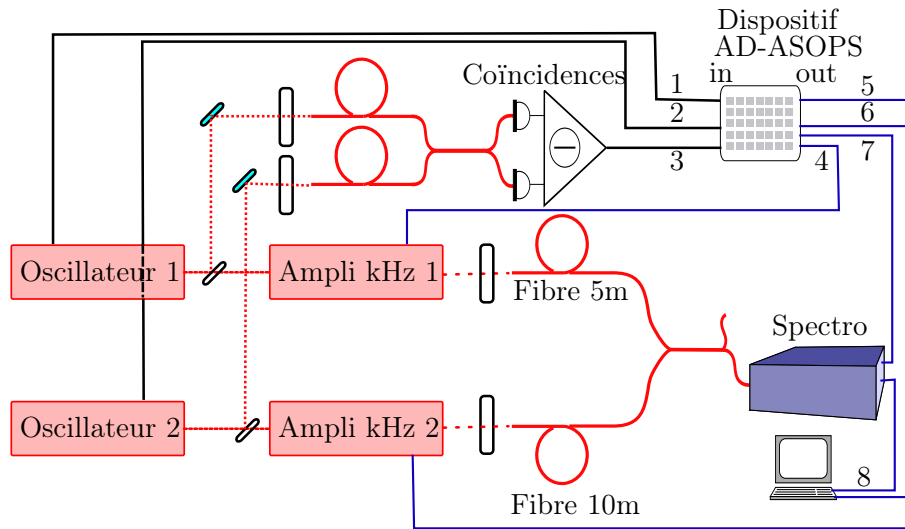


FIGURE 6.3 – Schéma du montage expérimental pour la validation de l'AD-ASOPS kHz. En entrée du dispositif électronique qui pilote l'expérience, les signaux 1, 2 et 3 sont respectivement les deux signaux électroniques qui reproduisent les trains d'impulsions des deux oscillateurs et le signal de détection des coïncidences. Les signaux 4 et 5 en sortie de la carte sont associés respectivement au déclenchement de l'amplificateur des lasers 1 et 2, le signal 6 à la communication des compteurs laser correspondant aux coïncidences et déclenchements kilohertz, et le signal 7 à la commande d'acquisition du spectromètre. Le signal 8 représente la transmission des données du spectromètre à l'ordinateur.

de Spectra Physics composé d'un oscillateur Mai Tai et d'un amplificateur (appelé laser 1 par la suite) et un laser Libra de Coherent composé d'un oscillateur Vitesse et d'un amplificateur (laser 2). Les deux systèmes présentent un taux de répétition d'1 kHz après passage à travers les amplificateurs régénératifs. La partie de détection des coïncidences optiques est identique à celle utilisée dans l'AD-ASOPS MHz et elle est injectée par deux faibles fractions des trains d'impulsions prélevées à l'aide de lames partiellement réfléchissantes insérées sur les faisceaux des oscillateurs 1 et 2. Le dispositif AD-ASOPS, qui pilote l'ensemble de l'expérience, a en entrée deux signaux produits à partir des trains d'impulsions des oscillateurs pour le comptage des tirs laser et pour la génération de l'horloge, synchronisée sur l'oscillateur du laser 1, et le signal des coïncidences. Le transfert des données vers l'ordinateur est effectué à l'aide d'une carte d'entrées/sorties numériques NI6535 PCI express placée dans ce dernier, qui récupère les valeurs des compteurs laser relatifs à chaque événement remarquable : coïncidence, déclenchement du laser 1 et déclenchement du laser 2. Dès que le signal différentiel en sortie de l'interféromètre (3) sort d'une fenêtre délimitée par deux seuils ajustables à l'aide de potentiomètres, une coïncidence est détectée et l'événement est transmis à l'ordinateur avec les valeurs des compteurs des deux

lasers. Une fois que sont connues les valeurs des compteurs de déclenchement relatifs aux deux lasers ainsi que les valeurs des compteurs de la coïncidence précédant et de la coïncidence suivant l'événement de déclenchement, un simple programme de calcul, très proche de celui utilisé dans le cas MHz (voir Annexe A) permet de remonter au retard entre les deux impulsions amplifiées.

Pour valider la méthode, nous allons comparer les mesures de retard obtenues par AD-ASOPS kHz avec des mesures réalisées en parallèle par une autre technique ayant une précision plus élevée. Nous avons choisi dans ce but d'utiliser l'interférométrie spectrale par transformée de Fourier (FTSI pour "Fourier Transform Spectral Interferometry") [59, 60], qui permet de connaître tous les retards compris à l'intérieur d'une fenêtre temporelle définie par la résolution de l'appareil : dans notre cas il s'agit d'un spectromètre SpectraPro-2500i (Princeton Instruments) de focale 500 mm et utilisant un réseau à 1200 traits/mm, pour lequel la fenêtre de retards accessibles est d'environ 30 ps. L'acquisition de la caméra CCD est synchronisée au kilohertz grâce à un signal de déclenchement produit par le dispositif électronique AD-ASOPS. Le même signal déclenche la carte NI6535 pour l'envoi au kilohertz des compteurs placés dans une mémoire tampon.

6.2.1 Interférométrie spectrale

Le signal enregistré par un spectromètre sur lequel sont envoyées deux impulsions lumineuses de champs électrique $\mathcal{E}_1(\omega)$ et $\mathcal{E}_2(\omega)$ peut être décrit par l'équation suivante :

$$\begin{aligned}
 S(\omega) &= |\mathcal{E}_1(\omega) + \mathcal{E}_2(\omega) \exp(i\omega\tau)|^2 \\
 &= |\mathcal{E}_1(\omega)|^2 + |\mathcal{E}_2(\omega)|^2 + 2|\mathcal{E}_1(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)| \cos(\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau) \\
 &= |\mathcal{E}_1(\omega)|^2 + |\mathcal{E}_2(\omega)|^2 + |\mathcal{E}_1(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)| \exp(i(\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau)) \\
 &\quad + |\mathcal{E}_1(\omega)\mathcal{E}_2(\omega)| \exp(-i(\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau)),
 \end{aligned} \tag{6.1}$$

où $\Delta\varphi(\omega)$ est la différence de phase entre les deux impulsions et τ est leur retard relatif. Ce signal est appelé spectre cannelé parce qu'il présente des franges spectrales [61, 62] : dans le cas d'une phase linéaire l'interfrange est constante et vaut $2\pi/\tau$. Le terme de phase spectrale peut être extrait par filtrage dans l'espace des temps, conjugué de l'espace des fréquences par transformée de Fourier [59, 60]. En effet, la transformée de Fourier inverse de de l'éq. 6.1 s'écrit :

$$S(t) = f_0(t) + f(t - \tau) + f^*(-t - \tau), \tag{6.2}$$

où la fonction $f(t)$ est la fonction de corrélation entre les deux champs, dont la transformée de Fourier s'écrit $f(\omega) = |\mathcal{E}_1(\omega)||\mathcal{E}_2(\omega)| \exp(i\Delta\varphi(\omega))$. La fonction $f_0(t)$ est quant à elle la transformée de Fourier inverse de la somme des spectres des deux impulsions. Comme ces spectres varient lentement avec ω , la fonction $f_0(t)$ est localisée autour du zéro, tandis que la fonction $f(t-\tau)$ est centrée sur τ et la fonction $f^*(-t-\tau)$ sur $-\tau$. La fonction $S(t)$ est ainsi constituée de trois pics qui sont bien distincts dès lors que le retard τ est suffisamment grand. Un filtrage dans l'espace des temps permet donc d'extraire la fonction $f(t-\tau)$ d'où l'on déduit $f(\omega) \exp(i\omega\tau)$ en revenant dans l'espace des fréquences. La phase spectrale de cette dernière fonction permet d'accéder à la grandeur $\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau$. Remarquons toutefois que si nous sélectionnons le pic localisé dans les temps positifs, c'est soit la fonction $f(t-\tau)$ soit la fonction $f^*(-t-\tau)$ qui sera extraite, selon que τ est positif ou négatif. Nous obtenons donc soit $\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau$ soit $-\Delta\varphi(\omega) - \omega\tau$, ce qui n'est guère surprenant puisque le cosinus dont nous sommes partis (équ. 6.1) n'est pas sensible au signe de la phase spectrale.

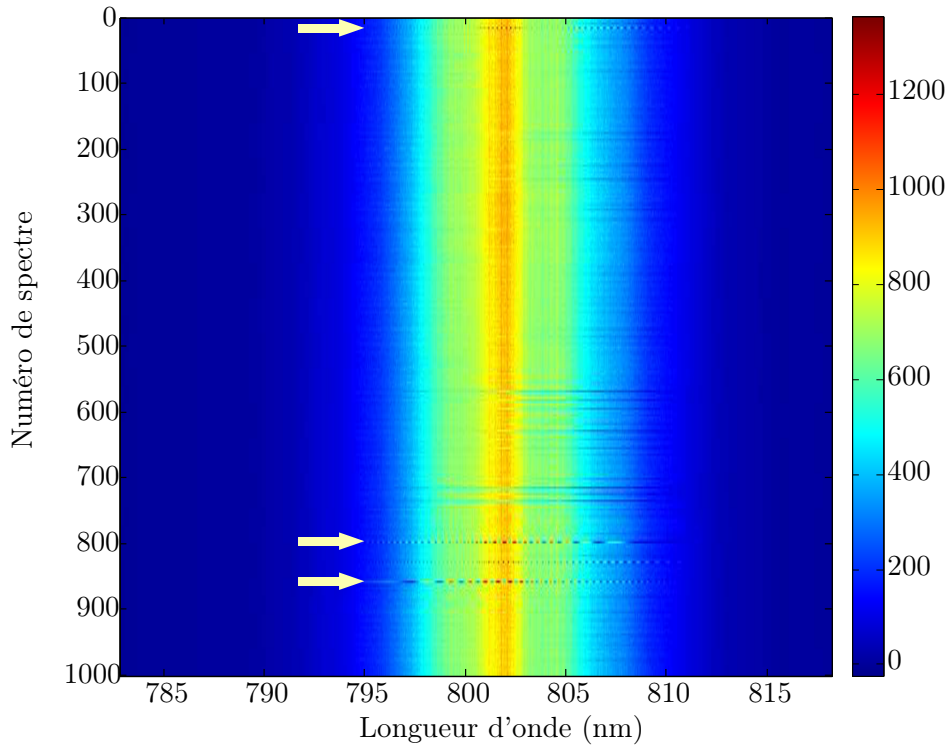


FIGURE 6.4 – Exemple de données acquises par le spectromètre. L'axe horizontal reporte la longueur d'onde en nanomètres et l'axe vertical le numéro du tir laser. En échelle de couleurs d'unités arbitraires est représentée l'intensité spectrale enregistrée. On peut remarquer l'apparition aléatoire de spectres cannelés (repérés par des flèches).

Dans notre expérience nous envoyons au spectromètre les impulsions générées par les deux

systèmes laser après propagation dans deux fibres optiques. Ces impulsions ont d'abord été réglées en ajustant le déclenchement du laser 2 par rapport au laser 1 de manière à ce que leur retard relatif soit contenu dans la période de l'oscillateur, c'est à dire 12.5 ns. La Figure 6.4 représente un exemple typique d'acquisition où sont reportés mille spectres successifs détectés par la CCD du spectromètre. L'axe horizontal indique la longueur d'onde et l'axe vertical le numéro de spectre. L'intensité spectrale est codée en échelle de couleur. Sur un fond de spectres uniformes, qui sont les plus probables dans l'intervalle temporel ± 6.25 ns, nous remarquons l'apparition aléatoire de spectres cannelés, correspondant à des paires d'impulsions séparées de moins de 15 ps.

En Figure 6.5 sont reportés six exemples de spectres mesurés. Le spectre (a) est le premier spectre enregistré et correspond au cas le plus fréquent. Il ne présente pas de franges interférentielles observables car le retard τ est trop important, donnant lieu à un interfrange spectral $2\pi/\tau$ très inférieur à la résolution de notre spectromètre. Ce spectre sera utilisé comme référence d'intensité spectrale et sera soustrait à tous les spectres cannelés dans la procédure de calcul du retard. Tous les autres spectres de la Figure 6.5 sont des spectres cannelés. Nous observons que l'interfrange varie rapidement avec la longueur d'onde. En effet, les fibres optiques qui amènent les impulsions au spectromètre ont deux longueurs différentes : 5 m et 10 m. La différence de phase relative $\Delta\varphi(\omega)$ entre chaque paire d'impulsions est alors quadratique et correspond à une dérive de fréquence linéaire. Ainsi, pour toutes les mesures effectuées, la différence de phase entre les deux impulsions peut être approximée par un polynôme d'ordre deux. Comme nous le verrons, ce choix expérimental permettra de distinguer entre les retards positifs et les retards négatifs, ce qui serait impossible dans le cas d'une différence de phase parfaitement linéaire.

Observons Figure 6.6 les modules des transformées de Fourier inverses des spectres cannelés de la Figure 6.5. L'axe des temps est reporté uniquement pour des valeurs positives, la fonction représentée étant symétrique par rapport au zéro. Chaque spectre cannelé produit une transformée ayant une contribution centrée sur zéro, $|f_0(t)|$, et une contribution centrée à un temps τ correspondant au retard moyen entre les deux impulsions et associée à la corrélation croisée entre les deux champs, $|f(t - \tau)|$. Ainsi nous pouvons remarquer que les spectres (b), (c) et (d) ont des retards relatifs proches entre eux, tandis que le spectre (f) présente un retard beaucoup plus important. En effet, si nous observons le spectre (f) de la Figure 6.5 nous remarquons que les franges sont très serrées et montrent un contraste très réduit par rapport à celui observé pour

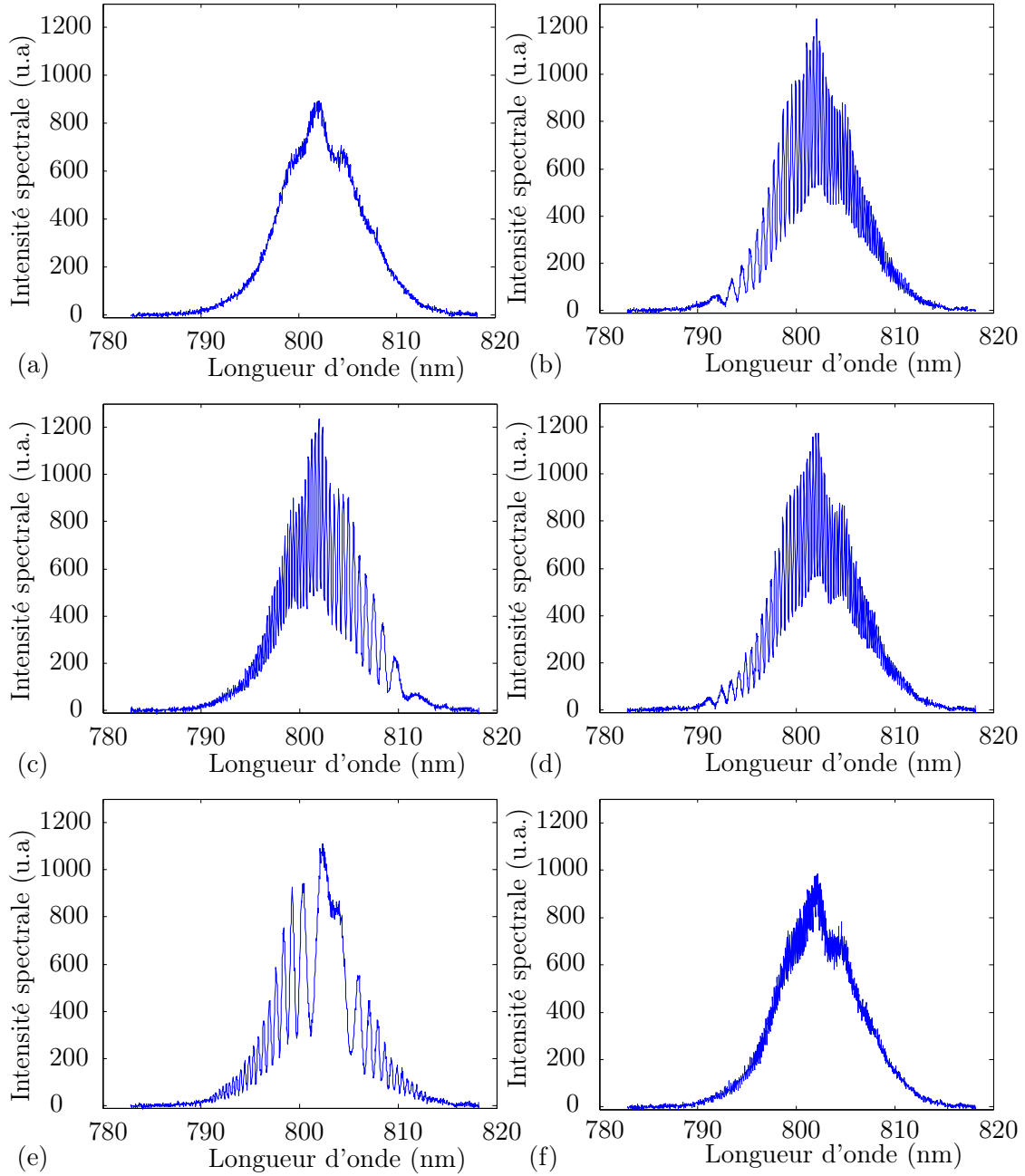


FIGURE 6.5 – Illustrations de différents spectres enregistrés. (a) Premier spectre enregistré : il correspond à un retard trop grand entre les deux impulsions pour générer un phénomène mesurable d'interférométrie spectrale. (b) Premier spectre cannelé enregistré : il est utilisé comme spectre de référence par rapport auquel sont calculées les différences de retard des spectres cannelés suivants. (c) et (d) sont des exemples de deux spectres présentant une évolution de l'interfrange opposée, ce qui correspond à une inversion de l'ordre entre les impulsions d'un cas par rapport à l'autre. (e) Exemple de spectre cannelé généré par un retard inférieur à la durée de la fonction $f(t)$. (f) Exemple d'un spectre cannelé dû à un retard important, proche de la limite de résolution du spectromètre.

des retards plus courts (b-d). Cela est dû au fait que l'interfrange $2\pi/\tau$ devient comparable à la résolution spectrale du spectromètre (effectivement le spectre (f) correspond à un retard τ de 15 ps).

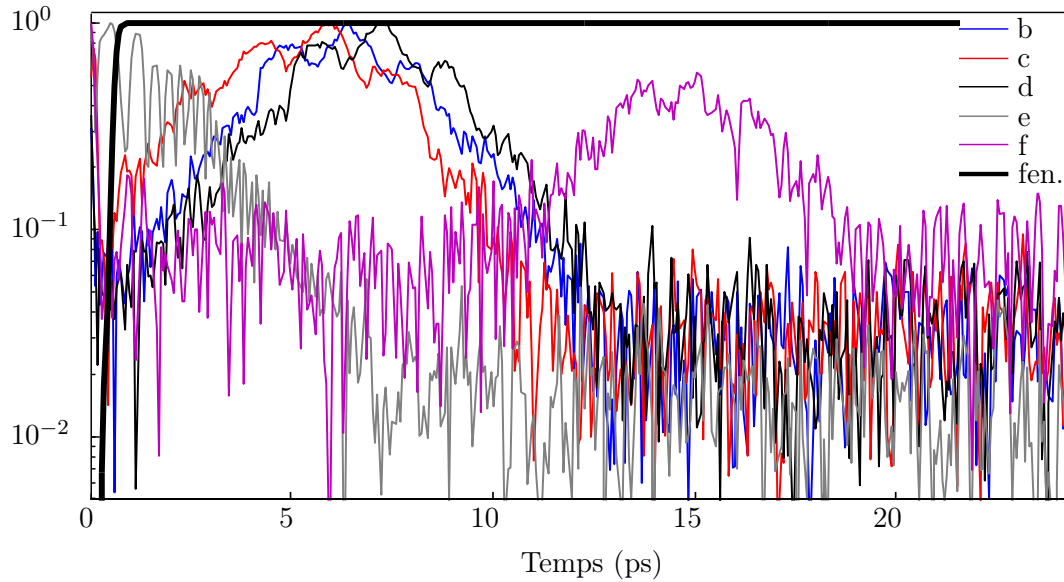


FIGURE 6.6 – *Transformées de Fourier inverses des spectres de la Figure 6.5. Étant donné que les fonctions représentées sont symétriques par rapport au zéro, l'axe des temps est représenté pour des raisons de clarté seulement du côté des retards positifs.*

La courbe indiquée par un trait noir épais représente la fonction de fenêtrage appliquée à chaque transformée pour pouvoir éliminer la contribution centrée à zéro et garder seulement la partie de la courbe présentant des informations sur la phase relative. La Figure 6.6 nous permet de visualiser la particularité du spectre (e) de la Figure 6.5. Il s'agit, à l'inverse du cas (f), d'un retard inférieur à la durée de la fonction $f(t)$, qui dans notre cas vaut environ 6 ps. Dans ce cas il n'est pas possible d'appliquer la méthode FTSI car les fonctions $f_0(t)$, $f(t - \tau)$ et $f^*(-t - \tau)$ se recouvrent.

Quand nous parlons de retard nous faisons en fait référence à sa valeur absolue car, comme discuté plus haut, nous ne savons pas si c'est $f(t - \tau)$ ou $f^*(-t - \tau)$ qui a été sélectionnée. C'est pour pallier cet inconvénient que nous avons utilisé deux fibres de longueur différentes. Sachant qu'il y a 5 m de propagation supplémentaire sur la voie 2, et que la dispersion de vitesse de groupe à 800 nm est positive, la fonction $\Delta\varphi(\omega) = \varphi_2(\omega) - \varphi_1(\omega)$ devra être une parabole de courbure positive. Ceci est illustré Figure 6.7, qui représente la phase obtenue par FTSI dans le cas du spectre (b) avec les deux signes possibles - courbe bleue solide pour le cas de courbure

positive et courbe rouge solide pour le cas de courbure négative. Sachant que la concavité doit être tournée vers le haut, c'est la courbe décroissante qui est correcte, ce qui nous permet d'affirmer que le retard τ est ici négatif. En prenant par convention la tangente à 802 nm (374 THz) - droite bleue en pointillé -, on en déduit que le retard est $\tau_b = -6.6$ ps.

Nous utiliserons ensuite la phase correspondante $\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau_b$ comme référence qui sera soustraite aux phases obtenues pour les spectres cannelés suivants. La Figure 6.8 représente les différences de phases obtenues pour les spectres (c) et (d) à nouveau avec les deux signes possibles. Le signe correct est alors celui qui produit une courbe approximable par un polynôme

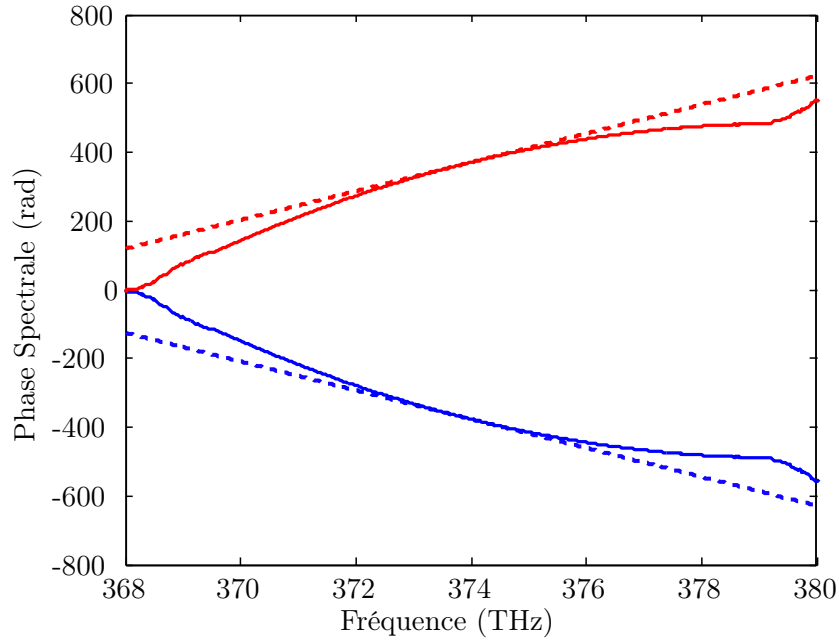


FIGURE 6.7 – Phases spectrales calculées par FTSI à partir du spectre (b) en faisant l'hypothèse d'un retard positif (rouge) ou négatif (bleu). Les courbes solides représentent les phases et les droites en pointillé sont les tangentes à 802 nm.

d'ordre un, c'est à dire, dans les exemples analysés, positif pour le spectre (c) et négatif pour le spectre (d). Cela est en accord avec la forme des spectres illustrés en Figure 6.5, où nous observons une évolution de l'interfrange opposée pour les deux cas (c) et (d), tandis que le même comportement a lieu pour (b) et (d). L'ajustement linéaire nous permet alors de déterminer la valeur de $\tau - \tau_b$ et donc finalement du retard τ entre les deux impulsions, que nous appellerons retard FTSI dans la suite du chapitre.

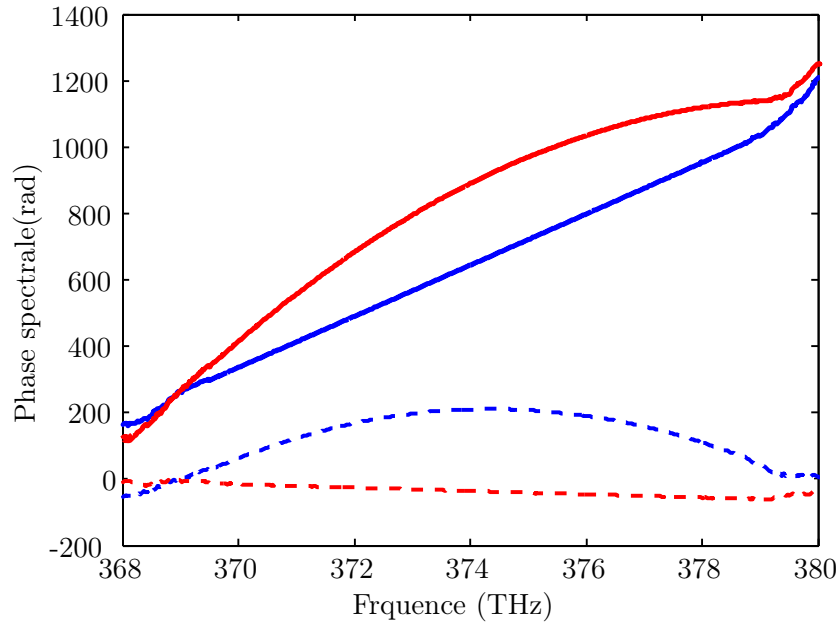


FIGURE 6.8 – Illustration de la méthode de détermination du signe du retard. En bleu en et rouge sont représentées les phases relatives des spectres (c) et (d). Les courbes en pointillé sont tracées sous l'hypothèse de retard négatif et les courbes solides sous l'hypothèse de retard positif.

6.2.2 Problématiques

Plusieurs questions pratiques méritent d'être discutées, avant la présentation des résultats obtenus, en raison de leur importance dans la réussite de l'expérience.

- La qualité du signal de train d'impulsions des oscillateurs : en effet ce signal, et notamment celui dérivé du laser sonde, est la base du cadencement de toute l'expérience. Pour assurer la justesse du comptage des impulsions, dont découle le calcul des retards AD-ASOPS, il est donc essentiel que ce signal soit propre et strictement représentatif du train d'impulsions qui le génère. Par exemple, une éventuelle diffusion du faisceau provenant de l'amplificateur peut avoir, comme cela a été le cas pour nos expériences préliminaires, des conséquences nuisibles au succès de la mesure.
- La synchronisation du flux de données acquises par AD-ASOPS avec celui des signaux détectés par la CCD, en particulier pour pouvoir associer à chaque acquisition pompe-sonde les numéros de compteur pompe et sonde ayant effectivement généré le signal. Cette tâche est réalisée par le dispositif AD-ASOPS qui produit deux signaux de déclenchement synchrones pour le démarrage de l'acquisition et de l'envoi des compteurs.
- Lors des expériences préliminaires nous avons enregistré un décalage des compteurs de dé-

clenchement. Les couples de compteurs, théoriquement réglés pour les exigences spécifiques de l'expérience pour que les deux impulsions correspondantes aient un retard proche de zéro et limité à la période de l'oscillateur 1, avaient en réalité un intervalle de 1 ms, correspondant au tir amplifié suivant. Cette anomalie n'empêche pas un fonctionnement correct de la méthode AD-ASOPS, qui reste capable de déterminer le retard entre les impulsions. Néanmoins, en écartant l'intervalle entre les impulsions dont on doit déterminer le retard et les coïncidences utilisées à cette fin, l'erreur commise par l'approximation linéaire ou quadratique du retard est plus importante. Cette anomalie a été corrigée dans la version définitive du dispositif AD-ASOPS.

6.2.3 Résultats

Pour pouvoir comparer la technique AD-ASOPS avec l'interférométrie spectrale nous avons accumulé pendant 15 minutes les mesures en provenance des deux lasers kilohertz.

Nous avons mentionné plus haut que la résolution du spectromètre limite la détection des spectres cannelés correspondant aux grands retards, pour lesquels les franges spectrales sont très serrées, à environ ± 15 ps dans notre cas. De plus, pour les retards proches de zéro, c'est à dire inférieurs à la durée de la fonction de corrélation $|f(t)|$, qui dans notre cas vaut environ 6 ps, l'interférométrie spectrale ne peut pas être appliquée. Ainsi les intervalles temporels à l'intérieur desquels nous pouvons réaliser les mesures FTSI sont limités à environ $[-15 \text{ ps}, -3 \text{ ps}]$ et $[3 \text{ ps}, 15 \text{ ps}]$. Sachant que la période des oscillateurs est de l'ordre de 12.5 ns, on ne peut donc exploiter que $24 \text{ ps} / 12.5 \text{ ns} \approx 2\%$ des tirs amplifiés, soit en moyenne deux mesures par seconde.

Pour la partie AD-ASOPS, l'ensemble des couples, compris entre deux coïncidences séparées d'un intervalle inférieur à la limite maximale choisie, ont été associés à un retard calculé. Pour la partie FTSI, par contre, c'est l'ensemble des couples ayant un retard compris dans l'intervalle de résolution qui a permis une mesure de retard. Ensuite, l'indice de ce premier couple nous a permis de remonter au retard de ce couple spécifique calculé par AD-ASOPS et nous lui avons référencé toutes les autres mesures AD-ASOPS, de façon à obtenir par cette technique les valeurs de différences de retard, que nous appellerons simplement retards AD-ASOPS. Enfin nous avons comparé les mesures issues des deux méthodes, pour les paires d'impulsions faisant partie de l'intersection des deux ensembles donnant lieu à des mesures exploitables.

Les résultats de notre expérience de démonstration sont reportés Figure 6.9. Les points

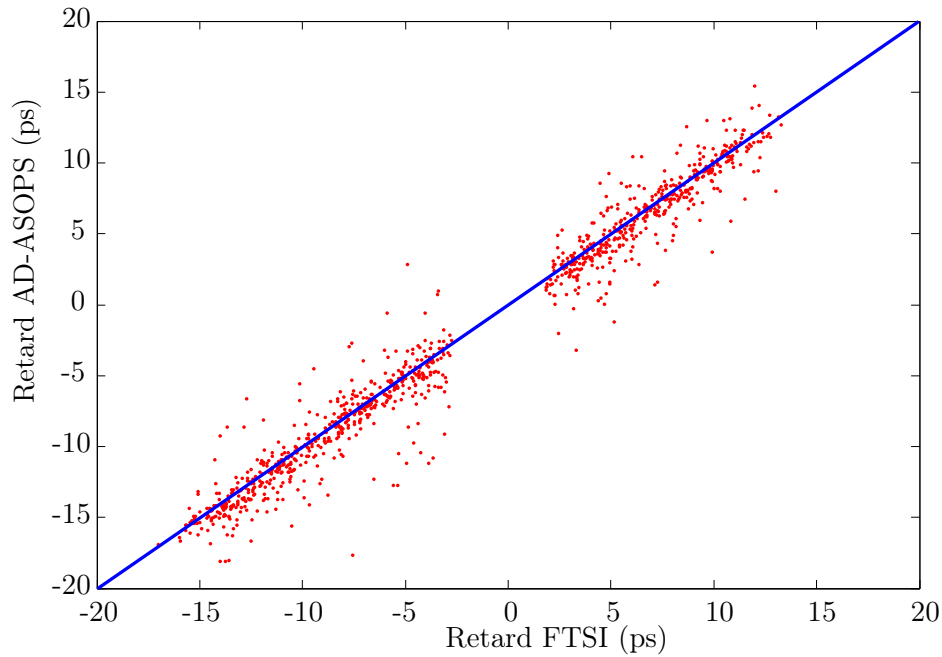


FIGURE 6.9 – Représentation des retards AD-ASOPS en fonction des retards FTSI, obtenus dans les conditions décrites dans le texte. La ligne bleue est une droite de pente 1.

rouges représentent les retards calculés à partir des données expérimentales. L'axe des abscisses est constitué des retards FTSI, tandis qu'en ordonnées sont affichés les retards AD-ASOPS, calculés en utilisant un fit linéaire et un intervalle maximal entre coïncidences égal à 1 ms. Nous pouvons observer une bonne corrélation entre les deux techniques, qui démontre le bon fonctionnement de la méthode AD-ASOPS.

Néanmoins, l'écart type entre les points expérimentaux et une droite de pente 1 vaut environ 1.7 ps. Cette valeur est sensiblement supérieure à nos mesures AD-ASOPS exposées dans les chapitres précédents qui ont toutes montré une résolution sub-picoseconde pour un intervalle maximum entre coïncidences égal à 1 ms. Essayons de comprendre l'origine de la dégradation de résolution observée ici.

6.2.3.1 Caractérisation de l'erreur de mesure à l'aide des coïncidences

Nous avons donc mesuré l'erreur de mesure AD-ASOPS directement à l'aide des coïncidences, selon la méthode présentée à la Section 4.1.2.2.

Les résultats obtenus sont présentés Figure 6.10, où la courbe rouge représente la déviation standard de l'erreur calculée en fonction de l'intervalle entre la troisième et la première coïncidence, sur une série de coïncidences enregistrées pendant environ 5 minutes. Les calculs de

dispersion moyenne confirment une amplitude de l'erreur beaucoup plus importante que pour les cas précédents. En effet, même si le plateau de l'erreur se situe à un niveau plus bas ici, environ 150 ps plutôt que 250 ps, la montée est beaucoup plus rapide dans le cas présent et le même niveau d'erreur est obtenu pour des intervalles entre coïncidences environ dix fois plus courts. Nous avons imputé la source de ce phénomène à un mode de vibration prédominant sur l'un des deux oscillateurs, que nous avons identifié à l'aide de mesures effectuées avec un troisième oscillateur servant de référence. Dans le but de vérifier cette hypothèse nous avons utilisé un modèle similaire à celui discuté en Section 4.1.2.2, mais avec une seule vibration sinusoïdale. L'écart type de l'erreur est alors exprimé par l'éq. 4.11 avec un seul mode ($n = 1$). Pour une vibration ayant une amplitude de 200 nm et une fréquence de 100 Hz, nous obtenons la courbe bleue de la Figure 6.10, qui est en bon accord avec les résultats expérimentaux, exception faite des temps supérieurs à 10 ms, pour lesquels l'écartement par rapport au modèle peut être justifié par une variation lente de la longueur de cavité, par exemple pour des raisons thermiques.

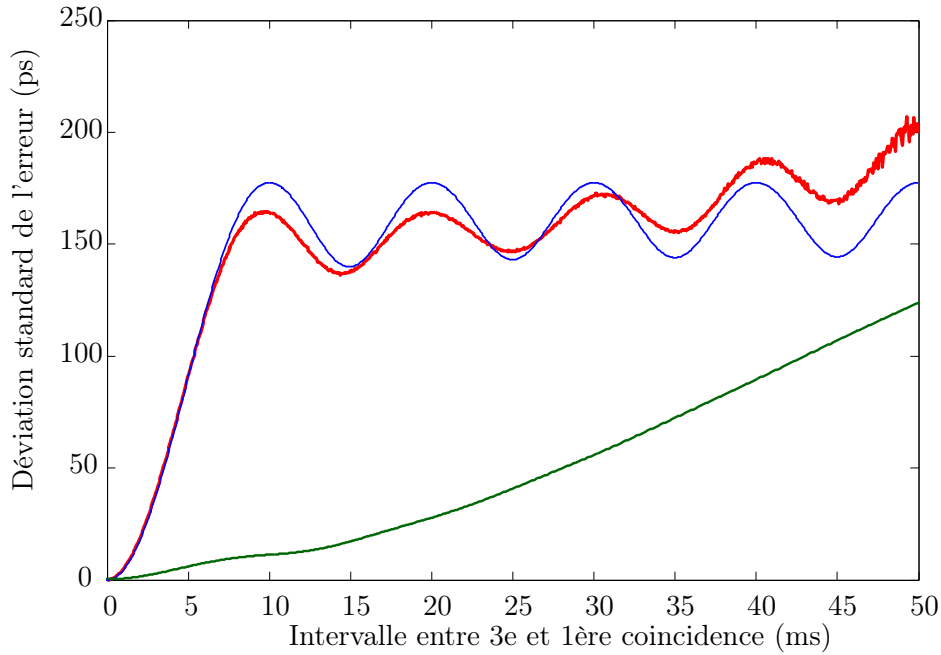


FIGURE 6.10 – Erreur de mesure sur la coïncidence intermédiaire en fonction de l'intervalle temporel entre la première et la troisième coïncidence. En rouge sont représentés les résultats expérimentaux et en bleu le calcul selon un modèle simplifié de vibration sinusoïdale de la longueur d'une des deux cavités d'oscillateur. L'axe des intervalles est divisé en 1024 cases ayant une largeur de 0.049 ms. La courbe en vert représente les résultats obtenus à la Section 4.1.2.2 avec d'autres oscillateurs.

Vue l'importance de l'erreur nous avons voulu essayer si un fit quadratique de l'évolution

des retards était capable de mieux suivre le comportement oscillant du système, et nous avons calculé sous cette hypothèse la dispersion moyenne de l'erreur en fonction de l'intervalle maximal accepté, selon l'éq. 4.14. Afin de pouvoir porter une réflexion sur les résultats qui seront présentés dans la prochaine section nous avons fait le calcul à partir de telles données, qui ont été enregistrées pendant environ 15 minutes. Les distributions des intervalles entre les coïncidences

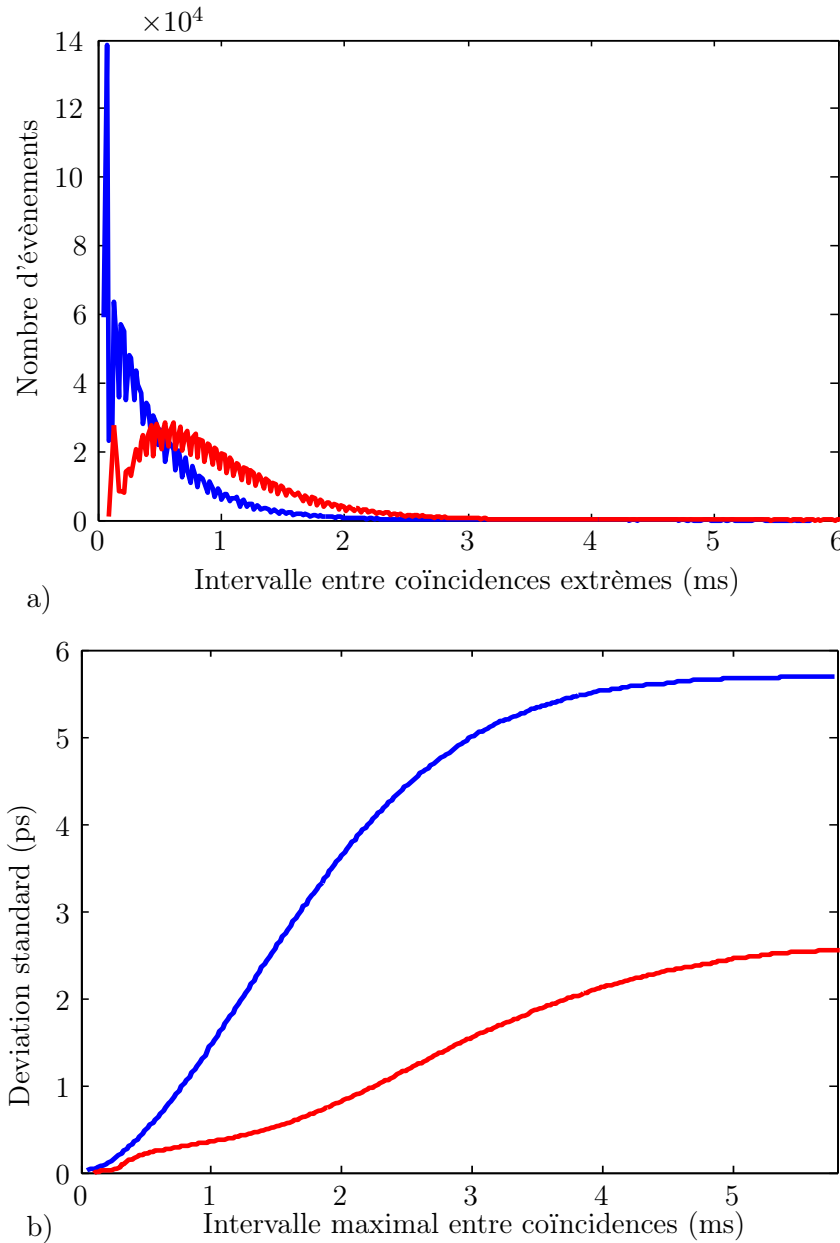


FIGURE 6.11 – (a) Distributions des intervalles entre les coïncidences selon l'hypothèse d'évolution linéaire - courbe bleue - et quadratique - courbe rouge. (b) Écart type de l'erreur en fonction de l'intervalle maximal accepté entre coïncidences représenté en rouge pour le cas quadratique et en bleu pour le cas linéaire.

selon l'hypothèse d'évolution linéaire ou bien quadratique sont illustrées Figure 6.11 (a), tandis que la Figure 6.11 (b) représente l'écart type de l'erreur en fonction de l'intervalle maximal accepté entre coïncidences. Selon la convention de couleurs adoptée, le bleu représente l'approche linéaire et le rouge l'approche quadratique, ce qui sera aussi valable pour les prochaines figures. En Figure 6.11 (b), nous observons une bonne amélioration de la déviation standard dans le cas du fit parabolique, et cela aussi bien pour des valeurs d'intervalle maximal accepté inférieures à la milliseconde, ce qui n'était pas vérifié dans les cas précédents discutés au Chapitre 4. Par conséquent, dans ce cas particulier d'application, où l'un des deux oscillateurs présente une vibration particulièrement importante, un fit parabolique du retard semble être approprié. Par la suite, il serait intéressant de développer un fit sinusoïdal, qui devrait permettre d'améliorer sensiblement la précision de mesure.

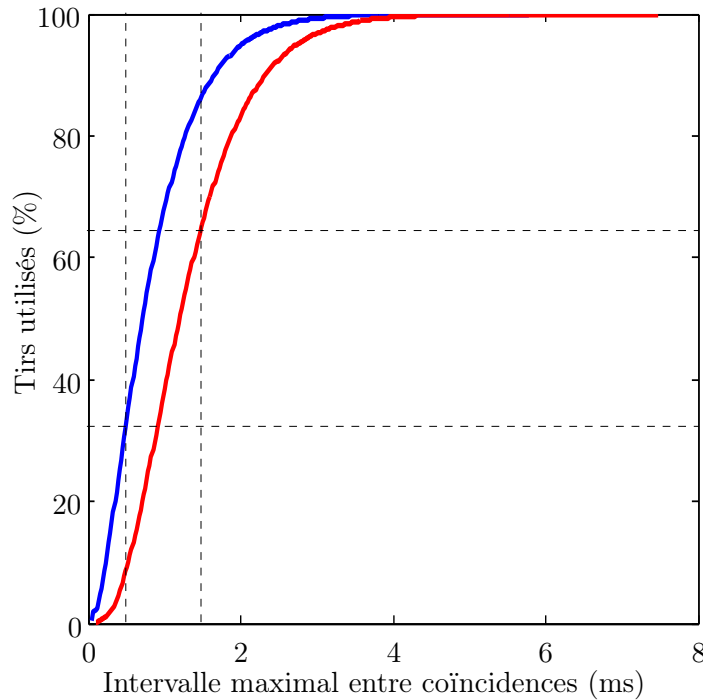


FIGURE 6.12 – Relation entre le pourcentage de tirs utilisés et l'intervalle maximal accepté. La courbe en bleu représente le cas linéaire et la courbe en rouge le cas quadratique.

Pour compléter l'analyse de l'erreur, nous avons calculé la relation existant entre le pourcentage de tirs utilisés et l'intervalle maximal accepté, Figure 6.12, ainsi que les courbes de déviation standard en fonction du pourcentage de tirs utilisés, Figure 6.13. Nous observons une confirmation de l'amélioration donnée par le fit parabolique. En effet, si par exemple nous visons une résolution de 500 fs, dans le cas linéaire nous devons éliminer environ 70 % des tirs, c'est

à dire tous les tirs associés à des coïncidences ayant, par rapport à la coïncidence suivante, un intervalle supérieur à 0.5 ms. Dans le cas parabolique, par contre, nous pouvons obtenir la même résolution avec une perte de seulement 35 % des tirs, correspondant à un intervalle maximal de 1.5 ms, ce qui est beaucoup moins restrictif. Il en découle une amélioration du rapport signal sur bruit et une diminution du temps d'acquisition. Cependant, si nous visons des résolutions encore meilleures, proches de la limite définie par la fenêtre de détection des coïncidences, nous observons qu'autour de 300 fs les deux courbes de Figure 6.13 se croisent et au dessous il devient avantageux d'utiliser une approche linéaire.

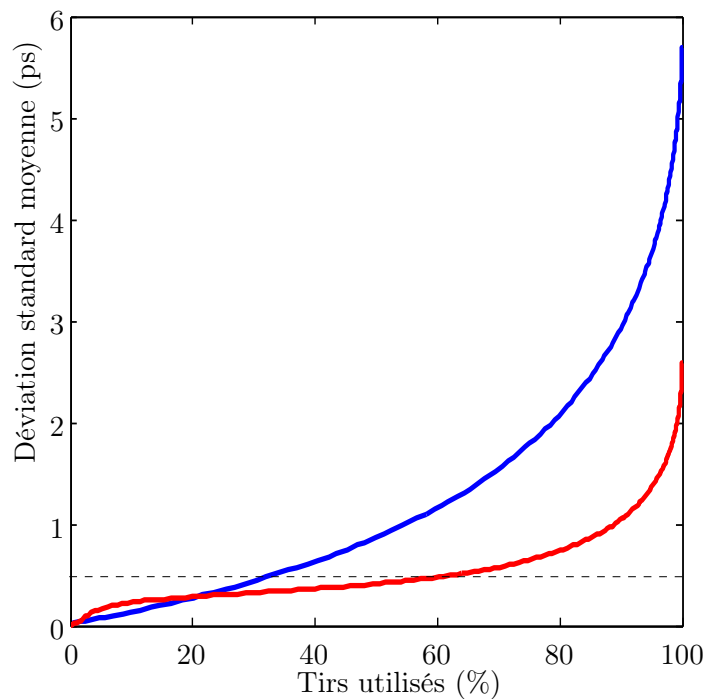


FIGURE 6.13 – *Déviation standard en fonction du pourcentage de tirs utilisés. La courbe en bleu représente le cas linéaire et la courbe en rouge le cas quadratique.*

6.2.3.2 Résolution de la mesure

Nous venons de voir que les conditions expérimentales particulières de cette mesure font que l'utilisation d'un fit quadratique de l'évolution du retard permet une diminution de l'erreur. Nous avons alors répété la mesure de la Figure 6.9 en changeant uniquement le type de fit et en gardant l'intervalle maximal entre les coïncidences à 1 ms. Nous obtenons ainsi la Figure 6.14 où cette fois l'écart type des points mesurés par rapport à la droite de pente 1 est de 600 fs. De cette façon nous avons retrouvé une résolution sub-picoseconde.

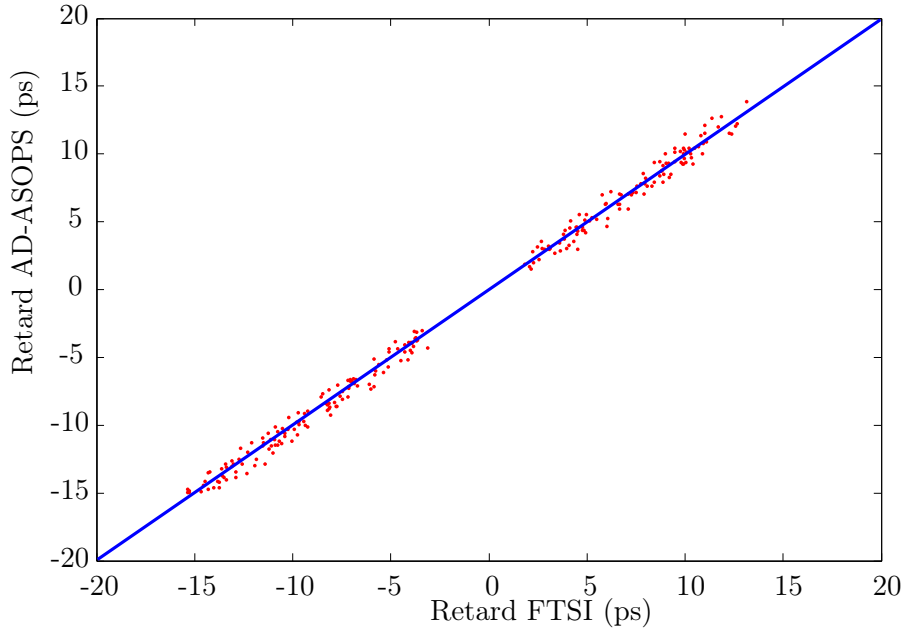


FIGURE 6.14 – *Ecart type : 603 fs. Les points rouges illustrent les retards calculés par AD-ASOPS en fonction des retards calculés par FTSI. Les calculs ont été fait en utilisant un fit quadratique et un intervalle maximal entre coïncidences de 1 ms. La ligne bleue correspond à une droite de pente 1.*

Nous voulons maintenant évaluer quelle est la limite de résolution accessible. Figure 6.15 nous avons répété les calculs avec fit linéaire en exploitant uniquement les coïncidences séparées d'un intervalle maximal de 0.6 ms. L'écart type obtenu est encore réduit par rapport à la Figure 6.14 et vaut maintenant 560 fs.

Pour essayer de réduire encore l'erreur nous pouvons répéter les calculs faits, mais avec un intervalle maximal entre coïncidences encore plus court, au prix d'une diminution importante des points de mesure appartenant à l'intersection des ensembles de mesures AD-ASOPS et FTSI.

Selon les observations précédemment exposées par rapport à la Figure 6.13 il est possible de minimiser l'erreur de mesure en utilisant un fit linéaire de l'évolution des retards, associé à un intervalle maximale entre coïncidences très court, en gardant en même temps un bon nombre de points de mesure grâce au fait que la distribution des retards entre coïncidences dans le cas d'approche linéaire est très piquée au dessous de 0.2 ms.

Les résultats des calculs utilisant un fit linéaire de l'évolution du retard et acceptant les intervalles entre coïncidences inférieurs à 0.2 ms sont reportés Figure 6.16. Nous pouvons remarquer que le nombre de points de mesure reste satisfaisant pour notre but de comparaison des deux méthodes, malgré la forte sélection imposée. En effet 8% des tirs restent utilisables pour

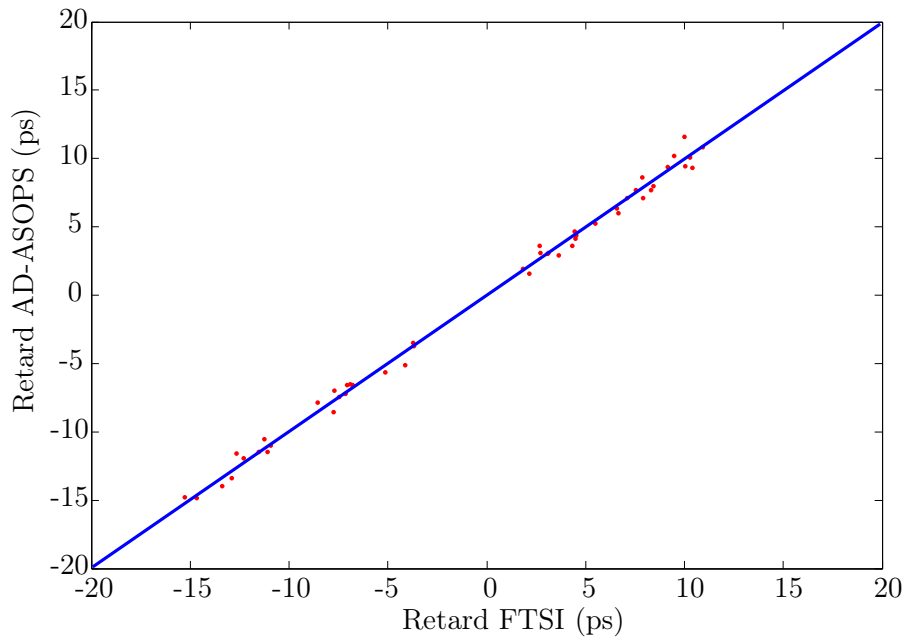


FIGURE 6.15 – *Ecart type : 560 fs. Les points rouges illustrent les retards calculés par AD-ASOPS en fonction des retards calculées par FTSI. Les calculs ont été fait en utilisant un fit quadratique et un intervalle maximal entre coïncidences de 0.6 ms. La ligne bleue correspond à une droite de pente 1.*

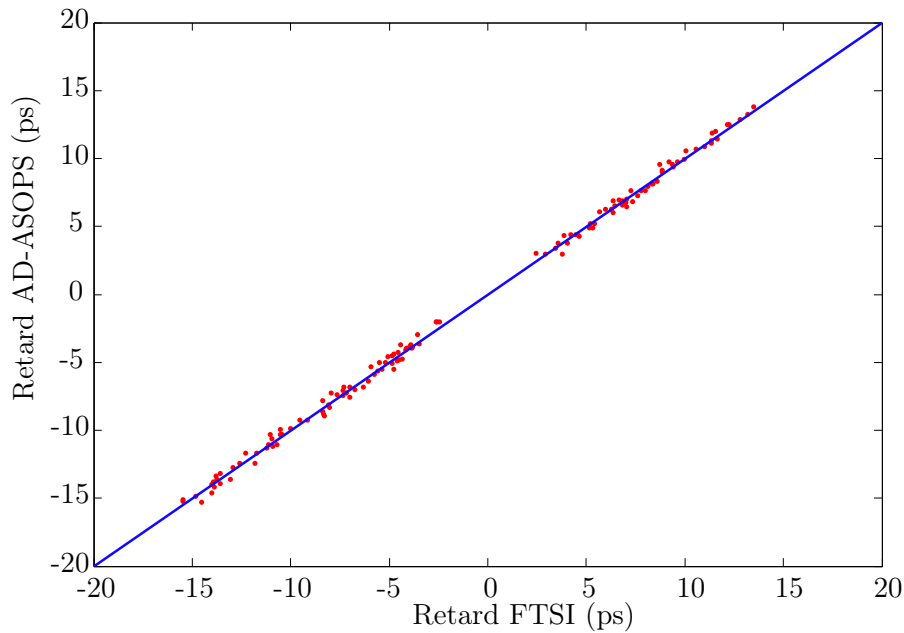


FIGURE 6.16 – *Ecart type : 375.6 fs. Les points rouges illustrent les différences de retard calculées par AD-ASOPS ($\Delta\tau$ AD-ASOPS) en fonction des différences de retard calculées par interférométrie spectrale par transformée de Fourier ($\Delta\tau$ FTSI). Les calculs ont été fait en utilisant un fit linéaire et un intervalle maximal entre coïncidences de 0.2 ms. La ligne bleue correspond à une droite de pente 1.*

la mesure AD-ASOPS. Dans ce cas l'erreur commise est de 375 fs.

En conclusion de cette expérience, nous avons validé la méthode AD-ASOPS kHz en comparant les résultats des mesures réalisées par cette méthode avec les résultats de mesure du retard obtenus par interférométrie spectrale par transformée de Fourier. La possibilité d'obtenir des résolutions temporelles sub-picosecondes a été confirmée. Nous voulons de plus souligner que le fait de comparer des différences de retards et en particulier des grandeurs picosecondes, ne doit pas faire perdre de vue la potentialité de la méthode AD-ASOPS de mesurer sur une fenêtre temporelle uniquement limitée par le taux de répétition du laser. Si les mesures présentées ont été réalisées en réglant le retard entre le laser 1 et le laser 2 autour de zéro cela est imposé uniquement par la plage temporelle accessible à l'interférométrie spectrale.

Conclusions

Comme démontré dans ce manuscrit, la variante de balayage asynchrone développée au cours de mon travail de thèse et appelée AD-ASOPS répond aux attentes affichées dans le chapitre introductif. En particulier, au niveau temporel, la méthode permet un balayage multiéchelle de la centaine de femtosecondes à la milliseconde. Si d'autres techniques, comme par exemple la variante conventionnelle de l'ASOPS associée à un contrôle fin de la phase temporelle d'un oscillateur par rapport à l'autre, peuvent atteindre une résolution plus fine, pouvant même descendre au-dessous de la femtoseconde, la méthode proposée ici présente l'avantage d'une grande simplicité de mise en œuvre tout en disposant de performances temporelles adaptées à l'étude de nombreux systèmes.

Si nous voulons, néanmoins, améliorer la résolution temporelle, il est envisageable dans certains cas, d'après les études de l'erreur de mesure à l'aide des coïncidences (Section 6.2.3.1), d'améliorer la procédure de calcul du retard à l'aide d'un ajustement sinusoïdale. Il sera également utile d'augmenter le taux de coïncidence, soit en choisissant des filtres interférentiels plus étroits en entrée des fibres, soit en démultipliant les systèmes fibrés de détection des coïncidences.

La caractéristique qui distingue notre méthode par rapport à l'ASOPS et qui a été analysée et démontrée en détail dans ce travail, est son applicabilité à tout système laser, indépendamment du taux de répétition. Cela demande, bien sûr, une adaptation des conditions de détection des coïncidences et des temps d'acquisition selon la résolution visée. Il faut de plus préciser que les expériences réalisées au cours de ce travail ont été menées sur des systèmes lasers variés, mais tous à base de Ti:Saphir. Cela nous a donné le grand avantage de pouvoir réaliser une détection des coïncidences par interférence linéaire, grâce au fait que les différents spectres laser avaient un recouvrement spectral important. Cela dit, dans le cas de lasers présentant des spectres très différents, la méthode AD-ASOPS reste tout à fait envisageable, à condition de modifier le système de détection des coïncidences, qui dans ce cas devra exploiter des effets non-linéaires.

Une généralisation ultérieure du système AD-ASOPS qui est en train d'être développée à la suite de notre première validation, consiste en une version toute électronique de la méthode. Ici, à la place d'utiliser les coïncidences entre signaux optiques, ce seront les coïncidences entre signaux électroniques fabriqués à partir des trains d'impulsions laser qui vont être exploitées. Si dans le cas optique nous nous attendons alors à peu d'événements mais très précis, dans le cas électronique les coïncidences temporelles seront de plus faible précision mais très nombreuses. L'avantage principal de cette version de l'AD-ASOPS n'est pas tant lié à l'applicabilité à différents lasers indépendamment de leur spectre, mais à la simplicité de mise en oeuvre expérimentale, ce qui a toujours été un but prioritaire de notre travail.

En parallèle des résultats scientifiques qui ont été montrés au long de ce manuscrit [43, 44], il est important de remarquer que la méthode AD-ASOPS a donné lieu à un brevet [63] qui est actuellement en voie d'exploitation par l'entreprise Greenfield Technology en vue d'une commercialisation au cours de l'année prochaine.

Enfin, un désavantage important de la méthode de balayage asynchrone conventionnelle, est d'imposer un nombre d'acquisitions indépendant du retard. Cela pose problème dans le cas d'échantillons fragiles, comme beaucoup d'échantillons biologiques, qui acceptent seulement une quantité limitée d'impulsions lumineuses avant endommagement. Pour ces expériences il serait plus adapté de minimiser le taux d'excitation en concentrant les échantillonnages sur les retards autour du zéro, en termes de nombre et de largeur de cases temporelles, et en les espaçant sur les retards longs. Le même reproche peut être évidemment porté à l'AD-ASOPS dans sa version originelle tant au MHz qu'au kHz. Néanmoins, dans sa version kHz, grâce à la possibilité de choisir le déclenchement d'un amplificateur par rapport à l'autre, il est possible de développer un système de sélection des retards qui, à partir du calcul des retards des impulsions mégahertz, soit capable de choisir les impulsions à amplifier de manière à privilégier un balayage fin pour les temps courts et un plus grossier pour les retards longs. Cette version avancée du dispositif AD-ASOPS est déjà en voie de développement et sera validée au cours de l'année.

Implémentation du calcul des retards

La question de la vitesse de calcul et du transfert de données est d'extrême importance notamment pour l'implémentation MHz de la méthode AD-ASOPS. Avec la carte d'acquisition Innovative les données sont acquises sur quatre voies 16 bits et, dans le cas d'une expériences à 100 MHz, le flux à traiter est de 6.4 Gb/s. Nous avons mis en œuvre deux approches différentes pour la gestion des données selon le but recherché.

Une première approche consiste dans le traitement direct des données, sans stockage des valeurs brutes. Cela correspond à toutes les expériences reportées dans le manuscrit, exception faite de celle qui a donné lieu à la vidéo (Section 3.5). Dans tous ces cas, le calcul est implémenté directement en modifiant le programme *Snap* de gestion de l'acquisition (fourni par Innovative). À titre d'exemple, la portion du programme qui effectue les calculs d'interpolation est reportée en Figure A.1.

Une deuxième façon de procéder a été d'enregistrer les données brutes et de les traiter *a posteriori* avec des codes de calcul développés en Matlab. Nous avons préféré ce choix pour la réalisation de la vidéo d'une dynamique nanoseconde. Il a été également utilisé dans toutes les expériences au mégahertz nécessitant des informations brutes, comme par exemple les informations sur les compteurs aux coïncidences. Nous voulons faire remarquer que le débit d'enregistrement des données brutes sur la mémoire non volatile est insuffisant dans le cas de la machine utilisée (de l'ordre de 0.5 Gb/s) ce qui explique un temps d'expérience très court, de quelques millisecondes, limité par la taille de la zone tampon stockée en mémoire volatile.

Enfin, pour la mise en place d'expériences plus complexes nécessitant une certaine précision d'alignement, comme celles présentées au Chapitre 5, il est nécessaire de pouvoir visualiser le signal pompe-sonde en temps réel ou quasi-réel. Pour cela nous avons repris le principe de la deuxième approche et nous avons enregistré les données brutes sur un disque RAM virtuel. Dans ce cas, en effet, la vitesse d'écriture est suffisante pour absorber le flux de données entrantes. Ensuite, nous avons écrit un code Matlab pour le calcul et la visualisation du signal à une vitesse


```

// for-loop over the data packet to determine the counters at coincidences
// the index i+n (with 0<=n<=4) identify the acquisition channels
// data[i] = [ ] / data[i+1] = signal / data[i+2] = toggle / data[i+3] = coincidences
for (int i = 0; i < (nPackets<<2); i=i+4){

    // Calculating laser#2 counter
    // laser#2 counter increments evry time the toggle signal change its state (below/above halfToggle)
    // compare to the previous toggle signal value
    if(bool(data[i+2]>(Settings.halfToggle))!= bool(previousValue>(Settings.halfToggle))){
        iLaser2++;
        previousValue = data[i+2];
    }

    // Calculating counters at coincidence
    // comparison of acquired data with coincidence threshold
    if ((data[i+3]>(Settings.levelCoincUp))|| (data[i+3]<(Settings.levelCoincDown))) {
        if (j<N_MAX) {
            j++; // Coincidences counter
            laser1[j] = i>>2; // Pump counter corresponding to the clock counter
            laser2[j] = iLaser2; // Probe counter
        }
    }
}

jMax = j; // number of coincidences in the packet

if (jMax>=1){
    // for-loop' for delay calculation by interpolation
    for (int j=0; j< jMax; j++){
        numerator = laser2[j+1]-laser2[j]; // pump pulses between coincidences
        denominator = laser1[j+1]-laser1[j]; // probe pulses between coincidences
        doubleRatio = (double) numerator/denominator;

        // condition to select coincidence intervals below the maximum accepted value (Settings.th)
        if (denominator <= Settings.th){
            // for cycle for interpolation between two coincidences
            for (int i = laser1[j]<<2; i<=(laser1[j+1]<<2); i=i+4){
                // delay calculation
                iHisto = (unsigned long) (doubleRatio*((i>>2)-laser1[j]) *nHisto);
                iHisto = iHisto&Settings.mask;
                // accumulation of data for average signal calculation
                Settings.outputData[iHisto] = Settings.outputData[iHisto]+(double)data[i+1];
                // accumulation of squared data for calculation of variace
                Settings.outputData2[iHisto] = Settings.outputData2[iHisto] + (double)data[i+1]*data[i+1];
                // accumulation of occurencies in each case of the histogram
                Settings.outputHisto[iHisto] = Settings.outputHisto[iHisto] +1;
            }
        }
    }
}
}

```

FIGURE A.1 – Exemple d'une portion du programme de traitement des données implémenté en modifiant le programme Snap de gestion de l'acquisition. Le calcul en question a été utilisé en particulier pour les expériences nécessitant la détermination de la variance.

de rafraîchissement d'environ 1 Hz.

Calcul de l'intégrale B

Le but de cette annexe est de calculer l'intégrale B accumulée par les impulsions laser se propageant dans le montage de l'expérience reportée en Section 4.2. L'intégrale B est une mesure de la phase non linéaire accumulée après propagation du faisceau sur une longueur L . Elle est définie comme :

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L n_2 I(z) dz, \quad (\text{B.1})$$

où λ est la longueur d'onde centrale des impulsions, $I(z)$ est l'intensité et n_2 est l'indice non-linéaire qui décrit le changement Δn de l'indice de réfraction dû à l'effet Kerr selon la relation $\Delta n = n_2 I$. Pendant la propagation, à cause de la dispersion chromatique, la durée d'impulsion subit un élargissement dont il faut tenir compte. La durée d'impulsion $\Delta t(z)$ est alors exprimée en termes de durée initiale Δt_0 , de dispersion totale D_T et de bande spectrale $\Delta \lambda_0$ comme :

$$\Delta t(z) = \sqrt{\Delta t_0^2 + (D_T z \Delta \lambda_0)^2} = \Delta t_0 \sqrt{1 + \left(\frac{D_T z \Delta \lambda_0}{\Delta t_0} \right)^2}. \quad (\text{B.2})$$

En posant $z_R = \Delta t_0 / (D_T \Delta \lambda_0)$ l'éq. B.2 devient :

$$\Delta t_0 = \frac{\Delta t(z)}{\sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2}}. \quad (\text{B.3})$$

Il est alors possible de calculer une longueur équivalente L_{eq} qui, pour une impulsion de durée Δt_0 constante en z , permet d'obtenir la même intégrale B que la longueur L pour une impulsion de durée $\Delta t(z)$:

$$L_{eq} = \int_0^L \frac{dz}{\sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2}} = z_R \operatorname{asinh} \frac{L}{z_R}. \quad (\text{B.4})$$

L'éq. B.1 devient alors :

$$B = n_2 \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L I(z) dz = n_2 \frac{2\pi}{\lambda} I_0 L_{eq}. \quad (\text{B.5})$$

En remplaçant les valeurs des paramètres associés à notre expérience ($n_2 = 3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$, $D_T = -120 \text{ ps}/(\text{nm km})$, $L = 10 \text{ m}$, $\Delta\lambda_0 = 9.5 \text{ nm}$ pour une impulsion de durée $\Delta t_0 = 100 \text{ fs}$ et une intensité initiale $I_0 = 4 \cdot 10^9 \text{ W}/\text{cm}^2$) nous calculons une longueur équivalente d'environ 0.48 m et une intégrale B d'environ 1.44π .

Effet d'un ou plusieurs modes vibrationnels sur l'erreur de délai

Sommaire

C.1	Modèle avec un mode de vibration	129
C.2	Modèle avec une somme de modes de vibration	133

L'objet de cette annexe est d'établir un modèle dont le résultat a été utilisé à la section 4.1.2.2 et qui permet d'évaluer l'écart quadratique moyen de l'erreur commise sur une coïncidence intermédiaire survenant entre deux coïncidence extrêmes (éq. 4.12). Le modèle supposera successivement l'existence d'un ou plusieurs modes vibrationnels induisant une oscillation de la longueur des cavités des deux oscillateurs utilisés.

C.1 Modèle avec un mode de vibration

Faisons d'abord l'hypothèse qu'une seule des deux cavités subit des fluctuations de longueur et qu'au lieu d'un spectre continu de bruit, ces fluctuations résultent d'un seul mode de vibration de fréquence Ω . Soient $\omega(t)$ la différence de taux de répétition entre les deux cavités et $\delta\omega$ l'amplitude de l'excursion en fréquence. Nous pouvons alors écrire :

$$\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega \sin \Omega t \quad (\text{C.1})$$

et définir la phase relative $\Phi(t)$ entre les deux cavités comme :

$$\Phi(t) = \int_0^t \omega(t') dt' = \omega_0 t + \frac{\delta\omega}{\Omega} (1 - \cos \Omega t). \quad (\text{C.2})$$

Supposons deux instants $t_1 < t_3$ associés à des coïncidences entre les deux oscillateurs et considérons une coïncidence intermédiaire $t_2 \in]t_1, t_3[$ définie par

$$t_2 = \eta t_3 + (1 - \eta)t_1, \quad (\text{C.3})$$

où $\eta \in]0, 1[$.

Nous appelons erreur de phase $\delta\Phi$, la différence entre la phase de la cavité à t_2 et la phase à t_2 calculée par approximation linéaire de la loi de phase entre t_1 et t_3 :

$$\delta\Phi = \Phi(t_2) - (\eta\Phi(t_3) + (1 - \eta)\Phi(t_1)). \quad (\text{C.4})$$

En remplaçant l'éq. C.2 dans l'éq. C.4 nous obtenons :

$$\delta\Phi = -\frac{\delta\omega}{\Omega}(\cos \Omega t_2 - \eta(\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1) - \cos \Omega t_1). \quad (\text{C.5})$$

En appliquant le carré aux deux membres de l'équation et en utilisant la formule de duplication, on obtient

$$\begin{aligned} \delta\Phi^2 = & \frac{\delta\omega^2}{\Omega^2} \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \cos 2\Omega t_2 - 2\eta \cos \Omega t_2 (\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1) \right. \\ & - 2 \cos \Omega t_2 \cos \Omega t_1 + \eta^2 (\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1)^2 \\ & \left. + \cos^2 \Omega t_1 + 2\eta \cos \Omega t_1 (\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1) \right). \end{aligned} \quad (\text{C.6})$$

En faisant l'hypothèse que la coïncidence intermédiaire t_2 peut se produire de manière équiprobable dans l'intervalle $]t_1, t_3[$, calculons d'abord une première valeur de la variance en moyennant sur $\eta \in]0, 1[$, t_1 et t_3 étant fixés. Posons $\tau = t_3 - t_1$ et utilisons les égalités suivantes :

$$\begin{aligned} \langle \cos 2\Omega t_2 \rangle &= \frac{1}{\tau} \left[\frac{\sin 2\Omega t}{2\Omega} \right]_{t_1}^{t_3} = \frac{\sin 2\Omega t_3 - \sin 2\Omega t_1}{2\Omega\tau} \\ \langle \cos \Omega t_2 \rangle &= \frac{\sin \Omega t_3 - \sin \Omega t_1}{\Omega\tau} \\ \langle \eta \rangle &= \int_0^1 \eta d\eta = \left[\frac{\eta^2}{2} \right]_0^1 = \frac{1}{2} \\ \langle \eta^2 \rangle &= \left[\frac{\eta^3}{3} \right]_0^1 = \frac{1}{3} \\ \langle \eta \cos \Omega t_2 \rangle &= \frac{\sin \Omega t_3}{\Omega\tau} + \frac{\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1}{\Omega^2 \tau^2}. \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned}
 \langle \delta\Phi^2 \rangle = & \frac{\delta\omega^2}{\Omega^2} \left[\frac{1}{2} + \frac{\sin 2\Omega t_3 - \sin 2\Omega t_1}{4\Omega\tau} - 2\frac{\sin \Omega t_3}{\Omega\tau}(\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1) \right. \\
 & - 2\frac{(\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1)^2}{\Omega^2\tau^2} - 2\cos \Omega t_1 \frac{\sin \Omega t_3 - \sin \Omega t_1}{\Omega\tau} \\
 & + \frac{1}{3}(\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1)^2 + \cos^2 \Omega t_1 \\
 & \left. + \cos \Omega t_1(\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1) \right]. \quad (C.8)
 \end{aligned}$$

Maintenant nous pouvons déterminer l'erreur moyenne en fonction de τ en moyennant sur t_1 à τ fixé. Sachant que $t_3 = t_1 + \tau$, nous calculons d'abord les égalités suivantes :

$$\begin{aligned}
 \langle \sin 2\Omega t_1 \rangle &= 0 \\
 \langle \sin 2\Omega t_3 \rangle &= \langle \sin 2\Omega(t_1 + \tau) \rangle = 0 \\
 \langle \cos \Omega t_1 \rangle &= \langle \cos \Omega t_3 \rangle = 0 \\
 \langle \cos^2 \Omega t_1 \rangle &= \frac{1}{2} \\
 \langle \cos \Omega t_1 \sin \Omega t_1 \rangle &= \frac{1}{2} \langle \sin 2\Omega t_1 \rangle = 0 \\
 \langle \cos \Omega t_1 \cos \Omega t_3 \rangle &= \langle \cos \Omega t_1 (\cos \Omega t_1 \cos \Omega \tau - \sin \Omega t_1 \sin \Omega \tau) \rangle \\
 &= \frac{1}{2} \cos \Omega \tau \\
 \langle \cos \Omega t_1 \sin \Omega t_3 \rangle &= \langle \cos \Omega t_1 \sin \Omega t_1 \cos \Omega \tau + \cos^2 \Omega t_1 \sin \Omega \tau \rangle \\
 &= \frac{1}{2} \sin \Omega \tau \\
 \langle (\cos \Omega t_3 - \cos \Omega t_1)^2 \rangle &= \langle \cos^2 \Omega t_3 \rangle + \langle \cos^2 \Omega t_1 \rangle \\
 &\quad - 2 \langle \cos \Omega t_1 \cos \Omega t_3 \rangle = 1 - \cos \Omega \tau.
 \end{aligned} \quad (C.9)$$

Ensuite, par remplacement dans l'éq. C.8 nous obtenons :

$$\langle \delta\Phi^2 \rangle = \frac{\delta\omega^2}{\Omega^2} \left(1 - 4 \frac{\sin^2 \frac{\Omega\tau}{2}}{\Omega^2\tau^2} - \frac{1}{3} \sin^2 \frac{\Omega\tau}{2} \right) \quad (C.10)$$

Ainsi la relation entre l'erreur de phase et l'intervalle entre coïncidences extrêmes est :

$$\delta\Phi = \frac{\delta\omega}{\Omega} \sqrt{1 - \text{sinc}^2 \frac{\Omega\tau}{2} - \frac{1}{3} \sin^2 \frac{\Omega\tau}{2}} \quad (C.11)$$

L'éq. C.11 peut être exprimée également en termes d'erreur temporelle. En effet, selon l'éq. C.2 la phase temporelle vaut en première approximation $\Phi = \omega_0 t$, ce qui nous permet de remplacer $\delta\Phi$ par $\omega_0 \delta t$ et d'écrire :

$$\delta t = \frac{\delta\omega}{\omega_0} \frac{1}{\Omega} \sqrt{1 - \text{sinc}^2 \frac{\Omega\tau}{2} - \frac{1}{3} \sin^2 \frac{\Omega\tau}{2}}. \quad (\text{C.12})$$

Cette dernière équation peut également être exprimée en fonction de la longueur de cavité L et de l'amplitude de sa variation δL :

$$\delta t = \frac{\delta L}{L} \frac{1}{\Omega} \sqrt{1 - \text{sinc}^2 \frac{\Omega\tau}{2} - \frac{1}{3} \sin^2 \frac{\Omega\tau}{2}}. \quad (\text{C.13})$$

Nous posons le paramètre δt_0 , défini par la relation :

$$\delta t_0^2 = \lim_{\tau \rightarrow \infty} \delta t(\tau)^2 \quad (\text{C.14})$$

L'éq. C.12 devient alors :

$$\delta t = \sqrt{\frac{6}{5}} \delta t_0 \sqrt{1 - \text{sinc}^2 \frac{\Omega\tau}{2} - \frac{1}{3} \sin^2 \frac{\Omega\tau}{2}}. \quad (\text{C.15})$$

Une fois déterminés δt_0 et Ω , nous pouvons identifier le mode de vibration de la cavité. En utilisant les éq. C.13 et C.15 nous pouvons calculer l'amplitude de vibration en connaissant δt_0 :

$$\delta L = L\Omega \sqrt{\frac{6}{5}} \delta t_0, \quad (\text{C.16})$$

tandis que la fréquence de vibration sera simplement égale à $\Omega/(2\pi)$.

Un développement limité de l'erreur de phase $\delta\Phi$ pour τ qui tend à zéro montre un comportement quadratique pour les intervalles petits :

$$\begin{aligned} \lim_{\tau \rightarrow 0} \delta\Phi &= \frac{\delta\omega}{\Omega} \sqrt{1 - \frac{(\frac{\Omega\tau}{2})^2 (1 - \frac{1}{6}(\frac{\Omega\tau}{2})^2)^2}{(\frac{\Omega\tau}{2})^2} - \frac{1}{3} \left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)^2} \\ &= \frac{\delta\omega}{\Omega} \sqrt{\frac{1}{36} \left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)^4} \\ &= \frac{\delta\omega\Omega}{24} \tau^2. \end{aligned} \quad (\text{C.17})$$

C.2 Modèle avec une somme de modes de vibration

Généralisons le modèle discuté en section C.1 en considérant un ensemble de n modes de vibration ayant chacun une fréquence Ω_n distribués indifféremment dans l'une ou l'autre des deux cavités. La différence de taux de répétition entre les deux cavités en fonction du temps est alors :

$$\omega(t) = \omega_0 + \sum_n \delta\omega_n \sin \Omega_n t, \quad (\text{C.18})$$

où $\delta\omega_n$ est l'amplitude de l'excursion en fréquence due à chaque mode. Les valeurs de la phase de la cavité et de l'erreur de phase, dérivées de la généralisation des éq. C.2 et C.5, sont celles résultant de la superposition de l'ensemble des modes :

$$\Phi(t) = \omega_0 t + \sum_n \frac{\delta\omega_n}{\Omega_n} (1 - \cos \Omega_n t) \quad (\text{C.19})$$

et

$$\delta\Phi = - \sum_n \frac{\delta\omega_n}{\Omega_n} (\cos \Omega_n t_2 - \eta(\cos \Omega_n t_3 - \cos \Omega_n t_1) - \cos \Omega_n t_1), \quad (\text{C.20})$$

Nous voulons répéter alors les calculs de la section C.1 et nous calculons le carré de l'erreur de phase, qui devient :

$$\begin{aligned} \delta\Phi^2 &= \sum_n \delta\Phi_n \sum_m \delta\Phi_m \\ &= \sum_{mn} \frac{\delta\omega_n \delta\omega_m}{\Omega_n \Omega_m} (\cos \Omega_n t_2 - \eta(\cos \Omega_n t_3 - \cos \Omega_n t_1) - \cos \Omega_n t_1) \\ &\quad \cdot (\cos \Omega_m t_2 - \eta(\cos \Omega_m t_3 - \cos \Omega_m t_1) - \cos \Omega_m t_1). \end{aligned} \quad (\text{C.21})$$

Après le double moyennage sur l'intervalle τ et sur t_1 il est possible de démontrer que tous les termes de l'éq. C.21 correspondant aux cas $n \neq m$ s'annulent. En effet cela peut être vu comme dû au fait que ces termes sont tous oscillatoires autour de la valeur nulle, la différence de fréquence $\Omega_n - \Omega_m$ étant non nulle lorsque $n \neq m$. Au contraire, seulement les termes en $n = m$ oscillant autour d'une valeur non nulle (ce qui arrive pour tous les termes en cosinus carré ou bien croisés en t_1 et t_3) conservent une composante après le moyennage. Nous pouvons

alors affirmer que :

$$\delta\Phi = \sqrt{\sum_n \delta\Phi^2} = \sqrt{\sum_n \left(\frac{\delta\omega_n}{\Omega_n}\right)^2 \left(1 - \text{sinc}^2 \frac{\Omega_n \tau}{2} - \frac{1}{3} \sin^2 \frac{\Omega_n \tau}{2}\right)}, \quad (\text{C.22})$$

ce qui nous permet de retrouver l'éq. 4.11 :

$$\delta t = \sqrt{\frac{6}{5} \sum_n \delta t_n^2 \left(1 - \text{sinc}^2 \frac{\Omega_n \tau}{2} - \frac{1}{3} \sin^2 \frac{\Omega_n \tau}{2}\right)}, \quad (\text{C.23})$$

où δt_n est le paramètre δt_0 relatif à chaque mode n .

Probabilité de détection de coïncidences

Nous faisons l'hypothèse que la détection des coïncidences entre deux lasers est un événement aléatoire et sans mémoire. Il est bien connu que la loi de probabilité sera alors une loi exponentielle. La probabilité de détecter une coïncidence dans l'intervalle $[\tau, \tau + d\tau]$, en ayant eu une coïncidence au temps 0, sera alors exprimée par :

$$\mathcal{P}(\tau)d\tau = \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_0}\right)d\tau. \quad (\text{D.1})$$

où τ_0 est l'espérance mathématique et correspond à l'intervalle moyen entre coïncidences déterminé par les taux de répétition des deux lasers. Figure D.1, nous pouvons comparer la loi de probabilité associée à un $\tau_0 = 0.7$ ms (courbe bleue) avec l'histogramme des intervalles entre coïncidences (points bleus), qui correspond aux données de la Figure 4.12. L'échelle semi-logarithmique met en évidence un très bon accord.

Dans le cas de fit quadratique, utilisant trois coïncidences, nous voulons évaluer la probabilité de détecter une coïncidence dans l'intervalle $[\tau, \tau + d\tau]$, en ayant eu une coïncidence au temps 0 et une autre au temps $\tau_1 < \tau$. La probabilité sera donc une probabilité conditionnelle, donnée par le produit des probabilités des événements pris individuellement, intégré sur τ_1 décrivant

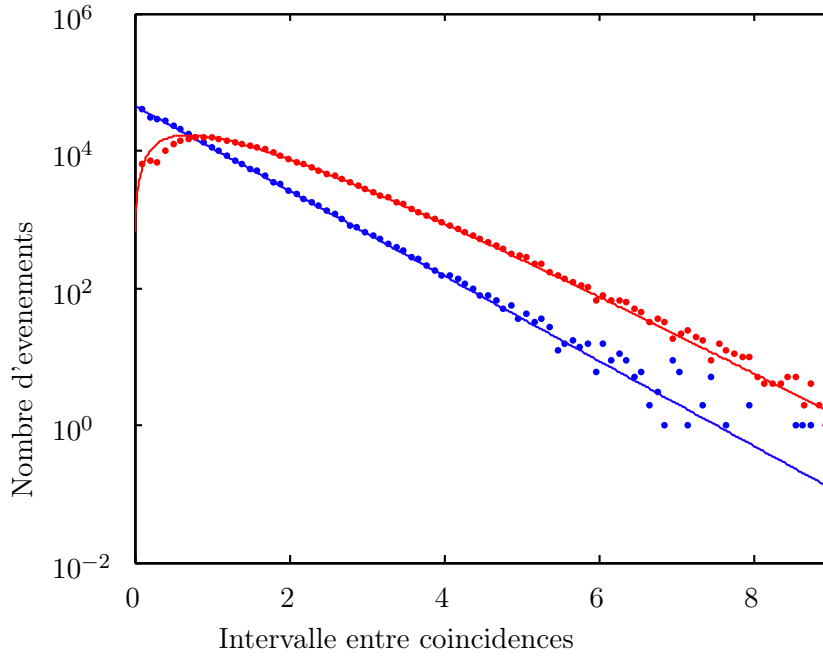


FIGURE D.1 – *Histogramme des intervalles entre coïncidences dans le cas du calcul avec fit linéaire (courbe bleue) et avec fit quadratique (courbe rouge)*

l'ensemble de l'intervalle $[0, \tau]$:

$$\begin{aligned}
 \mathcal{P}_{tot}(\tau)d\tau &= \int_0^\tau \mathcal{P}(\tau_1)d\tau_1 \cdot \mathcal{P}(\tau - \tau_1)d\tau \\
 &= \int_0^\tau \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{\tau_1}{\tau_0}\right)d\tau_1 \cdot \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{\tau - \tau_1}{\tau_0}\right)d\tau \\
 &= \frac{1}{\tau_0^2} \int_0^\tau \exp\left(-\frac{\tau_1}{\tau_0} - \frac{\tau - \tau_1}{\tau_0}\right)d\tau_1 d\tau \\
 &= \frac{\exp\left(-\frac{\tau}{\tau_0}\right)}{\tau_0^2} \int_0^\tau d\tau_1 d\tau \\
 &= \frac{\tau}{\tau_0^2} \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_0}\right)d\tau.
 \end{aligned} \tag{D.2}$$

La courbe rouge de la Figure D.1 illustre la loi de probabilité ainsi calculée pour le fit quadratique. La comparaison avec les données représentées par les points rouges indique un très bon accord pour les intervalles de temps entre coïncidences supérieurs à ~ 0.4 ms. Pour les intervalles plus courts, en effet, l'hypothèse d'événements aléatoires indépendants n'est plus vérifiée et, comme nous l'avons déjà observé, seulement certains intervalles sont possibles : à titre d'exemple, après la première coïncidence au temps zéro, le système, à cause de la différence de taux de répétition, devra attendre un certain intervalle de temps minimum avant de se retrouver

à nouveau en coïncidence. Dans le cas en question ce temps minimum est donné par la valeur minimale de N_1 qui est 1286 et correspond à $16\ \mu s$.

Mesures complémentaires de caractérisation du système AD-ASOPS

Reprenons le schéma expérimental de la Figure 4.1. Nous voulons analyser les effets du réglage de la phase du signal d'horloge sur les résultats de mesure d'une expérience pompe-sonde. Nous avons vu à la Section 3.1 qu'avec le montage utilisé le signal interférométrique n'est théoriquement pas observable, à cause du moyennage. Néanmoins, dans les tests préliminaires de la méthode AD-ASOPS, quand nous cherchions les meilleurs réglages expérimentaux, nous avons remarqué qu'un fonctionnement en régime fort, avec saturation des photodiodes du détecteur différentiel, associé à un déséquilibre de l'interféromètre de la partie qui délivre le signal, permet d'observer un pic d'interférence. En même temps, comme pour le signal enregistré avec le montage de la Figure 3.21(a), il est possible d'observer la réponse nanoseconde du système d'acquisition. Ce régime de fonctionnement, qui est en général à éviter, devient intéressant dans les expériences que nous allons présenter ici parce qu'il permet d'observer le décalage du pic interférentiel par rapport au signal nanoseconde.

La Figure E.1 reporte les courbes enregistrées avec deux valeurs différentes de la phase de l'horloge. La courbe en rouge a été obtenue avec une valeur de phase correspondant à une acquisition synchrone avec le maximum du signal de sonde. La courbe en bleu est au contraire obtenue avec une acquisition décalée d'environ 400 ps après le maximum du signal.

Observons d'abord les effets sur le retard auquel le maximum du pic d'interférence est mesurée : il ne montre aucune dépendance par rapport à la phase de l'horloge. En effet, comme vu précédemment, ce retard dépend exclusivement de la différence de chemin optique que parcourt chaque laser pour arriver à l'interféromètre dédié à la détection des coïncidences temporelles, qui fixe le temps zéro, et pour arriver à l'interféromètre dans lequel se réalise l'interférence mesurée en tant que signal. Nous pouvons d'ailleurs remarquer que par rapport aux expériences illustrées

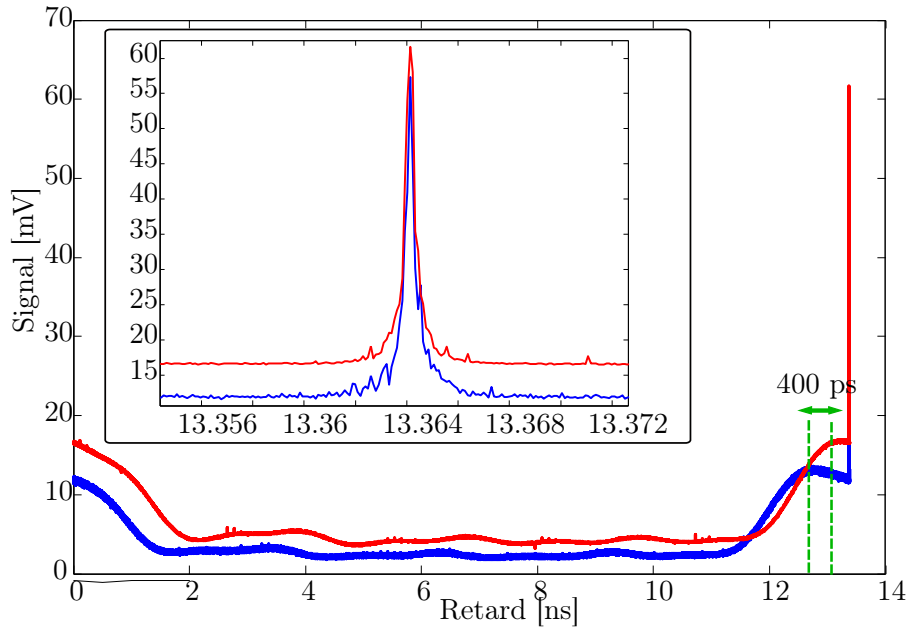


FIGURE E.1 – Influence de la phase de l'horloge sur le signal mesuré. Le pic interférométrique ne subit pas de décalage temporel. Le pic nanoseconde est par contre modifié par rapport à son niveau ainsi qu'à son retard. Le rapport signal sur bruit se dégrade en s'éloignant du maximum du signal.

dans la Figure 4.18 il y a sûrement eu une inversion dans les coupleurs à fibre utilisés, qui a fait que le pic principal soit décalé par rapport au zéro.

Ensuite, le fait de pouvoir observer en même temps le pic d'interférence et le piédestal dû à la dynamique nanoseconde de la photodiode nous permet d'observer les effets de la phase de l'horloge sur ce dernier. Ce signal simule une éventuelle fuite de la pompe dans le signal pompe-sonde. Par rapport à la phase de l'horloge, un décalage de la phase fait décaler le signal de pompe de la même quantité mais en sens opposé. Par contre, d'un point de vue théorique le niveau de ce signal n'est pas influencé par la phase de l'horloge dans une expérience pompe-sonde standard. Mais dans notre cas particulier, la détection différentielle déséquilibrée en positif que nous avons mise en place voit ce déséquilibre s'améliorer ou s'empirer selon la phase de l'acquisition. En effet, Figure E.1, le signal nanoseconde en rouge, correspondant à la phase zéro, est le résultat du déséquilibre imposé à l'interféromètre. Un décalage de la phase a comme conséquence une diminution du signal de sonde (branché au pôle positif de la détection) au moment de l'acquisition, par rapport au maximum, et par conséquent une diminution du signal nanoseconde dans son ensemble, comme cela peut être apprécié avec la courbe bleue.

Pour ce qui concerne les effets sur le maximum du pic d'interférence, il serait intuitif de remarquer une diminution du signal dans le cas de la courbe bleue parce que la tension est enregistrée 400 ps après le maximum. Par contre, nous pouvons remarquer dans l'encart de la Figure E.1 que le niveau reste essentiellement constant quand l'acquisition se désynchronise par rapport au maximum de la sonde. Cela pourrait être un effet de la saturation de la photodiode au moment du pic d'interférence de la courbe rouge.

Enfin, avec un décalage de l'horloge par rapport au maximum de la sonde, l'acquisition est réalisée en un point de la pente du signal, où la gigue de la boucle à verrouillage de phase a des effets plus importants. Par conséquent le signal présente un rapport signal sur bruit dégradé, comme cela peut être apprécié en observant l'épaisseur de la courbe bleue de la Figure E.1.

Bibliographie

- [1] J. Bredenbeck, J. Helbing, and P. Hamm, “Continuous scanning from picoseconds to micro-seconds in time resolved linear and nonlinear spectroscopy,” *Rev. Sci. Instr.*, vol. 75, no. 11, pp. 4462–4466, 2004. (Cité en pages 3, 11, 12, 13, 17 et 101.)
- [2] G. Sucha, M. Fermann, D. Harter, and M. Hofer, “A new method for rapid temporal scanning of ultrafast lasers,” *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electr.*, vol. 2, no. 3, pp. 605–621, 1996. (Cité en pages 6 et 7.)
- [3] D. C. Edelstein, R. B. Romney, and M. Scheuermann, “Rapid programmable 300 ps optical delay scanner and signal averaging system for ultrafast measurements,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 62, no. 3, pp. 579–583, 1991. (Cité en page 7.)
- [4] M. Duguay and J. Hansen, “Optical sampling of subnanosecond light pulses,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 13, no. 5, pp. 178–180, 1968. (Cité en pages 7 et 13.)
- [5] E. Lill, S. Schneider, and F. Dorr, “Rapid optical sampling of relaxation-phenomena employing 2 time-correlated picosecond pulsetrains,” *Appl. Phys.*, vol. 14, no. 4, pp. 399–401, 1977. (Cité en page 7.)
- [6] P. Elzinga, R. Kneisler, F. Lytle, Y. Jiang, G. King, and N. Laurendeau, “Pump probe method for fast analysis of visible spectral signatures utilizing asynchronous optical-sampling,” *Appl. Opt.*, vol. 26, no. 19, pp. 4303–4309, 1987. (Cité en page 7.)
- [7] P. Elzinga, F. Lytle, Y. Jian, G. King, and N. Laurendeau, “Pump probe spectroscopy by asynchronous optical-sampling,” *Appl. Spectrosc.*, vol. 41, no. 1, pp. 2–4, 1987. (Cité en pages 7 et 9.)
- [8] J. Kafka, J. Pieterse, and M. Watts, “2-color subpicosecond optical-sampling technique,” *Opt. Lett.*, vol. 17, no. 18, pp. 1286–1288, 1992. (Cité en pages 7 et 22.)
- [9] F. Keilmann, C. Gohle, and R. Holzwarth, “Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer,” *Opt. Lett.*, vol. 29, no. 13, pp. 1542–1544, 2004. (Cité en pages 7, 9 et 10.)
- [10] C. Janke, M. Forst, M. Nagel, H. Kurz, and A. Bartels, “Asynchronous optical sampling for high-speed characterization of integrated resonant terahertz sensors,” *Opt. Lett.*, vol. 30, no. 11, pp. 1405–1407, 2005. (Cité en pages 9 et 22.)
- [11] A. Bartels, A. Thoma, C. Janke, T. Dekorsy, A. Dreyhaupt, S. Winnerl, and M. Helm, “High-resolution thz spectrometer with khz scan rates,” *Opt. Express*, vol. 14, no. 1, pp. 430–437, 2006. (Cité en page 9.)
- [12] A. Bartels, F. Hudert, C. Janke, T. Dekorsy, and K. Kohler, “Femtosecond time-resolved optical pump-probe spectroscopy at kilohertz-scan-rates over nanosecond-time-delays without mechanical delay line,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, no. 4, p. 041117, 2006. (Cité en page 9.)
- [13] S. Kray, F. Spoler, M. Forst, and H. Kurz, “Dual femtosecond laser multiheterodyne optical coherence tomography,” *Opt. Lett.*, vol. 33, no. 18, pp. 2092–2094, 2008. (Cité en pages 9 et 10.)

- [14] S. Hadjiloucas, G. C. Walker, J. W. Bowen, V. M. Becerra, A. Zafiropoulos, and R. K. H. Galvão, “High signal to noise ratio thz spectroscopy with asops and signal processing schemes for mapping and controlling molecular and bulk relaxation processes,” *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 183, no. 1, p. 012003, 2009. (Cité en page 9.)
- [15] D. Kim, J. Sohn, J. Yahng, Y. Ahn, K. Yee, D. Yee, Y. Jho, S. Hohng, D. Kim, W. Kim, J. Woo, T. Meier, S. Koch, D. Woo, E. Kim, and S. Kim, “Femtosecond four-wave mixing experiments on gaas quantum wells using two independently tunable lasers,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 80, no. 21, pp. 4803–4806, 1998. (Cité en page 9.)
- [16] Y. Takagi and S. Adachi, “Subpicosecond optical sampling spectrometer using asynchronous tunable mode-locked lasers,” *Rev. Sci. Instr.*, vol. 70, no. 5, pp. 2218–2224, 1999. (Cité en pages 9 et 22.)
- [17] F. Hudert, A. Bruchhausen, D. Issenmann, O. Schecker, R. Waitz, A. Erbe, E. Scheer, T. Dekorsy, A. Mlayah, and J. Huntzinger, “Confined longitudinal acoustic phonon modes in free-standing si membranes coherently excited by femtosecond laser pulses,” *Phys. Rev. B*, vol. 79, no. 20, p. 201307, 2009. (Cité en page 9.)
- [18] R. Gebs, G. Klatt, C. Janke, T. Dekorsy, and A. Bartels, “High-speed asynchronous optical sampling with sub-50fs time resolution,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 6, pp. 5974–5983, 2010. (Cité en page 9.)
- [19] A. Schliesser, M. Brehm, F. Keilmann, and D. van der Weide, “Frequency-comb infrared spectrometer for rapid, remote chemical sensing,” *Opt. Express*, vol. 13, no. 22, pp. 9029–9038, 2005. (Cité en page 9.)
- [20] R. Wilk, T. Hochrein, M. Koch, M. Mei, and R. Holzwarth, “Terahertz spectrometer operation by laser repetition frequency tuning,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 28, no. 4, pp. 592–595, 2011. (Cité en page 10.)
- [21] T. Yasui, Y. Kabetani, E. Saneyoshi, S. Yokoyama, and T. Araki, “Terahertz frequency comb by multifrequency-heterodyning photoconductive detection for high-accuracy, high-resolution terahertz spectroscopy,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, no. 24, p. 241104, 2006. (Cité en page 10.)
- [22] A. Bartels, A. Thoma, C. Janke, T. Dekorsy, A. Dreyhaupt, S. Winnerl, and M. Helm, “High-resolution thz spectrometer with khz scan rates,” *Opt. Express*, vol. 14, no. 1, pp. 430–437, 2006. (Cité en page 10.)
- [23] S. Schiller, “Spectrometry with frequency combs,” *Opt. Lett.*, vol. 27, no. 9, pp. 766–768, 2002. (Cité en page 10.)
- [24] C. Dorrer, D. Kilper, H. Stuart, G. Raybon, and M. Raymer, “Linear optical sampling,” *IEEE Phot. Techn. Lett.*, vol. 15, no. 12, pp. 1746–1748, 2003. (Cité en pages 10 et 28.)
- [25] I. Coddington, W. Swann, and N. Newbury, “Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, no. 1, p. 013902, 2008. (Cité en page 10.)
- [26] M. Godbout, J. Deschenes, and J. Genest, “Spectrally resolved laser ranging with frequency combs,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 15, pp. 15981–15989, 2010. (Cité en page 10.)
- [27] I. Coddington, W. Swann, and N. Newbury, “Time-domain spectroscopy of molecular free-induction decay in the infrared,” *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 9, pp. 1395–1397, 2010. (Cité en page 10.)

- [28] J. Mandon, G. Guelachvili, and N. Picque, “Fourier transform spectroscopy with a laser frequency comb,” *Nat. Phot.*, vol. 3, no. 2, pp. 99–102, 2009. (Cité en page 10.)
- [29] T. Udem, R. Holzwarth, and T. Hansch, “Optical frequency metrology,” *Nature*, vol. 416, no. 6877, pp. 233–237, 2002. (Cité en page 10.)
- [30] K. Wynne, G. D. Reid, and R. M. Hochstrasser, “Regenerative amplification of 30-fs pulses in ti :sapphire at 5khz,” *Opt. Lett.*, vol. 19, pp. 895–897, Jun 1994. (Cité en page 11.)
- [31] W. D. Tian, J. T. Sage, V. Šrajer, and P. M. Champion, “Relaxation dynamics of myoglobin in solution,” *Physical Review Letters*, vol. 68, pp. 408–411, 01 1992. (Cité en page 11.)
- [32] B.-K. Yoo, I. Lamarre, F. Rappaport, P. Nioche, C. S. Raman, J.-L. Martin, and M. Negre-rie, “Picosecond to second dynamics reveals a structural transition in clostridium botulinum no-sensor triggered by the activator bay-41-2272,” *ACS Chemical Biology*, vol. 7, pp. 2046–2054, 2014/06/05 2012. (Cité en page 12.)
- [33] A. Yu, X. Ye, D. Ionascu, W. Cao, and P. Champion, “Two-color pump-probe laser spectroscopy instrument with picosecond time-resolved electronic delay and extended scan range,” *Rev. Sci. Instr.*, vol. 76, no. 11, p. 114301, 2005. (Cité en pages 13, 17 et 102.)
- [34] J. Davila-rodriguez, M. Bagnell, C. Williams, and P. Delfyett, “Multiheterodyne detection for spectral compression and downconversion of arbitrary periodic optical signals,” *J. Lightw. Technol.*, vol. 29, no. 20, pp. 3091–3098, 2011. (Cité en page 13.)
- [35] T. Mori and A. Otani, “A simple synchronization method for optical sampling eye monitor,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 49, no. 7, p. 070208, 2010. (Cité en page 19.)
- [36] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff, “Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis,” *Science*, vol. 288, pp. 635–639, 04 2000. (Cité en page 23.)
- [37] F. Louradour, F. Reynaud, B. Colombeau, and C. Froehly, “Interference-fringes between 2 separate lasers,” *Am. J. Phys.*, vol. 61, no. 3, pp. 242–245, 1993. (Cité en page 26.)
- [38] M. Joffre, *Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde*. Ecole Polytechnique, 2013. (Cité en page 26.)
- [39] C. Dorrer and M. Joffre, “Characterization of the spectral phase of ultrashort light pulses,” *Comptes Rendus de l’Académie des Sciences - Series IV - Physics*, vol. 2, pp. 1415–1426, 12 2001. (Cité en page 26.)
- [40] K. Dou, A. Débarre, J. L. Gouët, I. Lorgeré, and P. Tchénio, “Field cross correlator for analysis of ultrafast signals,” *Appl. Opt.*, vol. 33, no. 34, pp. 7980–7986, 1994. (Cité en page 28.)
- [41] G. Cantor, “Sur une propriété du système de tous les nombres algébriques réels,” *Acta Math.*, vol. 2, pp. 305–310, 1883. (Cité en page 38.)
- [42] M. Hassani, “What is the probability that gcd of two positive integers is h?,” September 2000. (Cité en page 44.)
- [43] L. Antonucci, X. Solinas, A. Bonvalet, and M. Joffre, “Asynchronous optical sampling with arbitrary detuning between laser repetition rates,” *Opt. Express*, vol. 20, pp. 17928–17937, 07 2012. (Cité en pages 51, 57 et 122.)

- [44] L. Antonucci, A. Bonvalet, X. Solinas, M. R. Jones, M. H. Vos, and M. Joffre, "Arbitrary-detuning asynchronous optical sampling pump-probe spectroscopy of bacterial reaction centers," *Optics Letters*, vol. 38, no. 17, pp. 3322–3324, 2013. (Cité en pages 84, 90 et 122.)
- [45] J. Barber, "Photosynthetic energy conversion : natural and artificial," *Chemical Society Reviews*, vol. 38, no. 1, pp. 185–196, 2009. (Cité en page 90.)
- [46] K. N. Ferreira, T. M. Iverson, K. Maghlaoui, J. Barber, and S. Iwata, "Architecture of the photosynthetic oxygen-evolving center," *Science*, vol. 303, no. 5665, pp. 1831–1838, 2004. (Cité en pages 91 et 92.)
- [47] E. J. Bylina, C. Kirmaier, L. McDowell, D. Holten, and D. C. Youvan, "Influence of an amino-acid residue on the optical properties and electron transfer dynamics of a photosynthetic reaction centre complex," *Nature*, vol. 336, pp. 182–184, 11 1988. (Cité en page 92.)
- [48] J. Deisenhofer, O. Epp, K. Miki, R. Huber, and H. Michel, "X-ray structure analysis of a membrane protein complex : Electron density map at 3 Å resolution and a model of the chromophores of the photosynthetic reaction center from *rhodospseudomonas viridis*," *Journal of Molecular Biology*, vol. 180, pp. 385–398, 12 1984. (Cité en page 92.)
- [49] J. P. Allen, G. Feher, T. O. Yeates, H. Komiya, and D. C. Rees, "Structure of the reaction center from *rhodobacter sphaeroides* r-26 : the cofactors," *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 84, no. 16, pp. 5730–5734, 1987. (Cité en pages 92 et 93.)
- [50] M. M. Leonova, T. Y. Fufina, L. G. Vasilieva, and V. A. Shuvalov, "Structure-function investigations of bacterial photosynthetic reaction centers.," *Biochemistry (Mosc)*, vol. 76, no. 13, pp. 1465–83, 2011. (Cité en pages 93 et 94.)
- [51] M. H. Vos, C. Rischel, M. R. Jones, and J.-L. Martin, "Electrochromic detection of a coherent component in the formation of the charge pair $p^+h_l^-$ in bacterial reaction centers in bacterial reaction centers," *Biochemistry*, vol. 39, no. 29, pp. 8353–8361, 2000. (Cité en page 94.)
- [52] M. H. Vos, J. Breton, and J.-L. Martin, "Electronic energy transfer within the hexamer cofactor system of bacterial reaction centers," *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 101, no. 47, pp. 9820–9832, 1997. (Cité en pages 95 et 99.)
- [53] W. W. Parson and T. G. Monger *Brookhaven Symp. Biol.*, vol. 28, pp. 195–212, 1977. (Cité en page 95.)
- [54] K. E. McAuley-Hecht, P. K. Fyfe, J. P. Ridge, S. M. Prince, C. N. Hunter, N. W. Isaacs, R. J. Cogdell, and M. R. Jones, "Structural studies of wild-type and mutant reaction centers from an antenna-deficient strain of *rhodobacter sphaeroides* : Monitoring the optical properties of the complex from bacterial cell to crystal," *Biochemistry*, vol. 37, no. 14, pp. 4740–4750, 1998. (Cité en page 96.)
- [55] K. Gibasiewicz, M. Pajzderska, M. Ziólek, J. Karolczak, and A. Dobek, "Internal electrostatic control of the primary charge separation and recombination in reaction centers from *rhodobacter sphaeroides* revealed by femtosecond transient absorption," *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 113, no. 31, pp. 11023–11031, 2009. (Cité en page 99.)
- [56] K. Gibasiewicz, M. Pajzderska, J. A. Potter, P. K. Fyfe, A. Dobek, K. Brettel, and M. R. Jones, "Mechanism of recombination of the $p^+h_a^-$ radical pair in mutant *rhodobacter sphaeroides* reaction centers with modified free energy gaps between $p^+b_a^-$ and $p^+h_a^-$," *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 115, no. 44, pp. 13037–13050, 2011. (Cité en page 99.)

- [57] J. Breton, J. Martin, A. Migus, A. Antonetti, and A. Orszag, “Femtosecond spectroscopy of excitation-energy transfer and initial charge separation in the reaction center of the photosynthetic bacterium *rhodospseudomonas-viridis*,” *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, vol. 83, no. 14, pp. 5121–5125, 1986. (Cité en page 99.)
- [58] J. Martin, J. Breton, A. Hoff, A. Migus, and A. Antonetti, “Femtosecond spectroscopy of electron transfer in the reaction center of the photosynthetic bacterium *rhodospseudomonas sphaeroides* r-26 : Direct electron transfer from the dimeric bacteriochlorophyll primary donor to the bacteriopheophytin acceptor with a time constant of 2.8 ± 0.2 psec,” *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, vol. 83, no. 4, pp. 957–961, 1986. (Cité en page 99.)
- [59] C. Dorrer, N. Belabas, J. Likforman, and M. Joffre, “Spectral resolution and sampling issues in fourier-transform spectral interferometry,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 17, no. 10, pp. 1795–1802, 2000. (Cité en page 105.)
- [60] M. Joffre, “Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde,” *DEA de Physique Quantique*, 2007. (Cité en page 105.)
- [61] C. Froehly, A. Lacourt, and J.-C. Viênot, “Notion de réponse impulsionnelle et de fonction de transfert temporelles des pupilles optiques, justifications expérimentales et applications,” *Nouv. Rev. Opt.*, vol. 4, no. 4, pp. 183–196, 1973. (Cité en page 105.)
- [62] F. Reynaud, F. Salin, and A. Barthelemy, “Measurement of phase shifts introduced by nonlinear optical phenomena on subpicosecond pulses,” *Opt. Lett.*, vol. 14, no. 5, pp. 275–277, 1989. (Cité en page 105.)
- [63] L. Antonucci, A. Bonvalet, M. Joffre, and X. SOLINAS, “Device for managing pulses in pump-probe spectroscopy,” no. EP2726853 A1, 2011. (Cité en page 122.)

Time-resolved spectroscopy from femtosecond to millisecond time scale

Abstract : The aim of the work was the development of a time-resolved pump-probe measurement system allowing temporal scanning from femtosecond to millisecond time scale. An original method for asynchronous optical sampling, named AD-ASOPS, was developed, patented, and is now undergoing the industrialization phase. The method can be applied to couples of lasers oscillating at arbitrary repetition rates, which is a novelty and opens up many experimental possibilities. Two specific set-ups were realized in the case of laser oscillators (MHz AD-ASOPS) or in the case of amplified laser systems (kHz AD-ASOPS). A feasibility study confirmed many application possibilities. Different tests were performed for a complete characterization and demonstrated a sub-picosecond time resolution of about 400 fs for temporal sampling windows only limited by the period of the pump laser. The implementation flexibility related to AD-ASOPS allowed a pump-probe experiment on biological samples (reaction centre of *Rhodobacter Sphaeroides*), by using a conventional Ti:Sapphire oscillator at 74.5 MHz as probe and a CPO oscillator at 5.1 MHz as pump. The multi-scale dynamics for returning to the fundamental state, from picoseconds to about fifty nanoseconds, could be recorded into only a few minutes of acquisition time with one test bench. The results are in agreement with the literature. Finally, a demonstration experiment of the kHz AD-ASOPS version was performed with two amplified laser systems, by comparison with Fourier transform spectral interferometry. A sub-picosecond time resolution was confirmed over 1 ms temporal window.

Keywords : Pump-probe spectroscopy, asynchronous sampling, reaction centre, multi-scale dynamics.

Spectroscopie résolue en temps de la femtoseconde à la milliseconde

Résumé : L'objet de ce travail a été le développement d'un système de mesure pompe-sonde résolue en temps permettant d'atteindre des fenêtres temporelles allant de la centaine de femtosecondes jusqu'à la milliseconde. Une méthode de balayage optique asynchrone originale, appelée AD-ASOPS, a été développée et a donné lieu à un dépôt de brevet avec valorisation industrielle. La méthode peut être appliquée avec deux lasers ayant des fréquences de répétition arbitraires, ce qui est une nouveauté et ouvre de nombreuses possibilités d'expérimentation. Une mise en œuvre spécifique a été réalisée selon que les systèmes lasers utilisés pour l'expérience soient deux oscillateurs (AD-ASOPS MHz) ou bien deux lasers amplifiés (AD-ASOPS kHz). Une étude de faisabilité de la méthode a été faite pour confirmer ses larges possibilités d'applications. Une caractérisation complète a été menée avec plusieurs tests qui ont démontré une résolution sub-picoseconde d'environ 400 fs pour des balayages temporels réalisés sur des fenêtres temporelles uniquement limitées par la période du laser pompe. Pour avoir un cadre expérimental le plus complet possible, cinq lasers différents ont été utilisés et ont mis en évidence l'applicabilité de la méthode selon les différentes exigences expérimentales par un simple choix des paramètres de mesure. Grâce notamment à la flexibilité d'utilisation introduite par l'AD-ASOPS une expérience pompe-sonde sur échantillon biologique (centre réactionnel de Rhodobacter Sphaeroides) a été réalisée en utilisant comme laser sonde un oscillateur Ti:Saphire conventionnel à 74.5 MHz et comme laser sonde un oscillateur CPO à 5.1 MHz. La dynamique de retour à l'état fondamental, se développant sur plusieurs ordres de grandeur, de la picoseconde à la cinquantaine de nanosecondes, a pu être enregistrée en seulement quelques minutes d'acquisitions sur un banc de test unique. Les résultats obtenus sont en accord avec les résultats de la littérature. Enfin une expérience de démonstration de la variante AD-ASOPS kHz a été effectuée sur deux systèmes laser amplifiés, par comparaison avec la méthode d'interférométrie spectrale par transformée de Fourier. Une résolution sub-picoseconde a été confirmée sur une fenêtre de balayage d'une milliseconde.

Mots clés : Spectroscopie pompe-sonde, balayage asynchrone, centre réactionnel, dynamique multi-échelle.
