HAL
open science

Développement d'un filtre spectral ultra résolu pour l'imagerie acousto-optique

Caroline Venet

To cite this version:

Caroline Venet. Développement d'un filtre spectral ultra résolu pour l'imagerie acousto-optique. Optique [physics.optics]. Université Paris sciences et lettres, 2019. Français. NNT : 2019PSLET066 . tel-02929318

HAL Id: tel-02929318

https://pastel.hal.science/tel-02929318

Submitted on 3 Sep 2020

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.

PSL UNIVERSITÉ PARIS

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à l'ESPCI Paris

Développement d'un filtre spectral ultra résolu pour l'imagerie acousto-optique

Soutenue par

Caroline VENET

Le 11 décembre 2019

École doctorale n°564

Physique en Île-de-France

Spécialité

Physique

Composition du jury :

Gilles TESSIER Professeur, Sorbonne Université - Institut de la Vision	*Président*
Nathalie WESTBROOK Professeur, Institut d'Optique Graduate School	*Rapportrice*
Hugues GUILLET DE CHATELLUS Chargé de recherche, CNRS - Université Grenoble-Alpes	*Rapporteur*
Perrine BERGER Ingénieur, Thales Research and Technology	*Examinatrice*
Philippe GOLDNER Directeur de recherche, CNRS - Chimie ParisTech	*Examinateur*
François RAMAZ Maître de conférences, ESPCI Paris	*Directeur de thèse*

ESPCI PARIS | PSL

Remerciements

Mes premiers remerciements vont aux membres de mon jury, tout particulièrement Nathalie Westbrook et Hugues Guillet de Chatellus d'avoir accepté d'être mes rapporteurs et d'avoir lu mon manuscrit avec autant de soin. Je remercie de même Perrine Berger, Philippe Goldner et Gilles Tessier pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail.

Ce travail de thèse a été mené entre l'Institut Langevin et le Laboratoire Aimé Cotton (LAC) de novembre 2016 à décembre 2019. Je remercie donc les directeurs successifs du LAC Jean-François Roch et Djamel Benredjem pour leur accueil. Je tiens aussi à remercier Arnaud Tourin, directeur de l'Institut Langevin, pour son accueil et pour sa confiance lorsqu'il nous a accordé la majeure partie de mon financement de thèse. Je remercie également chaleureusement tous les membres des deux laboratoires, permanents, post-doc, thésards, administratifs, techniciens ou ingénieurs.

Je souhaite ensuite remercier mes directeurs de thèse, François Ramaz et Anne Chauvet-Louchet, pour la confiance qu'ils m'ont accordée dès le début de la thèse lors de la recherche active de financement pour le projet.

François, tu m'as laissé une grande autonomie, ce qui m'a permis de prendre l'expérience en main et d'explorer à mon rythme les possibilités qui s'offraient à moi. Merci aussi pour avoir été disponible lors de mes rares passages au Langevin, j'ai beaucoup apprécié nos longues discussions fructueuses qui alternaient entre de nouvelles idées à tester et des éclaircissements de points obscurs.

Anne, que dire à part un énorme merci ! Tu as été une formidable co-directrice de thèse. Tu m'as accompagnée au quotidien dès le stage de M2. Tes explications m'ont initiée au creusement de trou spectral et à l'ensemble des sujets connexes, domaine nouveau à l'époque pour moi. Merci aussi pour ta disponibilité et ton écoute dès que j'avais une question ou un problème en manip. Un très grand merci aussi pour toutes ces heures que nous avons passées ensemble en salle de manip que ce soit pour m'apprendre le fonctionnement du cryostat, de donner des astuces sur le montage optique, résoudre les problèmes de connexion entre les différents appareils électroniques. Je garde un souvenir ému des heures passées à regarder le bruit du laser alors qu'on essayait de l'asservir, et à tourner tous les boutons qu'on pouvait pour comprendre à quoi ils servaient vraiment. Je te remercie aussi pour tes relectures attentives en particulier pendant la rédaction.

Je tiens à remercier le reste de l'équipe PAMS du LAC même si elle a maintenant disparue. Merci pour les discussions autour de tout et de rien lors de la pause de midi ou du goûter du vendredi. Merci à Thierry Chanelière qui nous a régalé d'histoire sur le sport et la politique des laboratoires du recherches, à Jean-Louis Le Gouët pour les bons conseils qu'il aime prodiguer, aux stagiaires Lauren Guillemot et Théo Tassin, à Yoann Attal pour discussions sympathiques, à Goulven Quemener bien qu'il ne fasse pas partie de l'équipe pour nous avoir retrouvé tous les jours pour le déjeuner, et enfin un grand merci à Lucile Veissier et Benjamin Car pour votre bonne humeur et votre entrain communicatif.

Au Langevin je voudrais remercier Maïmouna Bocoum pour nos échanges instructifs. Je tiens aussi à remercier un ancien membre de l'équipe, Jean-Baptiste Laudereau qui a posé les bases du montage d'imagerie acousto-optique à Orsay. J'adresse enfin tous mes encouragements et voeux de réussite à

Louis Dutheil pour la suite de sa thèse.

Je voudrais ensuite remercier tous les autres collaborateurs extérieurs de mes deux laboratoires avec qui j'ai eu la chance de travailler. Je souhaite commencer par un grand merci à Johanne Seguin et Nathalie Mignet qui m'ont accueillie à l'Unité des Technologies Chimiques et Biologiques pour la Santé (UTCBS) à la faculté de pharmacie de Paris Descartes dans le but réaliser les expériences d'imagerie acousto-optique *in vivo*. Je remercie plus particulièrement Johanne qui a passé beaucoup de temps à préparer notre arrivée physique au laboratoire. Je la remercie avec Jean-Luc Génisson pour avoir rédigé et obtenu l'autorisation pour réaliser les expériences *in vivo*. Je le remercie aussi pour nous avoir mis en contact avec Johanne et initier la collaboration.

Je souhaite remercier l'ensemble des membres du Laboratoire Aimé Cotton, de l'Institut Langevin et de l'UTCBS pour leur accueil chaleureux. J'ai vraiment pris plaisir à avoir de nombreuses discussions et débats quotidiens avec plein de gens différents sur des sujets pas nécessairement scientifiques.

Je remercie aussi les services techniques et administratifs des deux laboratoires, et plus particulièrement les deux services de gestion qui ont toujours répondu avec gentillesse à mes questions sur le remplissage des formulaires, les deux services informatiques aussi pour leur bienveillance et gentillesse (Johnny, Romain et Michèle, Jérôme), Jean-Paul de l'atelier d'électronique, Bruno au bureau d'études et l'atelier de mécanique pour la réalisation de mes portes-échantillons.

Que serait la thèse sans les autres doctorants pour partager les bons moments et les galères. Merci beaucoup à tous les doctorants du LAC, le bastion de bonne ambiance dans le labo en particulier lors des FLACs ! J'ai beaucoup aimé nos repas doctorants du mercredi et merci d'avoir joué le jeu pour les séminaires doctorants (Thank you Debanuj to have taken over the organization of the PhD Student Seminar). Je voudrais remercier en particulier Julie et Adrien d'avoir été de joyeux compagnons lors des sorties ballets ; Pascal, Aurélien et Clément pour les discussions intéressantes, Ky-Luc, Lucas duo de choc toujours prêt à faire rire et enfin Thibault avec j'ai eu grand plaisir à partager le bureau.

Au Langevin je voudrais remercier en particulier ceux avec qui j'ai eu le plaisir de partager le bureau d'abord Clothilde dans le bureau R30, puis Claire, Mathieu, Margaux, Clément, Kassandra, Léo, Vincent et Romain du bureau R32 sans oublier les poissons : les deux vivants et Sushi qui nous a fourni bon nombre de sujets de conversation. Merci pour la bonne humeur et les gâteaux. Merci aussi à tous les autres pour votre accueil, votre bonne humeur, les quelques soirées jeux où je suis venue et la pause déjeuner.

Je ne voudrais surtout pas oublier mes amis de l'ESPCI et d'ailleurs qui m'ont soutenue et encouragée au cours de ces trois années. Merci à vous Bertille et Domitille pour m'avoir aidé à garder un semblant d'activité sportive. Merci à vous Charlotte G., Anne-Claire et Valérie pour me sortir un peu la thèse de la tête. Thanks to you Tomalika for your motivation and your generous welcome in Bangladesh. I wish you ll the best for your PhD ! Merci Jonathan, Quentin, Romaric, Reda, Marie, Jean-Baptiste, Noémi, Priscillia, Kévin, Guillaume, Antoine, Florian, Élia, François, Agathe, Donation, Alice, Axel, Noëlig pour les soirées, les anniversaires, les repas, vos accueils et les mariages. Et merci aussi à tous les autres que j'ai oublié ! Je remercie aussi toute la famille de Virgile qui m'a toujours accueillie chaleureusement depuis que nous sommes ensembles.

Anne-Sophie, Charlotte : merci énormément pour votre amitié, votre soutien, votre écoute et votre présence pendant ces trois années. C'était avec un plaisir renouvelé à chaque fois que je vous retrouvais au restaurant toutes les deux semaines pour partager nos nouvelles.

Finalement, je tiens à remercier ma famille : merci Gabriel qui s'est lancé dans l'aventure du doctorat en même temps que moi, merci Linnel pour avoir tenu bon même quand les déaccords

semblaient trop grands, merci Florent pour toutes les idées originales et surtout merci à mes parents qui m'ont accompagné au cours de cette thèse et qui ont toujours fait le maximum afin que je puisse étudier dans les meilleures conditions. Enfin, Virgile merci pour tout : nous nous sommes retrouvés pendant la thèse et tu m'as soutenue et supportée jusqu'à la fin.

Table des matières

Remerciements **1**

Table des matières **4**

Table des figures **7**

Liste des tableaux **9**

Introduction **10**

1 Imagerie en milieu biologique **13**
1.1 Modalités classiques d'imagerie médicale 14
1.1.1 Tomodensitométrie (TDM) 14
1.1.2 Imagerie par résonance magnétique (IRM) 16
1.1.3 Tomographie par émission de positron (TEP) 16
1.1.4 Échographie 18
1.1.5 Tendances globales 19
1.2 Propriétés optiques des milieux biologiques 20
1.2.1 Absorption 20
1.2.2 Diffusion 22
1.2.3 Cas des milieux biologiques 23
1.3 Modalité d'imagerie optique des milieux biologiques 25
1.3.1 Microscopie 25
1.3.2 Tomographie par cohérence optique 26
1.3.3 Tomographie optique diffuse 27
1.4 Imagerie photoacoustique 29
1.4.1 Principe 29
1.4.2 Modalités photoacoustiques 30
1.4.3 Développements et applications 31
1.5 Imagerie acousto-optique 32
1.5.1 Principes 32
1.5.2 Créer une image 35
1.5.3 Techniques de détection 38
1.5.4 Autres aspects du signal acousto-optique 41
1.6 Conclusion 42

2 Le creusement de trou spectral **44**
2.1 Ions de terre rare en matrice cristalline . . . 45
2.1.1 Généralités . . . 45
2.1.2 Niveaux énergétiques des ions de terre rare . . . 47
2.1.3 Élargissement inhomogène . . . 49
2.1.4 Largeur homogène . . . 49
2.2 Creusement de trou spectral et matériaux adaptés . . . 50
2.2.1 Creusement spectral sur deux niveaux . . . 50
2.2.2 Creusement spectral sur trois niveaux . . . 50
2.2.3 Matériaux adaptés au creusement de trou spectral . . . 52
2.2.4 Trous transitoires dans le Tm : YAG . . . 53
2.2.5 Trous spectraux dans Pr : YSO . . . 55
2.3 Domaines d'applications du creusement de trou spectral . . . 56
2.3.1 Spectroscopie . . . 56
2.3.2 Analyse de signaux radiofréquences . . . 57
2.3.3 Traitement de signaux radiofréquences . . . 58
2.3.4 Mémoire quantique . . . 60
2.3.5 Stabilisation laser et filtrage spectral . . . 62
2.4 Creusement de trou spectral pour l'imagerie acousto-optique . . . 62
2.4.1 Filtre passe-bande dans le Tm : YAG . . . 63
2.4.2 Filtre dispersif dans le Tm : YAG . . . 63
2.4.3 Filtrage par lumière lente dans le Pr : YSO . . . 63
2.4.4 Peigne de fréquence atomique pour les photons marqués . . . 64
2.5 Conclusion . . . 64

3 Étude du cristal de Tm :YAG sous champ magnétique **66**
3.1 Trous persistants dans le Tm :YAG . . . 67
3.1.1 Structure Zeeman nucléaire sous champ magnétique . . . 67
3.1.2 Création d'un trou spectral et spectre . . . 71
3.1.3 Temps de vie Zeeman . . . 73
3.2 Spectroscopie spécifique au montage expérimental . . . 74
3.2.1 Conditions expérimentales . . . 74
3.2.2 Champ magnétique et méthodes de mesure . . . 77
3.2.3 Mesure du temps de vie . . . 79
3.2.4 Optimisation de la puissance de gravure et de la longueur d'onde . . . 81
3.3 Conclusion . . . 83

4 Imagerie acousto-optique avec filtre persistant **84**
4.1 Montage expérimental . . . 85
4.1.1 Le filtre spectral . . . 87
4.1.2 Montage optique avant l'échantillon . . . 88
4.1.3 Au niveau de l'échantillon . . . 90
4.1.4 Montage optique après l'échantillon . . . 91
4.2 Séquences d'imageries des filtres persistant et transitoire . . . 96
4.3 Images comparées : filtre persistant ou transitoire . . . 98
4.4 Estimation de la résolution . . . 100
4.5 Conclusion . . . 102

5 Stabilisation laser **103**
5.1 Nécessité de la stabilisation laser . . . 104
5.1.1 Décalage en fréquence du laser . . . 104
5.1.2 Accumulation des trous spectraux . . . 104
5.2 Stabilisation en fréquence d'un laser . . . 107
5.2.1 Principe général . . . 107
5.2.2 Asservissement à flanc de frange . . . 107
5.2.3 Approche qualitative de la méthode Pound-Drever-Hall . . . 108
5.2.4 Éléments quantitatifs de la méthode PDH . . . 108
5.2.5 La référence de fréquence . . . 113
5.2.6 État de l'art : stabilisation sur trou spectral . . . 114
5.3 Études préliminaires à la stabilisation . . . 116
5.3.1 Cahier des charges de l'asservissement . . . 116
5.3.2 Simulation de signal d'erreur pour différentes formes de trous . . . 116
5.4 Stabilisation laser pour l'imagerie acousto-optique . . . 120
5.4.1 Le circuit de rétroaction . . . 120
5.4.2 Laser asservi . . . 124
5.5 Conclusion . . . 126

6 Vers l'imagerie *in vivo* **128**
6.1 Préparation au déménagement . . . 129
6.1.1 Contraintes . . . 129
6.1.2 Le nouveau cryostat . . . 130
6.1.3 Modification du montage optique pour le déménagement . . . 132
6.2 Remise en place du système d'imagerie acousto-optique . . . 132
6.2.1 Remonter l'expérience d'imagerie acousto-optique . . . 132
6.2.2 Problème de puissance laser pour l'imagerie . . . 134
6.2.3 Difficultés de la remise en place de l'asservissement . . . 137
6.3 Conclusion . . . 138

7 Conclusion et perspectives **139**
7.1 Conclusion générale . . . 140
7.2 Vers l'imagerie à deux couleurs . . . 141
7.3 Devenir du système . . . 142

A Normes de sécurité pour l'imagerie médicale **143**
A.1 Normes acoustiques . . . 143
A.2 Normes optiques . . . 143

B Procédure de mise en place de l'asservissement **145**

C Articles **147**
C.1 Ultrasound modulated optical tomography in scattering media : flux filtering based on persistent spectra
C.2 Deep and persistent spectral holes in thulium-doped yttrium orthosilicate for imaging applications152

Bibliographie **161**

Communications sciencitifiques **177**

Table des figures

1.1 Comparaison entre images TDM, IRM et TEP . . . 15
1.2 Echographie de la prostate . . . 19
1.3 Absorption dans tissus biologiques . . . 21
1.4 Diffusion . . . 22
1.5 Régimes de propagation . . . 23
1.6 Propriétés optiques des tumeurs . . . 24
1.7 Résolution de l'OCT et tomographie 3D en OCT . . . 27
1.8 Comparaison OCT et histologie . . . 27
1.9 Tomographie optique diffuse . . . 28
1.10 Principe de la tomographie photoacoustique . . . 29
1.11 Techniques d'imagerie en photoacoustique . . . 30
1.12 Microscopie photoacoustique super-résolue . . . 31
1.13 Effet acousto-optique . . . 33
1.14 Effet acousto-optique en milieu diffusant . . . 34
1.15 Reconstruction d'image acousto-optique . . . 36

2.1 Tableau périodique des éléments . . . 45
2.2 Photo cristaux . . . 46
2.3 Niveau d'énergie des électrons 4f des ions terres rares . . . 47
2.4 Creusement de trou spectral . . . 51
2.5 Sites de Substitution du thulium . . . 53
2.6 Niveaux d'énergie du Tm :YAG . . . 54
2.7 Structure hyperfine du Pr :YSO . . . 56
2.8 Spectre d'un signal radiofréquence sur porteuse optique . . . 57
2.9 Retard Vrai . . . 59
2.10 Lumière lente . . . 61

3.1 Structure hyperfine . . . 67
3.2 Anisotropie des sites de substitution et variation des écarts énergétiques . . . 68
3.3 Configurations optimales des champs électrique et magnétique . . . 70
3.4 Lecture d'un spectre d'absorption . . . 72
3.5 Temps de vie Zeeman . . . 73
3.6 Montage optique de spectroscopie . . . 75
3.7 Influence du champ magnétique . . . 76
3.8 Influence du champ magnétique et de la méthode de mesure . . . 78
3.9 Temps de vie pour l'imagerie . . . 79
3.10 Influence de la puissance et de la longueur d'onde sur la gravure . . . 81

4.1 Montage total 86
4.2 Influence de la pompe 87
4.3 Optimisation de la puissance des faisceaux pompe et sonde 89
4.4 Montage autour de l'échantillon 91
4.5 Montage optique après l'échantillon 92
4.6 Calcul de l'étendue 93
4.7 Montage optique autour du cristal 95
4.8 Chronogrammes comparés 97
4.9 Comparaison des filtres transitoire et persistant 99
4.10 Temps d'imagerie 100
4.11 Estimation de la résolution 101

5.1 Long temps de vie et décalage de fréquence 105
5.2 Accumulation 106
5.3 Principe de la stabilisation laser 107
5.4 Approche qualitative du PDH 108
5.5 Quadrature du signal d'erreur 112
5.6 Simulation des références de fréquences 117
5.7 Simulation du signal d'erreur 118
5.8 Influence de la fréquence de modulation 119
5.9 Influence de la largeur du trou lorentzien sur le signal d'erreur 119
5.10 Montage de l'asservissement laser 120
5.11 Caractéristiques du contrôleur de l'asservissement 122
5.12 Caractérisation des entrées de modulation du laser 123
5.13 Mise en place de l'asservissement 124
5.14 Comparaison d'un asservissement complet et partiel 125

6.1 Chambre d'expérience de la Cryostation et cristaux 131
6.2 Cascade d'amplification sur plaque optique en prévision du déménagement 132
6.3 Champ magnétique de l'aimant permanent 133
6.4 Comparaison entre les deux tables optiques 133
6.5 Photographies de l'installation 135
6.6 Montage optique autour de la Cryostation 136
6.7 Calcul d'étendue de la cryostation 136
6.8 Nouvelle cascade d'amplification 137

Liste des tableaux

1.1 Comparatifs des techniques d'imageries médicales présentent en hôpital 20
1.2 Propriétés optiques des tissus humains 23

2.1 Paramètres spectraux du Pr :YSO 55

3.1 Écarts énergétiques entre sous-niveaux du fondamental et de l'état excités 69
3.2 Temps de vie 80

A.1 Valeurs seuils des normes acoustiques médicales 143

Introduction

La recherche actuelle en médecine vise à améliorer le traitement des maladies. En conséquence, il faut comprendre la maladie grâce entre autres à un diagnostic exact et précis. L'imagerie médicale joue un rôle central dans cette compréhension car elle est utilisée pour la détection, lors du traitement et pendant le suivi des patients. Le développement des techniques d'imagerie tend à diminuer leur impact sur le patient et à augmenter leur sensibilité : le médecin est mieux informé lors de sa prise de décision. Les modalités classiques d'imagerie présentes en hôpitaux sont performantes et offrent des informations différentes qui peuvent être complémentaires. On notera en particulier l'échographie qui est très versatile, peu coûteuse, compacte et très répandue. Ces modalités sont constamment perfectionnées avec un accent particulier envers le développement de plateformes multi-modales. Celles-ci permettent de mettre plus facilement en regard les informations complémentaires provenant de plusieurs modalités. Cependant il n'existe pas encore de modalité d'imagerie optimale pour certaines maladies.

L'optique est une modalité d'imagerie puissante très utilisée en biologie, car elle est peu chère, peu voire non-invasive et propose une grande variété de techniques. Elle peut être utile dans le contexte médical car les propriétés optiques des tissus biologiques sont liées à leur métabolisme. L'absorption dépend de la concentration du tissu en absorbeurs comme le sang tandis que la diffusion informe sur la structure des tissus. Cette diffusion est la principale limitation à la généralisation de techniques d'imagerie optique dans le domaine de l'imagerie médicale (à l'exception de niches comme l'ophtalmologie). En effet elle empêche l'observation des tissus à plus d'un mm de profondeur. Quand la lumière se propage dans les tissus, elle est diffusée par les différentes structures qu'elle y rencontre. En conséquence lors de la propagation l'information sur la localisation de la lumière est perdue et les méthodes d'imagerie optique conventionnelle ne peuvent plus former d'image résolue. De plus elles doivent systématiquement trouver un compromis entre la profondeur d'imagerie et la résolution.

Coupler la lumière et les ultrasons permettrait de dépasser les limitations de l'imagerie optique conventionnelle. Les ultrasons se propagent de manière balistique dans les tissus biologiques. Ainsi ils peuvent être utilisés pour localiser la lumière dans le milieu diffusant. Parmi les différentes techniques hybrides qui existent, nous nous intéressons plus particulièrement à l'imagerie acousto-optique. Lors de la propagation des photons, on envoie une impulsion ultrasonore. Dans le volume de coexistence des photons et des ultrasons, l'effet acousto-optique crée des photons marqués. Ceux-ci sont décalés en fréquence par rapport au reste de la lumière diffuse. Si on est capable de détecter les photons marqués alors on a localisé le signal optique et le signal a la résolution des ultrasons.

Le défi de l'imagerie acousto-optique est spécifiquement la détection des photons marqués. Plusieurs techniques ont été développées dont la plupart utilisent le principe de l'holographie. Elles donnent d'excellents résultats sur des échantillons artificiels ou *ex vivo*, mais elles s'adaptent mal à l'imagerie *in vivo*. En conséquence nous nous intéressons au filtrage spectral des photons marqués dont les performances ne sont pas affectées par une configuration *in vivo*. Il est possible d'utiliser pour cela une cavité Fabry-Perot mais l'efficacité du filtre est très restreinte avec la lumière diffuse. Nous nous sommes donc tournés vers un filtre créé avec la technique spectroscopique de creusement de trou

spectral qui semble être une meilleure alternative.

Les ions de terre rare sont presque insensibles à leur environnement grâce à leur structure électronique particulière. Ainsi leurs transitions optiques ont une largeur homogène très fine à température cryogénique, même s'ils sont dans une matrice cristalline. Par contre l'élargissement inhomogène de la raie d'absorption du cristal est entre 1000 et 10 000 fois plus large que la largeur homogène. C'est pourquoi les cristaux dopés aux ions de terre rare sont adaptés au creusement de trou spectral : il est possible de modeler leur profil d'absorption à sa guise si on a accès à un laser fin spectralement et stable en fréquence. Les ions de terre rare en matrice cristalline ont été beaucoup étudiés pour réaliser des mémoires quantiques. On les a aussi utilisés pour le traitement de l'information ou pour la stabilisation laser.

Deux ions différents ont été étudiés pour l'imagerie acousto-optique avant cette thèse. L'ion praséodyme dans le cristal $Pr^{3+} : Y_2SiO_5$ permet de créer des filtres très contrastés vers 600 nm. La lumière à cette longueur d'onde est assez fortement absorbée par les tissus biologiques donc n'est pas idéale pour l'imagerie optique en profondeur. Le thulium dans le cristal de Tm^{3+} : YAG offre une meilleure longueur d'onde vers 800 nm, mais le contraste du filtre est moins bon. Des études précédentes ont montré les avantages de l'ajout d'un champ magnétique extérieur sur le cristal de Tm^{3+} : YAG, que ce soit en termes de temps de vie ou de profondeur des trous spectraux.

Dans cette thèse nous étudions les effets du champ magnétique sur un filtre spectral créé dans un cristal de Tm^{3+} : YAG pour l'imagerie acousto-optique. Ce manuscrit est composé de 6 chapitres.

Le chapitre 1 brosse le portait de plusieurs modalités d'imagerie : techniques classiques présentes en hôpitaux, techniques optiques et deux techniques hybrides entre l'optique et l'échographie. Les modalités classiques (le scanner à rayon X, l'imagerie par résonance magnétique, la tomographie par émission de positron et l'échographie) sont brièvement explicitées et comparées. Nous introduisons des propriétés optiques des milieux biologiques avant de présenter les techniques optiques suivantes : la microscopie, la tomographie par cohérence optique et la tomographie optique diffuse. Enfin nous décrivons deux modalités hybrides : la photoacoustique et l'acousto-optique. Nous montrons comment elles répondent au besoin de contraste optique en profondeur dans les tissus.

Le chapitre 2 présente le creusement de trou spectral, les matériaux qui y sont adaptés, en se focalisant sur les cristaux dopés aux ions de terres rares à température cryogénique. Ensuite nous décrivons les différentes applications utilisant le creusement de trou spectral avec une attention particulière sur le filtrage spectral pour l'imagerie acousto-optique.

Le chapitre 3 montre comment il est possible d'améliorer la qualité du filtre spectral dans le Tm : YAG en ajoutant un champ magnétique bien choisi. Nous mettons en avant les spécificités de l'implémentation du creusement de trou spectral efficace dans un montage dédié à l'imagerie acousto-optique.

Le chapitre 4 présente l'utilisation d'un trou spectral persistant comme filtre pour l'imagerie acousto-optique. Nous présentons d'abord le montage expérimental puis la séquence temporelle d'imagerie et enfin les images résultantes.

Le chapitre 5 détaille pourquoi nous avons choisi de revoir l'asservissement de la source laser. Nous avons d'une part changé de source laser et nous avons besoin d'une grande stabilité en fréquence pour la réalisation du filtre spectral. Nous présentons les principes de la stabilisation en fréquence d'un laser et comment nous avons mis en place la nouvelle stabilisation.

Au cours de la thèse, nous avons déménagé et compacté le système d'imagerie afin de mener une campagne de tests *in vivo*. Le chapitre 6 décrit les préparatifs du déménagement et la remise en place du système d'imagerie. Nous mettons en évidence les modifications qui ont été apportées au système.

Nous dresserons enfin une conclusion générale sur ces travaux de thèse et nous ouvrons quelques perspectives sur des évolutions possibles de notre système d'imagerie et le développement du filtrage

spectral pour l'imagerie acousto-optique.

Chapitre 1

Imagerie en milieu biologique

Sommaire

1.1 Modalités classiques d'imagerie médicale 14
1.1.1 Tomodensitométrie (TDM) 14
1.1.2 Imagerie par résonance magnétique (IRM) 16
1.1.3 Tomographie par émission de positron (TEP) 16
1.1.4 Échographie 18
1.1.5 Tendances globales 19
1.2 Propriétés optiques des milieux biologiques 20
1.2.1 Absorption 20
1.2.2 Diffusion 22
1.2.3 Cas des milieux biologiques 23
1.3 Modalité d'imagerie optique des milieux biologiques 25
1.3.1 Microscopie 25
1.3.2 Tomographie par cohérence optique 26
1.3.3 Tomographie optique diffuse 27
1.4 Imagerie photoacoustique 29
1.4.1 Principe 29
1.4.2 Modalités photoacoustiques 30
1.4.3 Développements et applications 31
1.5 Imagerie acousto-optique 32
1.5.1 Principes 32
1.5.2 Créer une image 35
1.5.2.1 Ondes focalisées 35
1.5.2.2 Ondes planes 37
1.5.2.3 Imagerie par transformée de Fourier 37
1.5.3 Techniques de détection 38
1.5.3.1 Détection synchrone 38
1.5.3.2 Mesure de contraste de speckle 39
1.5.3.3 Holographie digitale 39
1.5.3.4 Holographie adaptative de front d'onde 39
1.5.3.5 Filtrage spectral 41
1.5.4 Autres aspects du signal acousto-optique 41
1.6 Conclusion 42

L'imagerie médicale regroupe différentes modalités capables de créer des images de l'intérieur du corps humain. Le but de l'imagerie médicale est de créer une représentation visuelle intelligible d'une information à caractère médical. Dans le cadre clinique ces informations servent au diagnostic et aident lors d'une intervention médicale, et dans le domaine de la physiologie elles permettent de représenter le fonctionnement des organes ou des tissus biologiques. La notion de contraste est essentielle car elle permet de quantifier la différence de luminosité entre deux objets. Le contraste permet de mettre en valeur les informations contenues par l'image. Selon la modalité d'imagerie médicale choisie, un même objet d'étude apparaîtra différemment sur l'image, car le contraste de celle-ci vient de phénomènes physiques différents et met en évidence des informations différentes.

Dans ce premier chapitre, je vais dresser un bref portrait de techniques d'imagerie existantes, en commençant par des classiques présentes en hôpitaux : le scanner à rayon X, l'imagerie par résonance magnétique, la tomographie par émission de positron et l'échographie. Je décrirai ensuite l'intérêt de développer une technique d'imagerie optique en profondeur et les difficultés que cela soulève. Je présenterai les propriétés optiques des milieux biologiques en mettant l'accent sur la diffusion et l'absorption des tissus, avant de m'attarder sur les techniques d'imagerie optique les plus répandues actuellement. Ces techniques d'imagerie tout optique ont des difficultés à imager en profondeur, pour l'imagerie du corps humain il est compliqué d'aller plus loin que la peau (c'est-à-dire environ 2 mm). Puis je décrirai les deux techniques qui combinent photons et ultrasons : la photoacoustique puis l'acousto-optique, et je montrerai comment elles répondent au besoin de contraste optique en profondeur dans les tissus.

1.1 Modalités classiques d'imagerie médicale

1.1.1 Tomodensitométrie (TDM)

Le scanner à rayons X a été historiquement la première technique d'imagerie développée pour l'imagerie d'une partie ou de l'ensemble du corps humain pour des applications médicales. On utilise typiquement des rayons X dits "doux" d'énergie proche de 300 eV et de longueur d'onde approximative 1 nm. La tomodensitométrie (TDM), *CT scan* ou *Computed Tomography scan* en anglais, la technique à rayons X la plus répandue fonctionne de la manière suivante : des rayons X traversent le corps du patient puis sont détectés par un réseau de scintillateurs. Ces scintillateurs transforment le rayonnement en lumière visible qui est ensuite détectée par un réseau de photomultiplicateurs. Pour obtenir une image 2D d'une coupe du corps du patient, il faut faire tourner la source et les détecteurs, fixes l'un par rapport à l'autre, autour du patient. Les données obtenues avec les différents angles de vue sont traitées par ordinateur pour reconstruire l'image 2D. Pour une image 3D complète du corps du patient, il faut translater celui-ci le long de l'axe de rotation du scanner : plusieurs images 2D du corps du patient sont prises, elles sont ensuite, par traitement informatique, empilées les unes sur les autres pour obtenir une image en 3D du patient.

Les images obtenues informent sur la structure des tissus car leur contraste vient de l'atténuation des rayons X par les tissus biologiques, on parle aussi de différence de densité entre les tissus. Un exemple d'image de TDM 2D est visible sur la figure 1.1 (b). On y voit une coupe de l'abdomen d'un patient au niveau de la prostate, les formes les plus claires sont les os, les structures plus foncées correspondent aux organes et muscles [1].

Les appareils de tomodensitométrie, les appareils les plus perfectionnés pour réaliser des images avec des rayons X, se trouvent dans les hôpitaux et occupent une salle dédiée. Neufs, ils coûtent autour de un million d'euros auquel s'ajoute un coût d'entretien annuel. Un examen au tarif de la sécurité sociale en France coûte entre 30 et 200€ et dure entre 30 minutes et une heure. Leur résolution est au mieux de 100 µm dans le cas de la microscopie à rayons X [3]. Plusieurs groupes ont étudié et démontré la répétabilité et la stabilité des caractéristiques radiomiques des images à rayons X, c'est à dire les

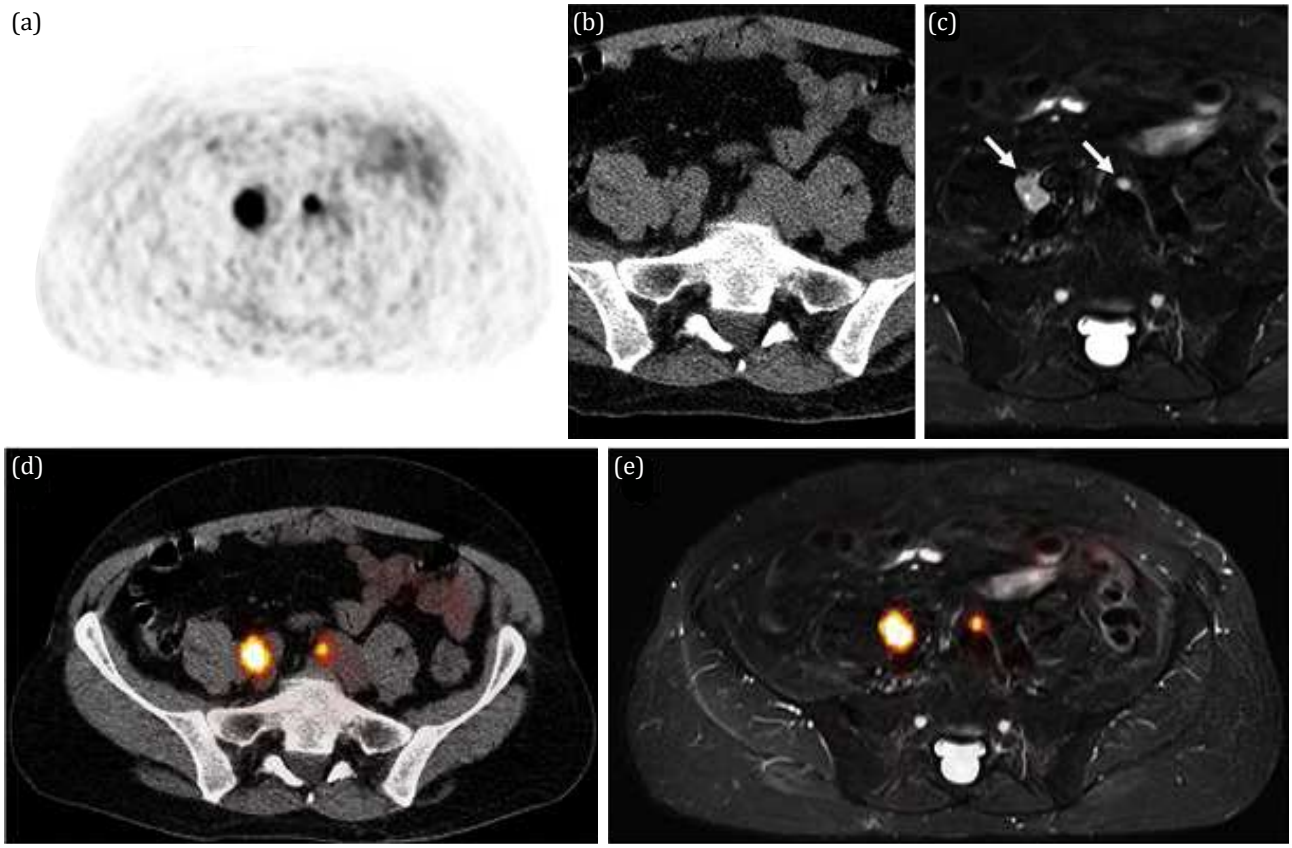

FIGURE 1.1 – Comparaison entre images de tomodensitométrie (TDM), imagerie par résonance magnétique (IRM) et tomographie par émission de positron (TEP) d'un patient atteint du cancer de la prostate avec deux métastases du ganglion lymphatique parailiaque positif à l'antigène membranaire spécifique de la prostate (PSMA). Les deux métastases sont visibles en noir sur (a) images TEP avec ^{68}Ga-PSMA. L'image TDM (b) ne permet pas la visualisation des métastases. L'image IRM (c) utilise un agent de contraste exogène DWI-800 révélant les deux métastases indiquées par les flèches blanches. L'image (d) est le rendu d'une plateforme TEP/TDM : superposition de l'image TDM en niveau de gris et de l'image TEP en couleur. L'image (e) est le rendu d'une plateforme TEP/IRM : superposition de l'image IRM en niveau de gris et de l'image TEP en couleur. Illustration adaptée de [2] avec la permission de Springer Nature.

informations d'intérêt pour le diagnostic médical [4, 5].

Actuellement un gros effort de recherche porte sur l'optimisation de la dose de rayons X reçue par le patient lors de l'imagerie. Du point de vue de la santé il faut minimiser les doses mais la qualité de l'image dépend en particulier de la dose reçue et de l'algorithme de reconstruction d'image. Le développement d'algorithmes de reconstruction itératifs a permis d'améliorer le rapport signal à bruit des images et semble prometteur pour optimiser la dose de rayons X [6].

La tomodensitométrie est une technique d'imagerie efficace pour donner des informations sur la structure des tissus biologiques, mais ne donne aucune information sur leur métabolisme. Elle n'est donc pas la technique la plus polyvalente.

1.1.2 Imagerie par résonance magnétique (IRM)

L'imagerie par résonance magnétique (IRM) est l'application médicale de la résonance magnétique nucléaire et est développée depuis les années 70. L'IRM se base principalement sur la résonance magnétique du proton : lorsqu'un proton – le noyau d'un atome d'hydrogène – est plongé dans un fort champ magnétique il est capable d'absorber et d'émettre un champ radiofréquence. Le contraste est lié à la densité de protons. Le proton est intéressant car il y en a dans l'eau et les lipides du corps humain. Des impulsions radiofréquences permettent d'exciter les protons et le gradient de champ magnétique permet de les localiser. En variant le type d'impulsions on accède à différents types de relaxation des protons et donc à différents types de contrastes [7, 8].

L'IRM présente un double avantage pour l'imagerie médicale : les images obtenues informent à la fois sur la structure et le métabolisme de l'organisme imagé. C'est à dire que l'on peut à la fois faire la différence entre des tissus de nature différente – os, tissus mous, organes – grâce au contraste de densité de protons et entre des tissus sains ou malades car les protons interagissent avec leur environnement. Les images (c) et (e) de la figure 1.1 montrent une vue en coupe de l'abdomen au niveau de la prostate, on y voit en blanc la moelle épinière, en foncé la prostate, des muscles et autres organes et en plus clair deux tumeurs. L'IRM a aussi l'avantage de ne pas utiliser de radiations ionisantes. Pour améliorer les diagnostics cliniques, on peut utiliser des agents de contraste exogènes, typiquement des molécules contenant un noyau différent du proton et qui se concentrent dans des endroits spécifiques. Ces agents de contraste permettent même de faire de l'imagerie moléculaire, car l'IRM peut détecter la composition moléculaire ou les caractéristiques environnementales des tissus [9]. Néanmoins elle n'est pas suffisamment sensible pour imager des molécules uniques, sa résolution est en effet au mieux de 100 µm [10]. Un appareil clinique se trouvant dans un hôpital occupe une pièce entière qui lui est dédiée et coûte à l'achat environ un million d'euros, auxquels s'ajoutent les frais d'entretien. Un examen au tarif de la sécurité sociale coûte environ 300€ et dure entre 20 et 45 minutes selon la taille de la zone à imager.

Actuellement le compromis entre qualité d'image et vitesse d'acquisition est celui qui possède les plus grands enjeux ; C'est pourquoi l'utilisation de l'acquisition compressée ou *compressed sensing* en anglais permettrait l'accélération de l'obtention de l'image [11]. Un autre axe de recherche qui n'a pas été exploré avant 2017 est l'étude sur la stabilité et la répétabilité des caractéristiques radiomiques en IRM [5]. Il y a aussi eu peu d'études sur les effets que pourrait avoir un scan IRM sur des dommages génétiques, bien que les résultats préliminaires n'aient pas l'air inquiétants [12].

L'IRM est une technique polyvalente, cependant on peut se demander s'il est possible d'améliorer l'imagerie du métabolisme des tissus.

1.1.3 Tomographie par émission de positron (TEP)

La tomographie par émission de positrons (TEP), soit *positron emission tomography* ou *PET scan* en anglais, est une technique d'imagerie utilisant les rayons gamma issus de traceurs radioactifs.

Le traceur injecté au patient est spécifique à l'organe ou la molécule cible que l'on veut imager. Le traceur est marqué par un atome radioactif qui émet des positrons. Un positron émis s'annihile avec un électron dans le corps du patient et crée deux photons qui ont chacun l'énergie de la masse de l'électron au repos (511 keV soit environ 1 pm). Les photons partent dans une même direction aléatoire mais avec des sens opposés, afin de conserver l'énergie et l'impulsion de l'annihilation du positron. Ils sont ensuite détectés en coïncidence par des scintillateurs : la coïncidence permet de localiser l'emplacement initial du positron. L'intensité totale du signal détecté dépend de la quantité de traceurs. C'est pourquoi il faut choisir un traceur qui s'accumule dans un emplacement d'intérêt, par exemple pour une tumeur cancéreuse qui a une forte consommation d'énergie on choisira un sucre marqué par un traceur radioactif. La TEP est une modalité d'imagerie fonctionnelle c'est à dire qu'elle informe sur le métabolisme de l'organisme observé. L'image (a) de la figure 1.1 est un exemple d'image TEP pour laquelle un marqueur spécifique de la prostate a été employé faisant apparaître uniquement les métastases [1, 13].

Les caractéristiques des images TEP sont assez fiables mais peuvent dépendre des paramètres de reconstruction [5]. D'autre part, la meilleure résolution accessible avec la TEP est de 2 mm, avec des méthodes de reconstruction qui utilisent en plus la différence de temps de vol entre les photons [1]. Néanmoins la tomographie par émission de positron est chère. L'appareil, nécessitant une pièce dédiée dans un hôpital, coûte 3 millions d'euros auxquels s'ajoutent 2 millions d'euros d'entretien annuel. Un examen coûte environ 1000€ aux tarifs de la sécurité sociale et il dure entre 30 minutes et deux heures.

Actuellement la TEP est plutôt utilisée conjointement avec la tomodensitométrie (TDM) ou l'IRM dans des plateformes d'imagerie multimodale :

TEP-TDM : Un examen simultané de TEP et TDM possède deux avantages majeurs. D'abord il fournit des informations complémentaires sur les tissus observés. Ensuite les données de transmission de TDM sont utilisées pour corriger l'atténuation des rayons gamma du TEP [14]. La bimodalité TEP-TDM est un outil puissant pour le diagnostic et le suivi de nombreux cancers [15]. Elle peut aussi plus occasionnellement être utilisée en cardiologie ou en neurologie. Cependant aujourd'hui les images TEP-TDM seules ne permettent pas de caractériser entièrement un cancer et d'en prévoir l'évolution. La figure 1.1(d) montre une image TEP-TDM avec en niveaux de gris les informations relatives à la TDM et en couleurs les informations apportées par la TEP [16].

TEP-IRM : La réalisation de plateformes d'imagerie TEP-IRM pour l'imagerie du corps humain a été permise grâce au développement de détecteurs TEP utilisant des photomultiplicateurs compacts compatibles avec le champ magnétique nécessaire pour l'IRM et permettant une acquisition simultanée des images IRM et TEP. Ces plateformes semblent très prometteuses : l'IRM permet par exemple de guider la reconstruction de l'image TEP et de mettre en place une compensation des mouvements améliorant la qualité d'image TEP. Cependant la correction de l'atténuation des signaux TEP qui s'améliore, n'est pas aussi efficace que dans les instruments TEP-TDM cliniques [17]. Actuellement les efforts se concentrent sur les aspects opérationnels et quantitatifs de l'imagerie ainsi que sur la création d'une synergie dans les combinaisons des séquences d'imagerie d'IRM multifonctionnelle et des protocoles d'utilisation des traceurs TEP. La figure 1.1(e) montre une image TEP-IRM avec en niveaux de gris les informations relatives à l'IRM et en couleurs les informations apportées par la TEP [18].

La TEP apporte des informations très intéressantes surtout lorsqu'elles sont combinées avec des images prises avec d'autres techniques, mais c'est une technique ionisante, peu résolue et surtout très chère.

1.1.4 Échographie

L'utilisation de l'imagerie ultrasonore pour le médical a été initialement proposée par Dussik en 1942 [19]. Le contraste des images vient de la rupture d'impédance acoustique entre les différents types de structures du milieu imagé. Un échographe se compose de trois parties principales : la sonde, un ensemble de céramiques piézoélectriques, qui émet et reçoit le signal ultrasonore, l'appareillage électronique pour faire fonctionner la sonde et transmettre le signal et les logiciels permettant de reconstruire, visualiser et régler l'image. En échographie, une séquence ultrasonore est créée par un ordinateur et convertie en ondes ultrasonores par la sonde. Ces ondes sont émises dans le milieu et sont réfléchies par les objets grands devant la longueur d'onde et diffusées par les plus petits. Ces échos, les ondes réfléchies et rétrodiffusées, sont reçus par la sonde qui les convertit en signal électrique. Ce signal permet ensuite de reconstruire l'image.

L'échographie a des applications très variées car elle peut imager l'ensemble du corps humain, comme par exemple le fœtus, le cœur ou encore servir de guide pendant la chirurgie [20]. Dans le cadre du cancer, l'échographie est très utile pour faire une distinction entre tissus normaux, malins ou bénins, en particulier pour les cancers du sein, de la thyroïde, des ovaires et de la prostate comme le montre la figure 1.2 [21]. Ces performances ne sont néanmoins pas valables pour tous les types de cancers et dépendent de l'état d'avancement de celui-ci : plus un objet sera petit plus il sera difficile de faire la distinction entre une tumeur maligne ou une structure bénigne. L'échographie offre donc à la fois un contraste structurel – détermination de la morphologie d'un organe – et une imagerie fonctionnelle grâce à ses développements récents, comme nous le verrons dans les prochains paragraphes. L'échographie est aussi une modalité d'imagerie très prisée car elle est non-invasive, non-ionisante, portable et peu coûteuse. C'est en effet l'appareil le plus petit que j'ai cité jusqu'à maintenant car il prend la place d'une grosse table de chevet sur roulette surmontée d'un écran d'ordinateur, et c'est aussi l'appareil le moins cher. Les appareils les plus simples coûtent trois mille euros, et le prix augmente avec le nombre de fonctionnalités disponibles. Un examen aux tarifs de la sécurité sociale coûte entre trente et cent euros et dure moins de dix minutes. La résolution d'une échographie dépend de la longueur d'onde utilisée, typiquement entre 200 µm à 1 mm dans l'imagerie clinique. Il est cependant possible de l'améliorer pour faire de la super résolution et atteindre 20 µm de résolution dans le cerveau du rat en utilisant des micro-bulles comme éléments de contraste [22]. Les fréquences ultrasonores utilisées dépendent des objectifs de l'imagerie : plus la fréquence est élevée, meilleure est la résolution mais les ondes sont atténuées par les tissus, en moyenne 0,3 dB $\mathrm{MHz}^{-1}\,\mathrm{cm}^{-1}$ [23]. Pour imager le corps humain les fréquences classiques utilisées varient entre 1 MHz et 10 MHz, soit des résolutions respectives de l'ordre de 1 mm et de 0,1 mm, alors que pour le petit animal les fréquences sont plus élevées (10 MHz à 20 MHz).

Le mode d'échographie le plus commun en clinique est le B-mode qui utilise des ondes focalisées et leurs réflexions spéculaires pour reconstruire l'image 2D où seront visibles les objets plus grands que la longueur d'onde. D'autres modes d'excitation sont à l'étude comme l'utilisation d'ondes planes afin d'accélérer l'imagerie [24]. D'autre part, la technologie pour faire des images 3D en temps réel est en cours de développement [25]. Un autre volet du développement de l'échographie est la diffusion : les ondes sonores sont diffusées de manière isotrope par les objets très petits devant la longueur d'onde, et sont plutôt rétrodiffusées par les objets d'une taille comparable à la longueur d'onde ou lorsqu'il y a une densité élevée de diffuseurs comme dans les tissus biologiques. Cette forte rétrodiffusion crée des interférences sur le signal détecté par la sonde et apparaît comme des grains de speckle sur les images B-mode finales [26, 27]. Les traitements d'image standards cherchent à réduire le speckle, mais une analyse spectrale du signal ultrasonore reçu devrait pouvoir donner des informations sur la microstructure des tissus. Dans ce but, on utilise principalement la caractérisation de l'enveloppe statistique (*statistics envelope*) qui commence à être disponible en clinique, et le paramétrage spectral

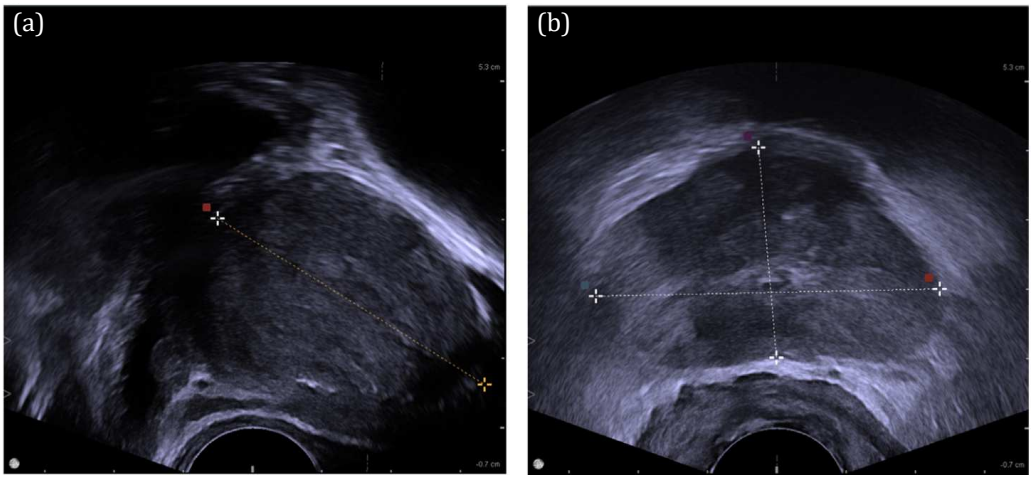

FIGURE 1.2 – Échographie transrectale de la prostate : l'image échographique est homogène à l'intérieur de la prostate saine (a). Dans une prostate cancéreuse (b) une tumeur dans les premières phases de développement n'a pas la même signature échographique que le tissus environnant. Illustration republiée de [21] avec la permission de Elsevier.

encore en développement (*spectral-based parameterization*) [28]. Enfin la meilleure compréhension des interactions entre les ultrasons et la matière mises en jeu pendant une échographie permettent l'utilisation des échos non-linéaires lors de la reconstruction [29], ainsi que l'utilisation de micro-bulles de gaz inerte en tant qu'agent de contraste.

L'imagerie ultrasonore est régulièrement couplée à d'autres techniques d'imagerie pour créer des plateformes d'imagerie multimodales. Par exemple pour l'étude des flux sanguins l'échographie peut être couplée à du profilage Doppler ultrasonore [30, 31], ou à de la vélocimétrie par imagerie ultrasonore [26]. Il est aussi possible de coupler l'échographie avec des mesures d'élasticité des tissus grâce à l'imagerie par ondes de cisaillement (*shear wave imaging*) [32]. Enfin, il existe des plateformes bimodales IRM et échographie dans le cadre du diagnostic du cancer de la prostate [33].

L'échographie est une modalité d'imagerie portable, économique, rapide et qui offre une large variété de contrastes d'imagerie. C'est aussi un domaine où la recherche est très active que ce soit pour développer des méthodes d'imagerie plus rapide, l'imagerie 3D ou de nouvelles sources de contraste. Cependant dans le cadre de la détection précoce du cancer, la modalité d'échographie B-mode n'est pas de suffisamment spécifique pour de petits objets. C'est pourquoi certaines petites structures millimétriques ne sont pas identifiables avec certitude sans examens complémentaires.

1.1.5 Tendances globales

Ces dernières années ont vu apparaître le concept, dont la définition varie encore, de la médecine personnalisée (*personalized medecine*). La médecine personnalisée permettrait entre autres un meilleur suivi individuel des patients grâce à des routines cliniques devenues plus adaptables aux spécificités de chacun. Cette approche demande une fiabilité accrue des pronostics qui devrait être rendue possible grâce au développement de bases de données et à la production de données quantitatives. Premièrement, les bases de données accessibles aux chercheurs et aux médecins permettent le développement d'outils facilitant la comparaison d'images médicales faites avec des protocoles différents. Un exemple est la reconnaissance automatique de tumeurs ou d'autres tissus malins pour favoriser les comparaisons entre différentes méthodes d'imagerie [34]. Deuxièmement, avoir des données quantitatives facilite aussi la comparaison et le diagnostic médical. Il y a eu des efforts fournis pour produire des données

Critère	TDM	IRM	TEP	Échographie
Spécificité	NON	OUI	OUI	limitée
Durée de l'examen	long	long	long	court
Coût	moyen	important	très important	faible

TABLE 1.1 – Comparatifs des techniques d'imageries médicales présentent en hôpital

quantitatives directement à partir des images médicales [5]. Le développement de plateformes d'imagerie multimodales, dont quelques exemples ont été donnés dans les parties précédentes, s'intègre aussi dans cette recherche de données quantitatives.

Les techniques d'imagerie médicales les plus répandues dans les hôpitaux continuent d'améliorer leurs performances : amélioration du contraste, efficacité des mesures, rapidité d'acquisition et de reconstruction d'images. De plus les plateformes multimodales permettent d'observer une même partie de l'organisme avec des techniques différentes afin combiner facilement des informations complémentaires. Dans le cadre du projet de recherche dans lequel ma thèse s'inscrit, nous voulons améliorer la détection de jeunes tumeurs cancéreuses. Pour cela nous cherchons une technique d'imagerie qui puisse réaliser en temps réel une imagerie spécifique en profondeur, comme le résume le tableau 1.1. Aucune des techniques présentées précédemment ne répond à l'ensemble des critères, c'est pourquoi nous nous intéressons à l'imagerie optique qui est rapide et spécifique grâce à la signature spectrale des tissus.

1.2 Propriétés optiques des milieux biologiques

Les tissus biologiques sont complexes en raison des structures diverses et de tailles variées qui s'y trouvent. La lumière qui traverse ces milieux interagit avec l'ensemble de ces structures et par conséquent il est difficile de connaître sa distribution exacte dans les tissus. Dans ce qui suit je vais décrire les deux phénomènes physiques qui régissent la propagation de la lumière dans les milieux biologiques.

1.2.1 Absorption

La première propriété d'intérêt est l'absorption. Elle se caractérise par le coefficient d'absorption μ_a. Le flux de la lumière balistique transmise I_T par un milieu non diffusant d'épaisseur d est donnée par la loi de Beer-Lambert-Bouguer :

$$I_T(d) = I_0 \exp(-\mu_a d) \tag{1.1}$$

où I_0 est le flux lumineux incident.

La figure 1.3 met en évidence les éléments principaux responsables de l'absorption des tissus biologiques. L'eau, leur composant principal, absorbe significativement la lumière en dessous de 200 nm et au-delà de ~ 1,3 µm. Il y a d'autres composants moins abondants mais qui ont néanmoins des coefficients d'absorption très élevés, comme la mélanine sur l'ensemble du visible ou encore le sang dont l'absorption est très élevée sur l'ensemble du spectre visible pour enfin diminuer dans le proche infrarouge. Le compromis pour l'imagerie optique des tissus est d'utiliser de la lumière dans le proche infrarouge, où l'absorption globale est minimale [36]. La région du spectre située entre 600 et 1300 nm est appelée "fenêtre thérapeutique optique" que l'on pourrait aussi appeler "fenêtre de diagnostic optique" car les recherches actuelles en imagerie optique tendent plus vers le diagnostic que la thérapie.

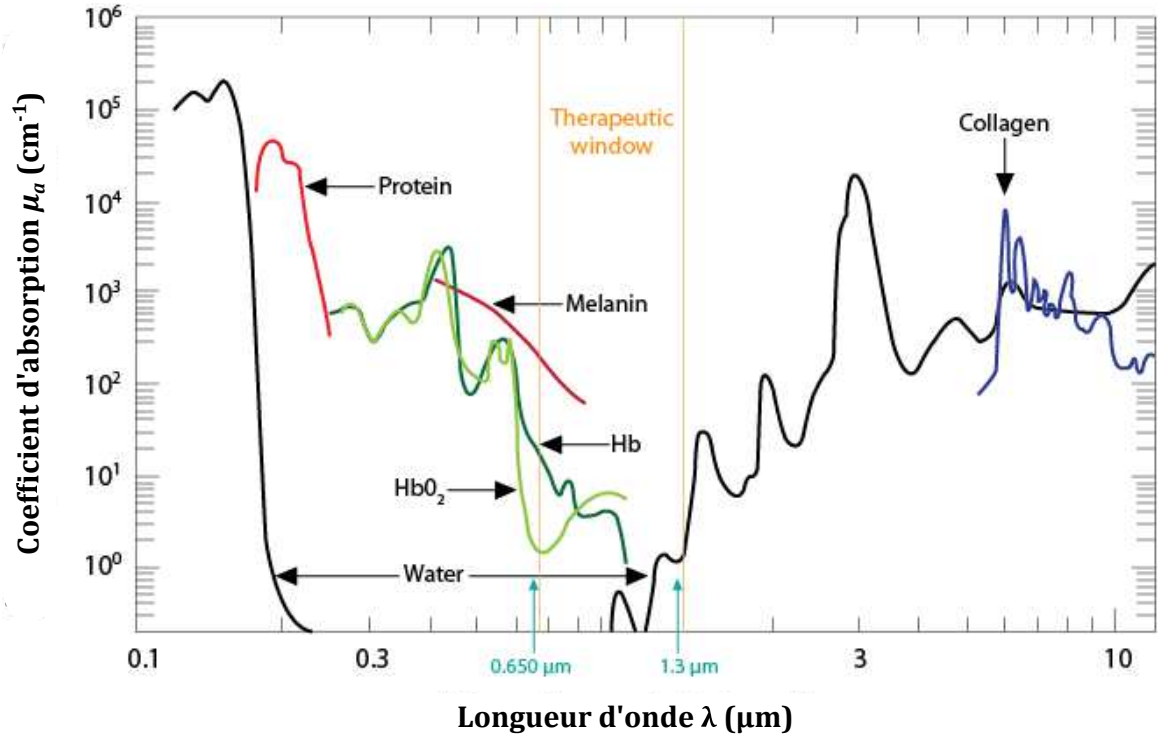

FIGURE 1.3 – Absorption dans les tissus biologiques. Protein : les protéines absorbent dans l'ultraviolet, Melanin : la mélanine est le pigment responsable de la coloration de la peau, Hb : hémoglobine, HbO_2 : hémoglobine oxygénée, Water : l'eau compose entre 60 et 70% du corps humain, Collagen : le collagène est une protéine structurale représente entre 25-35% de la masse protéique chez les mammifères. Illustration de [35].

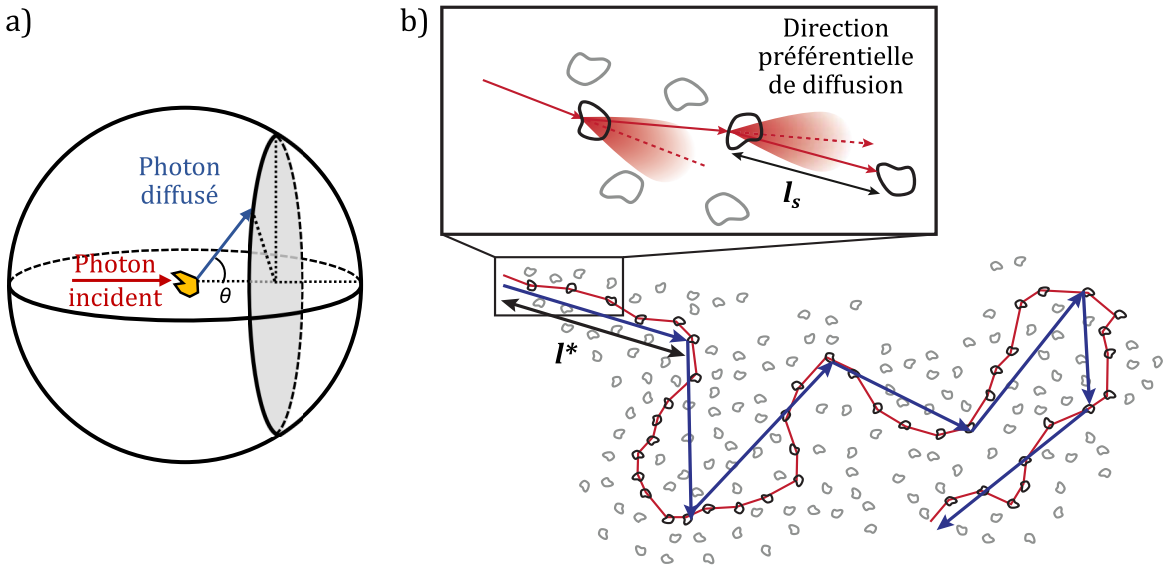

FIGURE 1.4 – (a) Schéma de l'anisotropie de diffusion. (b) Représentation schématique du libre parcours moyen de transport l^*. Il correspond à la distance typique à partir de laquelle la lumière perd la mémoire de sa direction initiale. l_s est le libre parcours moyen de diffusion.

L'absorption est liée à la structure moléculaire, protéique ou cellulaire des tissus autrement dit leur métabolisme.

1.2.2 Diffusion

La deuxième propriété d'intérêt est la diffusion. Elle caractérise la structure du milieu car elle tire son origine des variations d'indice optique, se différenciant ainsi de l'absorption. Néanmoins la diffusion complexifie l'imagerie optique. En effet, dans les tissus biologiques épais les photons sont multiplement diffusés et par conséquent ils suivent une trajectoire aléatoire difficile à prévoir avec uniquement les positions d'entrée et de sortie du tissu. Il en résulte une perte de localisation de l'information optique. La théorie de la diffusion est expliquée dans de nombreux ouvrages comme [37]. Deux grandes théories sont utilisées pour la décrire : la théorie de Rayleigh pour les particules plus petites que la longueur d'onde et la théorie de Mie pour les particules plus grandes. Ces théories sont insuffisantes pour modéliser efficacement les tissus biologiques car ils sont constitués de structures de tailles diverses. Dans le cas de la diffusion multiple on définit l_s le libre parcours moyen de diffusion qui représente la distance moyenne parcourue par un photon entre deux événements de diffusion. L'inverse du libre parcours moyen $\mu_s = 1/l_s$ donné en cm^{-1} est caractéristique de la diffusion au niveau macroscopique. μ_s est nommé le coefficient de diffusion et est de l'ordre de $100\,\mathrm{cm}^{-1}$ pour les milieux biologiques.

Anisotropie Dans les tissus biologiques, les particules conduisant à des événements de diffusion sont en général plus grandes que la longueur d'onde, on se trouve donc dans le cas de la diffusion de Mie où la diffusion est anisotrope [37, chapitre 2]. La diffusion a principalement lieu vers l'avant c'est-à-dire proche de la direction de propagation du photon incident. On peut dès lors définir un paramètre quantifiant l'anisotropie du milieu : le coefficient d'anisotropie $g = \langle cos(\theta) \rangle$ avec θ l'angle de diffusion défini sur la figure 1.4 a). Dans de tels milieux, un événement de diffusion n'implique pas une perte immédiate de l'historique de propagation du photon (direction, polarisation et phase), on peut donc définir une nouvelle longueur caractéristique du milieu diffusant : l^* le libre parcours moyen de transport représentant la distance moyenne parcourue dans le milieu avant de perdre l'his-

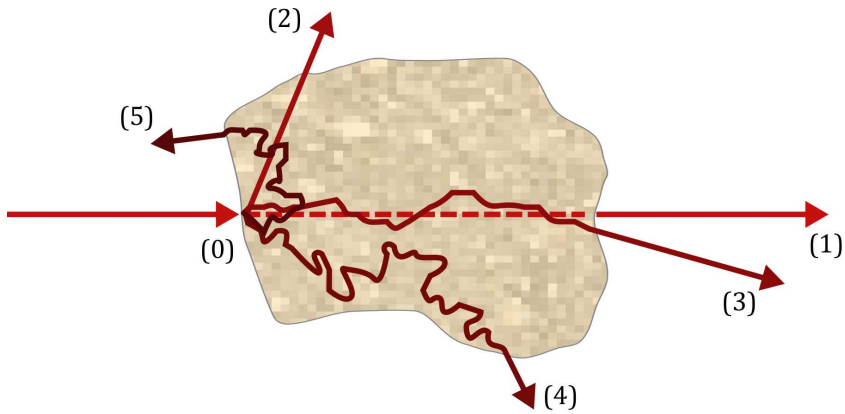

FIGURE 1.5 – Schéma des différents régimes de propagation dans un échantillon multiplement diffusant : (0) photons incidents, (1) photons balistiques, (2) photons simplement diffusés, (3) photons quasi-balistiques ou *snake-like photons* dans un milieu très anisotrope, (4) et (5) photons multiplement diffusés de manière quasi-isotrope. (5) photons rétrodiffusés vers la direction de la source.

n	Indice de réfraction	1,35 – 1,45
μ_a	Coefficient d'absorption	$1\,\mathrm{cm}^{-1}$ – $10\,\mathrm{cm}^{-1}$ à 630 nm
μ_s	Coefficient de diffusion	$100\,\mathrm{cm}^{-1}$ – $500\,\mathrm{cm}^{-1}$ dans le visible
g	facteur d'anisotropie	~ 0,9
μ'_s	Coefficient de diffusion réduit	$2\,\mathrm{cm}^{-1}$ – $70\,\mathrm{cm}^{-1}$ dans le visible

TABLE 1.2 – Propriétés optiques des tissus humains, issu de [38]

torique de la propagation. La figure 1.4 b) en donne une représentation schématique. Dans les milieux biologiques elle vaut environ 1 mm [38]. Son inverse $\mu'_s = 1/l^*$ en cm^{-1} est le coefficient de diffusion réduit et caractérise macroscopiquement la diffusion anisotrope. Ce coefficient est relié au paramètre d'anisotropie par la relation suivante $\mu'_s = \mu_s(1-g)$. Les libres parcours moyens de diffusion et de transport sont donc liés par $l^* = l_s/(1-g)$, on voit que pour des milieux très diffusants, g proche de 1, le libre parcours moyen de transport l^* est plus grand d'au moins un ordre de grandeur que le libre parcours moyen de diffusion.

Régimes de propagation On peut définir quatre types de régimes de propagation de la lumière en fonction du libre parcours moyen l_s et de l'épaisseur L des milieux. Dans le régime balistique $L \ll l_s$, tous les photons se propagent en ligne droite, ils ne sont pas diffusés. Si $L \sim l_s$ les photons ne sont diffusés qu'une seule fois : on est dans le régime de diffusion simple. Si $L \gg l_s$ on est dans un régime de diffusion multiple où l'on peut distinguer deux cas : si $L \sim l^*$ dans un milieu très anisotrope il existe des photons quasi-balistiques (*snake-like*) qui sont multiplement diffusés mais qui gardent partiellement en mémoire la direction initiale, et si $L \gg l^*$ tous les photons sont multiplement diffusés de manière quasi-isotrope. Ce dernier cas correspond aux milieux biologiques non transparents pour l'imagerie optique à plus de 1 mm de profondeur. Les différents types de propagation sont schématisés dans la figure 1.5.

1.2.3 Cas des milieux biologiques

Les échantillons biologiques sont des milieux très inhomogènes où l'on trouve une large gamme de tailles caractéristiques allant de quelques nanomètres pour les protéines à la dizaine de microns

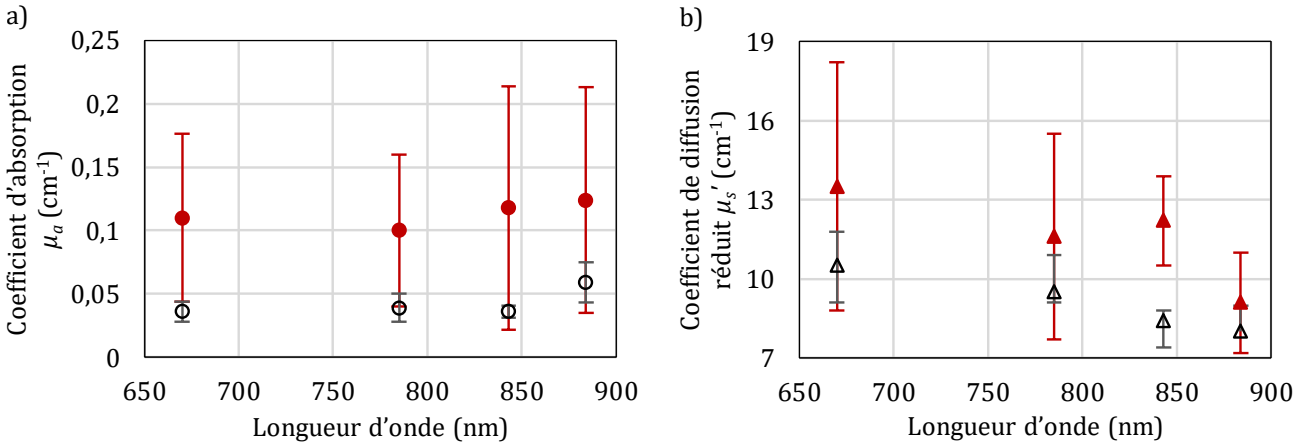

FIGURE 1.6 – Comparaison entre les propriétés optiques de carcinomes du sein et du tissus sain. (a) Évolution du coefficient d'absorption du carcinome (disques rouges) et du tissu sain environnant (cercles noirs) en fonction de la longueur d'onde. (b) Évolution du coefficient de diffusion réduit du carcinome (triangles rouges pleins) et du tissu sain environnant (triangles noirs vides) en fonction de la longueur d'onde. L'étude comprenait 87 carcinomes cliniquement avérés à 670 et 785 nm, 8 à 843 nm et 22 à 884 nm. Données de [41].

pour les cellules. Les propriétés de diffusion qui en découlent diffèrent donc de plusieurs ordres de grandeur. Des sélections de mesures de propriétés optiques d'échantillons biologiques sont réunies dans des revues bibliographiques [38, 39] ou des livres [40]. Le tableau 1.2 présente des ordres de grandeur des propriétés optiques des tissus humains recensés dans [38], comme le sang, le cerveau ou la vessie. Par exemple dans le proche infrarouge à 800 nm l'absorption des tissus de l'ordre de 1 cm^{-1} ou moins, sauf pour l'épiderme – de l'ordre de quelques dizaines de cm^{-1} – et le sang – quelques cm^{-1} [40, chapitre 2]. Dans les tissus biologiques, la diffusion se fait principalement vers l'avant et le facteur d'anisotropie g varie généralement entre 0,7 et 0,9, sauf pour les globules rouges qui sont des diffuseurs très anisotropes dans le proche infrarouge, leur facteur d'anisotropie g est supérieur à 0,99 [40, chapitre 2]. Dernier point intéressant, en général la diffusion diminue quand la longueur d'onde augmente [40, chapitre 2], ce qui renforce l'intérêt à travailler dans l'infrarouge pour l'imagerie optique.

Beaucoup de groupes travaillent à différencier les propriétés optiques des tissus cancéreux de celles des tissus sains environnants [41-45]. Il est cependant difficile de faire des généralités car il y a beaucoup de variabilité entre les différents types de tissus, les tumeurs associées et enfin il existe aussi une variabilité inter-individus. Néanmoins il existe des cas où il y a des différences visibles comme dans l'étude de Grosenick en 2005 sur des carcinomes – type de tumeurs cancéreuses – du sein [41] présentée dans la figure 1.6. Il constate qu'en moyenne l'absorption paraît deux fois plus élevée dans les carcinomes, probablement à cause de l'augmentation de la vascularisation des tissus, et que le coefficient de diffusion réduit est globalement 20% plus important pour les tumeurs que les tissus sains environnants.

L'imagerie optique a un grand potentiel pour imager les milieux biologiques, car elle offre un double contraste d'absorption et de diffusion. La double origine du contraste optique permettrait d'avoir des informations à la fois sur le métabolisme et la structure des milieux biologiques imagés. La partie suivante présente les techniques d'imagerie optique existante pour l'imagerie des tissus biologiques.

1.3 Modalité d'imagerie optique des milieux biologiques

Les médecins s'appuient depuis longtemps sur les diagnostics visuels pour évaluer les maladies. La première modalité d'imagerie optique qui a changé la perception du réel est la microscopie. Les objets observés au microscope sont bien plus petits que ceux distingués à l'œil nu. Les tissus biologiques ont ainsi pu être étudiés plus en détail en surface, créant la discipline de l'histologie. La microscopie a ensuite continué à se développer afin d'améliorer sa résolution, de mieux mettre en valeur les objets d'intérêt. La microscopie a aussi profité des avancées technologiques comme le laser. Puis à mesure de l'accroissement de la compréhension de la propagation de la lumière dans les milieux diffusants, sont apparues la tomographie par cohérence optique, une échographie optique, et la tomographie optique diffuse capable de fournir une carte des propriétés optiques du milieu diffusant en profondeur. Dans ce qui suit, je vais décrire successivement la microscopie et ses variantes, la tomographie par cohérence optique (OCT) et la tomographie optique diffuse (DOT).

1.3.1 Microscopie

Microscopie optique Un microscope optique sert à créer une image agrandie d'un objet. C'est un système composé d'un assemblage de lentilles comprenant un objectif, une plateforme pour maintenir l'objet, une source lumineuse et un système de détection de l'image de l'objet. L'image de l'objet possède deux caractéristiques principales : le grandissement dépendant de l'objectif et la résolution limitée par la diffraction de la lumière. La limite de résolution transverse d d'un microscope optique est $d = \frac{\lambda}{2NA}$, où NA est l'ouverture numérique du microscope.

Il existe beaucoup de modèles de microscope optique car de nombreux paramètres peuvent être modifiés indépendamment. Par exemple on peut changer la manière d'éclairer l'objet : éclairage en transmission, en réflexion, utilisation de marqueurs fluorescents, étude de la polarisation de la lumière pour ne citer que quelques exemples. Les concepteurs de microscopes ont aussi varié le type de source lumineuse (laser, lumière blanche), le système de détection (oeil nu, caméra, spectromètre), la reconstruction de l'image (imagerie plein champ qui donne une image 2D complète ou nécessité de balayer l'image point par point ou ligne par ligne).

Une grande variété de microscopes existe, et leurs utilisations sont tout aussi variées.

Histologie L'histologie est la branche de la biologie et de la médecine qui étudie les tissus biologiques avec un microscope optique ou électronique. Les échantillons observés font entre 100 et 200 µm d'épaisseur et sont parfois colorés pour améliorer la visibilité des structures typiques des tissus. Pour l'imagerie optique c'est la technique de référence, ou *gold standard* en anglais, à laquelle on se compare lorsque l'on développe une nouvelle technique d'imagerie. Les coupes histologiques sont généralement observées avec des microscopes à champ large classiques. Un exemple d'histologie est donné dans la figure 1.8.

Microscopie confocale La microscopie à champ large est limitée dans la mesure où si le plan focal ne contient pas un objet dans sa totalité alors l'image de celui-ci ne sera pas nette. Avec la microscopie confocale il est possible de sectionner optiquement l'échantillon, car ce type de microscope a une très faible profondeur de champ (environ 600 nm). En déplaçant le plan focal on peut donc faire plusieurs coupes de l'échantillon et réaliser ainsi une image 3D jusqu'à 400 µm de profondeur.

Microscopie multi-photons La microscopie multi-photons est une technique d'imagerie non linéaire : l'échantillon est excité avec un laser impulsionnel amplifié, puis il génère des photons de seconde ou troisième harmonique. La génération de seconde et de troisième harmonique, respectivement

SHG et THG pour leur nom anglais *Second Harmonic Generation* et *Third Harmonic Generation*, sont généralement utilisées conjointement dans le même microscope afin d'augmenter la variété des contrastes disponibles. Les composants cellulaires tels que le collagène ou les microtubules sont visibles grâce à la SHG [46] alors que la THG révèle plutôt des différences de structure dans les tissus [47]. La microscopie multi-photons n'utilise pas de marqueurs externes, mais nécessite d'être attentif à l'échauffement des tissus. On trouve aussi la flourescence à deux photnos sous l'appellation de microscopie multiphoton. Ces types d'imagerie sont limités à une profondeur de 1 mm à cause de l'absorption des tissus, mais offre une très bonne résolution grâce à l'effet non-linéaire qui assure la confocalité.

L'ensemble de ces techniques ont un problème principal : elles n'imagent pas en dessous de 1 mm de profondeur dans les échantillons. Est-il possible d'aller plus loin ?

Microscopie super-résolue L'ingéniosité des techniques de microscopie super-résolue vient de l'utilisation des fluorophores : la densité de fluorophores "allumés" est très faible, donc on peut considérer que chaque point lumineux détecté correspond à un unique fluorophore. Il suffit alors de pointer le centre de la tache d'Airy pour localiser l'emplacement du fluorophore [48-50].

1.3.2 Tomographie par cohérence optique

La tomographie par cohérence optique, *optical coherence tomography* ou OCT en anglais, est une technique d'imagerie optique utilisant l'interférométrie à faible longueur de cohérence. Le principe de la méthode est de filtrer la lumière balistique de la lumière multiplement diffusée en utilisant la cohérence. Un échantillon est illuminé avec une source faiblement cohérente. Les photons se propagent dans le milieu et sont rétrodiffusés ou réfléchis par les microstructures des tissus. En sortie du milieu uniquement les photons qui sont restés cohérents pendant leur trajet, c'est à dire les photons balistiques ou simplement diffusés, sont détectés par un montage interférométrique [51]. L'OCT fonctionne comme une échographie en remplaçant les ultrasons par de la lumière [52]. L'intérêt du large spectre d'illumination est sa faible longueur de cohérence. Ainsi, le volume de cohérence obtenu par une illumination focalisée est défini latéralement par la tache focale et axialement par la longueur de cohérence [53], illustré par la figure 1.7(a). Il est alors possible d'obtenir une tomographie 3D de l'échantillon par balayage, ainsi que le montre la figure 1.7(b).

Il y a une grande variété de techniques en OCT : la première a été l'OCT dans le domaine temporel [55], puis l'OCT dans le domaine spectral, qui présente une vitesse de balayage plus rapide, une meilleure profondeur d'imagerie [52] et une meilleure résolution [56]. On compte aussi de nombreux raffinements dont la microscopie par cohérence optique, l'élastographie par cohérence optique ou encore l'OCT plein champ, qui permet de prendre des images sans balayer de faisceaux [57] comme les images (a) et (b) de la figure 1.8.

La profondeur d'imagerie est importante pour un système tout optique : jusqu'à 2 mm de profondeur en milieu diffusant. Néanmoins la résolution maximale ne peut être conservée au delà de 1,5 mm [58]. L'avantage principal de l'OCT est sa résolution micrométrique. La résolution axiale dépend de la source lumineuse : en compensant les aberrations avec des techniques d'optique adaptative, des résolutions de 2 à 5 µm sont atteintes *in vivo* [59]. La résolution latérale dépend du système optique utilisé, par exemple environ 10 µm pour des appareils de diagnostic oculaire commerciaux [53]. Cette résolution couplée au contraste optique permet la visualisation de la microstructure des tissus biologiques [60, 61], comme le montre la comparaison avec l'histologie sur la figure 1.8. Un autre avantage de l'OCT est sa rapidité d'acquisition qui permet une imagerie en temps réel. Il est de plus possible de faire une analyse quantitative des images OCT par extraction du coefficient de diffusion μ_s, d'absorption μ_a, du facteur d'anisotropie g, et de l'indice de réfraction du milieu n [52].

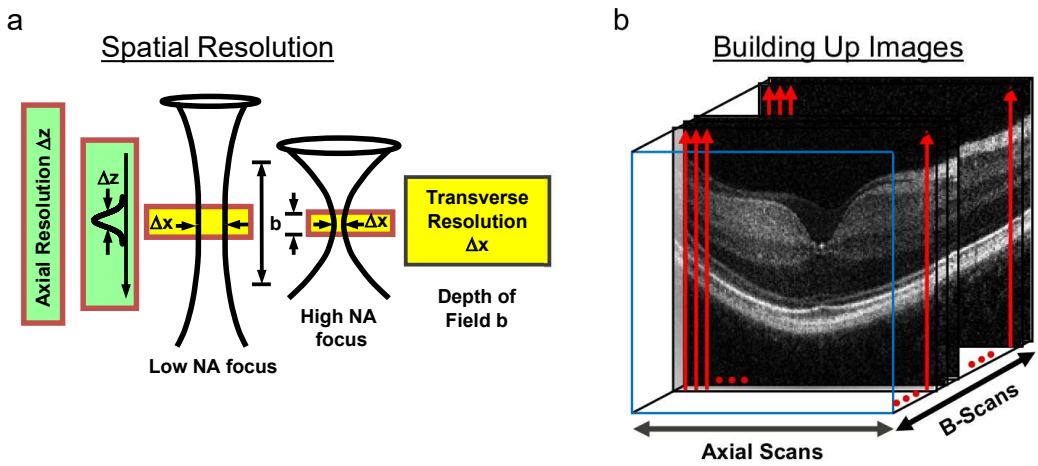

FIGURE 1.7 – Tomographie par cohérence optique (OCT) (a) Résolution axiale Δz, latérale Δx, et profondeur de champ b ; (b) Générations d'images 2D et 3D à partir di'mages 1D. Plusieurs images 1D (flèche rouge = axial scan) sont accolées dans la direction "*Axial scans*" pour générer des images 2D (*B-scan*). Les images 2D peuvent ensuite être accolées dans la direction "*B-scans*" pour former des images volumétriques 3D. Illustration de [54]

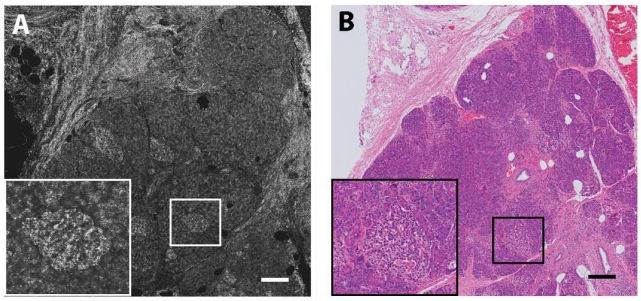

FIGURE 1.8 – (A) Image OCT plein champ de tissus du pancréas sain et (B) l'histologie correspondante. La barre d'échelle correspond à 250 µm. L'encart zoome 2,5 fois sur un îlot pancréatique. Illustration de [62].

L'OCT, comme les techniques de microscopie, est aussi limitée à une profondeur d'imagerie de 2 mm dans les milieux diffusants, même si elle fait mieux dans l'œil qui est transparent.

Les applications de l'OCT sont très nombreuses et permettent entre autre la détection et le suivi de maladies : elle pourrait même prétendre à remplacer les biopsies [52]. C'est une modalité d'imagerie qui est particulièrement répandue en ophtalmologie, mais aussi assez commune en dermatologie [63]. On utilise aussi l'OCT en oncologie [58], en dentisterie, en neurologie avec l'OCT fonctionnelle ou en cardiologie grâce à l'imagerie intravasculaire [52].

1.3.3 Tomographie optique diffuse

La tomographie optique diffuse, *diffuse optical tomography* (DOT) en anglais, basée sur la spectroscopie proche infrarouge permet d'imager avec de la lumière diffuse. Son principe est le suivant : de la lumière est injectée dans l'échantillon et le signal détecté plus loin est analysé pour récupérer l'information que les photons ont accumulé pendant leur trajet. On a ainsi accès aux caractéristiques optiques de l'échantillon observé, et par conséquent à des paramètres physiologiques tels que l'oxygénation du

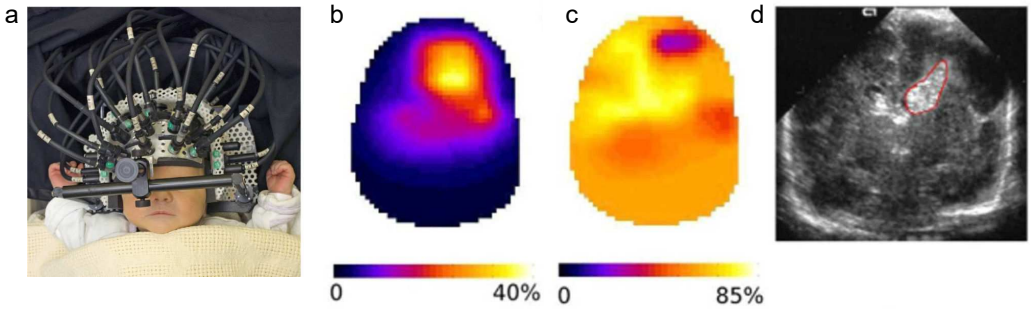

FIGURE 1.9 – Tomographie optique diffuse (DOT) (a) Placement des sondes sur un nourrisson. Sections coronale montrant (b) le volume sanguin, (c) l'oxygénation du sang (d) échographie correspondante. Illustration republiée de [66] avec la permission de Springer Nature.

sang. Pour réaliser une tomographie optique, l'échantillon est discrétisé en éléments de volumes. Pour chaque élément de volume, on cherche à résoudre le problème inverse afin de reconstituer la trajectoire des photons détectés et ainsi trouver la quantité du paramètre physiologique d'intérêt [64]. Le modèle de propagation des photons généralement utilisé est celui de la marche aléatoire, il est valide pour une radiance quasi-isotrope, une source isotrope, de petites variations temporelles du flux lumineux et dans une symétrie de rotation. Ce modèle principal est corrigé lorsque l'on s'approche d'une interface tissu/air, ou que le tissu est très anisotrope ou encore très absorbant comme le foie ou encore peu diffusant [65]. Le coefficient d'absorption d'un tissu dépend linéairement de la concentration de ses chromophores : avec la reconstruction de l'image, on peut donc cartographier les chromophores de l'échantillon imagé. À partir des informations sur les chromophores il est possible de remonter à des paramètres physiologiques, l'exemple phare étant l'oxygénation du sang à partir des concentrations relatives d'hémoglobine oxygénée et désoxygénée, ou le volume sanguin comme sur la figure 1.9.

La DOT est une technique qui a un fort contraste intrinsèque, qu'il est possible d'améliorer avec des agents de contraste exogènes [65]. Mais elle manque d'informations spatiales, c'est à dire de résolution [67], qui est liée à la densité de capteurs et à l'efficacité des algorithmes de reconstruction. Il y a aussi un compromis à trouver entre la profondeur d'observation (6 cm maximum en moyenne [68]) et le rapport signal à bruit [69]. Cependant les performances de la DOT se sont améliorées entre autres grâce à l'augmentation de la compacité et la diminution du coût des équipements de quatre ordres de grandeurs en 20 ans, permettant d'atteindre des vitesses d'imagerie d'une image de 30 pixels par seconde [69]. La DOT est utilisée pour l'imagerie fonctionnelle du cerveau, en particulier chez l'enfant, et pour le dépistage de cancer en particulier celui du sein.

Il existe différents types de DOT selon le type d'illumination ou de détection : continue, filtrage spectral ou temporel des photons [69]. L'utilisation de la lumière structurée en DOT facilite la quantification et la caractérisation des propriétés physiologiques des tissus et permet l'accélération de la vitesse d'imagerie et de reconstruction, réduite à quelques minutes sur un ordinateur portable [64]. Ces avancées couplées aux approches d'acquisition compressée permettent le développement de systèmes d'imagerie utilisant un unique détecteur capable de faire de l'imagerie 2D sans parties mobiles, nommés *single pixel approach* en anglais [64]. Parallèlement se développent aussi des systèmes de DOT sans contact recherchant portabilité, haute densité de fibre pour améliorer la résolution pour l'imagerie du crâne entier [70]. Il existe une variante de la DOT qui image *in vivo* la diffusion créée par un flux : la spectroscopie par corrélation diffuse ou *diffuse correlation spectroscopy* en anglais [65].

L'imagerie optique offre des images à haute résolution si on reste à 1–2 mm de la surface des tissus

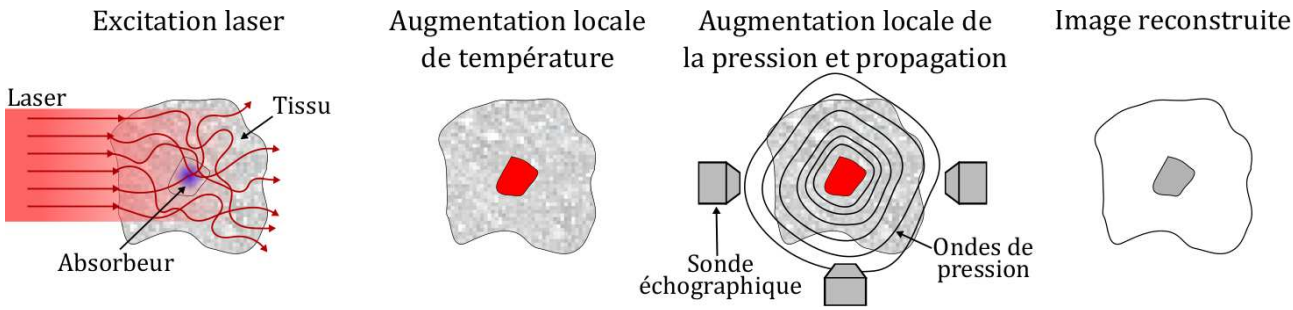

FIGURE 1.10 – Principe de l'imagerie photoacoustique : un laser excite le milieu, un chromophore absorbe la lumière donc sa température augmente, des ondes ultrasonores sont émises et détectées, afin de reconstruire la carte des chromophores. Illustration adaptée de [71] avec la permission de Springer Nature.

diffusants comme la microscopie et l'OCT. La seule modalité d'imagerie tout optique à dépasser la limite de diffusion et atteindre plusieurs centimètres de profondeur est la DOT, mais c'est au prix de longs temps de calcul et d'une résolution réduite.

Dans le cadre du développement d'une méthode d'imagerie en temps réel, spécifique, pouvant détecter une tumeur cancéreuse millimétrique à quelques centimètres dans les tissus, une méthode tout optique n'est pas viable. Dans la suite de cette thèse je vais par conséquent me concentrer sur des méthodes d'imagerie hybride mêlant l'échographie, qui a de très bonnes performances, et l'imagerie optique. Ces modalités inventées récemment et encore à un stade de développement précoce, présentent un important potentiel et de fait pourraient être une solution à notre problème. Ces modalités d'imagerie hybrides – la photoacoustique et l'acousto-optique – permettent grâce à l'association de photons et d'ultrasons de garder une meilleure résolution en profondeur. En effet, les ultrasons se propagent de manière balistique dans les milieux biologiques. Ces modalités hybrides profitent des avantages du contraste optique : les agents de contraste endogènes permettant l'imagerie fonctionnelle, métabolique et histologique, et les agents de contraste exogènes l'imagerie moléculaire et cellulaire.

1.4 Imagerie photoacoustique

L'imagerie photoacoustique (PA), encore appelé tomographie photoacoustique soit en anglais *photoacoustic tomography* (PAT), détecte acoustiquement le contraste d'absorption optique grâce à l'effet photoacoustique, effet photo-thermique spécifiques aux ondes ultrasonores : les ondes lumineuses absorbées par le milieu sont converties en énergie acoustique.

1.4.1 Principe

Le principe de l'imagerie PA est schématisé dans la figure 1.10. D'abord une impulsion laser illumine l'échantillon, les photons se propagent dans le milieu et sont absorbés par des absorbeurs. L'effet photoacoustique a lieu : l'énergie optique absorbée est partiellement ou totalement convertie en chaleur par un processus de relaxation non radiatif, induisant un échauffement local de l'échantillon. L'échauffement crée une onde de pression qui se propage sous forme d'onde ultrasonore dans l'échantillon et qui est détectée en sortie de l'échantillon par des transducteurs ultrasonores ou des sondes échographiques. Les signaux seront analysés afin de reconstruire une image de la distribution d'énergie optique absorbée par les tissus. [71]

Il y a plusieurs sources de contraste en PA, qui sont très similaires à celles disponibles pour la DOT. Les premiers sont les chromophores endogènes qui permettent de faire de l'imagerie sans

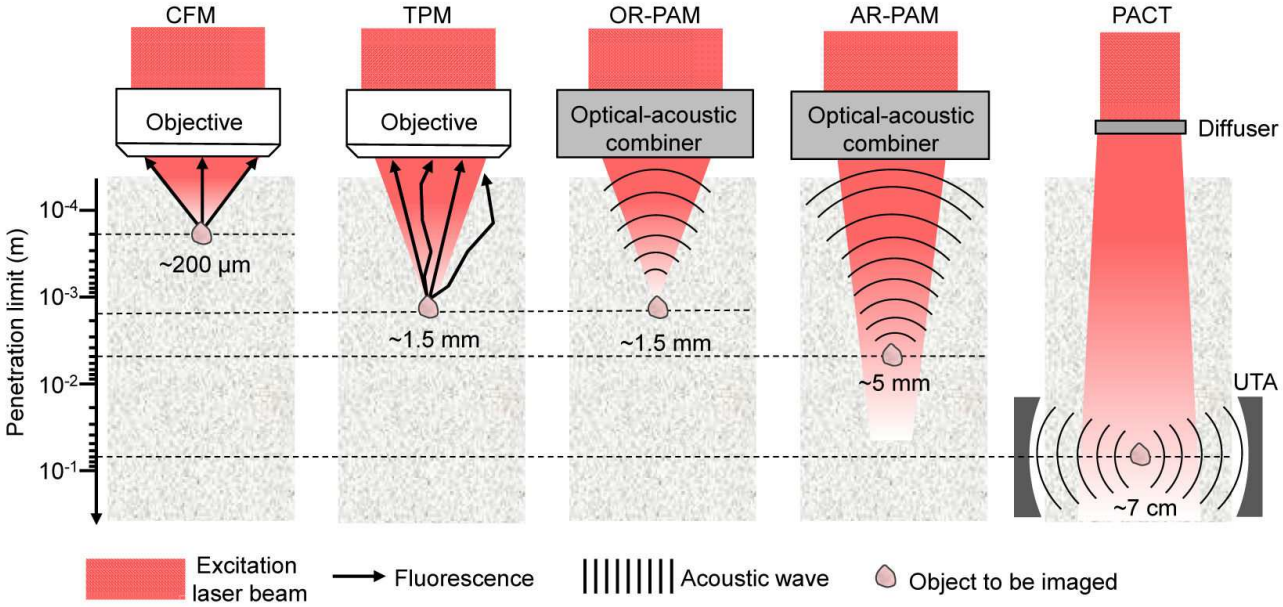

FIGURE 1.11 – Émission et réception des signaux en microscopie confocale (CFM), microscopie à deux photons (TPM), microscopie photoacoustique (PAM) avec résolution optique (OR-PAM) ou acoustique (AR-PAM) et enfin la tomographie photoacoustique (PACT). Illustration republiée de [71] avec la permission de Springer Nature.

marqueurs comme par exemple : l'hémoglobine, les lipides, l'ADN et l'ARN, l'eau, la mélanine et d'autres plus spécifiques à l'imagerie cellulaire [71]. L'hémoglobine revêt un intérêt particulier car on peut en déduire beaucoup d'informations fonctionnelles et métaboliques. Il est aussi possible d'utiliser des agents exogènes qui offrent un meilleur contraste mais dont la biocompatibilité doit être vérifiée [72, 73], comme les molécules d'or associées à des anticorps spécifiques [74].

1.4.2 Modalités photoacoustiques

Il existe plusieurs modalités d'imagerie photoacoustiques qui permettent d'imager les milieux biologiques à plusieurs échelles : la microscopie photoacoustique (PAM) avec ses variantes super-résolue (SR-PAM), à résolution optique (OR-PAM) ou à résolution acoustique (AR-PAM) et enfin la tomographie optique (PACT). À chaque profondeur d'imagerie correspond une résolution, en ordre de grandeur environ 200 fois plus petite que la profondeur de pénétration [71]. La figure 1.11 est une représentation comparative de la création et de la réception des signaux pour plusieurs techniques d'imagerie PA et donne à titre de comparaison la microscopie confocale qui n'utilise que les photons balistiques et la microscopie à deux photons utilisant les photons balistiques et quasi-balistiques.

Microscopie photoacoustique à résolution optique en anglais *optical resolution photoacoustic microscopy* (OR-PAM) est la famille de modalité PA la plus résolue mais dont la profondeur d'imagerie est la plus limitée. Jusqu'à la limite de 1 mm de profondeur il est possible d'imager des cellules individuelles. La résolution axiale vient de la largeur de la bande passante de détection : plus elle est grande, plus la résolution s'améliore, le mieux étant d'utiliser les ultra hautes fréquences entre 100 et 1000 MHz). La résolution latérale vient du diamètre du faisceau laser au point focal. La vitesse d'imagerie est d'environ 30 Hz, c'est-à-dire 30 images de quelques micromètres carrés par secondes . En surface, on peut réaliser de l'OR-PAM super-résolue, encore appelée *super resoluted photoacoustic*

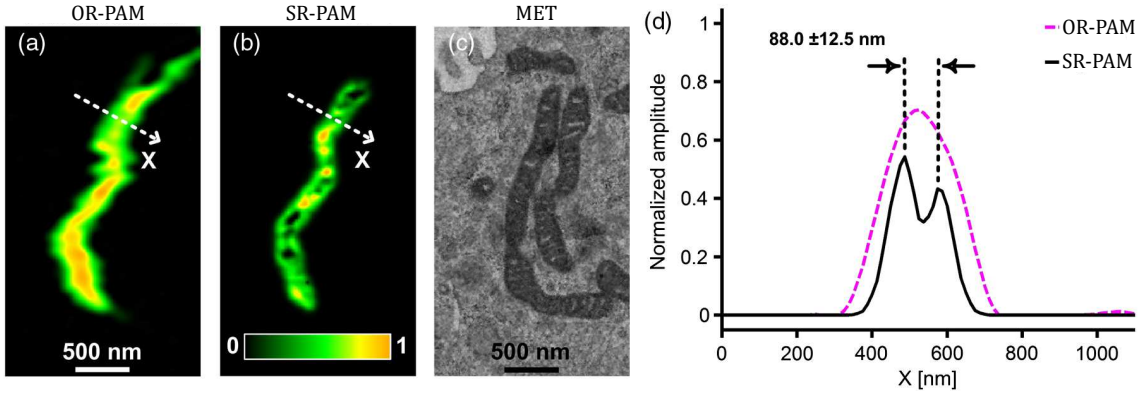

FIGURE 1.12 – Images de mitochondrie : sa structure tubulaire est reconnaissable sur les trois images obtenues par (a) OR-PAM microscopie photoacoustique à résolution optique, (b) SR-PAM microscopie photoacoustique super résolue et (c) microscope électronique en transmission. (d) représente l'amplitude normalisée de la coupe des images (a) et (b) selon la ligne pointillée. Illustration de [76].

microscopy (SR-PAM), grâce à l'utilisation d'effets non linéaires : la résolution est meilleure que la limite de diffraction comme on le voit dans la figure 1.12 [71, 75].

Microscopie photoacoustique à résolution acoustique en anglais *acoustic resolution PAM* (AR-PAM), a une profondeur d'imagerie pouvant aller jusqu'à 1 cm, permettant l'imagerie tissulaire avec une résolution acoustique. Comme pour l'OR-PAM la résolution axiale vient de la largeur de la bande passante de détection, mais la résolution latérale vient de la longueur de Rayleigh de la zone focale de la sonde ultrasonore, qui est liée à sa fréquence centrale de détection : plus la fréquence est grande meilleure est la résolution. La vitesse d'imagerie est d'environ 40 Hz. Cependant la diffusion de la lumière dans le milieu commence a être problématique, car les impulsions lumineuses ne sont plus aussi focalisées, donc il y a une perte de signal [71, 75].

Tomographie photoacoustique ou aussi appelée en anglais *photoacoustic computed tomography* (PACT), est la modalité d'imagerie photoacoustique qui permet la plus grande profondeur d'imagerie (plusieurs centimètres) et la plus grande vitesse d'imagerie (typiquement 50 Hz). Cependant il y a un compromis à trouver entre la profondeur d'imagerie et la résolution souhaitée. En effet la résolution augmente avec l'augmentation de la fréquence centrale de détection et la bande passante des sondes échographiques, mais les ultrasons sont atténués par les tissus biologiques de l'ordre de $0{,}3\,\mathrm{dB\,cm^{-1}\,MHz^{-1}}$ en moyenne [77]. Un autre point faible de la PACT est la diffusion de la lumière qui disperse l'impulsion lumineuse dans le milieu, le signal est donc plus faible et pour compenser il faut augmenter la puissance de l'impulsion. La PACT permet l'imagerie de l'organe entier *in vivo* comme le sein, et est disponible commercialement [71].

1.4.3 Développements et applications

L'axe majeur de développement est l'imagerie quantitative. En effet pour pouvoir identifier quantitativement les absorbeurs dans l'échantillon il faut connaître la répartition du flux lumineux dans celui-ci, à la fois en profondeur et pour chaque longueur d'onde utilisée. C'est une information difficile à connaître *a priori*. Une option pour atteindre une imagerie quantitative consiste à utiliser la méthode de paramètrage spectral, développée pour l'échographie, pour l'imagerie PA [28, 78, 79].

Un autre axe de développement est l'imagerie PA au delà du contraste optique d'absorption. Une première possibilité est de l'associer à l'échographie, l'IRM, l'OCT, la DOT ou d'autres techniques pour créer des plateformes multimodales. On peut aussi utiliser la sensibilité intrinsèque de la PA aux ondes mécaniques pour réaliser des mesures de viscosité. Il est encore possible de faire de l'imagerie fonctionnelle en remontant à la composition des tissus à partir de la mesure d'absorption, comme c'est fait en DOT, pour mesurer par exemple la saturation du sang en oxygène. Enfin on peut réaliser de l'imagerie thermique car la PA est sensible au coefficient de Gruneisen relié à la température ou encore de l'imagerie Doppler. [80]

La PA est particulièrement utilisée en oncologie que ce soit pour la détection de cancer du sein ou pour l'identification de cellules cancéreuses individuelles [75]. La PACT peut aussi être utilisée pour l'imagerie du cerveau [71]. La miniaturisation des équipements permet de les utiliser sur des endoscopes. Finalement, il y a aussi un effort fourni dans le transfert des technologies de PA de la recherche vers des études pré-cliniques jusqu'aux applications cliniques [81].

L'imagerie photoacoustique offre de belles performances en surface, mais moins en profondeur bien qu'elle puisse imager à plusieurs centimètres dans les milieux diffusants. Elle est limité en résolution par les ultrasons, la diffusion de la lumière limite la puissance du signal disponible en profondeur mais surtout son principal désavantage est son signal non-quantitatif. Nous verrons dans ce qui suit que l'imagerie acousto-optique est intrinsèquement plus quantitative et tolère mieux la diffusion dans les milieux biologiques.

1.5 Imagerie acousto-optique

L'imagerie acousto-optique (AO) ou tomographie acousto-optique ou tomographie optique modulée par ultrason, soit en anglais *ultrasound-modulated optical tomography*, est une technique hybride utilisant son et lumière. Elle permet de faire de l'imagerie optique mieux résolue en profondeur dans les tissus biologiques grâce à la combinaison de la résolution des ultrasons, dont la propagation est balistique dans les tissus, et le contraste optique qui informe sur le métabolisme des tissus. Donc tout comme la photoacoustique, l'acousto-optique utilise photons et ultrasons, elle est cependant moins répandue car les expériences sont plus délicates à mettre en place. Les applications médicales de l'acousto-optique sont similaires à celle de la photoacoustique. L'intérêt principal reste l'oncologie pour la détection et le suivi de cancer, en particulier pour le cancer du sein. Nous verrons dans cette partie les principes généraux de l'imagerie acousto-optique puis les différentes manières de créer une image, et nous terminerons par une synthèse des méthodes de détection du signal acousto-optique en milieu diffusant.

1.5.1 Principes

L'effet acousto-optique Brillouin découvrit en 1921 comment la propagation de la lumière était modifiée dans un milieu soumis à des ondes élastiques. En 1932, Debye et Sears, Lucas et Biquard observèrent qu'une onde acoustique avait la capacité de créer un réseau de diffraction dans un solide, ce qui a pour conséquence de diffracter la lumière qui le traverse [82, 83]. Les atomes du milieu sont déplacés par l'onde sonore ce qui entraine une modification de la densité locale du milieu et donc de l'indice de réfraction. C'est l'effet acousto-optique. Il a deux incidences sur la lumière : une déviation angulaire et un décalage en fréquence. Si le solide est illuminé avec une incidence normale, la lumière diffractée à l'ordre m est déviée de l'angle θ_m et à une fréquence f_m comme le décrivent les équations

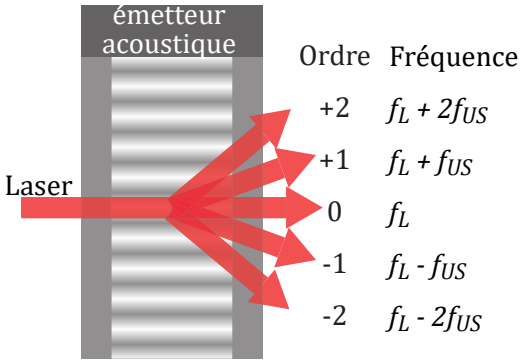

FIGURE 1.13 – Effet acousto-optique dans le régime de Raman-Nath (cas de réseaux minces) : La lumière en incidence normale sur l'échantillon est diffractée par le réseau d'indice créé par l'émetteur acoustique. On ne représente que les ordres de diffractions inférieurs à deux. En face de chaque ordre de diffraction est donnée la fréquence de la lumière diffractée correspondante. f_L est la fréquence du laser incident, f_{US} est la fréquence de l'onde ultrasonore.

ci-dessous et la figure 1.13 :

$$\begin{cases} \theta_m &= \arcsin\left(\frac{m\lambda}{\Lambda}\right) \\ f_m &= f_L \pm m f_{US} \end{cases} \tag{1.2}$$

où Λ est la longueur d'onde acoustique, λ la longueur d'onde optique et m l'ordre de diffraction, f_L est la fréquence de la lumière incidente, typiquement d'un laser, et f_{US} la fréquence ultrasonore. C'est le décalage en fréquence, dû à une modulation de phase, qui va nous servir à isoler le signal acousto-optique pertinent. En effet l'indice de réfraction est modulé par les ondes ultrasonores : le chemin optique entre deux évènements de diffusion est modulé. Un second mécanisme intervient dans les milieux diffusants : le chemin optique est modulé à chaque évènement de diffusion à cause du déplacement des diffuseurs.

Marquer les photons Quand les photons, qui diffusent dans les tissus biologiques, passent dans le volume occupé par l'onde acoustique, ils sont localement diffractés. Ces photons sont déviés mais cette information est perdue à cause de la diffusion multiple et surtout ils sont décalés en fréquence. On les appelle photons marqués, car ils ont été marqués par les ultrasons. Leur fréquence est égale à $f_{PM} = f_L \pm f_{US}$, en général seules les premières bandes latérales sont considérées, compte tenu des pressions utilisées. La figure 1.14 schématise la propagation des photons dans un milieu très diffusant alors qu'ils sont soumis à l'effet acousto-optique. L'illustration 1.14(a) montre le recouvrement spatial entre photons diffusés et le foyer ultrasonore et attire l'attention sur le speckle en sortie de l'échantillon. La courbe 1.14(d) montre un spectre typique d'un faisceau lumineux partiellement marqué acoustiquement. Ce marquage acoustique est schématisé dans l'illustration 1.14(b). La lumière multiplement diffusée accumule la modulation du chemin optique pendant sa propagation, par conséquent l'intensité du speckle formé par cette lumière diffusée est modulée comme le montre la courbe 1.14(c). Les photons marqués sont porteurs des informations optiques de la région d'interaction entre la lumière et les ultrasons. On est ainsi capable de mesurer des variations des coefficients d'absorption et de diffusion.

Difficultés de la technique Le défi principal de l'imagerie acousto-otique est de détecter efficacement le faible signal de photons marqués alors que le fond de lumière non modulée est très important. Plusieurs groupes ont fait des simulations pour estimer le ratio entre photons marqués et photons non

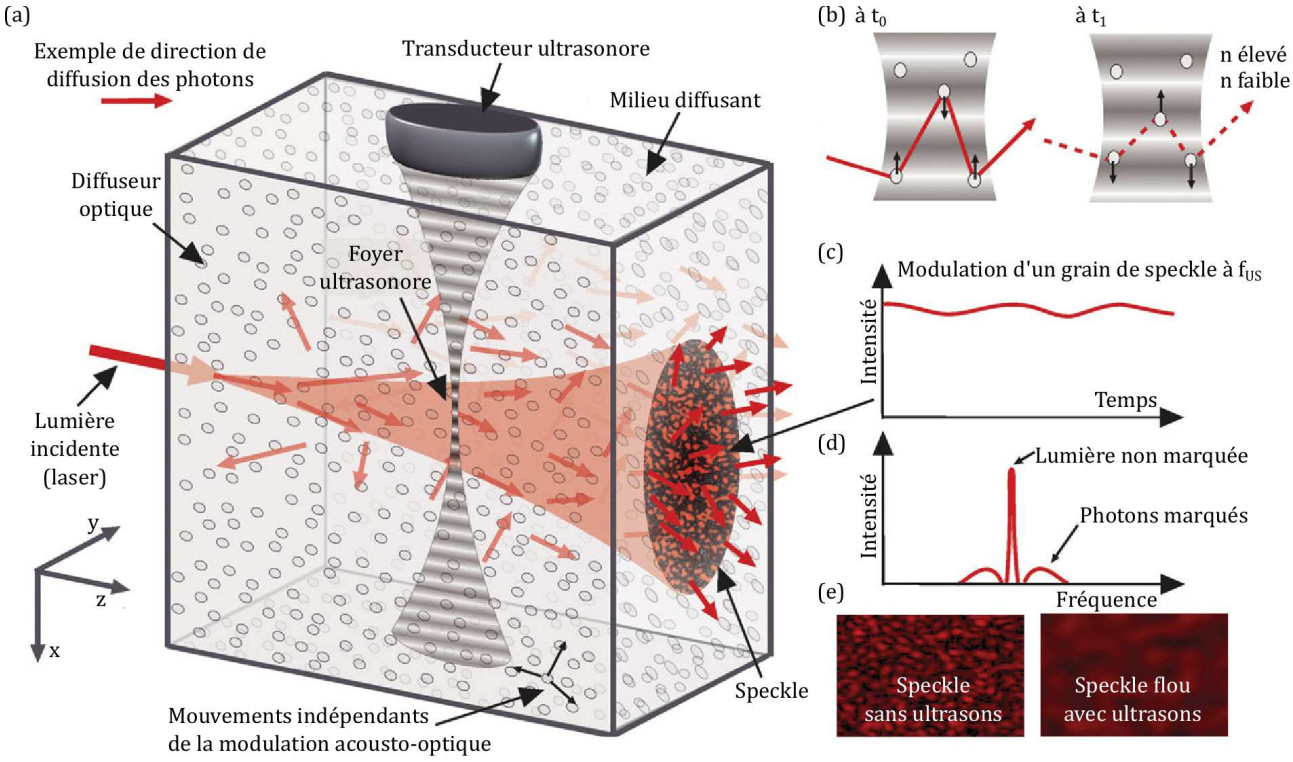

FIGURE 1.14 – (a) Illustration de la propagation de la lumière diffuse à travers un milieu fortement diffusant en présence d'une onde acoustique continue et focalisée. (b) Schéma des deux mécanismes de marquage acoustique : la modulation de l'indice du milieu et la modulation du mouvement des diffuseurs. (c) Modulation d'un grain de speckle modulé à f_{US} observé en sortie du milieu diffusant. (d) Spectre du speckle en sortie du milieu diffusant. (e) Comparaison des figures de speckle en sortie du milieu diffusant avec et sans la présence de l'onde ultrasonore. Illustration republiée de [84] avec la permission de la Royal Society.

marqués, il est estimé entre 0,01 et 1% [85-87]. Les grandeurs clés à retenir sur le nombre de photons marqués sont mises en valeur par cette relation dérivée dans la thèse de Clément Dupuy [88].

$$\Psi_{PM}(\mathbf{r'}) = \beta\Psi_0 \int \Omega(\mathbf{r},\mathbf{r'})I(\mathbf{r})P_{US}(\mathbf{r})^2 d\mathbf{r} \tag{1.3}$$

avec $\Psi_{PM}(\mathbf{r'})$ la puissance lumineuse des photons marqués à la position $\mathbf{r'}$ en dehors de l'échantillon, Ψ_0 la puissance lumineuse sans les ultrasons, $\Omega(\mathbf{r},\mathbf{r'})$ la probabilité que le photon marqué à la position $\mathbf{r}$ arrive à la position $\mathbf{r'}$ en dehors de l'échantillon, $I(\mathbf{r})$ est l'éclairement à la position $\mathbf{r}$ dans l'échantillon, $P_{US}(\mathbf{r})$ est la pression acoustique à la position $\mathbf{r}$ dans l'échantillon et β un coefficient de proportionnalité.

D'abord l'intensité du signal des photons marqués est proportionnelle au premier ordre au carré de la pression acoustique. Ensuite le nombre de photons marqués dépend du flux lumineux intégré sur l'ensemble du volume excité par les ultrasons, typiquement quelques mm^3. Donc pour avoir le meilleur signal possible on voudrait augmenter la pression acoustique et l'intensité lumineuse au maximum tout en restant dans les normes médicales décrites en annexe A. Enfin la quantité de signal dépend de la probabilité de détection de chaque photon par le détecteur. Cette probabilité est liée à la collection de la lumière diffuse en sortie de l'échantillon par le détecteur. La grandeur clé du système optique qui correspond à cette probabilité est l'étendue. Elle est la grandeur géométrique qui caractérise la taille du faisceau lumineux dans un système optique, elle se mesure en $\mathrm{sr} \cdot \mathrm{mm}^2$. L'étendue G se calcule comme le produit de la surface S de la source lumineuse (ou du récepteur) multiplié par l'angle solide ω qui limite la partie du faisceau qui atteint le détecteur : $G = S \times \omega$. Si on se place en sortie d'un diffuseur parfait ($\omega = 2\pi$) dont la section du cône de diffusion fait 1 cm de diamètre, l'étendue de la lumière diffuse est de l'ordre de $500\,\mathrm{sr} \cdot \mathrm{mm}^2$, bien plus élevée qu'un système d'imagerie classique. Il faut donc trouver des solutions pour collecter au mieux la lumière diffuse.

La seconde difficulté majeure de l'imagerie acousto-optique provient des tavelures ou *speckle* formées par l'interférence entre les photons qui ont suivi des trajectoires aléatoires dans l'échantillon diffusant. La phase de chaque grain de speckle, dont l'intensité est modulée temporellement, est aléatoire. Par conséquent pour détecter efficacement les photons marqués il faut user de stratagèmes plus élaborés qu'une simple moyenne spatiale sur un unique photodétecteur. De plus, les diffuseurs, en particulier *in vivo*, peuvent avoir des mouvements indépendants de la modulation acousto-optique, liés par exemple à la circulation du sang ou à la respiration. Le speckle se décorrèle à cause de ces mouvements en moins d'une milliseconde jusqu'à 100 ms [89, 90]. La vitesse de décorrélation du speckle définit ainsi une vitesse limite d'acquisition du signal acousto-optique, particulièrement drastique pour certaines techniques de détection interférométrique, comme nous allons le voir plus loin.

1.5.2 Créer une image

Il existe plusieurs manières d'explorer un échantillon pour créer une image acousto-optique. Certaines techniques sont inspirées de l'échographie comme l'utilisation d'ondes ultrasonores focalisées, d'autres plutôt de la tomographie dans le cas d'utilisation d'ondes planes, et enfin il y a aussi l'imagerie par transformée de Fourier. Toutes ces techniques demandent en général de trouver des compromis entre rapidité d'acquisition, résolution axiale et latérale ou encore la quantité de signal acousto-optique disponible.

1.5.2.1 Ondes focalisées

L'image est acquise ligne par ligne perpendiculairement à la direction de propagation globale du faisceau lumineux. Pour avoir une image 2D il fallait alors déplacer mécaniquement la sonde dans une direction transverse. La figure 1.15 schématise l'obtention d'une image avec une onde focalisée

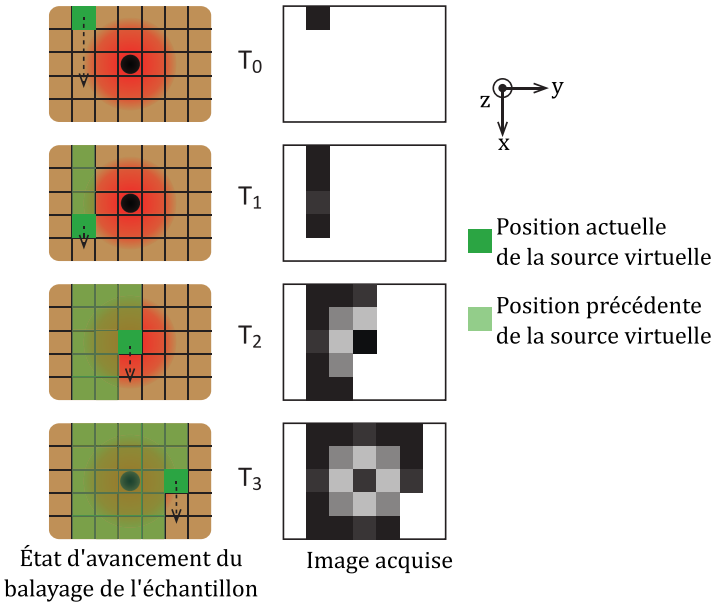

FIGURE 1.15 – Reconstruction d'une image par balayage de la tache focale acoustique dans l'échantillon. La tache focale marque les photons dans un volume spécifique. En translatant ce volume, il est possible d'extraire les propriétés optiques d'un milieu très diffusant comme les tissus biologiques. Illustration adaptée de [51].

impulsionnelle, comme en échographie B-mode. L'impulsion ultrasonore est la source virtuelle de photons marqués. Sa position dans l'échantillon étant connue, l'origine des photons marqués détectés l'est aussi. Quand l'impulsion se propage, elle se déplace longitudinalement dans l'échantillon selon la direction x de la figure, elle explore donc une ligne dans l'échantillon. A la fin de la ligne, il suffit de décaler la sonde selon la direction y par exemple sur la figure, et de recommencer pour cartographier l'ensemble de l'échantillon.

La résolution transverse, dans les directions y ou z, est la taille de la tache de focalisation acoustique, qui dépend donc de la longueur d'onde utilisée. Pour un transducteur mono-élement circulaire la résolution s'approxime comme suit :

$$dy = dz \approx 1,22 \cdot \frac{c_{US}}{f_{US}} \cdot \frac{F}{D} = 1,22 \cdot \frac{\lambda_{US}}{ON} \tag{1.4}$$

où c_{US} est la vitesse des ultrasons dans le milieu, f_{US} la fréquence des ultrasons, λ_{US} la longueur d'onde des ultrasons, F la distance focale du transducteur, D le rayon du transducteur et ON l'ouverture numérique du transducteur. Pour avoir la meilleure résolution possible l'idéal serait d'utiliser des ondes sonores de la plus haute fréquence possible. Mais le problème est le même qu'en imagerie photoacoustique : les ultrasons sont absorbés par les tissus biologiques et cette absorption augmente avec la fréquence, en moyenne 0,3 dB/MHz/cm [77].

Transducteur mono-élément et onde continue Les premières démonstrations de principe de l'imagerie acousto-optique en milieu diffusant ont été réalisées avec des ondes acoustiques focalisées et continues émises par un transducteur mono-élément [91]. Le principe d'acquisition d'image 2D est similaire à celui décrit plus haut, à la différence que l'on acquiert directement une ligne et il n'y a pas besoin de suivre la propagation de l'onde ultrasonore. Le point faible principal de cette technique est la résolution longitudinale dx – dans la direction de propagation des ultrasons – égale à la longueur

de Rayleigh l_R du transducteur [51].

$$l_R \approx 7 \cdot \frac{c_{US}}{f_{US}} \cdot \left(\frac{F}{D}\right)^2 = 7 \cdot \frac{\lambda_{US}}{ON^2} \tag{1.5}$$

soit environ $dx = l_R = 2{,}1\,\mathrm{mm}$ avec $f_{US} = 5\,\mathrm{MHz}$, $c_{US} = 1500\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ et $D = F = 5\,\mathrm{cm}$ donc $ON \approx 1$.

Ondes impulsionnelles L'utilisation d'ondes focalisées et impulsionnelles permet d'améliorer la résolution dans la direction de propagation des ultrasons. Cette résolution devient l'extension longitudinale de l'impulsion ultrasonore, dit autrement la durée de l'impulsion ou le nombre de cycles dans l'impulsion [51].

$$dx = N_c \cdot \frac{c_{US}}{f_{US}} = N_c \cdot \lambda_{US} \tag{1.6}$$

où N_c est le nombre de cycles ultrasonores dans l'impulsion. Pour une impulsion ultrasonore de $N_c = 2$ cycles à $f_{US} = 5\,\mathrm{MHz}$, la résolution longitudinale est $dx = 0{,}6\,\mathrm{mm}$. Cependant il y a moins de signal car il y a moins de photons marqués à chaque tir d'ultrason que pour une onde continue [86].

Sonde échographique - matrice de transducteurs Pour se passer du balayage mécanique, il faut utiliser des matrices de transducteurs comme dans une sonde échographique classique. Ainsi on augmente la vitesse d'acquisition et on simplifie le montage expérimental. Chaque transducteur est contrôlé électroniquement afin d'effectuer un balayage transverse de l'échantillon sans avoir à bouger la sonde.

1.5.2.2 Ondes planes

L'utilisation d'ondes planes ultrasonores en imagerie acousto-optique s'inspire de techniques tomographiques comme la tomodensitométrie ou encore l'échographie ultra-rapide. Le principe est le suivant : des ondes planes sont envoyées dans l'échantillon avec des angles variés. Le signal doit ensuite être reconstruit par une rétroprojection filtrée, proche de la transformée de Radon inverse [92]. La résolution transverse dépend de la plage d'angles explorés : pour avoir une résolution isotrope il faudrait une plage de 180 °. La résolution longitudinale est donnée par le caractère impulsionnel des ondes ultrasonores émises. L'intérêt principal de cette technique est la rapidité d'acquisition. En effet à pression acoustique donnée le volume de marquage des photons marqués étant plus grand, il y a plus de signal, ce qui permet de diviser le nombre de moyennes par 50. Les faiblesses de cette technique sont le calcul indirect de l'image et une limitation technique liée aux sondes échographiques : elles ne proposent qu'une ouverture angulaire de 40 °.

Ondes structurées Pour pallier à l'ouverture angulaire limitée de sondes échographiques, il est possible de structurer périodiquement le front d'onde. Ainsi la fonction de transfert sera élargie c'est à dire qu'il y aura plus de fréquences spatiales accessibles pour la reconstruction, donc une meilleure résolution. On obtient alors une résolution isotrope tout en conservant une vitesse d'imagerie élevée [93].

1.5.2.3 Imagerie par transformée de Fourier

L'imagerie acousto-optique par transformée de Fourier, soit en anglais *Fourier-Transform Acousto-Optic Imaging* (FT-AOI), a été développée par Barjean [94-96] et utilise de longues impulsions ultrasonores modulées pour obtenir des images acousto-optiques résolues longitudinalement. Cette technique s'appuie sur une double démodulation du signal. Une impulsion ultrasonore modulée en amplitude se

propage dans le milieu. Le signal acousto-optique est d'abord extrait du reste du signal grâce à une détection synchrone, c'est à dire une démodulation du speckle à la fréquence des ultrasons comme on le verra dans la sous-partie 1.5.3. Ce signal contient des informations sur les composantes de Fourier à la fréquence de la modulation d'amplitude sur la ligne de propagation des ultrasons [95]. C'est pourquoi le signal acousto-optique est démodulé une seconde fois à la fréquence de la modulation d'amplitude. Les composantes de Fourier sont enregistrées pour plusieurs fréquences de modulation d'amplitude, on peut reconstruire le signal acousto-optique de la ligne explorée par transformée de Fourier inverse. La résolution longitudinale est liée à la fréquence de modulation d'amplitude maximale qui peut être mesurée [88]. Comme pour les ondes focalisées, la résolution transverse est liée à la taille de la tache focale ultrasonore.

1.5.3 Techniques de détection

La détection est un point critique de l'imagerie acousto-optique car le signal des photons marqués est faible et sous forme de speckle, qui n'est pas forcément stationnaire.

1.5.3.1 Détection synchrone

La détection synchrone, appelée en anglais *lock-in detection*, permet d'extraire un signal d'un environnement très bruité si ce signal est modulé à une fréquence connue. Dans une expérience d'imagerie acousto-optique, le signal optique, comprenant le signal acousto-optique modulé à la fréquence des ultrasons, sera détecté par étapes : séparation des composantes AC et DC du signal optique, amplification de la partie AC, multiplication du signal AC amplifié par une sinusoïde à la fréquence ultrasonore (détection homodyne), puis réalisation d'un filtrage passe-bas avec une fréquence de coupure variable pour sélectionner spécifiquement le signal acousto-optique [91, 97, 98]. Généralement des détecteurs mono-éléments rapides comme des photo-multiplicateurs ou des photodiodes sont utilisés car leur rapidité permet de s'affranchir de la décorrélation temporelle du speckle et permet d'envisager la détection *in vivo*. Cependant ces détecteurs ont généralement une petite surface de détection sur laquelle ils moyennent l'ensemble du signal reçu. Si on augmente leur surface de détection alors les variations spatiales de la phase du speckle rendent plus difficile la mesure de la différence de phase entre le signal d'intérêt et la référence. Le manque de cohérence spatiale pour des grandes surfaces de détection est donc un obstacle majeur pour l'application de la détection synchrone à l'imagerie acousto-optique. Les options pour pallier au manque de cohérence spatiale sont le multiplexage de la détection synchrone ou l'adaptation du front d'onde du signal optique par holographie adaptative que nous décrivons plus en détail ci-après.

Détection synchrone multiplexée Le principe de la détection synchrone multiplexée est de réaliser une détection homodyne sur des capteurs indépendants, à l'aide d'une caméra. L'idéal est que la taille d'un grain de speckle soit adaptée à la taille d'un pixel selon la condition de Nyquist. Les signaux acousto-optiques recueillis par chaque pixel sont ensuite sommés pour obtenir le signal total dont le rapport signal à bruit est proportionnel à la racine carré du nombre de grains de speckle analysés [99]. L'inconvénient principal de cette méthode est la vitesse limitée d'acquisition de la caméra, empêchant l'enregistrement temporel direct de l'avancée de l'onde ultrasonore : il faut faire entre 2 et 4 acquisitions pour obtenir la phase d'un grain de speckle, afin de s'en affranchir pour la mesure du signal acousto-optique [98, 100, 101]. Pour contourner le problème l'équipe de Jean-Michel Tualle a développé un capteur CMOS rapide et bas coût qui permet l'analyse en temps réel du speckle. Chaque pixel peut de manière indépendante réaliser une détection synchrone permettant d'extraire le signal des photons marqués détectés par le pixel. Le résultat de la détection synchrone est ensuite élevé au carré et moyenné sur l'ensemble des pixels afin de récupérer le signal acousto-optique. La sortie

du capteur est uniquement le signal acousto-optique, ce qui permet d'avoir une vitesse d'acquisition rapide (3600 images/s). Cependant le prototype ne possède pour l'instant que 24x24 pixels pour une surface totale de $1\,\mathrm{mm}^2$ [94].

1.5.3.2 Mesure de contraste de speckle

La mesure de contraste de speckle est déjà utilisée pour des techniques d'imagerie tout optique pour observer par exemple des débits sanguins [89, 102], mais ce type de mesure peut aussi être utilisé pour détecter un signal acousto-optique [103]. Si la caméra a une vitesse d'acquisition plus lente que le temps de décorrélation du tissu imagé, alors la modulation de l'onde acoustique entraine une perte de contraste de la figure de speckle : le speckle devient flou comme illustré dans la figure 1.14(e). La perte de contraste est d'autant plus forte que le nombre de photons marqués est élevé. Cependant le signal acousto-optique est faible car il n'a pas été amplifié. La solution d'augmenter la durée d'acquisition pour avoir plus de signal n'est possible que dans la limite du temps de décorrélation du speckle.

1.5.3.3 Holographie digitale

L'un des inconvénients de la détection synchrone multiplexée est la faiblesse du signal acousto-optique comparée à l'important fond continu, ce qui demande donc l'utilisation de détecteurs avec une grande dynamique. L'holographie hétérodyne permet d'augmenter la force du signal [104, 105]. Pour ce faire, le faisceau laser est séparé en deux : un faisceau traverse l'échantillon diffusant (le signal), l'autre faisceau est décalé en fréquence pour avoir la fréquence des photons marqués (l'oscillateur local). Ensuite les deux faisceaux vont être recombinés pour interférer. C'est l'holographie hétérodyne qui permet une sélection temporelle du signal acousto-optique : plusieurs images décalées en phase vont être enregistrées puis traitées pour recouvrer le signal d'intérêt. L'avantage de cette méthode est que l'amplitude des interférences dépend à la fois de l'intensité de l'oscillateur local et de celle du signal à la fréquence des photons marqués. Par conséquent, le signal acousto-optique sélectivement amplifié permet d'avoir une détection limitée théoriquement au bruit de photon [104].

Une autre astuce utilisée consiste à introduire un petit angle entre le faisceau de l'oscillateur local et le faisceau sortant du milieu diffusant, c'est ce que l'on appelle l'holographie hors axe. Ainsi l'utilisation conjointe de l'holographie hétérodyne et de l'holographie hors axe permet une amélioration du filtrage spatio-temporel du signal acousto-optique. Cependant la vitesse d'imagerie dépend de plusieurs critères dont la vitesse d'acquisition de la caméra (rendant critique le nombre de moyennes réalisables), du temps de transfert des données de la caméra à l'ordinateur, et enfin du temps du traitement des données. Plusieurs possibilités existent pour augmenter la cadence d'imagerie, comme les capteurs intelligents développés par Barjean *et al.* [96], mais cette cadence n'est pas assez rapide pour l'imagerie *in vivo* [98].

1.5.3.4 Holographie adaptative de front d'onde

Développée dans l'équipe de François Ramaz à l'Institut Langevin, l'holographie adaptative de front d'onde apporte une réponse à la vitesse d'acquisition trop lente des caméras utilisées en holographie digitale et au faible rapport signal à bruit de la détection synchrone avec un détecteur mono-élément. Cette méthode, qui s'inspire des techniques de contrôle non destructif des matériaux, utilise des matériaux photoréfractifs pour intégrer l'ensemble des grains de speckle du signal acousto-optique sur un détecteur mono-élément [106, 107]. La détection par holographie adaptative utilise un matériau photoréfractif pour réaliser une adaptation de front d'onde entre un faisceau de référence et un faisceau objet, qui contient le signal des photons marqués. Un détecteur mono-élément peut ensuite réaliser une détection cohérente du signal de photons marqués.

Les faisceaux de référence et objet sont incidents sur le matériau. Ils créent une figure d'interférence, qui est enregistrée sous forme de modulation d'indice optique dans le matériau par effet photoréfractif. On a créé un hologramme qui contient les informations d'amplitude et de phase de l'objet. Lorsque la référence (respectivement le faisceau objet) se diffracte sur le réseau d'indice, elle s'adapte à la phase spatiale du faisceau objet (respectivement de la référence) par mélange à deux ondes [108-110]. En sortie du matériau, la référence est diffractée dans la même direction que le faisceau objet transmis. Inversement le faisceau objet est diffracté dans la direction de la référence transmise. Le front d'onde du faisceau diffracté est adapté à celui transmis. Donc le détecteur détecte le module au carré de la somme des deux champs. Dit autrement, l'intensité détectée dépend des variations rapides de phase de l'onde objet, permettant la détection de la modulation ultrasonore portée par les photons marqués. Cette technique de détection permet aussi d'amplifier le signal des photons marqués. Il peut y avoir un transfert d'énergie entre le faisceau de référence incident et le faisceau objet transmis.

L'hologramme s'inscrit dans le matériau en une durée déterminée, c'est le temps de réponse du matériau ; Ce temps dépend des phénomènes physiques liés à l'apparition de l'hologramme et des conditions expérimentales [98, 111]. Un autre paramètre important des matériaux photoréfractifs est leur longueur d'onde d'utilisation. La liste ci-dessous présente les différents matériaux photoréfractifs utilisés pour la détection des photons marqués par holographie adaptative de front d'onde.

GaAs Ce cristal a un temps de réponse compris entre 0,3 et 100 ms à 1064 nm à la limite de la fenêtre de diagnostic optique, il a été utilisé conjointement avec un laser impulsionnel par Rousseau *et al.* [112] et Max Lesaffre de l'institut Langevin [113].

BSO Le cristal $Bi_{12}SiO_{20}$ a un temps de réponse compris entre 0,3 et 100 ms à 532 nm. Cette longueur d'onde n'est pas idéale pour l'imagerie en profondeur car elle est très absorbée par les tissus. Cependant l'utilisant un cristal de BSO a conduit au record de profondeur de détection de signal acousto-optique dans un gel diffusant : 9,4 cm avec $\mu'_s = 10\,\mathrm{cm}^{-1}$ [114]. D'autre part il est possible d'utiliser ce cristal pour réaliser une holographie d'adaptation de front d'onde sans référence, au prix d'un signal plus faible et plus lent à acquérir [115].

Polymères En utilisant des polymères photoréfractifs il est possible d'augmenter l'étendue de l'hologramme et de sensiblement augmenter l'efficacité du mélange à deux ondes par rapport à certains cristaux. En effet il est possible d'obtenir une image d'inclusions absorbantes dans un gel de 9,4 cm avec $\mu'_s = 10\,\mathrm{cm}^{-1}$ à 800 nm avec moins de puissance laser en entrée de l'échantillon [116]. Cependant ces polymères sont sensibles à la température, aux vibrations et aux mouvements de l'air ce qui est prohibitif pour de l'imagerie *in vivo* et ils ont aussi un temps de réponse lent [100].

SPS Le cristal de SPS dopé avec 1% de tellure ($Sn_2P_2S_6$: Te) a un temps de réponse qui varie entre 5 et 10 ms et fonctionne entre 600 nm to 1500 nm, une longueur d'onde bien adaptée à l'imagerie optique en profondeur dans les milieux biologiques. Ce cristal a été utilisé par Farahi *et al.* pour acquérir des images acousto-optiques en 3D en quelques minutes [110], et par Laudereau *et al.* pour acquérir la première image acousto-optique d'une biopsie de foie *ex vivo* [117].

Milieu à gain Pour dépasser la lenteur des cristaux photoréfractifs, il a été proposé d'utiliser un milieu à gain : le cristal de Nd : YVO_4. À 1064 nm, le cristal de Nd : YVO_4 enregistre un hologramme sous forme de réseau de gain avec un temps de réponse compris entre 10 et 100 µs [51, 118]. Par la saturation locale du gain du cristal, il est possible de créer un réseau de gain qui sera accompagné d'un réseau d'indice de réfraction. Par conséquent il peut y avoir du mélange à deux ondes dans un tel milieu. Cependant le rapport signal à bruit est plus petit comparativement aux signaux obtenus

avec les cristaux photoréfractifs et la longueur d'onde n'est pas optimale pour l'imagerie des milieux biologiques. D'autre part il est aussi possible de détecter un signal acousto-optique par conjugaison de phase, qui est un processus de mélange à quatre ondes, dans les cristaux de Nd : YVO_4. Néanmoins dans le cristal la zone focale doit être plus petite du fait de la contrainte de pompage, donc on filtre moins de grains de speckle [119].

1.5.3.5 Filtrage spectral

Le but d'un filtre spectral est d'absorber la porteuse et de transmettre les photons marqués. Le filtrage spectral du flux optique offre l'avantage de ne pas être limité par la vitesse d'imagerie et en conséquence n'est théoriquement pas affecté par les problématiques de décorrélation du speckle, contrairement à toutes les techniques présentées ci-dessus. Cependant il s'agit de réaliser un filtre optique très sélectif avec une grande dynamique capable de traiter le speckle. D'abord la sélectivité du filtre est imposée par l'écart en fréquence des photons marqués par rapport à la fréquence du laser : la fréquence ultrasonore. Les ordres de grandeurs sont les suivants : la fréquence des photons dans le proche infrarouge est de 4×10^8 MHz $\equiv$ 800 nm et le décalage en fréquence est de 5 MHz $\equiv 10^{-5}$ nm . C'est un écart bien plus fin que la bande passante nanométrique des filtres optiques classiques. Le filtre qui permet de détecter les photons marqués doit aussi proposer une grande dynamique pour pallier au faible nombre de photons marqués, en ordre de grandeur un photon marqué pour mille photons à la fréquence initiale du laser. Enfin il doit fonctionner avec un faisceau de lumière diffusée.

Filtre Fabry-Perot L'interféromètre de Fabry-Perot est l'un des filtres optiques qui a la bande passante la plus étroite : de l'ordre du MHz comme il est requis pour le filtrage des photons marqués. En 2004 Sakadzic *et al.* ont utilisé un interféromètre de Fabry-Perot confocal avec une cavité de 50 cm utilisée en transmission avec une étendue de 0,1 sr mm^2 et une finesse supérieure à 20, pour détecter un objet de 1 cm de long sous 3 mm de blanc de poulet [120]. Plus récemment Rousseau *et al.* ont amélioré l'efficacité de filtrage du système en l'utilisant en multipassage, ce qui leur a permis de détecter des objets absorbants dans un échantillon de blanc de poulet de 6 cm d'épaisseur [121]. Cependant la faible étendue de la technique n'est pas optimale pour traiter la lumière diffuse qui demanderait une étendue de l'ordre de 500 sr mm^2.

Filtre basé sur le creusement de trou spectral aussi appelé *spectral hole burning* (SHB), est une autre alternative pour faire du filtrage spectral qui a intrinsèquement une bien meilleure étendue car elle n'est pas soumise à des critères d'adaptation de mode, contrairement à l'interférométre de Fabry-Perot. Cette technique est à l'origine une technique de spectrocopie et utilise des cristaux dopés aux ions terres rares. Ces cristaux ont une absorption liée à leur dopage et une largeur inhomogène qui peut varier de quelques GHz à la dizaine de GHz. De plus ils sont photosensibles, ce qui permet avec un laser spectralement fin de modeler le spectre d'absorption quasiment à volonté. Avec la technique du creusement de trou spectral il est possible de créer dans ces cristaux à température cryogénique des filtres spectraux d'une largeur d'un mégahertz ou moins ayant une bonne dynamique de filtrage – la lumière non marquée est absorbée alors que les photons marqués sont transmis [122, 123]. Plus d'informations sur les différents aspects du creusement de trous spectraux seront développés dans le chapitre suivant.

1.5.4 Autres aspects du signal acousto-optique

L'imagerie acousto-optique est une technique très riche. Contrairement à l'imagerie photoacoustique, on peut y contrôler indépendamment les excitations optiques et acoustiques, ce qui donne une grande variété d'architectures dérivées. Le premier tableau de la revue de Gunther [100] récapitule la

variété de ces architectures. Je présente ci-dessous un résumé des éléments non mentionnés précédemment dans cette partie.

Possibilités liées aux techniques acoustiques

- Utilisation de deux fréquences ultrasonores qui permet selon les choix techniques d'augmenter la vitesse d'imagerie ou d'augmenter la résolution ou d'en déduire l'élasticité du tissu (module d'Young).
- Grâce au contraste de pression déterminer le coefficient de diffusion.
- Par la détection de photons marqués de seconde harmonique augmenter la résolution grâce à la réduction du volume de marquage ultrasonore [124]. On utilise pour cela le comportement non-linéaire des tissus biologiques dans lesquels se propage une onde ultrasonore comme en échographie plus classique.
- Coupler l'imagerie acousto-optique à l'utilisation d'ultrasons intenses et focalisés (HIFU) pour le traitement médical non invasif . Ainsi la destruction de tissus par HIFU sera suivi en temps réel par imagerie acousto-optique, permettant une plus grande sélectivité dans la destruction des tissus [109].
- Utilisation classique de microbulles pour augmenter le contraste [125], au moins en surface comme en échographie ou en imagerie photoacoustique. Elles ont aussi été utilisée pour améliorer la résolution [126].
- Grâce à la force de radiation acoustique qui est une onde de cisaillement, on peut augmenter le marquage des photons marqués et donc augmenter le signal. Il est aussi possible d'estimer la viscosité, l'élasticité et la vitesse des ondes de cisaillement.
- Utilisation d'ondes planes ou structurées pour augmenter la vitesse d'imagerie [92, 93].

Possibilités liées aux techniques optiques

- Possibilité de faire de l'imagerie acousto-optique avec de la lumière incohérente – typiquement avec une diode autour de 630 nm. Le signal est encore plus difficile à détecter, mais il serait possible de directement imager le champ ultrasonore dans le milieu ou faire de l'imagerie bioluminescente.
- Grâce à la conjugaison de phase, focaliser la lumière dans le milieu diffusant avec du retournement temporel, par exemple pour faire de l'imagerie de fluorescence [127].

Possibilités liées aux techniques mixtes optiques-acoustiques

- La tomographie par cohérence acousto-optique (AOCT), analogue à la tomographie par cohérence optique (OCT), permet d'améliorer la résolution spatiale.
- Utiliser l'imagerie acousto-optique pour calibrer le signal photoacoustique et ainsi pouvoir faire de l'imagerie photoacoustique quantitative [128, 129].

1.6 Conclusion

Le développement des techniques classiques d'imagerie médicale se poursuit en parallèle de leur généralisation dans les hôpitaux. Elles offrent des contrastes différents et complémentaires, il est donc de plus en plus commun de les associer entre elles pour créer des plateformes multimodales qui donnent des informations plus complètes. Cependant pour certaines applications il n'existe pas encore de modalité d'imagerie optimale. L'échographie est une modalité de choix car elle est très versatile, permet l'imagerie en temps réel, est peu coûteuse comparée à l'IRM ou la TEP, mais elle manque de contraste pour certaines applications. L'imagerie optique offre une variété de contrastes très utile dans le contexte

médical : l'absorption des tissus est liée à leur métabolisme, la diffusion donne d'autres types d'informations liées à la structure des tissus mais est un défi pour la détection optique. Jusqu'à 1 mm de profondeur il n'y a pas ou peu de diffusion dans les tissus, les modalités d'imagerie optiques telles que la microscopie ou l'OCT offrent d'excellentes résolutions qui atteignent ou dépassent la limite de diffraction. La DOT permet d'imager plus en profondeur mais la résolution diminue et le temps d'imagerie augmente à cause du temps de calcul.

Afin de compenser cette perte de résolution et l'augmentation du temps d'acquisition on s'intéresse à des techniques hybrides entre l'optique et l'acoustique. L'imagerie photoacoustique permet de créer un pont technologique entre les techniques de microscopie très résolues à faible profondeur et celles d'imagerie plus classiques présentes dans les hôpitaux. La recherche en photoacoustique est suffisamment avancée pour que le transfert de technologie vers les cliniques commence à avoir lieu. Dans le cas de l'imagerie acousto-optique, la recherche en est encore à un niveau plus fondamental. Néanmoins une fois que les contraintes concernant l'imagerie en temps réel et *in vivo* seront résolues, alors l'imagerie acousto-optique pourra potentiellement présenter les mêmes performances que l'imagerie photoacoustique et possiblement aller plus loin. En effet l'imagerie acousto-optique est sensible au contraste de diffusion donc est capable d'extraire plus d'informations d'un milieu biologique que l'imagerie photoacoustique. De plus en imagerie acousto-optique, l'émission de lumière et des ultrasons est découplée, ce qui donne accès à une plus grande variété de développements disponibles, par exemple il serait possible de profiter de tous les développements de l'échographie. Par rapport aux techniques d'imagerie clinique fonctionnelle comme l'IRM ou la TEP, l'imagerie acousto-optique serait plus transportable, plus rapide, ne nécessiterait pas la prise de marqueurs spécifiques et serait potentiellement bien moins chère. Enfin elle peut être facilement couplée avec l'échographie ou l'imagerie photoacoustique, elle s'inscrit donc dans l'air du temps par son utilisation dans des plateformes multimodales d'imagerie.

Chapitre 2

Le creusement de trou spectral

Sommaire

2.1 Ions de terre rare en matrice cristalline 45
2.1.1 Généralités 45
2.1.2 Niveaux énergétiques des ions de terre rare 47
2.1.2.1 Structure électronique 47
2.1.2.2 Interaction hyperfine et Zeeman, ions Kramers et non-Kramers 48
2.1.3 Élargissement inhomogène 49
2.1.4 Largeur homogène 49
2.2 Creusement de trou spectral et matériaux adaptés 50
2.2.1 Creusement spectral sur deux niveaux 50
2.2.2 Creusement spectral sur trois niveaux 50
2.2.3 Matériaux adaptés au creusement de trou spectral 52
2.2.4 Trous transitoires dans le Tm : YAG 53
2.2.4.1 Propriétés du Tm : YAG 53
2.2.4.2 Niveaux d'énergie et processus de relaxation 54
2.2.4.3 Creusement spectral 54
2.2.5 Trous spectraux dans Pr : YSO 55
2.2.5.1 Propriétés du Pr : YSO 55
2.2.5.2 Niveaux d'énergie 55
2.2.5.3 Creusement spectral 55
2.3 Domaines d'applications du creusement de trou spectral 56
2.3.1 Spectroscopie 56
2.3.2 Analyse de signaux radiofréquences 57
2.3.3 Traitement de signaux radiofréquences 58
2.3.4 Mémoire quantique 60
2.3.5 Stabilisation laser et filtrage spectral 62
2.4 Creusement de trou spectral pour l'imagerie acousto-optique 62
2.4.1 Filtre passe-bande dans le Tm : YAG 63
2.4.2 Filtre dispersif dans le Tm : YAG 63
2.4.3 Filtrage par lumière lente dans le Pr : YSO 63
2.4.4 Peigne de fréquence atomique pour les photons marqués 64
2.5 Conclusion 64

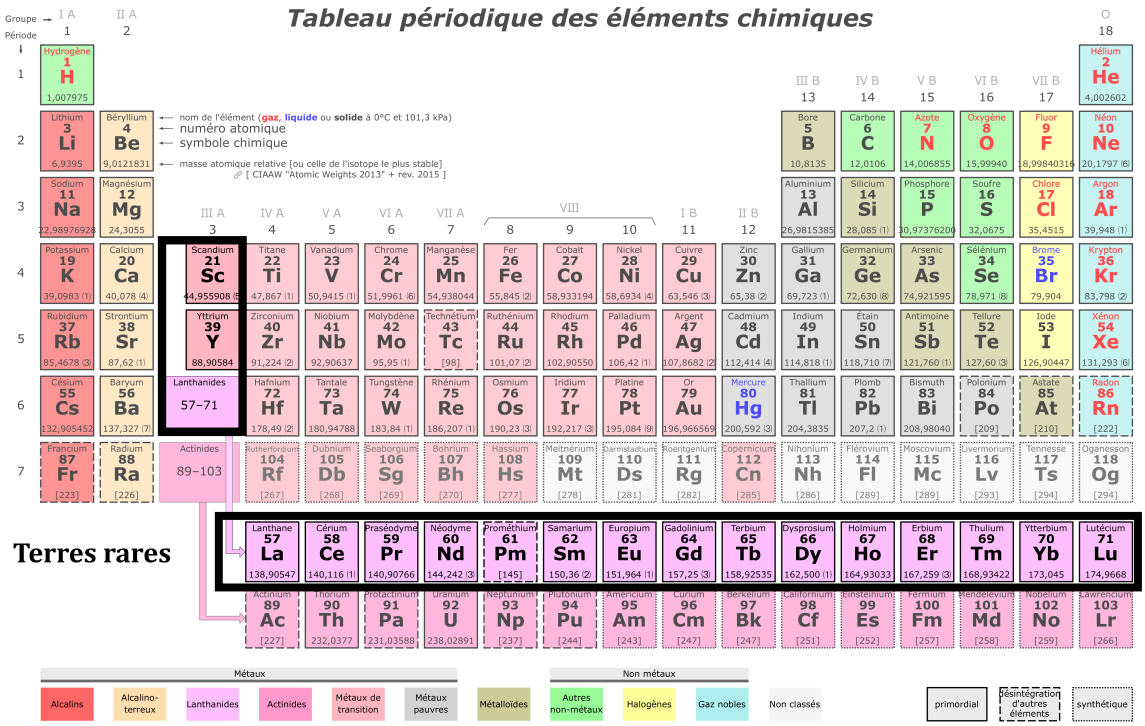

FIGURE 2.1 – Tableau périodique des éléments. La famille des terres rares correspond au scandium, l'yttrium et aux éléments compris entre le lanthane et le lutécium. Illustration adaptée de Wikipédia.

Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'un signal acousto-optique pouvait être détecté grâce à un filtre spectral créé par creusement de trou spectral. Nous nous intéresserons dans ce chapitre à ce phénomène de creusement de trou spectral ou *spectral hole burning* (SHB). Les matériaux dans lesquels on peut engendrer ce processus présentent un fort élargissement inhomogène et des fines largeurs de raies homogènes. Ces caractéristiques se retrouvent dans les cristaux dopés aux ions de terres rares à température cryogénique ($T < 4\,\mathrm{K}$).

Dans ce chapitre, nous étudierons d'abord les caractéristiques des ions de terres rares en matrice cristalline. Puis nous expliquerons les principes physiques du creusement de trous spectraux. Enfin nous ferons un bref descriptif de différentes applications utilisant le creusement de trou spectral pour finir par une revue bibliographique sur l'utilisation du creusement spectral pour l'imagerie acousto-optique.

2.1 Ions de terre rare en matrice cristalline

Cette partie introduit en premier lieu les ions de terre rare en matrice cristalline, puis ensuite présente succinctement leur structure électronique, leur structure hyperfine et pour finir les élargissements inhomogène et homogène. Pour plus d'informations quant aux ions de terre rare le lecteur pourra se référer aux thèses de Anne Louchet et de Mathieu Bonarota [130, 131].

2.1.1 Généralités

Les terres rares sont le scandium ($Z = 21$), l'yttrium ($Z = 39$) et les lanthanides : les 14 éléments qui suivent le lanthane dans la classification périodique des éléments montrée dans la figure 2.1. Elles

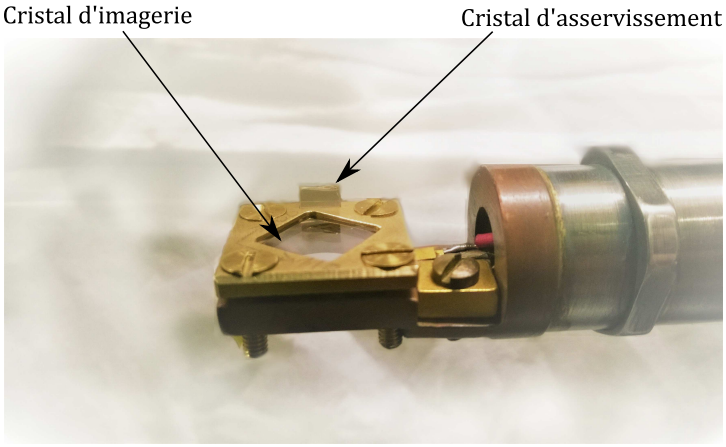

FIGURE 2.2 – Photos de deux cristaux de Tm : YAG utilisés lors de cette thèse inséré dans leur monture. La largeur du cristal d'asservissement est 4 mm. La largeur du cristal d'imagerie dans la monture en laiton est de 1 cm. La monture est celle qui a été utilisée pour maintenir les deux cristaux dans le cryostat utilisé dans les chapitres 3, 4 et 5.

sont aujourd'hui très utilisées dans le domaine des hautes technologies. Elles sont plus abondantes dans la croûte terrestre que ce que leur nom tend à faire penser. Néanmoins elles sont plus difficiles à purifier que d'autres éléments, il a fallu attendre les années 1940 pour qu'elles soient purifiées au niveau industriel.

Les cristaux dopés aux ions de terre rare utilisés dans cette thèse et en recherche de manière plus générale sont des cristaux de synthèse. Ainsi on fait croître un monocristal dont la composition exacte est connue, donc la matrice cristalline et surtout le pourcentage de dopage du cristal sont connus. Après sa synthèse, le monocristal entier est taillé en plusieurs cristaux de taille millimétrique voire centimétrique. L'orientation de la taille est choisie selon les axes cristallographiques d'intérêt de la matrice. Les faces utiles du cristal sont ensuite polies. Les cristaux finaux sont incolores et transparents ce qui permet de les étudier en optique. La photo 2.2 montre deux cristaux de Tm : YAG utilisés dans cette thèse.

Les propriétés du cristal viennent principalement du dopant : l'ion de terre rare. La structure de la matrice choisie ne fait qu'exacerber ou inhiber certaines propriétés de l'ion. Les ions de terre rare se substituent en général à un seul type d'ion de la matrice cristalline pure. Il n'y a pas de sélection des sites cristallographiques et de leurs orientations. La répartition spatiale des ions dopants est donc aléatoire dans le cristal.

Les terres rares Nous nous intéresserons particulièrement aux 13 éléments compris entre le cérium ($Z = 58$) et l'ytterbium ($Z = 70$). Ces éléments sont caractérisés par une couche $6s$ complète et le remplissage progressif de la couche $4f$ [132, chapitre 12]. Leur structure électronique est de la forme :

$$[\mathrm{Xe}]6s^2 4f^n, \text{ avec } 1 \leq n \leq 14 \tag{2.1}$$

elle est valable pour l'ensemble des lanthanides ($57 \leq Z \leq 71$) à l'exception du lanthane ($Z = 57$), du cérium ($Z = 58$), du gadolinium ($Z = 64$) et du lutécium ($Z = 71$).

Les lanthanides ($57 \leq Z \leq 71$) ont des propriétés chimiques voisines. Par exemple leur état d'oxydation stable est +III en général, sauf exception, avec la perte des électrons $6s^2$ et un électron $4f$, leur configuration finale est donc $[\mathrm{Xe}]4f^{n-1}$. Par conséquent les derniers niveaux d'énergie occupés sont dans la couche $4f$, plus interne que les couches $5s$ et $5p$, donc écrantée par rapport à l'extérieur.

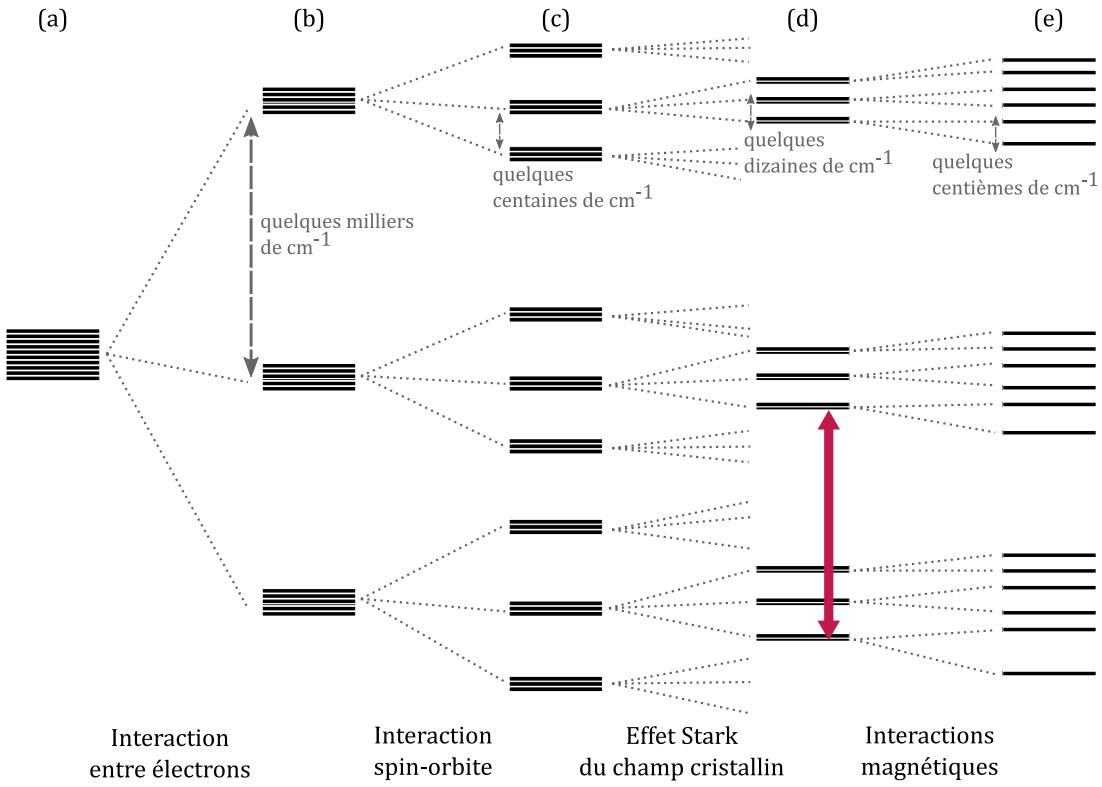

FIGURE 2.3 – Niveau d'énergie des électrons 4f des ions terres rares. a) Configuration électronique. b) Levée partielle de dégénérescence par les interactions électrostatiques entre électrons. c) Nouvelle levée partielle de dégénérescence par les interactions spin-orbite, on obtient les termes énergétiques de l'ion libre. d) Sous-niveaux Stark en matrice cristalline e) Structure hyperfine magnétique et électrique. En rouge exemple de transition optique utilisée : les transitions optiques ont lieu entre deux niveaux de multiplets Stark différents. L'échelle en nombre d'onde utilisée peut être convertie en fréquence avec la relation suivante $1\,\mathrm{cm}^{-1} = 30\,\mathrm{GHz}$.

C'est pourquoi les ions de terre rare triplement ionisés présentent une grande finesse spectrale à basse température : les raies associées aux transitions optiques sont très fines, de l'ordre du kHz.

2.1.2 Niveaux énergétiques des ions de terre rare

Les ions de terre rare ont des propriétés optiques intéressantes. Elles ne sont visibles que pour les transitions optiques concernant les promotions énergétiques d'électrons à l'intérieur de la configuration $4f$.

2.1.2.1 Structure électronique

La structure électronique des ions de terre rare s'explique en quelques étapes à partir du modèle hydrogénoïde : c'est-à-dire le modèle atomique de l'hydrogène sans électrons dans le vide. Dans ce modèle simple, tous les niveaux d'énergie de la couche $4f^n$ sont dégénérés pour l'ion de terre rare. Cette configuration est représentée dans la figure 2.3 a).

Maintenant on prend en compte les interactions électrostatiques entre les électrons. On observe une première levée de dégénérescence représentée dans la figure 2.3 b). La configuration est alors divisée en sous-niveaux ^{2S+1}L. Ces niveaux sont séparés de quelques milliers de cm^{-1}. Pour rappel L

est l'opérateur moment cinétique total de l'ensemble des moments cinétiques orbitaux des électrons de l'atome et S est l'opérateur de spin total de l'atome.

Ensuite on considère le couplage spin-orbite, qui est l'interaction entre le spin de l'électron et son mouvement. Il est plus faible que l'interaction de répulsion entre les électrons pour les terres rares. On constate une seconde levée de dégénérescence représentée dans la figure 2.3 c). La configuration est alors divisée en sous-niveaux $^{2S+1}L_J$ dégénérés $2J+1$ fois avec J est l'opérateur moment cinétique total de l'atome. Ces niveaux sont séparés de quelques centaines de cm^{-1}.

L'étape suivante consiste à placer (virtuellement) l'atome et ses électrons dans un cristal. Il y a donc une interaction avec le champ cristallin qui va donner lieu à une levée de dégénérescence entre étapes (c) et (d) de la figure 2.3. On appelle "champ cristallin" le champ électrostatique dû à la distribution inhomogène de charges dans le cristal. Cet effet est faible par rapport à l'interaction spin orbite car les électrons $4f$ sont écrantés par les électrons $5s$ et $5p$. En conséquence les niveaux $^{2S+1}L_J$ obtenus précédemment, sont peu modifiés. Mais on lève partiellement leur dégénérescence. On obtient des sous-niveaux, appelés "Stark", séparés de quelques dizaines de cm^{-1}, représentés dans la figure 2.3 d). Les transitions optiques des terres rares ont lieux entre ces sous-niveaux Stark. La levée de dégénérescence est partielle ou totale selon la parité du nombre d'électrons de l'ion et de la symétrie du site cristallographique dans lequel l'ion est inséré [133, 134].

Les ions dit *Kramers* ont un nombre impair d'électrons (Ce, Nd, Sm, Gd, Dy, Er, Yb). Dans leur cas la dégénérescence ne peut pas être levée complètement par le champ cristallin car les sous-niveaux Stark sont au moins des doublets.

Les ions dit *non-Kramers* ont un nombre pair d'électrons (Eu, Pr, Tb, Ho, Tm). Si la symétrie du site est suffisamment basse alors il peut y avoir une levée complète de dégénérescence.

2.1.2.2 Structure hyperfine, effet Zeeman, ions Kramers et non-Kramers

La prise en compte des interactions magnétiques révèle la structure hyperfine des niveaux énergétiques des ions de terre rare. Nous incluons aussi l'effet Zeeman engendré par un champ magnétique extérieur dans les interactions magnétiques. Nous présenterons qualitativement les différentes interactions qui peuvent entrer en jeu. Pour plus d'informations le lecteur pourra se référer à la thèse d'Anne Louchet [130].

Les interactions magnétiques sont encore plus faibles que le champ cristallin sur les niveaux d'énergie. Donc elles permettent éventuellement de lever les dernières dégénérescences et d'apporter des petites modifications supplémentaires sur l'énergie des niveaux. Les sous-niveaux hyperfins sont représentés dans la figure 2.3 e).

On dénombre quatre interactions magnétiques. L'interaction hyperfine qui prend en compte les interactions entre le moment magnétique nucléaire et les électrons. Elle peut induire une levée de dégénérescence. L'interaction quadrupolaire permet de mieux modéliser les interactions électrostatiques entre les électrons et le noyau. En effet elles sont calculées en symétrie sphérique, l'interaction quadrupolaire permet de prendre en compte les écarts à la symétrie sphérique. Elle apporte une correction d'énergie aux sous-niveaux hyperfins, mais n'a pas d'effet si le spin nucléaire de l'atome est égal à 0 ou 1/2. Enfin quand on applique un champ magnétique à l'ion de terre rare, les interactions Zeeman électronique et nucléaire permettent de prendre en compte l'interaction entre ce champ magnétique extérieur et les moments magnétiques électronique ou nucléaire. En général ces interactions engendrent une levée de dégénérescence supplémentaire.

Ions Kramers La dégénérescence des sous-niveaux Stark est levée principalement grâce aux interactions hyperfine et Zeeman électronique.

Ions non-Kramers Dans les sites de substitution de symétrie axiale ou plus haute, les interactions Zeeman électroniques et hyperfines sont les interactions magnétiques les plus fortes et sont alignées avec l'axe de symétrie principal du site de substitution de l'ion. Elles permettent la dernière levée de dégénérescence.

Dans les sites de basse symétrie en revanche, l'effet des interactions magnétiques est globalement encore plus faible et il n'y a pas d'interactions dominantes. On réorganise les quatre interactions magnétiques citées plus haut, en fonction du type d'effet que les différents termes des expressions mathématiques ont sur le système. On définit ainsi trois interactions. L'interaction Zeeman exacerbée décrit la réponse des noyaux à une redistribution du nuage électronique sous l'effet du champ magnétique. Le déplacement Zeeman électronique quadratique entraîne un déplacement des niveaux électroniques. Et enfin l'interaction pseudo-quadrupolaire corrige les niveaux d'énergie quand l'interaction quadrupolaire pure ne peut pas s'appliquer, comme pour l'ion thulium.

Ceci conclut le bref aperçu des origines de la structure électronique parfois complexe des ions de terre rare.

2.1.3 Élargissement inhomogène

On considère un ensemble macroscopique d'ions identiques insérés dans un cristal. La matrice cristalline est imparfaite du fait de défauts dans sa structure. Il en résulte une hétérogénéité des sites de substitution et donc de l'environnement électrostatique de chaque ion [135]. Les niveaux d'énergie sont donc différents pour chaque ion ; les énergies de transition se répartissent de façon inhomogène sur un domaine spectral appelé la largeur inhomogène de transition, notée Γ_{inh}. Les interactions à l'origine de cet élargissement sont statiques et subsistent à température nulle. Elles sont fonction de la matrice, de l'ion, de la concentration en dopant et varient entre quelques dizaines de MHz à la centaine de GHz.

2.1.4 Largeur homogène

La largeur homogène est la largeur totale à mi-hauteur de la raie d'absorption d'un ion unique. Elle est souvent masquée par l'élargissement inhomogène. Dans les cristaux dopés aux ions de terre rare, on la mesure typiquement avec des techniques de spectroscopie de précision comme le creusement de trou spectral. Elle se note Γ_h et est liée à la durée de cohérence [1] T_2 :

$$\Gamma_h = \frac{1}{\pi T_2} \tag{2.2}$$

Les électrons de la couche $4f$ sont écrantés des fluctuations électroniques de la matrice par les électrons des couches $5s$ et $5p$ plus externes. Les transitions optiques d'intérêt ont lieu entre les sous-niveaux Stark de plus basse énergie. Ces transitions optiques $f - f$ ne sont pas permises au premier ordre, mais pour certains ions de terre rare comme dans le cas du Tm :YAG, grâce à mélange de fonctions d'onde $4f$ avec les niveaux $5d$, les règles de transitions se relâchent et la transition $f - f$ devient faiblement permise. Par conséquent le temps de vie des niveaux excités T_1 est long et le temps de cohérence T_2 est potentiellement long, donc la largeur homogène est fine. Si l'émission spontanée est la seule source de décohérence alors $T_2 = 2T_1$. Cependant il existe des mécanismes non-radiatifs provenant généralement du couplage avec l'environnement qui réduisent ce temps de vie.

1. **Principe de cohérence** Prenons un système atomique à deux niveaux avec $|1\rangle$ le niveau fondamental et $|2\rangle$ le niveau excité. Si le système est excité par un photon résonant avec la transition optique $|1\rangle - |2\rangle$, alors le système se place dans un état de superposition $|\phi\rangle = \alpha\,|1\rangle + \beta\,|2\rangle$ commun à tous les atomes. Avec les fluctuations de l'environnement, les états des atomes vont se modifier pour devenir un mélange statistique d'atomes dans l'état $|1\rangle$ et dans l'état $|2\rangle$. Ce mécanisme de perte de cohérence se fait pendant la durée T_2.

$$\pi\Gamma_h = \frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \gamma_{env} \tag{2.3}$$

où γ_{env} est la relaxation due aux interactions avec l'environnement.

Ces interactions avec l'environnement peuvent se ranger dans deux catégories principales : le couplage aux vibrations du réseau (phonons) qui diminuent avec la température et deviennent négligeables en dessous de 2–3 K, et les interactions avec d'autres ions voisins qui peuvent entraîner des renversements du spin [136, 137]. Ces interactions sont liées à des fluctuations du champ magnétique local, et pour limiter leur effet il convient donc de choisir des matrices ayant de faibles spins et moments nucléaires comme la matrice d'orthosilicate d'yttrium Y_2SiO_5 (YSO) ou de grenat d'yttrium aluminium (YAG) et d'utiliser de faibles dopages d'ions de terre rare.

À température cryogénique, on observe en général que la largeur homogène est de plusieurs ordres de grandeur plus petite que la largeur inhomogène.

2.2 Creusement de trou spectral et matériaux adaptés

2.2.1 Principe du creusement de trou spectral pour un système à deux niveaux

Le creusement spectral est une méthode de spectroscopie de haute résolution. Son principe se résume ainsi : une transition optique saturée stocke ses populations d'atomes dans des niveaux réservoirs ce qui induit une baisse locale d'absorption. Il y a plusieurs mécanismes qui peuvent conduire à cet effet, les mécanismes les plus intéressants sont ceux qui ont lieu dans les matériaux où le creusement spectral est activé par une perturbation extérieure.

Le cas le plus simple est celui d'un ensemble de systèmes à deux niveaux. L'ensemble des systèmes présente un fort élargissement inhomogène alors que chaque système particulier a une faible largeur homogène comme illustré dans la figure 2.4 a). Un laser fin spectralement excite un petit nombre de systèmes parmi l'ensemble, donc sature les transitions associées qui n'absorbent plus la lumière émise à la longueur d'onde du laser. La population du niveau fondamental $|f\rangle$ a été en partie transférée dans le niveau excité $|e\rangle$ comme représenté dans les schémas c) et d) de la figure 2.4. Il en résulte une baisse d'absorption restreinte aux seuls systèmes à deux niveaux résonants avec le laser : un trou a été creusé dans le spectre d'absorption de l'ensemble.

2.2.2 Principe du creusement de trou spectral pour un système à trois niveaux

Les systèmes à trois niveaux permettent aussi de creuser des trous spectraux, encore une fois si la largeur homogène des systèmes individuels est très petite par rapport à l'élargissement inhomogène. On creuse le trou spectral par pompage optique. Le laser incident déplace les populations du niveau fondamental $|f\rangle$ vers le niveau excité $|e\rangle$. Les populations se désexcitent ensuite dans un niveau intermédiaire $|r\rangle$. Ce niveau sert de réservoir pour conserver les populations hors équilibre. Le creusement spectral par pompage optique est représenté dans les schémas e) et f) de la figure 2.4.

Dans cette thèse, nous utiliserons uniquement le creusement spectral par pompage optique. Le trou spectral est creusé par un faisceau dénommé faisceau de pompe ou gravure. Le trou est observé ou lu par un faisceau dénommé faisceau de sonde.

Le faisceau pompe est formé d'une impulsion intense qui peut être répétée plusieurs fois pendant l'étape de creusement du trou, dite de gravure, afin d'optimiser son effet. Les caractéristiques du faisceau de pompe sont son mode spatial (gaussien ou diffus), sa polarisation, l'angle d'incidence sur le cristal, sa section au niveau du cristal et enfin sa puissance. Les caractéristiques de l'impulsion sont sa durée et sa largeur. Le dernier paramètre important est la stabilité fréquentielle du laser : en effet

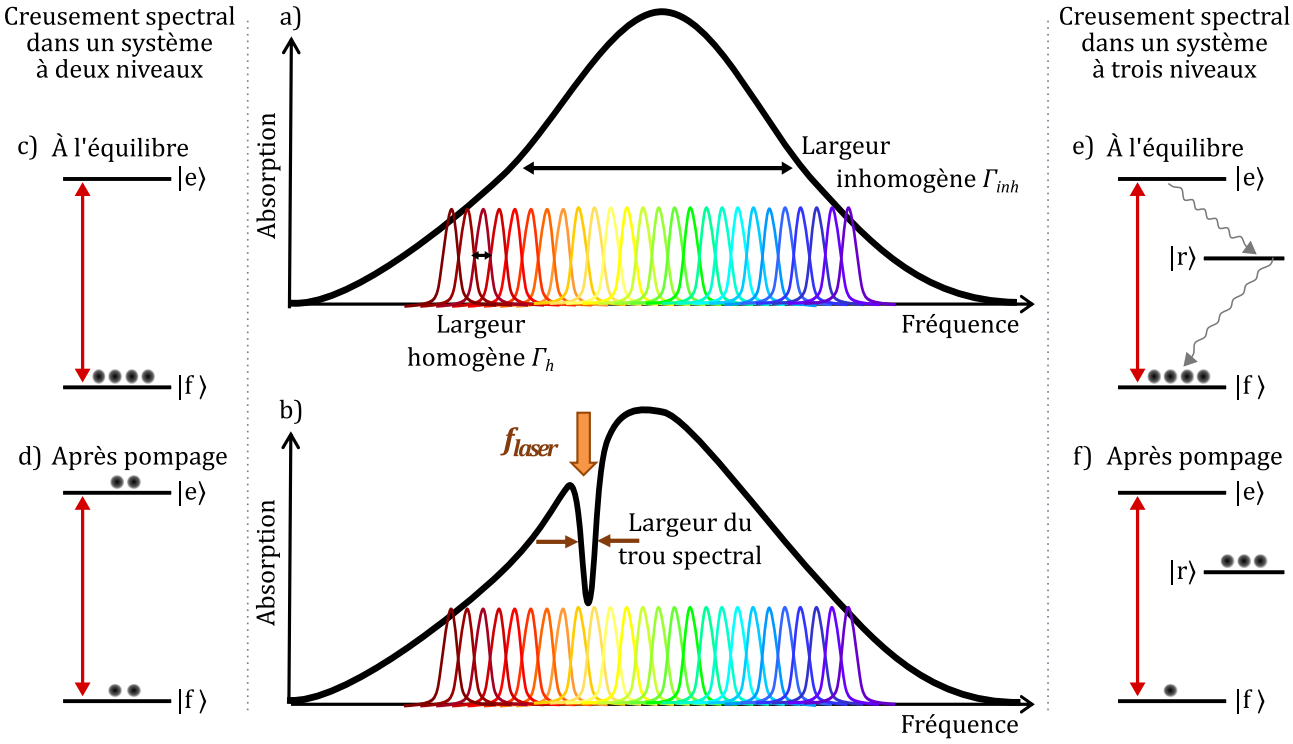

FIGURE 2.4 – Creusement de trou spectral. a) La courbe au trait noir épais correspond au spectre d'absorption total du cristal dopé aux ions de terre rare, sa largeur inhomogène d'absorption Γ_{inh}. Le spectre d'absorption d'une classe d'ions de terre rare est représenté par une petite courbe colorée, leur largeur homogène est Γ_h. b) Lorsqu'un laser fin spectralement illumine le cristal, il va creuser un trou dans le spectre d'absorption du cristal. Schémas de la répartition des populations atomiques dans un système à deux niveaux c) à l'équilibre et d) après le creusement d'un trou spectral. Schéma de la répartition des populations atomiques dans un système à trois niveaux e) à l'équilibre et f) après le creusement d'un trou spectral. Les flèches rouges représentent les transitions résonnantes avec le laser, $|f\rangle$ niveau fondamental, $|e\rangle$ niveau excité, $|r\rangle$ niveau réservoir.

si la fréquence du laser change pendant la gravure alors le trou s'élargit. Par conséquent la largeur des trous est plus caractéristique du laser que du cristal, or nous sommes en général intéressés par les caractéristiques du cristal (largeur homogène et long temps de vie associés) que celles du laser. L'élargissement des trous ne provient pas uniquement des variations de fréquence du laser, il dépend aussi de la puissance du laser (effet de saturation du pompage optique), de la durée de vie des trous et des conditions expérimentales (température, matrice cristalline).

Le faisceau sonde doit être moins puissant que la pompe pour lire le spectre d'absorption du cristal sans modifier le trou c'est-à-dire sans engendrer de redistribution de population. Un trou spectral témoigne d'une baisse de l'absorption du cristal à la fréquence du faisceau pompe, ou autrement dit il y a une augmentation locale de transmission. La sonde est généralement une impulsion balayée en fréquence, dont la puissance est au moins un ordre de grandeur plus faible que celle de la pompe. Un modulateur acousto-optique permet de la balayer en fréquence sur une gamme de quelques dizaines de MHz. Réaliser une rampe de fréquence plus importante demande généralement de directement balayer le laser. Le faisceau sonde est aussi un faisceau gaussien de polarisation contrôlée. Soit il arrive avec un angle sur le cristal, ainsi le détecteur en sortie n'est pas aveuglé par la pompe, soit c'est le même faisceau que le faisceau pompe qui a été atténué.

En général le même laser est utilisé pour la pompe et la sonde avec un séparateur de faisceau.

La largeur des trous spectraux est intrinsèquement limitée par la largeur homogène de la transition optique (à 1,5 K dans le Tm : YAG, elle est d'environ 3 kHz). Cependant les trous spectraux sont souvent élargis par d'autres phénomènes qui ont lieu pendant l'étape de gravure. La première cause d'élargissement est le laser de gravure en lui-même. En effet, il excite les ions résonants sur sa largeur spectrale. Par conséquent, la gravure de trous fins demande d'avoir un laser dont la largeur spectrale est inférieure à la largeur homogène des transitions optiques pendant toute la durée de la gravure. La deuxième cause est liée au long temps de vie des sous-niveaux hyperfins. Les effets de la gravure peuvent s'accumuler sur plusieurs dizaines de cycles de pompage optique. Lorsqu'un nouveau cycle commence, l'absorption du matériau est déjà diminuée, donc il n'y a plus d'atomes à résonance. Ce sont alors les ailes du spectre des impulsions qui sont absorbées ce qui provoque l'élargissement du trou. On appelle cet effet l'élargissement par saturation du pompage optique.

2.2.3 Matériaux adaptés au creusement de trou spectral

Le premier solide dans lequel du creusement spectral a été réalisé est le rubis. Le trou a été creusé par saturation de la transition $^4A_2 \rightarrow {}^2E$ à 694,3 nm avec un laser à rubis [138]. Ensuite le creusement spectral a été mis en évidence dans des systèmes désordonnés tels que les verres ou les céramiques où des ions peuvent avoir des structures électroniques du type "systèmes à deux niveaux" avec une séparation de niveaux supérieure à k_BT [139]. Il y a aussi des matériaux présentant un phénomène de creusement spectral basé sur un mécanisme de nature photo-chimique [140-142]. Le creusement spectral dans le cas des processus photochimiques ou en milieux désordonnés a une efficacité de 10^{-4} à 10^{-6} [143], où l'efficacité est définie comme le rapport entre le nombre de systèmes pouvant donner lieu à un trou spectral (dépendant du volume d'illumination et de la largeur spectrale du laser) et le produit de l'absorption initiale du matériau par la puissance du laser. Cependant pour les matériaux où les niveaux réservoirs sont accessibles, le creusement spectral a une efficacité unitaire. C'est le cas des cristaux dopés aux ions de terre rare à température cryogénique, ils permettent de plus de creuser des trous profonds par pompage optique. En reprenant le vocabulaire utilisé plus haut les systèmes à trois niveaux sont assimilables aux ions de terre rare individuels tandis que l'ensemble est le cristal dopé. Néanmoins les mécanismes mis en jeu sont souvent plus complexes que celui présenté pour le système à trois niveaux. En effet les mécanismes de transferts de populations peuvent être moins directs et les chemins de relaxation plus ou moins favorables. Pour ces raisons, les niveaux

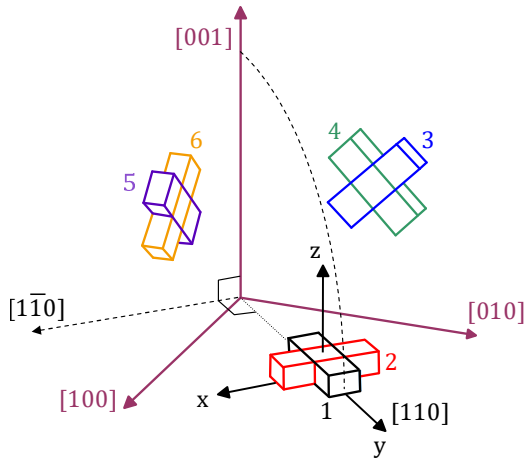

FIGURE 2.5 – Représentation des sites de substitution de l'ion thulium trivalent dans la matrice de YAG. Le repère x, y, z est le repère local correspondant au site 1.

réservoirs ont des origines diverses comme par exemple : des niveaux métastables (niveau d'énergie intermédiaire entre les niveaux fondamentaux et excités présentant un long temps de vie), des niveaux Zeeman électroniques dont les temps de relaxations sont longs, des niveaux Zeeman nucléaires ou des niveaux superhyperfins résultant du couplage entre spin électronique et noyaux voisins. Le temps de vie des trous spectraux peut parfois atteindre des heures voire des jours [135].

Nous détaillerons les mécanismes de creusement de trou spectral dans le cristal de Tm^{3+} : YAG sans champ magnétique puis le cas du cristal de Pr^{3+} : YSO. Le cas du Tm^{3+} : YAG sous champ magnétique sera traité dans le chapitre suivant.

2.2.4 Trous transitoires dans le Tm : YAG

2.2.4.1 Propriétés du Tm : YAG

Un cristal de grenat d'yttrium aluminium (YAG) de composition chimique $Y_3Al_5O_{12}$ a une maille élémentaire de symétrie cubique d'arête 12 Å. Elle a une symétrie C_3 autour de l'axe cristallographique [111]. Ce cristal est très répandu entre autres grâce au développement des lasers. Le thulium se substitue à l'yttrium, qui occupe un seul type de site. Le thulium se retrouvera donc dans un seul type de site aussi. Ce site est de basse symétrie D_2, et peut être trouvé dans 6 orientations différentes, comme illustré dans la figure 2.5.

Il existe un seul isotope du thulium, le ^{169}Tm qui possède 69 protons et 100 neutrons, son spin nucléaire total est donc de $I = 1/2$. Sous forme ionique le thulium est trivalent, il a 66 électrons dont 12 dans la couche [Xe]$4f$. À 793 nm, la largeur homogène de la transition optique de l'ion thulium trivalent est de 3 kHz à 1,5 K [144]. Cette valeur a été mesurée dans un cristal dopé à faible concentration (0,1%). Le profil de l'absorption du cristal est une lorentzienne, dont la largeur est de 20 GHz. Dans cette thèse, les cristaux utilisés étaient plus fortement dopés à 2%, dans le but d'avoir une plus grande densité optique, et présentaient une largeur inhomogène plutôt voisine de 30 GHz [111]. Cette valeur plus grande est probablement due au dopage plus important. En effet, le rayon ionique du thulium est légèrement différent (3%) de celui de l'yttrium, donc le désordre de la matrice augmente avec le dopage.

Le diagramme détaillé des niveaux d'énergie du Tm^{3+} : YAG a été publié par Gruber *et al* [145], dans cette thèse nous utiliserons le diagramme simplifié de la figure 2.6. Sans champ magnétique extérieur le cristal ne présente pas de structure hyperfine au premier ni au second ordre.

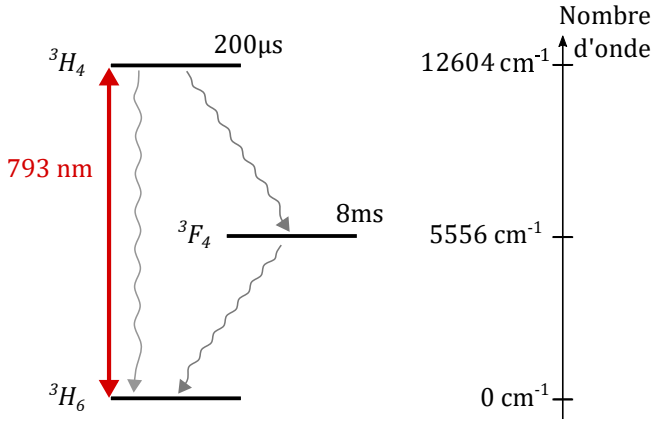

FIGURE 2.6 – Diagramme simplifié des niveaux d'énergie du Tm^{3+} : YAG. 1 cm^{-1} correspond à 30 GHz.

Il est possible de choisir quels ions thulium seront excités en choisissant la polarisation du champ lumineux excitateur. En effet, le moment dipolaire de la transition optique du thulium est aligné selon l'axe y dans le repère local d'un site, c'est-à-dire selon la grande dimension du parallélépipède de la figure 2.5. Par exemple, un champ polarisé selon [111] n'excitera que les sites 1, 3 et 5 ; tandis que si il est polarisé selon [001] il n'interagira qu'avec les sites 3, 4, 5 et 6. Nous reviendrons là-dessus dans la partie 3.1 de ce manuscrit. Cependant l'absorption du cristal est quant à elle indépendante de la polarisation du champ lumineux incident, car la matrice cristalline est symétrique et offre une dégénérescence d'orientation [146].

2.2.4.2 Niveaux d'énergie et processus de relaxation

Dans le cristal de Tm^{3+} : YAG, seul le niveau fondamental $^3H_6$ est peuplé à l'équilibre thermodynamique à température cryogénique. Lors du pompage optique, les populations sont excitées via la transition $^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$. Le niveau excité $^3H_4$ a une durée de vie de 200 µs mesurée dans un cristal dopé à 2% [147]. Il se désexcite en majorité (environ 70%) vers le niveau $^3F_4$ par un processus multiphonons [148] et en minorité vers le niveau fondamental (environ 30%). Le niveau métastable $^3F_4$ a une longue durée de vie pour un niveau excité 8 ms [147]. Enfin la population se désexcite vers le niveau fondamental $^3H_6$ de façon majoritairement radiative dans l'infrarouge vers 1,7 µm. Ces déplacements de population sont présentés dans la figure 2.6. Les temps de vie des différents niveaux d'énergie sont très dépendants de la température du cristal, les valeurs données sont généralement valables pour des températures comprises entre 1 et 3 K.

2.2.4.3 Creusement spectral par stockage dans le niveau métastable

Nous sommes dans le cas du creusement spectral à "3 niveaux" évoqué dans la sous-partie 2.2.2.

Diminuer au maximum la population d'atomes dans le fondamental permet de creuser un trou spectral profond. Pour cela on pompe optiquement la transition $^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$ à 793 nm afin de stocker une partie des atomes dans le niveau métastable $^3F_4$. Le temps de vie du trou spectral est dominé par le temps de vie du niveau de stockage, soit 8 ms dans le cristal de Tm^{3+} : YAG sans champ magnétique extérieur. Les trous spectraux créés dans ces conditions seront qualifiés de transitoires dans la suite de cette thèse.

	site 1	site 2
Longueur d'onde	606 nm	608 nm
Temps de vie	164 ± 5 µs	222 ± 5 µs
Largeur homogène à 0 G	2,4 kHz	1,8 kHz
Largeur homogène à 77 G	1,25 kHz	850 Hz

TABLE 2.1 – Paramètres spectraux de la transition $^3H_4(1)$ vers $^1D_2(1)$ pour chaque site d'un cristal de Pr : YSO dopé à 0,02% à 1,4 K. Données de [150].

2.2.5 Trous spectraux dans Pr : YSO

Il est intéressant de comparer le thulium à l'ion praséodyme. Cet ion est aussi non-Kramers et utilisé pour l'imagerie acousto-optique [149]. Nous donnerons ici ses caractéristiques lorsqu'il est inséré dans un cristal d'orthosilicate d'yttrium (YSO), une matrice très commune et appréciée pour les ions de terre rare car elle a de bonnes qualités optiques.

2.2.5.1 Propriétés du Pr : YSO

Le cristal d'orthosilicate d'yttrium a pour formule chimique Y_2SiO_5. Sous forme ionique le praséodyme est trivalent, il a 56 électrons dont 2 dans la couche $4f$. Il se substitue aux ions Y^{3+} dans des sites de symétrie C_1, suffisamment basse pour lever la dégénérescence des états électroniques. Contrairement au thulium dans la matrice de YAG, il y a deux sites de substitution cristallographiquement inéquivalents pour le praséodyme, appelés conventionnellement sites 1 et 2. L'écart énergétique des niveaux hyperfins est plus grand pour le site 1, mais le temps de vie associé est plus grand pour le site 2 [150]. Usuellement le site 1 est plus utilisé que le site 2 car la force d'oscillateur du site 1 est quinze fois plus grande que celle du site 2, en d'autres termes la transition optique entre les niveaux fondamental et excité du site 1 est plus forte.

2.2.5.2 Niveaux d'énergie

Le tableau 2.1 résume quelques grandeurs d'intérêt du Pr : YSO. Les sites 1 et 2 sont adressés avec des longueurs d'onde légèrement différentes 606 et 608 nm. La transition optique a lieu entre le niveau fondamental $^3H_4$ et l'état excité $^1D_2$. Les temps de vie des niveaux excités respectifs sont du même ordre de grandeur pour les deux sites autour de 200 µs. De même les largeurs homogènes mesurées pour les deux sites sont du même ordre de grandeur, même si celle du site 1 est plus large. On voit aussi que lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur au cristal la largeur homogène diminue.

Le praséodyme a un spin nucléaire $I = 5/2$. Il possède une structure hyperfine sans champ magnétique représentée dans la figure 2.7. L'état fondamental $^3H_4$ et l'état excité $^1D_2$ présentent chacun trois doublets hyperfins. La durée de vie des populations dans les sous-niveaux hyperfins est de plusieurs minutes [151].

2.2.5.3 Creusement spectral

Le creusement spectral dans le Pr : YSO utilise généralement deux sous-niveaux hyperfins de l'état fondamental et un seul sous-niveau de l'état excité. Les trous sont donc creusés par pompage optique comme dans le cas du Tm : YAG. Les transitions entre les sous-niveaux hyperfins choisis doivent avoir la plus grande force d'oscillateur possible. On choisit donc les sous niveaux $|\pm 1/2\rangle$ et $|\pm 3/2\rangle$ du fondamental et le sous-niveau $|\pm 1/2\rangle$ de l'état excité [130]. Les trous spectraux résultants sont persistants avec des durées de vie qui peuvent dépasser le millier de secondes en l'absence de champ magnétique [151].

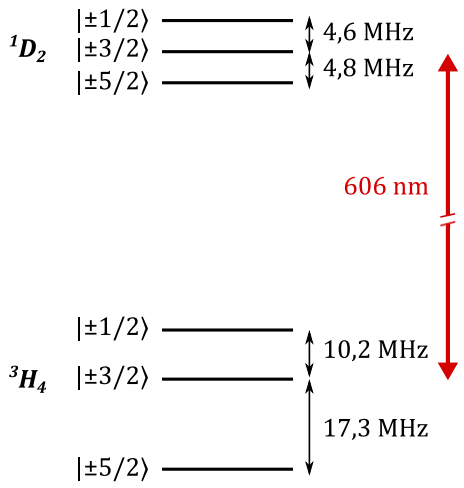

FIGURE 2.7 – Structure hyperfine du Pr : YSO pour le site 1.

La longueur d'onde de la transition n'est accessible que par des lasers à colorant ou des oscillateurs paramétriques optiques.

2.3 Domaines d'applications du creusement de trou spectral

Le creusement spectral est à l'origine une technique de spectroscopie à haute résolution qui a permis de résoudre la finesse des raies des ions de terre rare en matrice cristalline. Mais il peut être bien utile dans des domaines très appliqués comme le traitement du signal et en particulier le cas de signaux radar sur porteuse optique. On le retrouve aussi dans les technologies quantiques en particulier pour les applications de mémoires quantiques. Enfin on peut aussi l'utiliser dans des techniques de stabilisation laser et de filtrage pour l'imagerie en milieu diffusant.

2.3.1 Spectroscopie

Après l'invention du laser dans les années 60, on devient capable de résoudre les raies très fines des ions de terre rare grâce aux lasers à colorant. À partir des années 80, le développement technologique rend disponibles des lasers mono-fréquence continus et accordables en fréquence : le laser titane saphir et les diodes lasers en cavité étendue. La résolution accessible n'est plus limitée par la résolution des spectromètres ou des largeurs inhomogènes, mais par la finesse des lasers ou les largeurs homogènes. Des techniques de spectroscopie haute résolution comme le creusement spectral ou l'écho de photon voient le jour et permettent d'atteindre des résolutions de l'ordre du kHz ou du MHz [138, 152]. Le creusement spectral est une technique très générale du fait de la multiplicité des mécanismes et la large gamme observable de largeur de trous avec des lasers accordables. Il peut aussi être combiné avec des champs micro-ondes ou radiofréquence pour détecter optiquement des résonances de spins [153]. C'est pourquoi il est un outil puissant pour étudier et tenter de comprendre les propriétés des atomes, et en particulier de leur structure énergétique.

Un laser idéal parfaitement monochromatique permet de mesurer les largeurs de raies homogènes par creusement de trou spectral. Le trou creusé aurait une largeur $2\Gamma_h$, deux fois la largeur homogène. Cependant en pratique une telle mesure directe est rarement possible car le trou observé est souvent élargi par diffusion spectrale ou à cause d'un laser non idéal (*jitter* de la fréquence du laser ou puissance laser [135]).

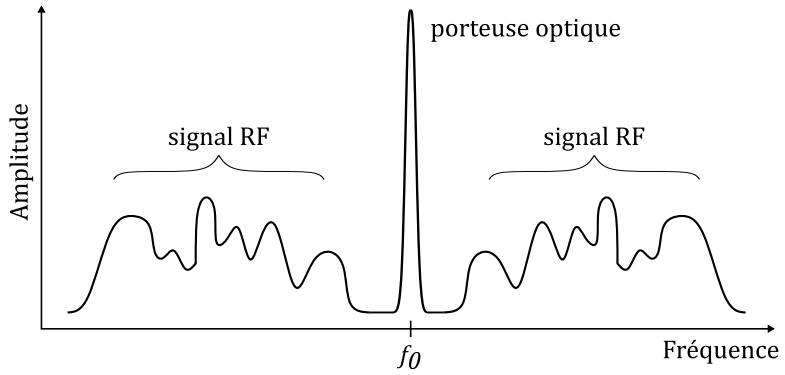

FIGURE 2.8 – Spectre d'un signal radiofréquence avec une bande passante de l'ordre du MHz à quelques GHz sur porteuse optique à la fréquence f_0 dans l'infrarouge.

Le creusement spectral résolu en temps permet quant à lui de comprendre les mécanismes de relaxation qui lient les niveaux atomiques. On peut mesurer le déclin des trous spectraux dû aux temps de vie finis des populations atomiques dans les niveaux excités. On s'intéresse aussi aux mesures de temps de cohérence des populations ce qui est crucial en particulier pour les applications quantiques. Enfin on peut aussi étudier la diffusion spectrale et d'autres phénomènes qui limitent les temps de vie et de cohérence de certains cristaux.

2.3.2 Analyse de signaux radiofréquences

L'analyse spectrale est un moyen courant pour obtenir des informations pertinentes sur un signal radiofréquence inconnu. Différents émetteurs peuvent avoir des signatures spectrales différentes, il est alors intéressant d'être capable de les différencier dans un signal qui combine plusieurs émetteurs. D'autre part le domaine des télécommunications sans fil a explosé et les technologies d'émission ont fait beaucoup de progrès. L'utilisation du spectre électromagnétique est de plus en plus intense. Du côté des applications civiles, l'analyse exhaustive de l'ensemble des émissions permet de contrôler l'utilisation légale des bandes de fréquences. Il sert aussi au renseignement pour des applications de sécurité ou de défense. Ces deux applications demandent à ce que les analyseurs spectraux aient une grande bande passante instantanée, une grande dynamique et de bonnes résolutions spectrale et temporelle.

Dans le domaine scientifique, la radioastronomie regroupe l'étude fréquentielle des signaux émis ou absorbés par différents corps célestes afin de déterminer leur composition ou leur température. Cette application a besoin de la plus grande sensibilité possible, afin de détecter les signaux les plus faibles possibles par rapport au bruit ambiant.

Le signal à analyser est une porteuse optique modulée par le signal radiofréquence ou radar d'intérêt, schématisé sur la figure 2.8. Les cristaux dopés aux ions de terre rare sont particulièrement bien adaptés au traitement de ce type de signaux. En effet, grâce à leur largeur inhomogène très grande devant leur largeur homogène, ils permettent d'avoir accès à un grand nombre de canaux spectraux indépendants et une grande bande passante. Deux types d'analyseurs ont été développés : l'analyseur photographique déjà commercialisable et l'analyseur arc-en-ciel dont un démonstrateur industriel est en fonctionnement.

Analyseur photographique Le spectre de la porteuse optique modulée par le signal radiofréquence est imprimé par creusement spectral dans le spectre d'absorption du cristal dopé aux ions de terre

rare. En d'autres termes, l'absorption du cristal est modifiée fréquentiellement en fonction de la densité spectrale de puissance de la porteuse optique modulée par le signal radiofréquence. Les modifications de l'absorption restent en place durant un temps correspondant à la durée de vie des populations atomiques. Pour obtenir le spectre du signal radiofréquence, il suffit de lire la transmission du cristal avec une impulsion peu intense balayée en fréquence sur un intervalle avant la fin de la durée de vie. Le signal détecté par la photodiode est une projection du spectre radiofréquence dans le temps. L'architecture de l'analyseur photographique a été proposée conjointement par les équipes de K. Wagner et de W. R. Babbitt [154, 155].

Un démonstrateur utilisant le principe de l'analyseur photographique a été mis au point par la société S2Corp et le Spectrum Lab de l'université de Montana. Il utilise un cristal de Tm^{3+} :YAG qui présente un élargissement inhomogène de 32 GHz et une largeur homogène de quelques kHz à une longueur d'onde accessible pour des diodes laser. Ce démonstrateur montre d'excellentes performances : une résolution temporelle de 0,2 µs, une dynamique de 62 dB, une bande passante d'analyse de 20 GHz, et une résolution spectrale inférieure au MHz, avec une probabilité d'interception de 100%. Il est aujourd'hui disponible à la vente [156].

Analyseur arc-en-ciel On imprime par creusement spectral dans le spectre d'absorption du cristal plusieurs réseaux de diffraction spatiaux. Chaque réseau diffracte une fréquence différente. Ces réseaux sont creusés de telle sorte que leurs angles de diffraction respectifs soient différents, ainsi une fréquence correspond à un angle de diffraction. La porteuse optique modulée par le signal radiofréquence est ensuite envoyée sur le cristal qui agit comme un prisme dont la dispersion angulaire sépare en sortie les différentes fréquences du signal, à la manière d'un arc-en-ciel. Une barrette de détecteurs reçoit ces signaux : l'emplacement spatial sur la barrette correspond à une fréquence. Cette architecture d'analyseur spectral a été initialement démontrée et mise en œuvre au Laboratoire Aimé Cotton [157, 158].

Elle a été choisie par les équipes de Thales Research and Technology à Palaiseau en collaboration avec le Laboratoire Aimé Cotton, pour réaliser un démonstrateur avec un cristal de Tm^{3+} : YAG [159]. Ses performances sont encourageantes : la bande passante atteint 20 GHz, la résolution est de 50 MHz avec une possibilité de zoom sur une bande spectrale réduite, la probabilité d'interception est de 100% avec un temps d'accès de l'ordre de la µs. Des tests sur signaux réels dans une unité Thalès du Finistère ont permis de valider ces performances ainsi qu'un niveau de maturité technologique avancé. Comparé à l'analyseur photographique, la résolution ultime permise par le cristal de Tm^{3+} : YAG est identique, inférieure au MHz, mais pour l'architecture arc-en-ciel la résolution est limitée par la diffraction.

2.3.3 Traitement de signaux radiofréquences

Le traitement de signaux radiofréquences peut se faire à la fois à l'émission et à la réception. Par exemple il est possible de rendre l'émission plus directionnelle ou mieux focalisée ou de reconnaître automatiquement une partie d'un signal à la réception.

Le traitement à appliquer au signal va être enregistré dans un réseau spectral gravé dans le spectre d'absorption du cristal dopé aux ions de terre rare. Le signal traverse le cristal, il interagit avec le réseau spectral. La (ou les) réplique(s) du signal initial constituent le signal traité voulu.

Retard vrai aussi appelé *true time delay*. L'application phare des retards vrais est de pouvoir émettre de manière directionnelle avec un réseau d'antennes radar large bande. En régime de faible bande passante un simple déphasage suffit. Cependant pour des régimes de large bande passante, le retard créé par déphasage dépend de la longueur d'onde, c'est ce qu'on appelle le *beam squint*. La

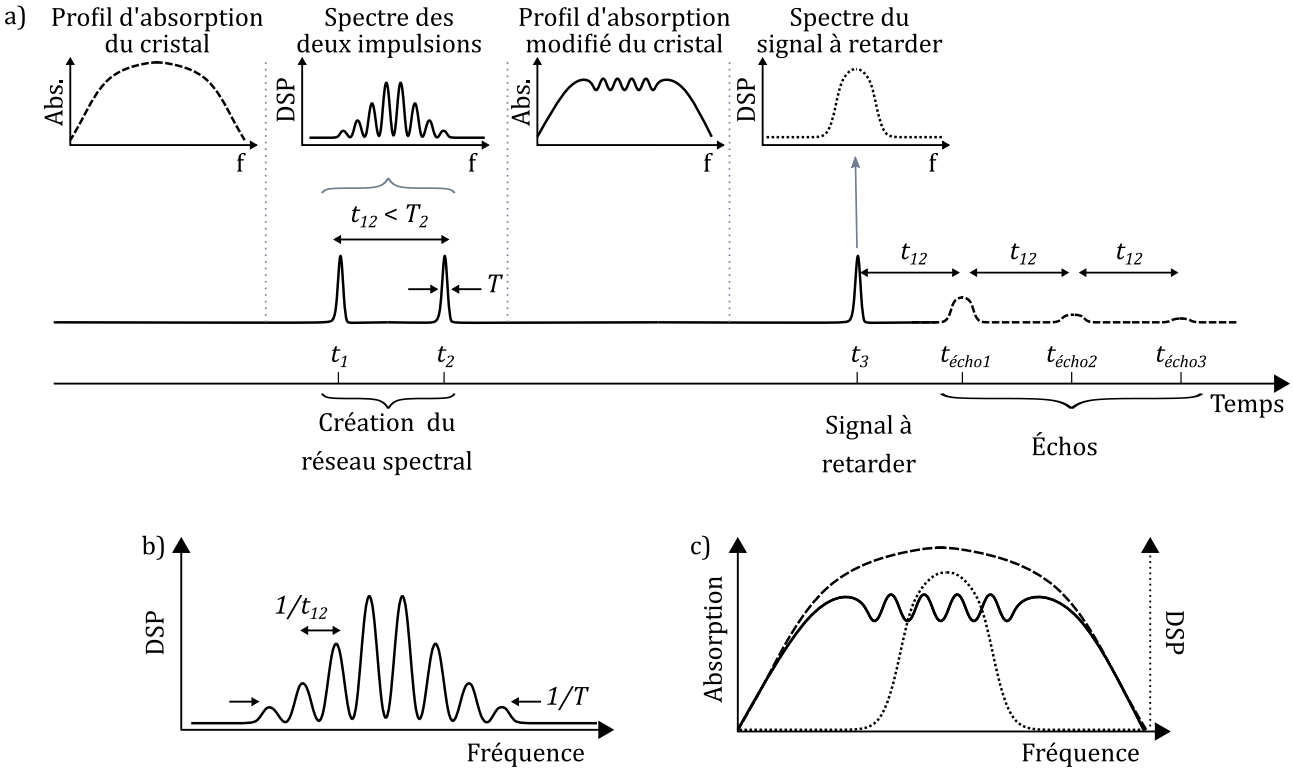

FIGURE 2.9 – Principe de la création de retards vrais avec la technologie de creusement de trou spectral. a) Chronogramme comparé des impulsions mises en regard avec leurs spectres et les profils d'absorption du cristal. Les impulsions 1 et 2 impriment leur spectre d'interférence dans le profil d'absorption du cristal. Le signal est l'impulsion 3, son spectre est plus large que le pas du réseau spectral. Le signal retardé est aussi nommé écho. Abs. : absorption, f : fréquence, DSP : densité spectrale de puissance. b) Densité spectrale de puissance du spectre d'interférence des impulsions 1 et 2 en fonction de la fréquence, le pas du réseau est $1/t_{12}$ et la largeur totale du réseau $1/T$. c) Profils d'absorption du cristal non modifié (tirets), du cristal avec le réseau (trait plein) et densité spectrale de puissance du signal à retarder (pointillés) en fonction de la fréquence.

technique des retards vrais permet de créer des retards indépendants de la longueur d'onde sur des signaux radiofréquences.

La figure 2.9 illustre la création de retards vrais avec le creusement spectral. Dans un matériau à fort élargissement inhomogène, on crée un réseau spectral par interférence entre deux brèves impulsions lumineuses successives séparées de t_{12}. Le réseau spectral est imprimé par creusement spectral dans le profil de transmission du cristal. Le signal radiofréquence est placé sur porteuse optique et est envoyé sur le réseau. Son spectre étant plus large que le pas spectral du réseau, il se diffracte dessus, ce qui a pour effet d'émettre une réplique du signal avec un retard t_{12}. Cette réplique, aussi appelée écho est le premier ordre de diffraction du réseau et est suivie d'autres répliques de plus en plus faibles correspondant aux ordres supérieurs. Ce phénomène est analogue aux réseaux de diffraction spatiaux dans les limites imposées par la causalité : il n'y a pas d'ordres de diffraction négatifs. Cette technique a été initialement démontrée et mise en œuvre par l'équipe de Babbitt à l'université de l'état du Montana aux États-Unis en 1996 [160] dans des cristaux de Tm^{3+} : YAG, bien que le protocole soit généralisable à d'autres cristaux dopés comme Er^{3+} : Y_2SiO_5 [161]. Le protocole initial a été amélioré en remplaçant les impulsions brèves par des impulsions plus longues balayées en fréquence ce qui permet d'atteindre des bandes passantes de quelques dizaines de MHz [162].

Processeur corrélatif aussi appelé *correlative processor*, permet de reconnaître des séquences dans des signaux complexes tels que des signaux radiofréquences, radar ou lidar avec un protocole similaire à celui utilisé pour les retards vrais. L'application principale est de calculer le temps τ entre le moment où une information est émise puis reçue. Le signal reçu a été réfléchi par un objet et lors de sa propagation il est devenu plus bruité. On utilise à nouveau une porteuse optique modulée par le signal radiofréquence et un cristal dopé programmé par creusement spectral comme processeur corrélatif. On programme le cristal en y gravant la corrélation entre le motif à reconnaître et une impulsion de référence. Ensuite l'opération de corrélation est réalisée entre le motif et le signal à traiter, quand le signal traverse le cristal programmé [163]. La démonstration la plus récente permet de traiter un signal de 32 GHz de bande passante en temps réel avec un débit supérieur à 100 Gbit/s [164].

Retournement temporel Au cours de sa propagation dans un milieu inhomogène un signal $s(t)$ va subir un étalement spatial et temporel dégradant la focalisation sur le récepteur. Pour corriger cet effet, l'idée est de traiter le signal en amont de l'émission. L'opération de prétraitement est le retournement temporel, c'est-à-dire la génération du signal $s(-t)$ à partir du signal $s(t)$. Pour être efficace le retournement temporel doit être effectué sur l'ensemble du signal à une vitesse plus courte que la durée caractéristique des variations du milieu de propagation. La variable résumant les contraintes sur le signal est défini par le produit de la durée du signal reçu et de la bande passante du retournement temporel, comprise entre le MHz et le GHz pour des ondes radios à large bande. À titre d'exemple ce produit temps-bande passante doit être égal à 100 pour retourner des signaux de durée de l'ordre de la µs avec une bande passante de 0,1 GHz.

L'architecture développée est dérivée de l'architecture permettant de créer des retards vrais. Le cristal sert de ligne dispersive : les deux impulsions de programmation y créent un réseau spectral à pas variable servant de ligne dispersive. La troisième impulsion est le signal à retourner sur porteuse optique et le premier écho est le signal retourné. La démonstration expérimentale du retournement temporel par creusement spectral a été conduite dans un cristal de Er^{3+} : Y_2SiO_5 au Laboratoire Aimé Cotton. Avec ce montage, les signaux sont retournés avec un temps de latence de quelques µs. Par rapport à l'état de l'art, ils ont la plus grande durée théorique maximale du retournement temporel analogique, 10 µs, mais leur bande passante maximale de 8,2 MHz ne permet pas de traiter des signaux avec une fréquence supérieure sans perte de fidélité [165].

2.3.4 Mémoire quantique

Dans le cadre du développement de la communication quantique, les mémoires quantiques sont nécessaires pour assurer la synchronisation des échanges sur de longues distances. Leur but est de stocker l'information contenue dans des photons uniques et de la ré-émettre après une durée ajustable. Les deux protocoles utilisant le creusement spectral qui ont été explorés avec les cristaux dopés aux ions de terre rare sont les protocoles de lumière lente et de peigne de fréquence atomique.

Peigne de fréquence atomique Un peigne de fréquence atomique aussi dénommé *Atomic Frequency Comb* (AFC) sert à la création de mémoires quantiques avec des cristaux dopés aux ions de terre rare. Le protocole d'AFC reprend le principe de la génération de retards vrais appliquée à des mémoires quantiques au lieu de signaux radars. Le réseau spectral final doit être optimisé différemment. Ce protocole a été initialement proposé par l'équipe de Mikael Afzelius de l'université de Genève [166-168].

Selon un principe similaire à celui des retards vrais, on crée un réseau spectral dont on cherche cette fois à maximiser l'efficacité au lieu de la bande passante. Ce réseau est appelé "peigne de fréquence atomique". L'information est stockée dans un état de superposition entre le niveau fondamental initial

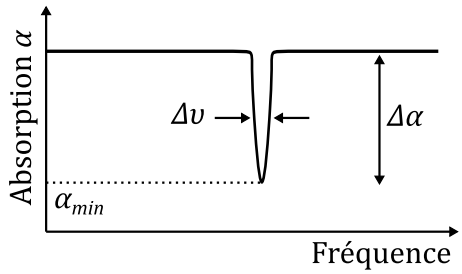

FIGURE 2.10 – Trou spectral pour ralentir la lumière. $\Delta\alpha$ est la différence d'absorption entre le haut et le fond du trou, L la largeur du cristal traversé, $\Delta\nu$ la largeur du trou et α_{min} l'absorption minimal au fond du trou qui détermine le fond continu de la détection.

et le niveau excité pendant la durée $\tau = 1/\Delta$ avec Δ le pas du réseau. Cette durée n'est pas ajustable une fois que le signal est mémorisé. Il est possible d'inclure un basculement vers un état de superposition de niveaux fondamentaux, afin de rendre la durée du stockage ajustable.

Plusieurs cristaux dopés aux ions de terre rare ont été testés pour réaliser une mémoire quantique avec le protocole AFC sans stockage longue durée. L'ion praséodyme du cristal Pr^{3+} : YSO est prometteur du point de vue de la structure des niveaux électroniques et surtout de l'efficacité du stockage qui a atteint 56% [169]. Il est de plus possible de réaliser du stockage longue durée sur les niveaux de spin pour des photons uniques [170]. Le stockage longue durée pour des photons uniques a aussi été démontré jusqu'au régime microseconde dans un cristal Eu^{3+} : YSO [171].

Lumière lente La seconde méthode pour stocker la lumière dans des cristaux dopés terre rare consiste à ralentir puis stopper la lumière. Ce protocole a été proposé au Laboratoire Aimé Cotton [172]. Dans un matériau à fort élargissement inhomogène et très absorbant, on creuse un trou spectral. La lumière qui traverse cette fenêtre de transparence subit une variation d'indice optique très forte due à la forte absorption du matériau. La vitesse de groupe, qui correspond à la vitesse de propagation de l'enveloppe de l'impulsion lumineuse, devient alors très inférieure à la célérité de la lumière dans le vide. La lumière est donc "ralentie" et on peut définir un retard de groupe. Ce ralentissement de la vitesse de groupe s'accompagne d'une compression spatiale de l'onde [173].

La vitesse de groupe de la lumière est liée à cette variation d'absorption par les relations de Kramers-Kronig, qui sont l'expression de la causalité dans le domaine spectral [174]. La vitesse de groupe est ralentie lors du passage à travers le trou spectral par compression de l'impulsion. Le retard accumulé s'exprime comme suit :

$$\text{retard} = \frac{\Delta\alpha L}{(\Delta\nu)^2}\gamma \tag{2.4}$$

avec $\Delta\alpha$ la différence d'absorption entre le haut et le fond du trou, L l'épaisseur du cristal traversé, $\Delta\nu$ la largeur du trou, γ la largeur homogène des raies dans le cristal.

Pour stocker la lumière pendant une durée plus longue que le retard offert par la lumière lente, il a été proposé d'arrêter la lumière. Pour celà il suffit de découpler les atomes du champ pour éviter la fuite de l'information à la vitesse de groupe. C'est la même problématique pour les peignes de fréquence atomique, et on propose la même solution. Le principe est le suivant : pendant que l'impulsion est contenue dans le milieu atomique, il faut transférer les informations sur une onde de spin qui a une plus grande durée de vie, c'est-à-dire transférer l'information sur des niveaux non résonants optiquement. Cette solution a été validée dans le Pr^{3+} : YSO avec une efficacité de 31% [175].

2.3.5 Stabilisation laser et filtrage spectral

La stabilisation laser ainsi que le filtrage spectral sont les deux utilisations des trous spectraux dans cette thèse. Nous en donnons ici une brève description. Elles seront plus détaillées dans les chapitres suivants.

Stabilisation laser La stabilisation en fréquence des lasers utilise le plus souvent un montage de type Pound-Drever-Hall (PDH) avec une cavité Fabry-Perot comme étalon de fréquence. Les performances de ce type de stabilisation sont très bonnes et sont suffisantes pour la plupart des applications. Dans le domaine de la métrologie cependant, les exigences sont encore plus drastiques et les instabilités des sources lasers asservies sur des cavités Fabry-Perot constituent la limitation principale à la stabilité des horloges optiques. En effet on a atteint les limitations fondamentales dues à l'utilisation d'une cavité Fabry-Perot (mouvements brownien des miroirs). Afin de pallier à ces limitations, il faut changer radicalement de système. Il a été proposé d'utiliser des trous spectraux dans des cristaux dopés aux ions de terre rare à température cryogénique comme alternative aux cavités Fabry-Perot. Le bruit intrinsèque de ces systèmes est plus bas que celui des cavités, permettant après le développement suffisant des savoirs-faire d'atteindre une meilleure stabilité en fréquence [176]. Nous reviendrons sur les principes de la stabilisation laser dans le chapitre 5.

Filtrage spectral Le filtrage spectral est une utilisation très directe des trous spectraux. Il profite des faibles largeurs homogènes des raies individuelles au sein de la grande largeur inhomogène pour créer des filtres passe-bandes très fins.

Il peut être utilisé pour affiner spectralement la largeur spectrale d'un laser. Lorsque le laser se propage dans le cristal, le creusement spectral engendre un autofiltrage du spectre du laser. Le laser pourrait ainsi atteindre une largeur spectrale plus fine que la largeur homogène sans rétroaction électronique ou optique [177].

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, le filtrage spectral trouve aussi son utilité dans l'imagerie acousto-optique *in vivo*, de par sa sélectivité spectrale proche du MHz, sa compatibilité avc des faisceaux diffus et son immunité à la décorrélation du speckle. Un filtre composé d'un ou plusieurs trous spectraux dans un cristal dopé aux ions de terre rare est donc une option prometteuse pour filtrer et détecter un signal acousto-optique. Nous verrons dans la partie suivante, les différents cristaux et les différentes approches qui ont été testés dans des montages d'imagerie acousto-optique.

Dans cette partie nous avons vu que le creusement spectral est une technique très versatile de part la variété des architectures et des matériaux employés et utilisable dans une vaste gamme d'applications. De la spectroscopie à haute précision initiale, le creusement spectral est utilisé dans le traitement de signaux radar, la conception de mémoires quantiques, la stabilisation laser et enfin dans l'imagerie médicale via le développement de filtres spectraux optimisés pour l'imagerie acousto-optique.

2.4 État de l'art des techniques basées sur le creusement du trou spectral pour l'imagerie acousto-optique

À ce jour, deux ions ont été testés pour réaliser des filtres spectraux à partir de creusement spectral pour l'imagerie acousto-optique. Pour chacun d'eux plusieurs architectures de filtrage ont été testées, elles utilisent des propriétés différentes des cristaux.

2.4.1 Filtre passe-bande dans le Tm : YAG

Les cristaux grenat d'yttrium-aluminium (YAG) dopés avec des ions thulium ont une raie d'absorption inhomogène centrée à 793 nm, elle est donc facilement accessible avec des diodes laser et se trouve au milieu de la fenêtre de diagnostic optique, ce qui est optimal pour l'imagerie optique en profondeur dans les tissus biologiques.

La première équipe à proposer et réaliser un montage d'imagerie acousto-optique avec une détection des photons marqués par filtrage spectral par creusement de trou spectral est celle de Lihong Wang aux États-Unis en 2008 [122, 123]. Ils utilisent un cristal de Tm^{3+} : YAG fortement dopé (2%). Le trou est créé par un laser de pompe de forte puissance (1 W pendant 3,3 ms). Les photons à la fréquence de la porteuse subissent 14 dB d'atténuation par rapport aux photons marqués, ce qui est un peu faible pour travailler avec de la lumière diffuse. L'échantillon est un gel imitant les propriétés des tissus biologiques (plutôt peu diffusant, d'une épaisseur de l'ordre du cm avec une ou plusieurs inclusions absorbantes à l'intérieur). L'échantillon est éclairé par un faisceau plutôt puissant mais respectant les normes internationales. Durant ce laps de temps, les impulsions ultrasonores de fréquence usuelle pour l'imagerie sont envoyées dans le milieu pour créer les photons marqués. La lumière collectée en sortie de l'échantillon est ensuite envoyée dans le cristal pour être filtrée. L'équipe montre qu'il est possible de détecter les inclusions absorbantes du gel.

En 2010, la même équipe valide la capacité de leur filtre spectral à détecter des inclusions absorbantes et plus ou moins diffusantes sur la même image. Ces trois types d'inclusions sont visibles sur l'image acousto-optique : les inclusions absorbantes et non-diffusantes induisent une baisse du signal, et les diffusantes l'augmentent [178].

2.4.2 Filtre dispersif dans le Tm : YAG

En 2010, l'équipe néozélandaise de Jevon Longdell propose une utilisation originale d'un cristal de Tm^{3+} : YAG dopé à 0,1% pour l'imagerie acousto-optique. Ils réalisent un filtre utilisant les propriétés dispersives du cristal.

Une différence de phase est induite entre les photons marqués et la porteuse. Ensuite grâce aux propriétés dispersives du cristal qui sont en lien avec la variation rapide de l'absorption au voisinage du trou spectral, la différence de phase est transformée en une différence d'amplitude facilement détectable. Leur montage expérimental permet la détection d'ondes ultrasonores, mais l'idée n'a pas été testée avec de la lumière diffuse [179].

2.4.3 Filtrage par lumière lente dans le Pr : YSO

La collaboration en 2012 entre les équipes américaine de Lihong Wang et suédoise de Stefan Kröll propose l'utilisation du cristal de Pr^{3+} : Y_2SiO_5 pour l'imagerie acousto-optique. Le trou spectral est un filtre passe-bande, optimisé pour améliorer le filtrage grâce à la lumière lente, ce qui permet de détecter le signal acousto-optique sur fond noir, et non sur fond clair comme ce qui a été fait pour le cristal de Tm^{3+} : YAG par l'équipe de Lihong Wang (voir la sous-partie 2.4.1). Néanmoins la raie d'absorption se situe autour de 606 nm, longueur d'onde pour laquelle il n'existe pas de diode laser aujourd'hui. Cette longueur d'onde est aussi moins favorable que celle du thulium, car elle est à la bordure de la fenêtre de transparence biologique, donc elle est beaucoup plus absorbée en particulier par l'hémoglobine ce qui l'empêche de pénètrer en profondeur dans les tissus.

Les performances du filtre avec la lumière lente sont très bonnes sur des gels diffusants. Ils détectent des inclusions absorbantes dans des gels plus diffusants et cinq à neuf fois plus épais que ce qui avait été réalisé avec le filtre passe-bande dans le Tm : YAG par l'équipe de Lihong Wang (voir la sous-partie 2.4.1). La porteuse est atténuée de 30 dB [149].

Par la suite l'équipe suédoise de Stefan Kröll continue de développer le filtre spectral pour l'imagerie acousto-optique dans le Pr^{3+} : Y_2SiO_5, dans le but d'améliorer son contraste. Ils obtiennent un filtre dont l'atténuation de la porteuse est de 55 dB [180].

Ils ont ensuite comparer théoriquement des performances possibles de l'imagerie acousto-optique et les performances réelles de la tomographie photoacoustique. Ils ont conclu que l'imagerie acousto-optique serait plus adaptée pour l'imagerie en profondeur. En effet, le rapport contraste à bruit, c'est-à-dire la différence d'absorption dans le tissu divisée par le bruit, serait meilleur pour l'imagerie acousto-optique.[181].

L'équipe de Stefan Kröll collabore maintenant avec la nouvelle équipe irlandaise de Stefan Andersson-Engels. Ils réalisent des simulations d'un système d'imagerie acousto-optique utilisant la lumière lente avec une détection des photons marqués en rétrodiffusion. Ils cherchent d'abord à déterminer l'épaisseur maximale de tissu traversé (5 cm avec leurs paramètres). Leur simulation indique de plus que l'illumination de l'échantillon et la collection de lumière diffuse doivent être placées au plus près de la zone de focalisation des ultrasons pour augmenter le signal des photons marqués.

2.4.4 Peigne de fréquence atomique pour les photons marqués

L'équipe de Jevon Longdell propose une variante inspirée des techniques des mémoires quantiques du filtrage par lumière lente. L'idée est d'utiliser un peigne de fréquence atomique pour décaler temporellement les photons marqués par rapport à la porteuse. Le procédé est le suivant : on modifie le profil d'absorption par creusement spectral de façon à obtenir une large fenêtre de transparence à la fréquence de la porteuse, entourée de deux peignes de fréquence atomique aux fréquences des photons marqués. La lumière à la fréquence porteuse passe au milieu du trou et n'est pas modifiée, tandis que les photons marqués sont ralentis jusqu'à 6 µs et peuvent être détectés sur fond noir par fenêtrage temporel [182]. Il n'y a pas eu de suite, peut-être à cause de la difficulté de préparation du cristal.

L'utilisation des cristaux de Tm^{3+} : YAG pour réaliser le filtre spectral bien que prometteuse, est limitée par le faible contraste du filtre pour la lumière diffuse. C'est pourquoi la recherche a surtout porté sur les cristaux de Pr : YSO qui permettent un contraste de filtrage plus important. Cependant les filtres réalisés dans ces derniers n'ont que peu été testés sur des gels diffusants et n'ont pas été testés *in vivo*.

2.5 Conclusion

Nous avons vu que les ions de terre rare ont une structure électronique particulière qui leur permet d'être assez insensibles à leur environnement. Par conséquent lorsqu'ils sont insérés dans une matrice cristalline ils gardent une faible largeur homogène à température cryogénique, même si l'élargissement inhomogène du cristal est plusieurs ordres de grandeur plus grand. Ce sont donc des matériaux bien adaptés au creusement de trou spectral, une technique permettant de modifier le profil d'absorption. Le creusement spectral peut être utilisé dans une vaste gamme de protocoles et d'applications. La première application a été la spectroscopie de haute précision, ensuite se sont plutôt développées des architectures d'analyse et de traitement de signaux radiofréquences offrant une alternative intéressante à des approches numériques. Plus récemment l'engouement pour les technologies quantiques donne lieu à un fort développement des mémoires quantiques dans des cristaux dopés aux ions de terre rare. Parallèlement, comme toutes ces techniques nécessitent des lasers stabilisés, des efforts ont aussi été apportés à la stabilisation laser proposant plusieurs solutions qui seront plus détaillées dans le chapitre 5. Finalement le creusement spectral a été adapté à l'imagerie médicale pour détecter le signal de photons marqués créé par imagerie acousto-optique. Deux ions ont été étudiés à cette fin.

Le praséodyme du cristal Pr^{3+} : Y_2SiO_5 offre de belles promesses en terme de contraste bien que la longueur d'onde ne soit pas absolument optimale. Le thulium dans le cristal de Tm^{3+} : YAG offre quant à lui une longueur d'onde plus adaptée à l'imagerie en profondeur dans les tissus biologiques, mais les premières démonstrations expérimentales ont mis en évidence un filtre de contraste un peu faible.

Aucune de ces approches n'est pleinement satisfaisante. Dans le chapitre suivant, je décrirai comment l'application d'un champ magnétique à un cristal de Tm : YAG permet d'améliorer le contraste et la durée de vie des trous spectraux, de façon à gagner sur les deux tableaux.

Chapitre 3

Étude du cristal de Tm :YAG sous champ magnétique

Sommaire

3.1 Trous persistants dans le Tm :YAG 67

3.1.1 Structure Zeeman nucléaire sous champ magnétique 67

3.1.2 Création d'un trou spectral et spectre 71

3.1.3 Temps de vie Zeeman 73

3.2 Spectroscopie spécifique au montage expérimental 74

3.2.1 Conditions expérimentales 74

3.2.2 Champ magnétique et méthodes de mesure 77

3.2.3 Mesure du temps de vie 79

3.2.4 Optimisation de la puissance de gravure et de la longueur d'onde 81

3.3 Conclusion 83

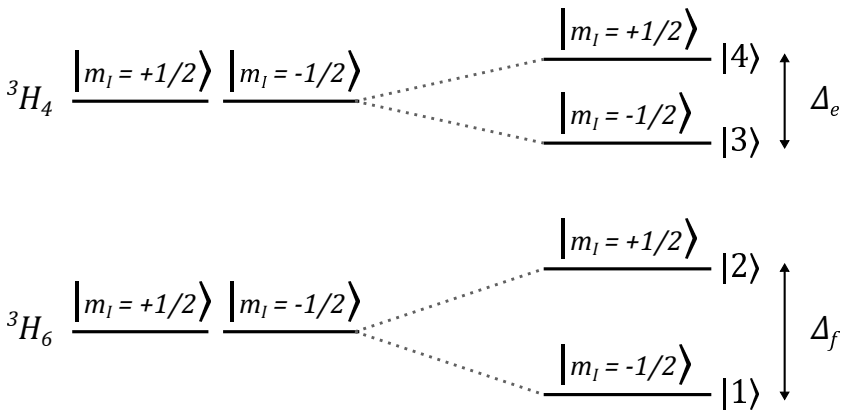

FIGURE 3.1 – Création de la structure hyperfine de l'ion thulium trivalent dans une matrice de YAG grâce à l'ajout d'un champ magnétique. Δ_e est l'écart énergétique entre les deux sous-niveaux hyperfins de l'état excité, Δ_f entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental.

Nous avons vu dans le chapitre 1 que l'imagerie acousto-optique est une modalité prometteuse pour le diagnostic médical. Cependant cette modalité n'est pas encore utilisable *in vivo*, c'est pourquoi le filtrage par creusement de trou spectral serait une méthode de détection efficace des photons marqués. Dans la première partie de ce chapitre nous nous intéresserons au cristal de Tm^{3+} : YAG et nous tâcherons de montrer comment il est possible d'améliorer la qualité du filtre spectral en ajoutant un champ magnétique. Dans un deuxième temps nous verrons quelles sont les conditions expérimentales imposées par l'imagerie et comment elles diffèrent des conditions de spectroscopie classique, et enfin on se penchera sur l'influence du champ magnétique et deux autres paramètres importants pour le creusement des trous spectraux : la longueur d'onde et la puissance du faisceau de pompe.

3.1 Trous persistants dans le Tm :YAG

Nous allons ici montrer comment l'application d'un champ magnétique modifie les niveaux d'énergie du Tm : YAG et comment cela permet de conduire à un trou spectral persistant.

3.1.1 Structure Zeeman nucléaire sous champ magnétique

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué sur le cristal de Tm^{3+} : YAG, l'effet Zeeman nucléaire entraine un éclatement des niveaux d'énergie et donc une levée de dégénérescence. En effet chaque niveau électronique se scinde en deux sous-niveaux à cause du spin nucléaire $I = 1/2$ de l'ion. Chaque sous-niveau est associé à un nombre quantique magnétique $m_I = \pm 1/2$. La figure 3.1 montre l'éclatement des niveaux d'énergie $^3H_6$ et $^3H_4$. On note Δ_f l'écart énergétique entre les deux sous-niveaux fondamentaux et Δ_e l'écart entre les deux sous-niveaux excités.

Dans un tel système une transition optique ne peut pas retourner le spin nucléaire. La règle de sélection est donc $\Delta m_I = 0$. Les transitions autorisées sont $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$ (voir la figure 3.1).

Anisotropie d'orientation La matrice de YAG est cubique, c'est-à-dire qu'elle est de haute symétrie. Les sites de substitution de l'ion thulium trivalent sont cristallographiquement équivalents mais présentent six orientations différentes. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué sur le cristal, l'éclatement des niveaux dépend linéairement de l'amplitude du champ magnétique, ainsi que de l'orientation des sites de substitution du thulium par rapport au champ magnétique. Les sites de substitution ont

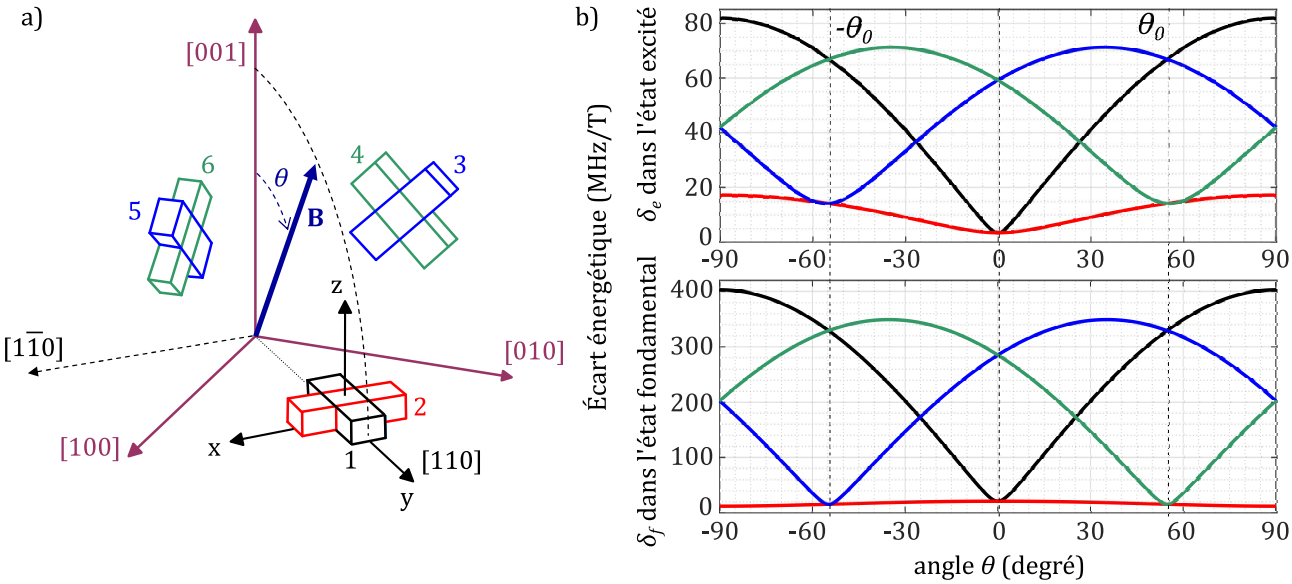

FIGURE 3.2 – Anisotropie des sites de substitution et des écarts énergétiques. a) Orientation des sites de substitution de l'ion thulium trivalent dans la matrice YAG. Pour un champ magnétique $\overrightarrow{B}$ orienté dans le plan bissecteur orthogonal à $[1\bar{1}0]$, les sites 3 et 5 en bleu (respectivement les sites 4 et 6 en vert) sont magnétiquement équivalents. Le système d'axes locaux (x, y, z) est spécifique au site 1. b) Écarts énergétiques calculés pour les différentes classes de sites à partir de données expérimentales, en fonction de l'angle θ entre la direction du champ magnétique et la direction verticale [100]. On définit les écarts énergétiques $\delta_f = \Delta_f/B_0$ et $\delta_e = \Delta_e/B_0$ respectivement dans les états fondamental et excité avec B_0 l'amplitude du champ magnétique en Tesla. L'angle $\theta_0 = \arccos\left(1/\sqrt{3}\right)$ correspond à un champ magnétique appliqué dans la direction [111]. Les couleurs correspondent aux sites équivalents de la partie a). Illustration et données de [130].

Orientation de $\overrightarrow{B}$	δ_f (MHz/T)	δ_e (MHz/T)	sites équivalents
[001]	285 ± 2	60 ± 2	3, 4, 5 et 6
[111]	329 ± 2	67 ± 2	1, 3 et 5

TABLE 3.1 – Écarts énergétiques entre niveaux fondamentaux δ_f et excités δ_e par rapport à l'orientation du champ magnétique. Données de [130].

une symétrie D_2 et selon leur position dans la matrice ils sont orientés différemment par rapport à la polarisation de l'onde lumineuse et du champ magnétique. Par conséquent ils ne sont pas tous magnétiquement équivalents, comme schématisé dans la figure 3.2 a). L'éclatement hyperfin est le même pour des ions magnétiquement équivalents, et il sera différent pour des ions non magnétiquement équivalents pour une orientation donnée du champ magnétique. On voit que les sites 3 et 5, respectivement 4 et 6, sont équivalents pour certaines orientations du champ magnétique seulement, mais ces paires ne sont pas équivalentes entre elles ni avec les sites 1 et 2. L'éclatement des niveaux va donc dépendre de l'orientation du cristal par rapport au champ magnétique.

Dans la thèse d'Anne Louchet [130], l'éclatement anisotrope des niveaux énergétiques a été calculé théoriquement et mesuré en fonction de l'orientation des sites de substitution par rapport au champ magnétique et à la polarisation du faisceau de pompe. Les mesures des écarts énergétiques Δ_f et Δ_e pour différentes amplitudes B_0 et orientations du champ magnétique, ont permis de valider le modèle théorique. On en a déduit les écarts d'énergie par unité de champ magnétique c'est-à-dire les sensibilités Zeeman au champ magnétique $\delta_f = \Delta_f/B_0$ et $\delta_e = \Delta_e/B_0$. Elles sont représentées en fonction de l'orientation de ce champ dans la figure 3.2 b) pour les niveaux excités et fondamentaux pour les différents sites de substitution.

Cette figure met d'abord en évidence l'anisotropie d'orientation de l'éclatement des sous-niveaux d'énergie. En effet les sensibilités varient de plusieurs ordres de grandeurs selon l'orientation du champ. Elle montre aussi les orientations optimales du champ magnétique pour avoir de grands éclatements énergétiques identiques pour le plus grand nombre de sites magnétiquement équivalents. Ainsi les trous creusés dans ces sites ont des durées de vie identiques, permettant au temps de vie du filtre spectral final d'évoluer de manière homogène sur l'ensemble des ions.

Les écarts d'énergie augmentent avec le champ magnétique. Si le champ magnétique est faible, les niveaux d'énergie sont trop proches et on n'arrive pas à les résoudre. Si le champ magnétique est très grand, les mécanismes d'interaction avec les phonons de la matrice cristalline deviennent plus importants. Les phonons induisent des relaxations rapides ce qui peut entrainer une diminution du temps de vie selon le matériau. Dans le Tm : YAG pour les champs plus grands que 500 G les phonons interagissent avec les ions par une relaxation spin-réseau, et diminuent le temps de vie des trous [183]. Il faut donc trouver un compromis pour la valeur du champ magnétique.

Nous avons vu que l'éclatement des niveaux d'énergie dépend de l'amplitude et de l'orientation du champ magnétique. Par conséquent on s'attend à ce qu'il y ait un élargissement inhomogène Zeeman des transitions lorsque le champ magnétique n'est pas uniforme spatialement.

Équivalence des sites de substitution Dans l'orientation $\theta = 0$, c'est-à-dire lorsque le champ magnétique est aligné avec la polarisation et l'axe cristallographique [001], les sites 3, 4, 5 et 6 sont magnétiquement équivalents. Dans l'orientation $\theta_0 = \arccos\left(1/\sqrt{3}\right)$ parallèle à l'axe [111] les sites 3, 5 et 1 sont magnétiquement équivalents. Ces deux orientations seront utilisées au cours de cette thèse. Le choix de polariser la lumière respectivement selon [001] ou [111] permet d'adresser uniquement ces sites-là. La figure 3.3 montre les sites équivalents et excités pour ces deux orientations.

Le tableau 3.1 présente les éclatements énergétiques par unité de champ magnétique pour les

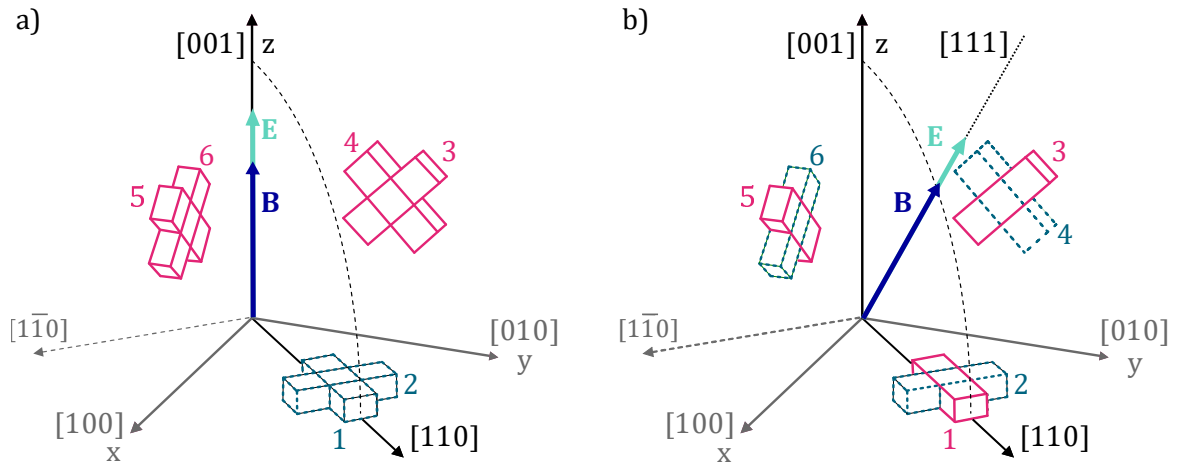

FIGURE 3.3 – Configurations des champs électrique $\overrightarrow{E}$ et magnétique $\overrightarrow{B}$ qui optimisent le nombre de sites excités magnétiquement équivalents (en trait plein rose). Les sites qui ne sont pas excités sont représentés en pointillé. Les sites sont placés à 45 ° des axes du repère (x, y, z). Illustration adaptée de [130].

deux orientations optimales du champ magnétique du groupe de sites de substitution équivalents. La première orientation [001] est la plus étudiée pour le Tm : YAG, la valeur donnée correspond aux sites 3, 4, 5 et 6 [184, 185]. Dans sa thèse, Ijaz Zafarullah [186] a mis en évidence un temps de vie Zeeman records dans l'orientation [111]. Les éclatements énergétiques présentés dans cette orientation concernent les sites 3, 5 et 1. Dans les deux cas les faisceaux de pompage et de lecture se propagent selon la direction [1$\bar{1}$0] et sont polarisées selon [001].

Dans une expérience ordinaire de spectroscopie, les faisceaux de pompage et de lecture sont généralement polarisés dans la même direction. Ainsi les deux faisceaux interagissent avec les mêmes sites : les sites excités par la pompe sont donc lus par la sonde. Si les polarisations des faisceaux pompe et sonde sont orthogonales, la configuration est dite "croisée" et est plus défavorable, car les sites excités ne seront pas forcément sondés. L'absorption du cristal est proportionnelle à la somme des carrés des projections du champ sur les moments dipolaires de transition des sites cristallographiques. On peut donc estimer en deux étapes la perte de transmission du cristal dans une configuration croisée. La première étape consiste à déterminer avec quels sites les faisceaux interagissent. Dans ce but, on projette le faisceau d'intérêt sur les sites cristallographiques. La deuxième étape consiste à identifier quels sites absorbent ou transmettent parmi ceux qui interagissent avec la sonde. On peut ainsi estimer la perte de transmission par rapport à une sonde colinéaire à la pompe. Prenons l'exemple d'un faisceau pompe orienté selon [001], le vecteur unitaire qui lui est associé est $\mathbf{E}_p = [001]$. Les orientations des moments dipolaires des sites de substitution i sont exprimés par les vecteurs unitaires $\mathbf{s}_i$ donnés ci-dessous dans le repère (x, y, z) de la figure 3.3

$$\mathbf{s}_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{bmatrix}1\\1\\0\end{bmatrix} ; \mathbf{s}_2 = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{bmatrix}-1\\1\\0\end{bmatrix} ; \mathbf{s}_3 = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{bmatrix}0\\1\\1\end{bmatrix} ; \mathbf{s}_4 = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{bmatrix}0\\-1\\1\end{bmatrix} ; \mathbf{s}_5 = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{bmatrix}1\\0\\1\end{bmatrix} ; \mathbf{s}_6 = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{bmatrix}-1\\0\\1\end{bmatrix} \quad (3.1)$$

Le total des projections du faisceau de pompe sur les sites cristallographiques est donné par :

$$\sum_{i=1}^{6} (\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{E}_p)^2 = \underbrace{0+0}_{\substack{\text{pas d'interaction}\\ \text{avec les sites 1 et 2}}} + \underbrace{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}+\frac{1}{2}+\frac{1}{2}}_{\text{interaction avec les sites 3, 4, 5 et 6}} \quad (3.2)$$

Si la sonde est orientée perpendiculairement à la pompe, comme par exemple selon [110] $\mathbf{E}_s = \frac{1}{\sqrt{2}}[110]$, le total des projections est le suivant

$$\sum_{i=1}^{6} (\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{E}_s)^2 = \underbrace{1}_{\substack{\text{interaction} \\ \text{avec le site 1} \\ \Rightarrow\text{absorbant}}} + 0 + \underbrace{\frac{1}{4} + \frac{1}{4} + \frac{1}{4} + \frac{1}{4}}_{\substack{\text{interaction avec les sites 3, 4, 5 et 6} \\ \Rightarrow\text{transparents}}} \tag{3.3}$$

Le site 1 n'ayant pas interagi avec le faisceau pompe $\mathbf{E}_p$ absorbe le faisceau sonde $\mathbf{E}_s$. Les sites 3, 4, 5 et 6 ayant interagi avec la pompe sont transparents pour la sonde. On pondère la transmission et l'absorption par les coefficients de la projection de la sonde sur les sites. On en déduit que la moitié du faisceau de sonde est transmis par le cristal, c'est-à-dire que la configuration croisée (polarisation [001] pour la pompe et [110] pour la sonde) transmet la sonde deux fois moins bien que la configuration colinéaire (polarisations de la pompe et de la sonde identiques [001]). De manière similaire on peut aussi définir les configurations croisée et colinéaire pour la pompe orientée selon [111]. Le calcul montre aussi que la sonde dans la configuration perpendiculaire est deux fois moins bien transmise que dans la configuration colinéaire.

La configuration croisée n'est donc pas optimale pour transmettre la sonde.

3.1.2 Création d'un trou spectral et spectre

À l'équilibre la population atomique est répartie équitablement entre les deux sous-niveaux fondamentaux, comme illustré dans la figure 3.4 a). À cause de l'élargissement inhomogène, un faisceau monochromatique excite deux classes d'ions : les (i) et (ii) de la figure 3.4. Seul le niveau fondamental résonant optiquement est pompé, le niveau $|1\rangle$ pour les atomes de classe (i) et $|2\rangle$ pour les ions de classe (ii). Les atomes se désexcitent à nouveau en partie dans le niveau métastable $^3F_4$. Ce niveau $^3F_4$ se dédouble aussi mais la valeur de l'éclatement énergétique n'est pas importante pour le creusement spectral. Les atomes relaxent ensuite en partie vers le niveau fondamental non-pompé : la population du niveau fondamental pompé diminue. Cette étape conclut le cycle de pompage optique schématisé sur la figure 3.4 b).

Si on arrête la pompe, le système relaxe et les populations atomiques retrouvent leurs valeurs initiales. En particulier, le mécanisme d'équilibrage des populations dans les niveaux fondamentaux est lié aux interactions avec les phonons de la matrice. Il est plus lent que la relaxation radiative depuis le niveau métastable $^3F_4$ qui ne change pas avec le champ magnétique.

Lire le spectre d'absorption d'un trou spectral sous champ magnétique Dans un cristal de Tm^{3+} : YAG sans champ magnétique, le trou spectral se caractérise par une simple diminution dans le spectre d'absorption. Sous champ magnétique dans le Tm^{3+} : YAG, il existe en revanche plusieurs transitions optiques proches, c'est-à-dire que la longueur d'onde de transition diffère de moins de la largeur inhomogène Γ_{inh} de la raie d'absorption du cristal. C'est aussi le cas dans le cristal de Pr^{3+} : YSO sans champ magnétique. C'est pourquoi les structures gravées dans le spectre d'absorption sont un peu plus complexes.

Lorsque la sonde est résonante avec la transition pompée, elle met en évidence le manque d'atomes dans le sous-niveau. Elle voit un *trou*, c'est-à-dire une diminution de l'absorption. Lorsque la sonde est résonante avec un sous-niveau présentant un excès d'atomes, elle voit un *anti-trou*, c'est-à-dire une augmentation de l'absorption. Le déséquilibre de population dans les ions de la classe (i), mis en évidence dans la figure 3.4 b), engendre une modification de l'absorption du cristal aux fréquences f_0 (trou) et $f_0 + \Delta_e - \Delta_f$ (anti-trou). Pour les ions de la classe (ii) on observe un trou à f_0 et un anti-trou à $f_0 + \Delta_f - \Delta_e$.

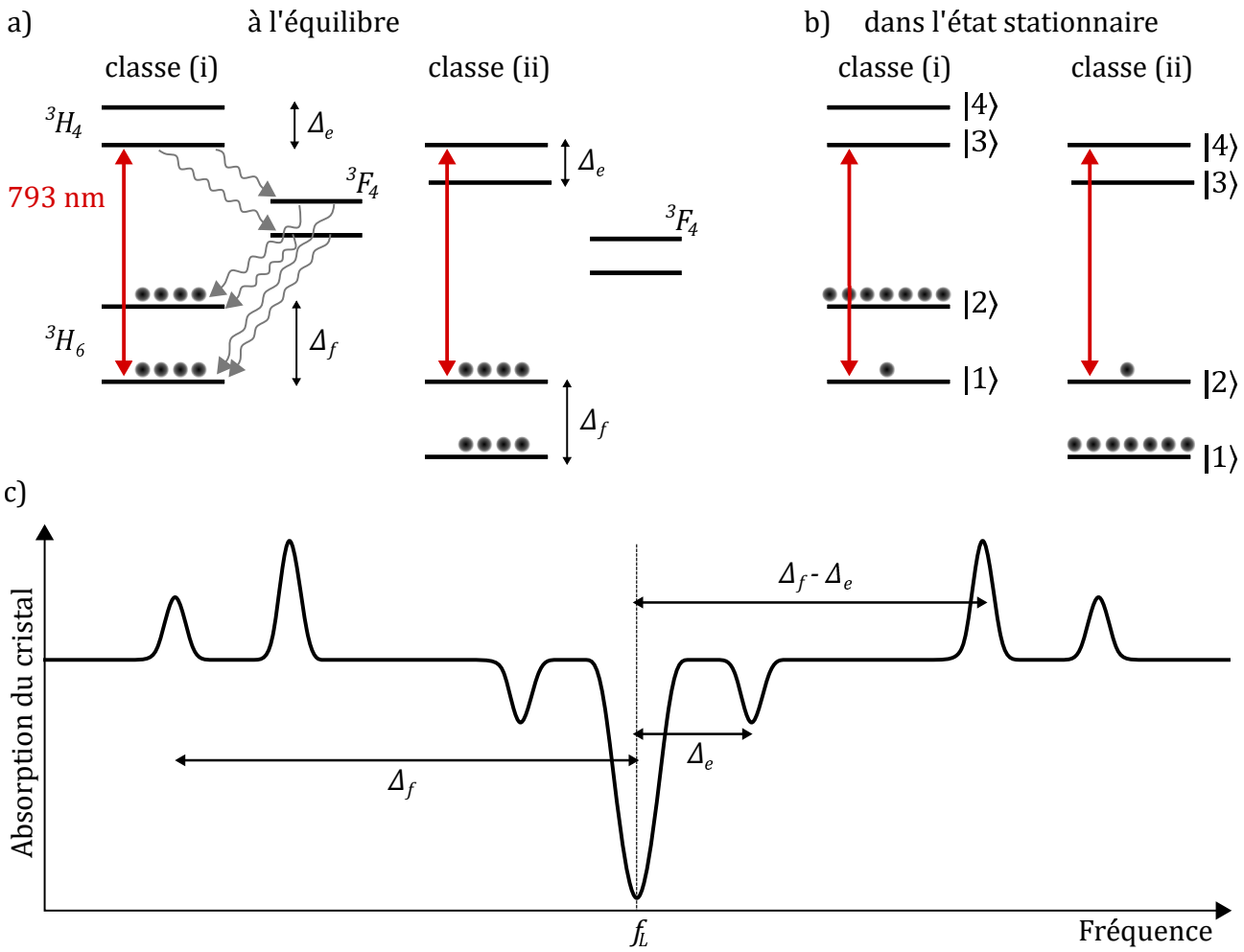

FIGURE 3.4 – Lecture d'un spectre d'absorption du cristal de Tm^{3+} : YAG sous champ magnétique. a) Diagrammes des niveaux à l'équilibre. On représente les deux classes d'ions (i) et (ii) excitées par la pompe. b) Diagramme des niveaux dans leurs états stationnaires sous excitation. c) Exemple de spectre d'absorption d'un trou spectral dans l'état stationnaire. Δ_e est l'écart énergétique entre les deux sous-niveaux hyperfins de l'état excité, Δ_f entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental. En ordre de grandeur Δ_f est environ 50 fois plus grand que Δ_e.

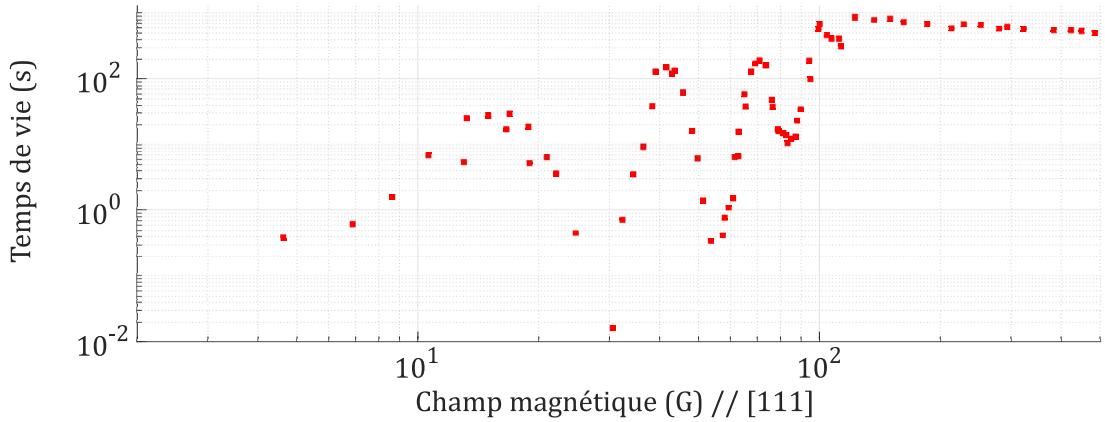

FIGURE 3.5 – Mesure du temps de vie Zeeman à 793nm dans un cristal de Tm^{3+} : YAG dopé à 1% à 2,5 K en fonction de l'amplitude du champ magnétique $\overrightarrow{B}$ orienté selon l'axe cristallographique [111]. Mesures issues de [188].

Sur la figure 3.4 c), on observe sur le spectre d'absorption du cristal qu'il y a des structures supplémentaires. Elles sont creusées par la pompe lorsqu'elle est résonante avec les transitions faibles (quasiment interdites) $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Ces transitions correspondent à des classes d'atomes non représentées dans la figure 3.4. On observe alors des trous à $f_0 \pm \Delta_e$ et des anti-trous à $f_0 \pm \Delta_f$ [187]. Finalement, le spectre complet d'un trou spectral comporte sept structures en excès ou en déficit d'absorption.

Par conséquent la lecture d'un spectre d'absorption modifié par creusement spectral permet de mesurer l'éclatement énergétique Δ_f du fondamental et celui Δ_e du niveau excité.

3.1.3 Temps de vie Zeeman

Le temps de vie Zeeman est égal au temps de vie d'un trou spectral quand il n'y a pas d'atomes dans les niveaux excité et métastable. Il correspond à la relaxation entre les niveaux Zeeman.

Les données de la figure 3.5 ont été prises dans un cristal de Tm^{3+} : YAG dopé à 1%, les faisceaux sonde et pompe se propagent dans la direction $[1\bar{1}0]$ et sont polarisés selon [001], et le champ magnétique est orienté selon l'axe [111]. Les mesures ont été réalisées par creusement spectral. On creuse un trou et après un temps t, on mesure son aire, qui correspond au nombre d'atomes manquants dans le niveau pompé. On recommence pour une grande gamme de valeurs de t pour obtenir la courbe d'évolution de la taille du trou en fonction du temps. On peut ensuite extraire de cette courbe le temps de vie Zeeman. On recommence pour chaque valeur du champ magnétique, ce qui permet de tracer la durée de vie des trous spectraux en fonction de l'amplitude du champ magnétique.

On représente sur la figure 3.5 le temps de vie des populations dans les niveaux Zeeman en fonction du champ magnétique. Globalement le temps de vie augmente entre 0 et 100 G puis atteint un plateau. On notera que la durée de vie chute à 30 G, 60 G et 90 G, cela correspond aux résonances entre les ions thulium et aluminium de la matrice qui permet un transfert d'excitation. Cette excitation peut ensuite se céder aux autres ions aluminium de la matrice et donc se perdre par diffusion de spin [189]. Le temps de vie Zeeman pour un champ magnétique de 200 G est d'environ 700 s. Il faut cependant noter qu'une température faible et stable est nécessaire pour avoir un long temps de vie. Lors de sa thèse Yoann Attal a mesuré la dépendance en température de ce temps de vie et il a observé que le temps de vie peut perdre approximativement un ordre de grandeur par tranche de 0,5 K supplémentaire [146]. À la limite de 4 K, le temps de vie Zeeman retrouve une valeur similaire à celui sans champ magnétique.

L'évolution du temps de vie avec le champ magnétique orienté selon l'axe cristallographique [001] est similaire à celle de l'orientation [111]. Les résonances avec les ions aluminium sont également présentes aux même fréquences mais à des champs magnétiques différents car les écarts énergétiques entre les niveaux sont différents. La valeur plateau du temps de vie est un peu plus basse à 300 s.

Grâce au champ magnétique, le temps de vie Zeeman dépasse 1 s, le trou spectral est alors qualifié de persistant.

Les longs temps de vie de l'une ou l'autre des orientations permettent une meilleure accumulation de la gravure, ce qui rend possible l'obtention de trous spectraux encore plus profonds. Le principe d'accumulation fonctionne comme suit : le premier cycle de pompage optique déplace une partie des atomes de l'état fondamental vers un état hors équilibre. Les atomes déplacés sont stockés dans un niveau réservoir, l'état fondamental non pompé, et dans lequel ils restent longtemps. Pendant le creusement du trou, plusieurs cycles de pompage optique sont réalisés. Nous avons vu qu'à la fin d'un cycle de pompage, le niveau fondamental pompé est partiellement vidé pour un long moment, les cycles de pompage suivants vont donc pouvoir vider de plus en plus ce niveau, car ils vont exciter des atomes d'un niveau d'énergie déjà partiellement vide. Pendant que l'on accumule la gravure, les populations atomiques se rééquilibrent en continu : ce rééquilibrage est d'autant plus lent que le temps de vie Zeeman est long. Il est possible d'atteindre un état stationnaire, en particulier concernant le nombre d'atomes dans le niveau fondamental pompé, qui dépend des durées de vie des niveaux, de la probabilité de relaxation entre deux niveaux [146] et de la puissance de pompe. C'est pourquoi de manière générale, plus le temps avant le retour à l'équilibre est long, plus le niveau pompé peut être vidé, donc plus l'absorption à cette longueur d'onde est faible, c'est-à-dire que le trou creusé est plus profond. Si ce trou est utilisé pour du filtrage spectral, il offre une plus grande dynamique de filtrage.

Nous avons vu les caractéristiques générales des trous spectraux dans le Tm^{3+} : YAG sous champ magnétique. Plus de détails sur les effets précis du champ magnétique sur le cristal peuvent être trouvés dans la thèse d'Anne Louchet [130]. L'éclatement des niveaux d'énergie est anisotrope et plus grand pour les niveaux fondamentaux que pour les niveaux excités. Le temps de vie Zeeman dépend fortement du champ magnétique avec un optimum pour [111] et 100 à 300 G. Dans la suite nous allons étudier et caractériser les propriétés du cristal dans la configuration utilisée pour l'imagerie acousto-optique.

3.2 Spectroscopie spécifique au montage expérimental

Les conditions expérimentales d'utilisation du cristal sont très différentes entre des expériences classiques de spectroscopie comme celles décrites dans la partie précédente et une expérience de filtrage pour l'imagerie acousto-optique. Cette partie présente la caractérisation du filtre spectral en condition réelle d'utilisation.

3.2.1 Conditions expérimentales

Nous utilisons deux cristaux de Tm^{3+} : YAG dopés à 2% de surface 1 cm × 1 cm et d'épaisseur L de 2 ou 4 mm de Scientific Materials. L'épaisseur optique du cristal de 2 mm est d'environ $\alpha L = 6$ avec α le coefficient d'absorption, ce qui correspond à une absorption du cristal de 26 dB. L'absorption du cristal est difficile à mesurer, en particulier pour les cristaux très absorbants comme ceux utilisés ici. L'absorption a été estimée à partir d'une mesure réalisée sur un autre cristal dopé à 0,5%. La température du cristal est fixée autour de 2 K avec un cryostat à hélium liquide à température variable (SMC-TBT). La largeur homogène est de l'ordre de quelques kHz et la largeur inhomogène mesurée

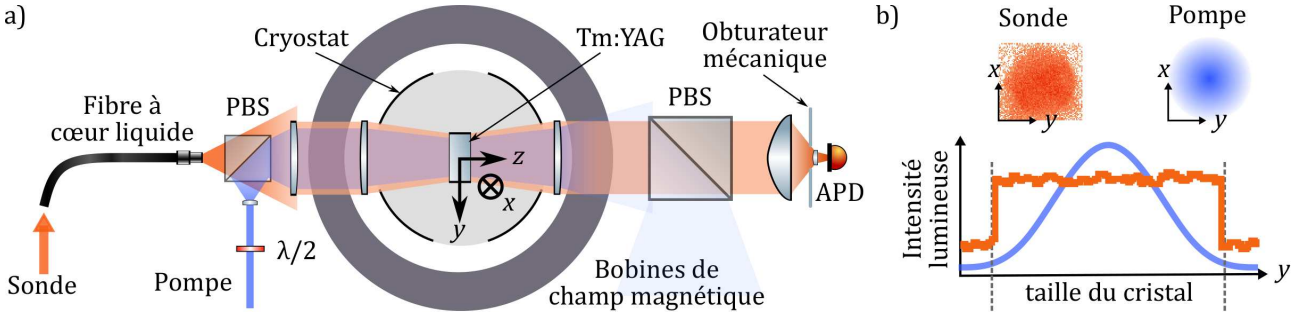

FIGURE 3.6 – a) Montage optique de spectroscopie. Le faisceau de sonde est représenté en orange. La lame demi-onde ($\lambda/2$) permet de régler la polarisation du faisceau pompe (en bleu). Le cube polarisant à séparateur de faisceau (PBS) les combine en entrée du cryostat pour illuminer le cristal. En sortie du cryostat un autre cube PBS dévie la majorité de la puissance de la pompe. L'alignement des optiques permet d'optimiser la détection de la sonde par la photodiode à avalanche (APD).b) Modes spatiaux des faisceaux sonde et pompe. La sonde (orange) est sous forme de tavelures car elle est constituée de lumière diffuse. La pompe (bleue) est gaussienne.

est de 30 GHz. Le cristal est placé dans un champ magnétique, dont la valeur est fixée aux alentours de 200 G pour que le temps de vie Zeeman soit grand. Ensuite on ajuste le champ magnétique tel que $\Delta_f - \Delta_e = 5\,\text{MHz}$, ainsi la fréquence de la porteuse est au niveau d'un anti-trou. On grave un deuxième trou à 10 MHz du premier tel que la fréquence de porteuse soit entre les deux trous. Ce deuxième trou crée aussi des anti-trous à $\Delta_f - \Delta_e = 5\,\text{MHz}$. Il y a donc un deuxième anti-trou à la fréquence de la porteuse, elle est d'autant plus absorbée. Ainsi à la fréquence de la porteuse, c'est-à-dire pour les photons non-marqués, l'absorption du cristal est plus importante que l'absorption nominale .

Le laser à 793 nm soit $12\,604{,}44\,\text{cm}^{-1}$, est séparé en deux faisceaux : la pompe et la sonde. La figure 3.6 a) représente le montage optique utilisé. Le faisceau pompe est agrandi pour éclairer toute la surface du cristal soit environ $1\,\text{cm}^2$. Pour la caractérisation, le faisceau sonde traverse de l'eau et un diffuseur (papier optique), puis il est collecté par une fibre à cœur liquide (Lot-Oriel) à grande étendue $45\,\text{sr}\cdot\text{mm}^2$. La lumière diffuse en sortie de la fibre est focalisée sur le cristal, la taille minimale du faisceau est d'environ 1 cm, tout en limitant au maximum les pertes dans le cryostat. Afin d'optimiser le recouvrement spatial des faisceaux pompe et sonde dans le cristal, nous avons choisi une géométrie où les deux faisceaux sont copropageants dans le cryostat. Ils sont combinés en entrée du cryostat grâce à un cube séparateur de faisceau polarisant. En sortie du cryostat un second cube séparateur polarisant transmet le faisceau sonde tandis qu'il dévie la majorité de la puissance du faisceau pompe pour protéger la photodiode à avalanche (Hamamatsu APD module C12703). Néanmoins une partie de la pompe a été dépolarisée et sature quand même la photodiode à avalanche, donc nous avons ajouté un obturateur mécanique (Uniblitz VS14) pour bloquer le faisceau pompe résiduel.

Les fenêtres du cryostat n'étant pas traitées anti-reflet, elles engendrent une baisse de la transmission de 22 % entre l'entrée du cryostat et le cristal. Il faut ajouter les 70 % de pertes dues à l'ouverture des optiques et du cryostat dont l'étendue est estimée à $6\,\text{sr}\,\text{mm}^2$. Le faisceau pompe est majoritairement polarisé selon la direction [001], la sonde selon [110], la configuration croisée n'est pas optimale mais représente un bon compromis avec l'encombrement et l'accès optique limité du cryostat. La puissance du faisceau pompe incidente sur le cryostat varie entre 40 et 65 mW ce qui correspond à 9 et 15 mW sur le cristal.

Les différences majeures avec un montage de spectroscopie classique sont l'utilisation de lumière diffuse, les surfaces utiles plus étendues et une plus grande absorption du cristal. Le faisceau sonde se présente sous forme de speckle, son mode spatial n'est donc pas adapté au mode gaussien de la

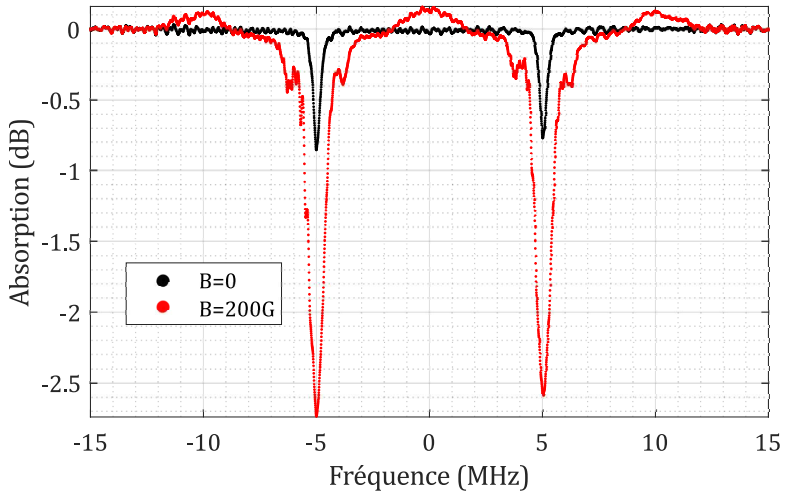

FIGURE 3.7 – Influence du champ magnétique. Double trou aux fréquences des photons marqués sans champ (noir) et avec champ magnétique $\overrightarrow{B}$ (rouge). Le faisceau sonde est de la lumière diffuse

gravure comme le montre la figure 3.6 b). Les trous sont gravés dans le profil d'absorption du cristal avec le faisceau pompe gaussien, par conséquent les trous au centre du faisceau seront plus profonds et plus saturés que les trous périphériques. La sonde lit les trous sur l'ensemble du volume du cristal. Le signal détecté en sortie du cryostat effectue la moyenne des trous pondérée par le mode spatial de la sonde. Dans le cas où la sonde serait adaptée au faisceau de pompe (avec un mode gaussien similaire), la moyenne pondérée privilégie les trous profonds et saturés situés au milieu du cristal. Ce n'est pas le cas ici où la sonde constituée de lumière diffuse lit le volume du cristal de manière différente. L'intensité moyenne est plus homogène au niveau macroscopique, mais elle devient très inhomogène au niveau microscopique à cause des tavelures. La moyenne pondérée résultante met plus en avant les trous moins bien gravés en bordure du cristal. Couplé au fait que le cristal est très absorbant, les trous spectraux résultants sont moins profonds et moins contrastés.

La séquence type utilisée pour les mesures de spectroscopie est la suivante. L'impulsion de gravure dure 10 ms et inscrit deux trous spectraux séparés de 10 MHz, il y a donc l'équivalent de 5 ms de gravure par trou spectral. Après une pause de 4 ou 5 ms nécessaire pour ouvrir l'obturateur, le faisceau sonde illumine le cristal. On utilise une impulsion balayée en fréquence qui balaye 30 MHz en 200 µs. Cette séquence a une période de répétition de 100 ms, limitée par la fréquence de fonctionnement de l'obturateur mécanique.

La figure 3.7 montre un double trou sans champ magnétique (en noir) et avec champ magnétique (en rouge) qui ont été réalisés avec la séquence type de spectroscopie, à la différence que la pompe n'était pas balayée en fréquence permettant ainsi de creuser des trous fins. On voit que les trous creusés sous champ magnétique sont plus profonds, grâce au meilleur pompage optique discuté précédemment. En effet le faible taux de répétition ne permet pas l'accumulation des trous transitoires. De plus la lecture des trous a lieu 5 ms après la gravure, les trous transitoires sont donc déjà à moitié effacés. On voit aussi les trous secondaires à $\Delta_e \approx 1$ MHz du trou principal et les anti-trous correspondant à Δ_f et $\Delta_f - \Delta_e$ qui ont coalescé ensemble. Les anti-trous sont généralement plus larges que les trous car il sont plus sensibles à l'élargissement inhomogène des écarts Zeeman dû à l'inhomogénéité du champ magnétique sur l'ensemble du volume considéré.

3.2.2 Champ magnétique et méthodes de mesure

La figure 3.8 montre les variations observables de l'effet du champ magnétique selon la méthode utilisée pour sonder les trous spectraux. Cette figure diffère de la 3.7 en plusieurs points. D'abord on ne voit plus les trous secondaires car les trous principaux sont élargis. En effet on utilise une pompe balayée en fréquence et qui sature les transitions optiques. Le laser est balayé sur une faible plage de fréquence afin que la largeur spectrale de l'impulsion soit de 0,5 MHz. Ainsi la largeur des trous résultants est d'environ 1,7 MHz ce qui permet de transmettre efficacement les photons marqués. En effet les photons marqués ont une largeur spectrale d'environ 2,4 MHz, égale à celle des impulsions ultrasonores qui les ont créés. Les anti-trous ne sont pas visibles non plus car ils sont encore plus élargis que les trous principaux. De plus il faut noter que l'absorption minimale entre les deux figures 3.7 et 3.8 est différente, par conséquent l'absorption relative (absorption sur les 30 MHz balayés par la sonde par rapport à l'absorption à la fréquence de la porteuse) varie d'une courbe à l'autre.

Les courbes (a) montrent les trous sondés par une impulsion atténuée créée à partir du faisceau pompe qui n'est pas un faisceau diffus. La puissance du faisceau est divisée par dix, par rapport à l'étape de pompage. Le recouvrement spatial entre la pompe et la sonde est optimal, car leurs modes sont identiques. Le signal détecté est la moyenne pondérée des trous spectraux sur le volume du cristal tel qu'elle représente le mieux les trous les mieux gravés. L'élargissement par saturation du pompage optique est donc visible. Les deux trous ne sont pas parfaitement symétriques car l'efficacité du modulateur acousto-optique n'est pas parfaitement constante sur toute sa bande passante.

Les courbes (b) sont obtenues avec le faisceau sonde diffus balayé en fréquence. On constate que les trous n'ont pas la même forme que ceux sondés par le faisceau pompe atténué des courbes (a). Le recouvrement spatial entre la pompe et la sonde n'est plus optimal car leurs modes spatiaux sont maintenant très différents, comme représenté dans la figure 3.6 b). La répartition de puissance de la sonde sur le cristal est en effet plus homogène que celle de la pompe. Par conséquent les trous sur les bords du cristal seront mieux représentés dans le signal final, c'est-à-dire la moyenne pondérée des trous lus par la sonde. Les trous peu gravés étant plus fins, le trou moyen observé est plus fin. On pourra noter que sur la figure les trous des courbes (b) paraissent plus profonds que ceux des courbes (a). Cela s'explique parce que les courbes a) sont obtenues avec un faisceau atténué et que la position du détecteur n'a pas été optimisée pour ce faisceau (l'optimisation du positionnement des optiques et du détecteur a été réalisée pour le faisceau de la sonde diffuse).

Une autre méthode intéressante est la mesure de transmission du cristal. On peut la déduire à partir des courbes (c). La sonde est constitué de trois impulsions en forme de gaussiennes temporelles (forme temporelle typique des photons marqués). La première est à la fréquence $f_L + f_{US}$ des photons marqués qui coïncide avec la fréquence $f_L + (\Delta_f - \Delta_e)$ grâce au réglage du champ magnétique. La seconde impulsion est à la fréquence f_L qui correspond à la fréquence de la porteuse. La troisième impulsion est à la fréquence $f_L - f_{US}$ qui coïncide avec la fréquence $f_L - (\Delta_f - \Delta_e)$. Elle est façonnée à partir du faisceau sonde. La mesure montre que le champ magnétique augmente la transmission des photons marqués par rapport à la porteuse. On peut déduire de ces courbes la transmission du filtre en dB grâce à l'aire sous chacune des impulsions transmises :

$$\text{Transmission du filtre } = 10\log_{10}\left(\frac{\sum integrale\ PM}{integrale\ porteuse}\right) \tag{3.4}$$

Enfin, la dernière méthode pour observer l'effet du champ magnétique est de directement observer le signal des photons marqués (voir les courbes (d) de la figure 3.8). Dans cette figure les photons marqués sont créés par effet acousto-optique dans un récipient d'eau, puis ils sont transmis par les trous et enfin ils sont détectés par la photodiode à avalanche. Ils sont en effet le meilleur indicateur pour mesurer le contraste du filtre, car les paramètres liés aux problèmes de recouvrement des faisceaux ainsi que le décalage en fréquence du laser qui peuvent modifier cette durée sont pris en compte.

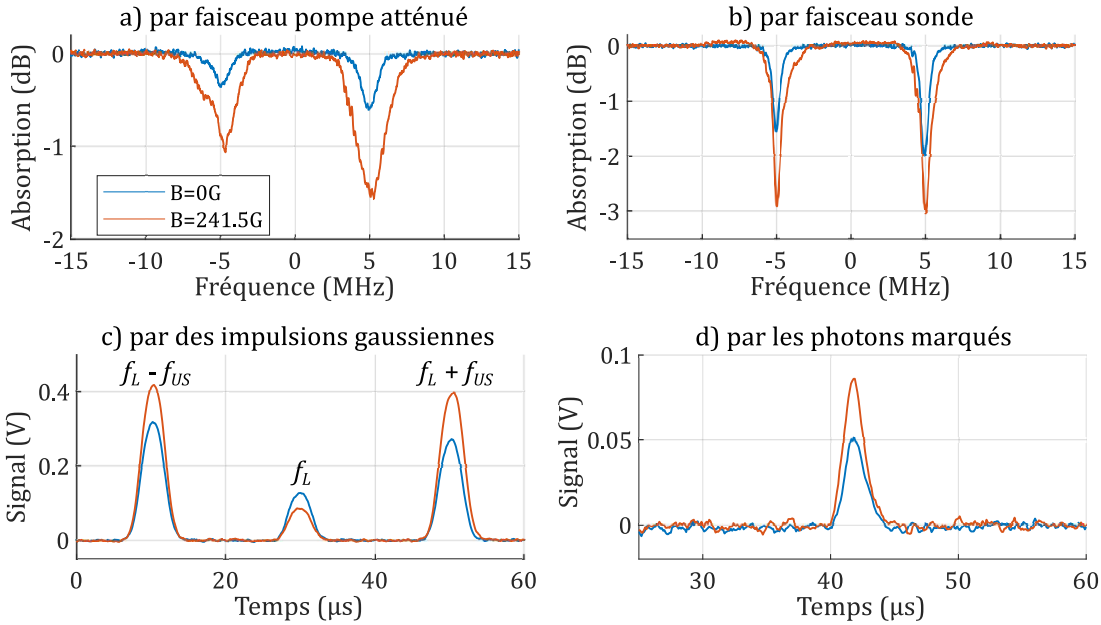

FIGURE 3.8 – Influence du champ magnétique et de la méthode de mesure. Les quatre illustrations représentent différentes manières de sonder les trous spectraux. a) La sonde est une impulsion balayée en fréquence du faisceau pompe atténué. b) La sonde est une impulsion balayée en fréquence du faisceau sonde. c) La sonde est constituée de trois impulsions du faisceau sonde. Les impulsions ont une forme temporelle gaussienne et sont centrées successivement aux fréquences des photons marqués et de la porteuse. d) La sonde est le signal des photons marqués. Ils ont été créés avec une impulsion ultrasonore d'une durée de huit cycles à 5 MHz dans de l'eau.

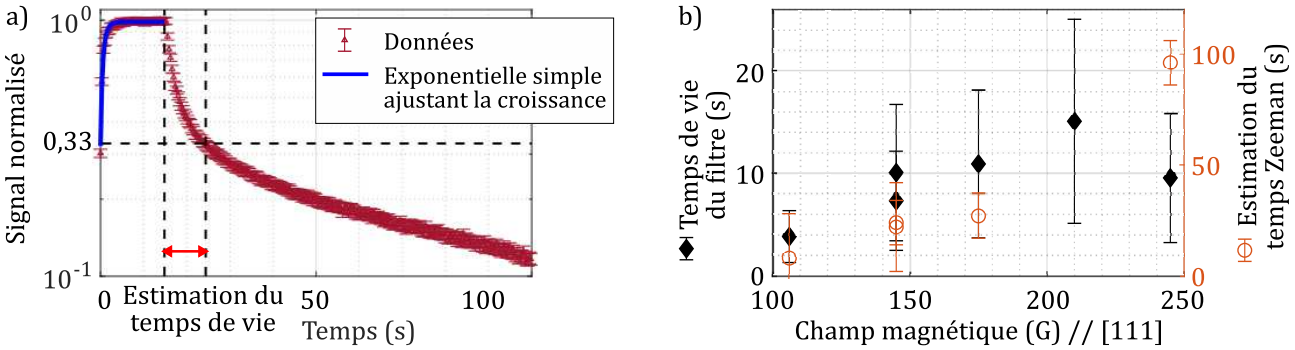

FIGURE 3.9 – Estimation du temps de vie du filtre pour l'imagerie acousto-optique. a) Méthode de mesure. Évolution du signal intégré de la sonde balayée en fréquence en fonction du temps (points rouges foncés). La croissance du signal est ajustée par une exponentielle simple (ligne bleue), de temps caractéristique de 1 s. Le temps de vie estimé correspond à la durée nécessaire pour que le signal correspondent à 33% du maximum. b) Ordre de grandeur des temps de vie effectifs dans les configurations d'imagerie (losanges noirs) et estimation du temps Zeeman (cercles rouges, temps caractéristique de l'exponentielle avec la plus grande constante de temps de l'ajustement). Le champ magnétique est orienté selon l'axe [111] du cristal de 2 mm à une température de 2 K. Les mesures ont été réalisées avec la sonde balayée en fréquence. La puissance de la pompe varie typiquement entre 9 et 15 mW sur le cristal.

3.2.3 Mesure du temps de vie

Méthode de mesure du temps de vie On utilise la séquence décrite dans la sous-partie précédente 3.2.1 : on envoie périodiquement une étape de gravure suivie d'une lecture avec les photons marqués (figure 3.8 d)), puis avec le faisceau sonde diffus balayé en fréquence (figure 3.8 b)). Les faisceaux pompe et sonde sont étendus de manière à ce qu'ils éclairent toute la surface du cristal $\approx 1 \times 1\,\mathrm{cm}^2$.

D'abord le champ magnétique est éteint. Après quelques cycles gravure-lecture il est allumé, on observe l'augmentation de la profondeur du trou jusqu'à sa profondeur maximale : l'état stationnaire est atteint. Ensuite on bloque manuellement le faisceau de gravure et on observe la décroissance du trou ou du signal des photons marqués. L'analyse des données consiste à représenter l'évolution du trou en fonction du temps afin d'en tirer un temps de vie caractéristique. On suit à la fois la sonde balayée en fréquence et le signal des photons marqués. À partir de l'intégrale de ces signaux, on peut observer l'évolution de la quantité de signal et donc de la profondeur des trous et des anti-trous en fonction du temps. On a converti la transmission de la sonde (ou des photons marqués) en populations atomiques par une transformation logarithmique avec une normalisation pas très bien connue (à cause de l'incertitude sur la valeur de αL) mais qui permet quand même de fixer les idées. C'est pourquoi la croissance et la décroissance d'un trou sont de type exponentiel.

L'ensemble des trous et des anti-trous compose le filtre spectral. La figure 3.9 a) montre comment sont estimés le temps de création et le temps de vie du filtre. On déduit des mesures un temps de création du trou de l'ordre de 1 s avec l'établissement du trou et un temps de vie avec sa décroissance. Néanmoins on observe plutôt une décroissance multi-exponentielle qui ne permet pas une mesure précise du temps de vie. Les lectures répétées du trou engendrent une gravure partielle qui pourrait être la cause du trou résiduel. Nous présentons donc plutôt la durée entre le début de la décroissance et le moment où le trou fait 33% de sa profondeur maximale. C'est une mesure approximative qui permet surtout de donner un ordre de grandeur du temps de vie effectif tel que le verront les photons marqués.

Champ magnétique	TDV sonde balayée	TDV photons marqués
230 G // [001]	47 ± 32 s	47 ± 40 s

TABLE 3.2 – Estimation comparée des temps de vie (TDV) des trous spectraux par l'évolution du signal de la sonde balayée en fréquence et du signal de photons marqués sous champ magnétique de 230 G orienté selon [001], le cristal de de 2 mm est à une température de 2,5 K.

Temps de vie mesuré avec le champ magnétique selon [111] La figure 3.9 b) présente les durées de décroissance assimilables en ordre de grandeur aux temps de vie des trous pour des champs magnétiques entre 100 et 250 G. Ces mesures ont été réalisées avec des trous spectraux à 2,25 MHz de la porteuse, correspondant aux impulsions ultrasonores de 2,25 MHz. Le faisceau sonde est balayé en fréquence avec une puissance de 32 mW sur le cristal. On constate que les durées sont à peu près constantes sur la gamme de champ magnétique étudiée, avec une moyenne autour de 10 s. La comparaison des figures 3.9 et 3.5, met en évidence des temps Zeeman mesurés plus faibles d'un ou deux ordres de grandeur. Sur une gamme de champ magnétique équivalente le temps Zeeman varie entre 300 et 800 s, alors que l'on a estimé des durées Zeeman variant entre 8 et 100 s. Plusieurs facteurs sont à l'origine de ce comportement. Premièrement la méthode de mesure ne permet pas une identification complètement fiable du temps de vie Zeeman. En effet, elle inclut la part des atomes relaxant depuis les niveaux excité et métastable, qui n'est pas négligeable à cause des ions en périphérie du faisceau. Deuxièmement nous travaillons ici dans un cristal dopé à 2% où les interactions entre les ions thulium ne sont probablement pas négligeables, à la différence des mesures de la figure 3.5. Troisièmement l'inhomogénéité du champ magnétique en orientation et en amplitude (de l'ordre de 0,4 % en amplitude sur l'ensemble du volume du cristal) peut engendrer une distribution des temps de vie. Enfin, la dérive spectrale du laser désaccorde la sonde par rapport aux trous, faisant artificiellement chuter la transmission des photons marqués. Tous ces effets vont diminuer soit la taille du trou soit la quantité de signal reçu tout en augmentant le bruit de mesure. De plus ils expliquent aussi pourquoi les durées de vie effectives mesurées du trou spectral sont encore plus faibles que les temps Zeeman. Elles varient entre 4 et 15 s.

Le temps de création du trou est de 1 s en ordre de grandeur pour l'ensemble des valeurs explorées du champ magnétique.

Temps de vie mesuré avec le champ magnétique selon [001] De la même manière que pour l'orientation du champ magnétique selon [111], on estime l'ordre de grandeur du temps de vie des trous spectraux. Dans le cristal de 2 mm d'épaisseur, on creuse des trous à ± 5 MHz de la porteuse. Ils transmettent les photons marqués créés avec des impulsions ultrasonores de 5 MHz. La puissance du faisceau sonde sur le cristal est de 2,3 mW, ce qui est plus conforme aux puissances conseillées pour ne pas modifier les trous en les observant.

Comme pour l'orientation [111], le temps de création du trou est de 1 s pour l'ensemble des configurations explorées.

Le tableau 3.2 présente les durées équivalentes en ordre de grandeur au temps de vie des trous spectraux sous un champ magnétique de 230 G. On constate que la mesure sur le cristal de 2 mm est presque identique avec les deux méthodes (47 s). La mesure du temps de vie avec une sonde balayée en fréquence permet donc d'avoir une bonne idée de l'ordre de grandeur du temps de vie du filtre pour les photons marqués.

Nous avons vu que l'estimation du temps de vie des trous dans l'ensemble des configurations explorées dépasse la seconde et peut atteindre plusieurs dizaines de secondes, ce qui serait plus avantageux pour la création d'un filtre d'imagerie acousto-optique par rapport au 8 ms de temps de vie en l'absence

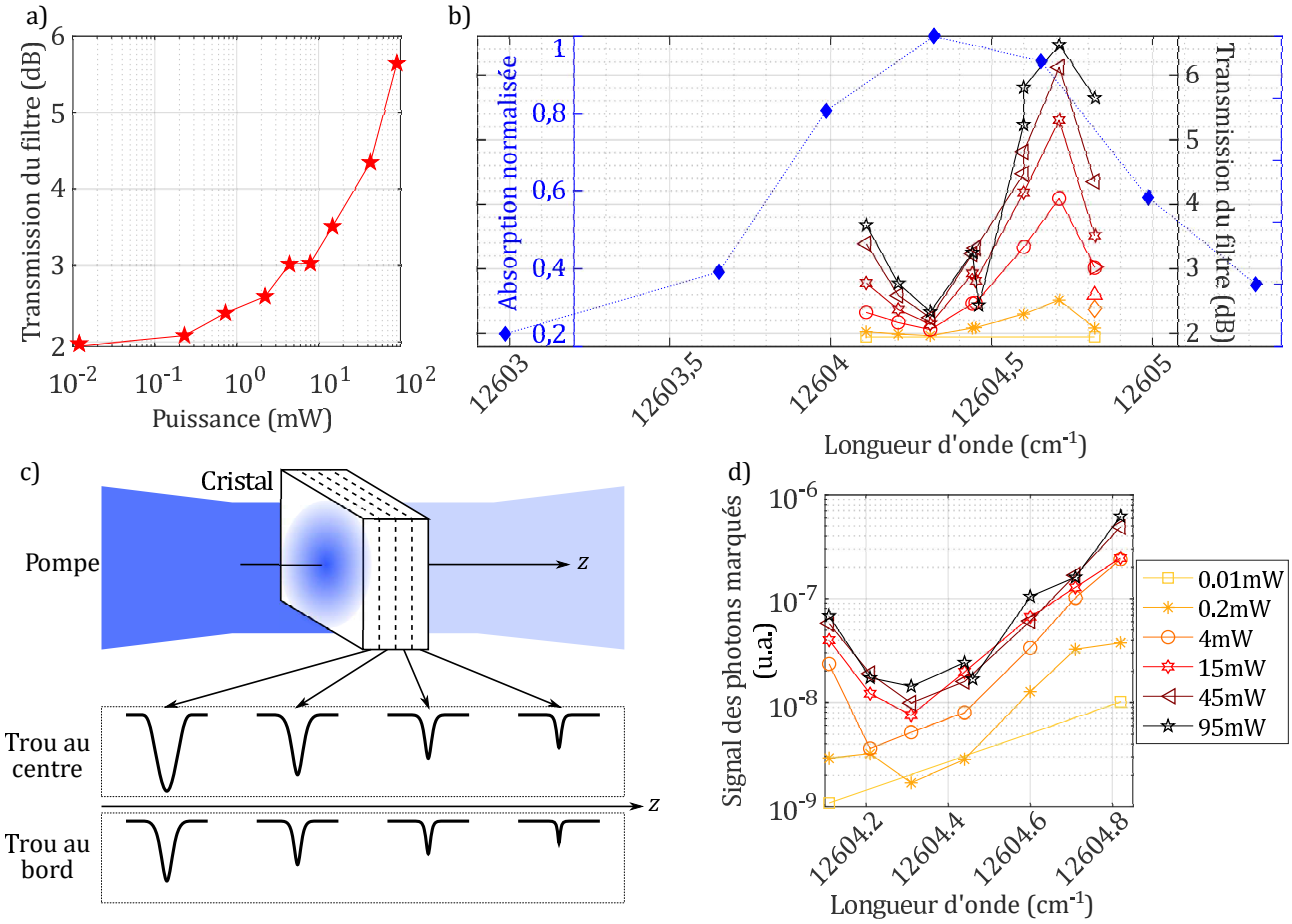

FIGURE 3.10 – Influence de la puissance et de la longueur d'onde sur la gravure. a) Influence de la puissance pour une longueur d'onde 12 604,82 cm^{-1}. b) Influence de la longueur d'onde pour différentes puissances de gravure (courbes en traits pleins avec des symboles en contour, légende identique à la figure d)) et la raie d'absorption normalisée du cristal (losanges pleins bleus et ligne en pointillés) mesurée par Jean-Baptiste Laudereau [111]. c) Évolution schématique de la taille des trous creusés en fonction de leur position dans le cristal. d) Influence de la longueur d'onde et de la puissance de gravure sur le signal intégré des photons marqués.

de champ magnétique. Il s'agit maintenant d'optimiser la profondeur des trous spectraux.

3.2.4 Optimisation de la puissance de gravure et de la longueur d'onde

La puissance de gravure et un positionnement précis de la longueur d'onde du laser dans la raie d'absorption du cristal sont deux paramètres de forte influence sur la profondeur des trous. Nous avons évalué cette influence grâce aux expériences suivantes. La gamme de fréquence est de 21 GHz (équivalent à 0,7 cm^{-1} ou 0,044 nm) et limitée par l'excursion en fréquence du laser accessible par la variation de la longueur de la cavité avec son élément piézoélectrique. La puissance de gravure varie entre 0,01 et 100 mW et est mesurée avant le cristal. Les courbes de la figure 3.10 a) et b) montrent la transmission du cristal en dB calculée avec la formule 3.4.

Puissance de gravure La figure 3.10 a) montre que la transmission du filtre spectral augmente quand la puissance de gravure augmente. Sans surprise la gravure est donc plus efficace quand elle est

plus puissante.

Choix de la longueur d'onde optimale La figure 3.10 b) montre l'évolution de la transmission du filtre en fonction de la longueur d'onde à une puissance fixée. Une mesure de la raie d'absorption normalisée du cristal est superposée à ces courbes, elle a été réalisée par Jean-Baptiste Laudereau [111], afin de mieux visualiser l'évolution de la transmission par rapport à son positionnement dans la raie. La raie d'absorption du cristal de Tm^{3+} : YAG est centrée autour de 12 604,32 cm^{-1}. On voit qu'au milieu de la raie d'absorption, le cristal de 2 mm d'épaisseur est si absorbant que la transmission du filtre est plus basse que sur le bord de la raie. Cela est dû au fait qu'un trou spectral ne permet jamais d'atteindre 100% de transparence, donc l'absorption résiduelle peut devenir très importante dans un cristal très absorbant.

La figure 3.10 c) illustre la perte de puissance de la pompe lors du creusement de trou spectral dans l'épaisseur du cristal et le phénomène d'absorption résiduelle. Au centre du cristal, l'éclairement est plus important donc les trous gravés dans la première section du cristal sont profonds et élargis. Dans la deuxième section, une petite partie de la puissance de pompe a été absorbée par le cristal, il y a donc moins de puissance disponible pour le creusement des trous spectraux, ils seront plus petits et moins élargis. Par conséquent plus la pompe traverse d'épaisseur du cristal plus elle est absorbée, donc la puissance pour le creusement spectral diminue, les trous sont de plus en plus petits et fins. Le même phénomène a lieu sur les bords du cristal où la puissance est plus faible dès le départ. De la même manière les photons marqués lorsqu'ils traversent le cristal seront bien transmis au centre et proche de la face d'entrée du cristal et seront plus absorbés sur les bords et proche de la face de sortie. Le faisceau sonde balayé en fréquence traverse l'ensemble du volume du cristal, le signal reçu par la photodiode à avalanche est la moyenne des trous sur l'ensemble du cristal pondérée par la répartition de puissance de la sonde. En moyenne c'est ce trou moyen qui filtrera le signal des photons marqués.

La figure 3.10 b) nous montre qu'il faut trouver un compromis pour avoir le filtre le plus efficace possible. Se placer au centre de la raie permet de bien absorber le signal de la porteuse. Mais se placer sur le bord permet d'avoir des trous plus profonds, c'est-à-dire une plus grande transparence pour les photons marqués. La longueur d'onde 12 604,7 cm^{-1} semble être optimale car elle est bien placée en bord de raie et accessible avec le laser.

Épaisseur du cristal et puissance de gravure Nous avons vu les effets indépendants de la puissance et de la longueur d'onde de gravure sur la transmission du cristal, il faut maintenant étudier conjointement ces deux paramètres.

La figure 3.10 b) permet aussi de confirmer que plus la puissance de gravure est importante, meilleure est la transmission du filtre.

Il est intéressant de comparer cette figure à son équivalente 3.10 d), sur laquelle est représentée l'intégrale du signal des photons marqués en fonction de la longueur d'onde pour plusieurs puissances de gravure. On voit que la puissance de gravure atteint plus rapidement un plateau à partir de 15 mW. Les effets des puissances plus importantes sont moins marqués. On retrouve le fait que le signal est plus faible au centre de la raie que sur les bords. Cependant on ne voit pas de diminution du signal de photons marqués sur l'extrémité de la raie à partir de 12 604,8 cm^{-1}. Il faudrait explorer le comportement plus au bord de la raie en retouchant le réseau à l'intérieur de la cavité laser pour définir les avantages à se décaler davantage.

Une série moins complète de mesures a aussi été réalisée sur le cristal de 4 mm d'épaisseur. L'effet de la longueur d'onde de gravure sur la profondeur des trous est tout aussi remarquable : au centre de la raie le cristal est tellement absorbant que le signal des photons marqués n'est pas détectable et le signal issu du faisceau sonde balayé en fréquence montre de petits trous très fins. Il a donc été

décidé pour la suite des expériences de n'utiliser que le cristal de 2 mm, qui permet d'avoir des trous globalement plus contrastés et plus de signal. Nous allons aussi maximiser la puissance de gravure.

3.3 Conclusion

Nous avons vu que le cristal Tm : YAG voit ses niveaux se dédoubler lorsqu'il est placé dans un champ magnétique, et forme ainsi une structure à quatre niveaux accessibles avec un laser à 793 nm. L'éclatement des niveaux dépend linéairement du champ magnétique, il est différent pour les niveaux fondamentaux et excités. Il dépend aussi de l'anisotropie des sites de substitution. Pour mesurer l'éclatement des niveaux il suffit de sonder le trou spectral et d'interpréter les structures additionnelles qui apparaissent sous champ magnétique (trous secondaires et anti-trous).

La durée de vie des trous augmente fortement lorsque l'on applique un champ magnétique sur le cristal car il y a un changement de mécanisme de retour à l'équilibre. Une expérience classique de spectroscopie montre que pour un champ entre 100 et 300 G orienté selon [111], le temps de vie des trous est en moyenne égal à 700 s. Dans cette thèse, nous avons estimé le temps de vie des trous spectraux dans une configuration d'imagerie, il définit le temps d'utilisation effectif du filtre spectral. Ce temps prend en compte toutes les caractéristiques du filtre spectral, de la dérive du laser à l'épaisseur du cristal. Nous trouvons dans l'ensemble des configurations observées des temps de vie supérieurs à la seconde, qui atteignent parfois plusieurs dizaines de secondes. Ces longs temps de vie permettent une accumulation de la gravure ce qui permet de creuser des trous plus profonds. En conséquence le filtre pour l'imagerie acousto-optique devient efficace.

Finalement nous avons vu que nos cristaux sont très absorbants, ce qui est très bien pour l'imagerie, mais il faut être capable de creuser des trous spectraux. Nous manquons dans notre cas de puissance de gravure, plus de puissance optique permettrait de saturer les trous au centre de la raie. Ce manque de puissance nous force à trouver un compromis entre avoir le plus de signal de photons marqués possible en se plaçant au bord de la raie d'absorption et une grande épaisseur optique qui permet de bien atténuer le flux de la porteuse. Ainsi, nous pouvons maximiser le contraste entre le signal des photons marqués et celui de la porteuse.

Chapitre 4

Imagerie acousto-optique avec filtre persistant

Sommaire

4.1 Montage expérimental **85**
4.1.1 Le filtre spectral 87
4.1.2 Montage optique avant l'échantillon 88
4.1.3 Au niveau de l'échantillon 90
4.1.4 Montage optique après l'échantillon 91
4.2 Séquences d'imageries des filtres persistant et transitoire **96**
4.3 Images comparées : filtre persistant ou transitoire **98**
4.4 Estimation de la résolution **100**
4.5 Conclusion **102**

Ce chapitre présente l'utilisation d'un trou spectral persistant comme filtre pour l'imagerie acousto-optique. La première partie présente la mise au point du montage expérimental. La seconde partie décrit les séquences utilisées pour l'imagerie. La troisième partie compare les résultats des filtres transitoire et persistant. Enfin la quatrième partie estime la résolution de l'imagerie acousto-optique utilisant un filtre persistant.

4.1 Montage expérimental

Le montage expérimental est représenté dans la figure 4.1. Le laser maître est stabilisé sur une cavité Fabry-Perot. Deux amplificateurs en cascade amplifient le faisceau avant qu'il ne soit séparé en deux. La première partie (en bleu) devient le faisceau de pompe qui crée le filtre spectral. La deuxième partie devient le faisceau sonde (en orange), il est encore une fois amplifié avant d'illuminer l'échantillon. L'échantillon est insonifié par un transducteur ultrasonore mono-élément. La lumière diffuse est collectée par une fibre à cœur liquide. Elle amène la lumière en entrée du cryostat. Une série de lentilles transmettent au mieux cette lumière diffuse et le faisceau pompe à travers le cryostat tel que la face de sortie de la fibre soit imagée sur le cristal. Enfin la lumière diffuse est collectée par une photodiode à avalanche, qui est protégée de la pompe par un obturateur mécanique.

La description détaillée est scindée en plusieurs sous-parties. La première décrit la mise en place du filtre spectral et donne des détails sur le cristal, son environnement et la mise en forme du faisceau de pompe. La deuxième sous-partie détaille le montage optique avant l'échantillon, en développant en particulier la cascade d'amplification laser. La troisième sous-partie décrit l'entourage immédiat de l'échantillon : l'échantillon en lui-même et la sonde ultrasonore. La quatrième partie présente le montage optique après l'échantillon, elle s'intéresse à la collection de la lumière diffuse, à la transmission de cette lumière diffuse par le cryostat, au recouvrement spatial entre les faisceaux sonde et pompe et finalement à l'acquisition du signal.

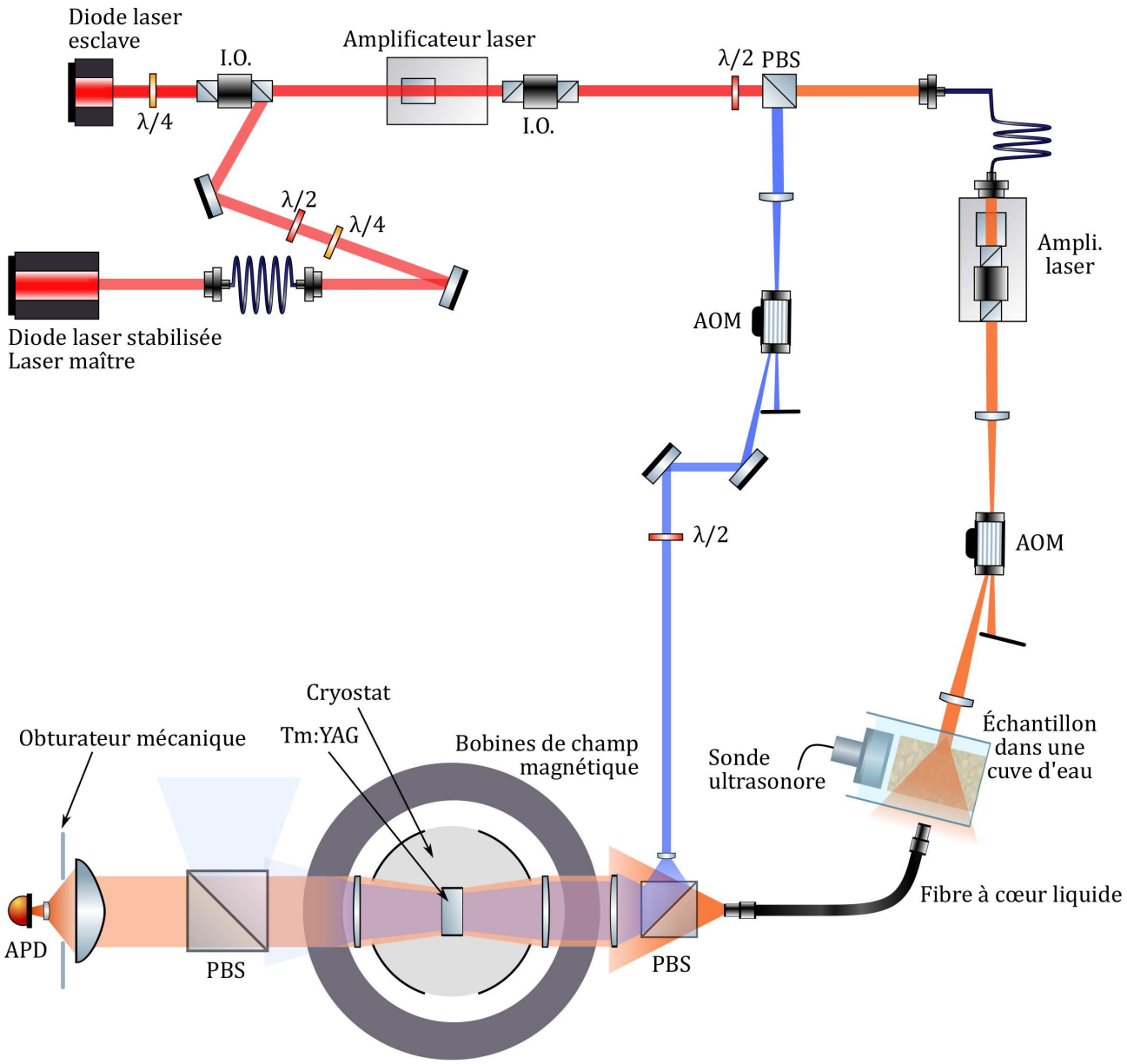

FIGURE 4.1 – Montage total. Faisceau bleu : faisceau de pompe, faisceau orange : faisceau commun et faisceau de sonde, I.O. : Isolateur optique, AOM : modulateur acousto-optique, PBS : cube séparateur de polarisation, $\lambda/4$ lame quart d'onde, $\lambda/2$ lame demie-onde.

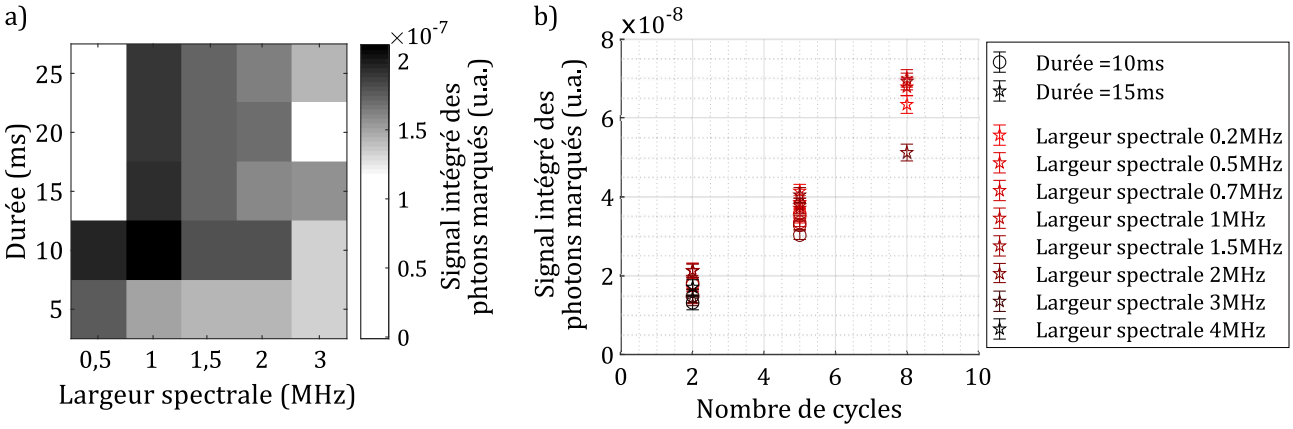

FIGURE 4.2 – Largeur spectrale et durée de l'impulsion de pompe. a) Représentation à deux dimensions de l'influence de la largeur et de la durée de l'impulsion de pompe sur le signal intégré des photons marqués (en unité arbitraire). La durée de la pompe correspond au temps dédié pour graver un trou. Dans le cas où l'on grave deux trous, le temps total de gravure sera multiplié par deux. La largeur spectrale de la pompe est celle de la plage de balayage en fréquence des impulsions de pompe. La couleur blanche (signal nul) indique une absence de données correspondant aux paramètres indiqués. b) Importance secondaire des paramètres de l'impulsion de pompe sur le signal des photons marqués par rapport à la durée de l'impulsion ultrasonore mesurée en cycles ultrasonores.

4.1.1 Le filtre spectral

Nous utilisons un cristal mono-cristallin de Tm^{3+} : YAG de Scientific Materials dopé à 2 % de 10 mm × 10 mm × 2 mm. L'épaisseur optique du cristal est proche de $\alpha L = 6$ au centre de la raie sur l'épaisseur $L = 2$ mm du cristal, ce qui représente une transmission du cristal de $e^{-6} = 2,5.10^{-3}$; α représente le coefficient d'absorption du cristal. Les mesures suivantes ont été réalisées plus en bord de raie, on estime que $\alpha L \approx 5$. La température est fixée autour de 2 K dans le cryostat à hélium liquide à température variable (SMC-TBT).

Le champ magnétique est fixé à 234 G avec une paire de bobines de Helmholtz refroidies par eau. Il est orienté selon l'axe cristallographique [001]. Le cristal est placé au centre de symétrie de la paire de bobines afin que le champ soit le plus homogène possible sur l'ensemble de son volume (variation de 0,4 % de l'amplitude du champ sur le cristal).

Dans ces conditions le temps de vie du filtre spectral est de quelques secondes.

Programmation du signal de pompe Le signal de pompe est une impulsion contrôlée en puissance, en polarisation, en durée et en largeur spectrale. Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il est préférable d'avoir le plus de puissance possible sur le cristal. La pompe a une puissance de 110 mW avant le cryostat, ce qui correspond environ à un éclairement de 85 mW/cm^2 sur le cristal sur l'ensemble de sa surface. La pompe est polarisée selon l'axe cristallographique [001] comme le champ magnétique afin de maximiser le nombre de sites creusés (voir la figure 3.2).

Une impulsion de gravure est balayée en fréquence autour de la fréquence centrale de chacun des deux ordres de photons marqués $f_L \pm f_{US}$. L'échelle de fréquence balayée est dénommée *largeur spectrale*. L'impulsion dure 10 µs. Dans une séquence complète de gravure, l'impulsion est répétée plusieurs fois pour que chaque trou soit gravé le temps voulu. On peut ainsi définir la *durée* de la séquence *durée* = 10 µs × nombre de répétition. Par exemple un filtre avec deux trous aux fréquences des photons marqués gravés pendant une *durée* de 10 ms, demandera 2×10 ms/10 µs = 2000 répétitions de l'impulsion de gravure divisée en 1000 répétitions pour le trou à $f_L + f_{US}$ et 1000 pour celui à

$f_L - f_{US}$. La séquence de gravure est elle aussi répétée plusieurs fois afin que les trous spectraux atteignent leur profondeur maximale.

La figure 4.2 a) montre l'influence de la durée et la largeur spectrale de l'impulsion de pompe sur le signal des photons marqués. On constate qu'à durée égale, plus la largeur spectrale est grande, moins le signal est important. En effet, la puissance de gravure s'étale sur une plus grande plage spectrale. Si on choisit une largeur spectrale pour l'impulsion, on constate que le signal augmente avec la durée de gravure jusqu'à atteindre un seuil. Ce seuil correspond au moment où les trous spectraux sont saturés. Sur cette figure le maximum du signal intégré des photons marqués est atteint pour une impulsion de gravure de largeur spectrale de 1 MHz qui alloue 10 ms de gravure par trou, soit une durée totale de 20 ms pour un filtre avec deux trous.

La figure 4.2 b) montre que les paramètres de largeur spectrale et de durée de la gravure sont secondaires par rapport à la durée de l'impulsion ultrasonore. Nous en dirons plus dans le paragraphe 4.1.3

Dans la suite du chapitre nous utiliserons une impulsion de pompe d'une largeur spectrale de 0,5 MHz et de durée totale 10 ms, soit 5 ms équivalent par trous creusés. Les deux trous finaux avaient une largeur à mi-hauteur de 1,7 MHz. Un trou large permet de mieux filtrer les photons marqués, car leur largeur spectrale correspond à celle de l'impulsion ultrasonore qui les a créés, soit 2,4 MHz. Cependant il ne faut pas trop élargir les trous spectraux car le filtre deviendrait moins efficace pour bloquer la porteuse. La durée totale 10 ms a été choisie afin de pouvoir faire la comparaison entre les filtres transitoires et persistants. En effet, il ne sert à rien de graver le filtre transitoire plus de 8 à 10 ms, car la mémoire du pompage optique est remise à zéro : le niveau métastable commence à se vider.

4.1.2 Montage optique avant l'échantillon

La figure 4.3 a) présente le montage optique mis en place avant l'échantillon. Le laser maître est une diode laser en cavité étendue stabilisée sur une cavité Fabry-Perot stabilisée sous vide avec une température contrôlée. Ce laser a été développé au laboratoire Aimé Cotton [190]. Sa stabilité court terme est de 230 Hz sur quelques ms, et sur le long terme il suit la dérive de la cavité de référence c'est-à-dire une centaine de kHz/min.

Le faisceau laser est apporté sur la table optique principale par une fibre monomode. Il est ensuite amplifié avec une diode laser esclave. Ce type d'amplification a été beaucoup utilisé par la communauté des atomes froids, car c'est une amplification qui ajoute peu de bruit spectral. Le faisceau est amplifié une seconde fois par un amplificateur Boosta de Toptica, puis séparé en deux. La partie du faisceau directement mise en forme par un modulateur acousto-optique devient le faisceau pompe. L'autre partie du faisceau est envoyée dans une fibre à maintien de polarisation afin de l'injecter dans un amplificateur conique (*tapered amplifier*) de Sacher LaserTechnik. En sortie le faisceau est mis en forme par un autre modulateur acousto-optique afin de former le faisceau sonde. Le faisceau sonde est donc amplifié deux fois de manière importante.

Le schéma b) présente la proposition initiale de la cascade d'amplification laser. Ce montage avait été proposé afin de réduire au maximum l'amplification de bruit spectral. Mais il a un problème majeur : les amplificateurs à forte puissance ne sont pas saturés en injection. Par conséquent, leur fonctionnement n'est pas optimal et faisceaux sonde et pompe ne peuvent pas atteindre les puissances maximales permises par le matériel. Il est important de maximiser leur puissance à la fois pour le creusement de trou spectral et pour pouvoir détecter du signal en sortie du milieu diffusant. Le montage a) permet d'avoir une puissance sonde maximale de 700 mW au lieu de 400 mW, et une puissance de pompe maximal de 120 mW au lieu de 80 mW.

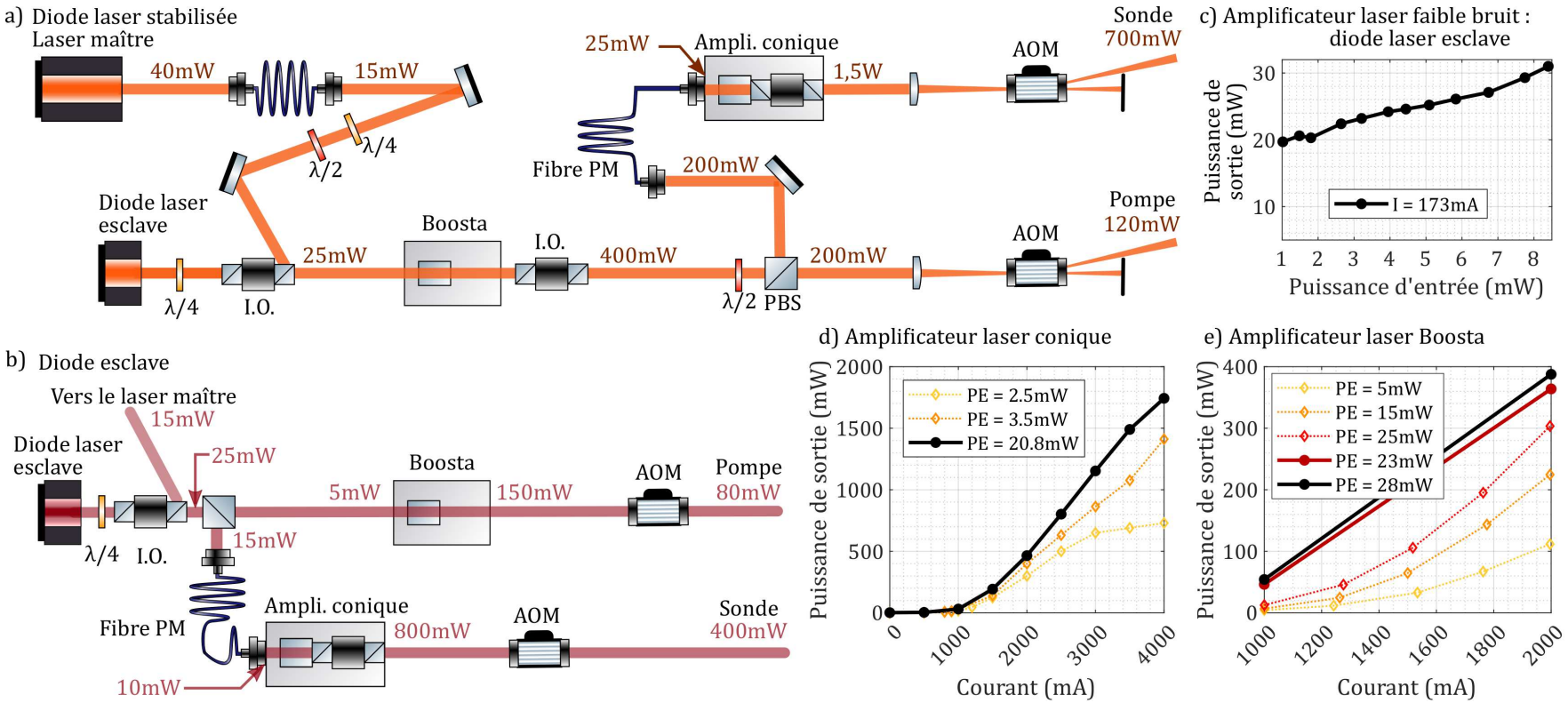

FIGURE 4.3 – Optimisation de la puissance des faisceaux pompe et sonde. a) Montage optique optimal pour l'amplification de la puissance laser avec un faible bruit spectral. b) Montage optique initial, les puissances d'injection des amplificateurs puissants sont insuffisantes. $\lambda/4$: lame quart d'onde, $\lambda/2$: lame demie onde, I.O. : isolateur optique, PBS : cube séparateur de polarisation, AOM : modulateur acousto-optique, fibre PM : fibre à maintien de polarisation, par défaut les fibres optiques utilisées sont monomodes sans maintien de polarisation. Caractéristiques des amplificateurs lasers : les disques représentent les données prises avec le montage (a) et les losanges correspondent au montage (b). c) Puissance de sortie de la diode esclave en fonction de la puissance d'entrée, le courant de fonctionnement est de 173 mA. d), e) Puissance de sortie de l'amplificateur conique, respectivement du Boosta, en fonction du courant pour plusieurs puissances d'entrées. La puissance du Boosta est mesurée après l'isolateur optique.

Une réflexion a aussi été menée sur les modulateurs acousto-optiques (AA Opto-electronic MT80). Nous nous sommes demandés s'il fallait mieux les utiliser en simple ou double passage. L'avantage du double passage est de permettre une meilleure séparation des ordres de diffraction ainsi qu'un faisceau fixe lorsqu'il est balayé en fréquence. Néanmoins on a ces avantages au prix d'une importante perte de puissance. Nous avons donc décidé d'utiliser les modulateurs acousto-optiques en simple passage : la puissance de sortie est plus grande et le montage optique est plus simple.

Les courbes c), d) et e) de la figure 4.3 montrent les caractéristiques des différents amplificateurs laser utilisés. La courbe c) montre la puissance de sortie de la diode laser esclave en fonction de la puissance d'entrée, comprise entre 6 et 10 mW en fonctionnement usuel. Il y donc entre 25 et 30 mW en sortie, si le mode spatial d'entrée est stable et bien adapté. Cette puissance permet d'injecter correctement l'amplificateur Boosta. Les courbes e) montrent l'évolution de la puissance de sortie du Boosta en fonction du courant de fonctionnement et de la puissance d'entrée. Les losanges sont des points de mesures pris avec le montage b), les disques avec le montage a). Le montage a) présente le double avantage d'offrir plus de puissance et un meilleur mode spatial d'injection pour le Boosta, l'amplification obtenue est donc meilleure. Les courbes d) montrent l'évolution de la puissance de sortie du amplificateur laser conique en fonction du courant et de la puissance d'entrée. L'amplificateur n'est pas censé être utilisé avec une puissance d'entrée inférieure à 15 mW. Nous avons estimé la transmission du coupleur fibré en entrée de l'amplificateur à 40%. Dans le montage a) la transmission de la fibre à maintien de polarisation est d'environ 30% principalement à cause du mode d'entrée mal adapté. La transmission de la fibre est plus élevée dans le montage b) car le mode spatial d'entrée était plus gaussien. Néanmoins les puissances étant globalement plus faibles les deux amplificateurs étaient sous-injectés avec le montage b). Le montage a) permet d'assurer une puissance d'entrée comprise entre 20 et 25 mW (25 mW étant la valeur maximale à ne pas dépasser selon le constructeur).

4.1.3 Au niveau de l'échantillon

La figure 4.4 a) montre le montage optique autour de l'échantillon. Le faisceau sonde illumine l'échantillon. Puis la lumière diffuse est collectée par une fibre à cœur liquide (diamètre 8 mm, demi-angle d'ouverture 31°, longueur 1 m) de large étendue, $45\,\mathrm{sr}\cdot\mathrm{mm}^2$, de LOT-Oriel. L'échantillon est plongé dans une cuve remplie d'eau. L'eau permet en effet de réaliser l'adaptation d'impédance entre la sonde ultrasonore et l'échantillon, et donc d'éviter de réfléchir l'onde ultrasonore, ce qui pourrait endommager la sonde.

La sonde ultrasonore est un transducteur sphérique mono-élément Olympus fonctionnant à 5 MHz, de longueur focale 5 cm. Elle permet de créer des ondes focalisées et fonctionne en régime impulsionnel. Elle doit être déplacée mécaniquement afin de créer une image 2D d'un échantillon. Les impulsions sont mises en forme par un générateur de fonctions aléatoires puis amplifiées afin d'atteindre les puissances utiles pour l'imagerie acousto-optique. Dans les tissus biologiques, les ultrasons se propagent de la même manière que dans l'eau en première approximation. La vitesse de propagation est environ de 1,5 mm/µs dans l'eau et dans les échantillons utilisés dans ce chapitre. Le paramètre principal d'ajustement de l'impulsion ultrasonore est sa durée. Elle est typiquement mesurée en cycles ultrasonores. Dans la suite de ce chapitre nous avons utilisé des impulsions longues de deux cycles à 5 MHz, soit 0,4 µs, ce qui correspond à une résolution longitudinale x de 0,6 mm, c'est-à-dire dans la direction de propagation des ultrasons. La résolution transverse y est donnée par la taille de l'impulsion dans la zone de coexistence avec la lumière diffuse. Au point focal la résolution transverse est de 0,6 mm. Si on augmente la durée de l'impulsion, la résolution longitudinale diminue mais le volume d'interaction acousto-optique augmente ce qui crée davantage de photons marqués comme le montre la courbe b) de la figure 4.4.

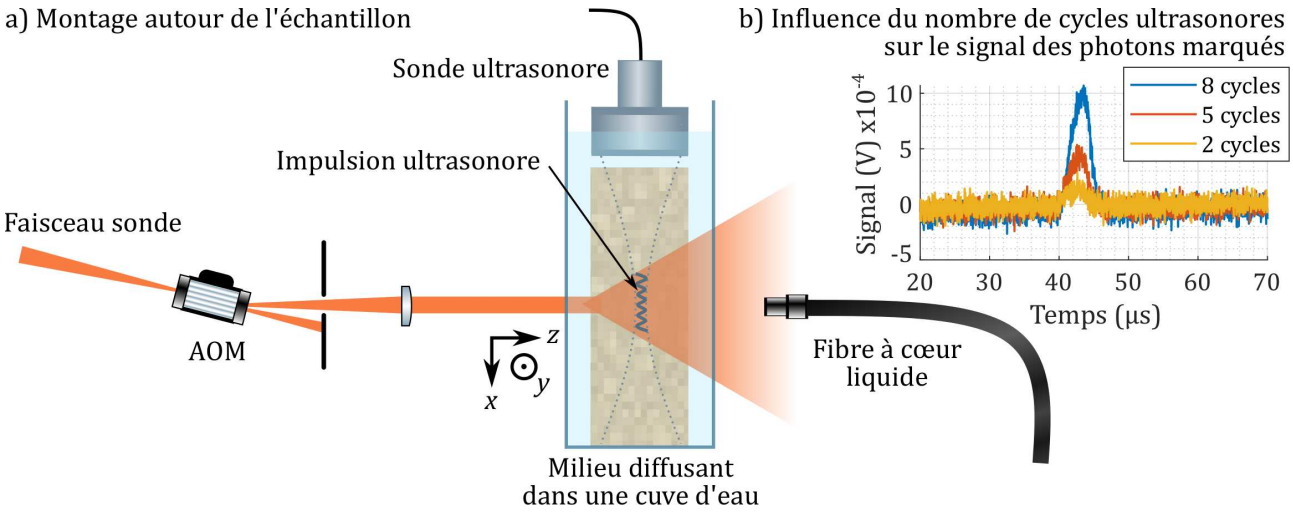

FIGURE 4.4 – a) Montage autour de l'échantillon. L'échantillon est placé dans l'eau afin d'optimiser l'adaptation d'impédance pour les ultrasons. La sonde ultrasonore est un monoélément de fréquence centrale 5 MHz de distance focale de 5 cm ou de fréquence 2,25 MHz de focale 7 cm. On a représenté une impulsion ultrasonore d'une durée de trois cycles au niveau du point focal de la sonde ultrasonore. x coordonnée longitudinale, dans la direction de propagation des ultrasons. y coordonnée transverse. z coordonnée dans la direction de l'axe optique. b) Étude de l'effet du nombre de cycles de l'impulsion ultrasonore, c'est-à-dire sa durée, sur le signal des photons marqués.

L'échantillon Dans ce chapitre nous avons utilisé deux échantillons différents. Ce sont des gels d'agar de $7\times7\times1\,\mathrm{cm}^3$ préparés avec deux concentrations d'Intralipid différentes, afin de faire varier leur coefficient de diffusion. L'échantillon 1 est faiblement diffusant $\mu'_s = 1\,\mathrm{cm}^{-1}$, tandis que le n°2 possède un coefficient de diffusion de $\mu'_s = 10\,\mathrm{cm}^{-1}$. Les deux échantillons contiennent des inclusions colorées à l'encre de Chine, donc très absorbantes. Une inclusion de $2\times2\times2\,\mathrm{mm}^3$ est enfouie au milieu de l'échantillon 1. L'échantillon 2 a deux inclusions de $0{,}5\times0{,}5\times0{,}5\,\mathrm{mm}^3$ proches de la surface illuminée par la sonde et disposées l'une à côté de l'autre.

4.1.4 Montage optique après l'échantillon

La figure 4.5 a) représente le montage optique autour du cryostat. Après l'échantillon la lumière diffuse contenant les photons marqués est collectée par la fibre à cœur liquide. La sortie de la fibre est légèrement focalisée sur le cristal de Tm^{3+} : YAG afin d'illuminer tout son volume. La lumière qui sort du cryostat est collectée et focalisée sur une photodiode à avalanche (Hamamatsu le module C5460 de surface du détecteur $1{,}5\times1{,}5\,\mathrm{mm}^2$ et de bande passante 10 MHz ou le module C12703 de surface $3\times3\,\mathrm{mm}^2$ et de bande passante 10 MHz). La photodiode à avalanche est connectée soit à une carte d'acquisition Tiepie de Handyscope HS5 pour l'acquisition des images de l'échantillon, soit à un oscilloscope TDS3032 Tektronix pour réaliser les réglages préliminaires. Sur le trajet du faisceau en sortie du cryostat nous avons placé un miroir basculant qui lorsqu'il est relevé dévie le faisceau sur une caméra infrarouge CCD conjuguée au plan du cristal. Lorsque le cristal est dans le cryostat il est difficile de vérifier la superposition des faisceaux pompe et sonde sur le cristal. La caméra permet d'observer la transmission du cristal lorsqu'il est éclairé par les faisceaux sonde et pompe. Elle est visible à température ambiante, ce qui permet un préalignement efficace des faisceaux. L'alignement final est réalisé lorsque le cristal est à température cryogénique en maximisant la profondeur des trous spectraux.

Le recouvrement des faisceaux pompe et sonde est un paramètre crucial pour le filtre. En effet, si

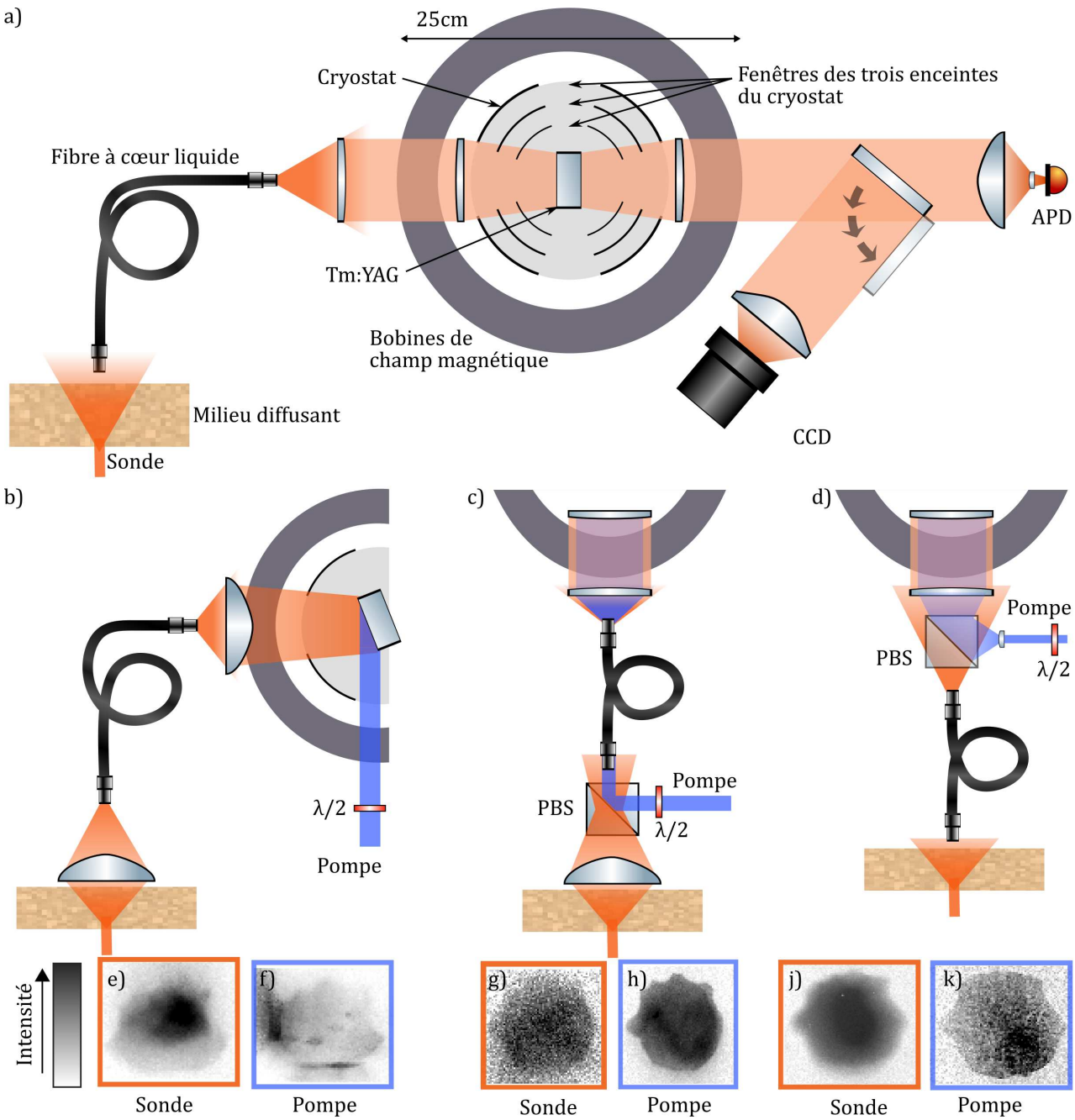

FIGURE 4.5 – Montage optique après l'échantillon. a) Propagation du faisceau sonde entre l'échantillon et la détection. APD : photodiode à avalanche (surface du détecteur 1,5×1,5 mm^2 ou 3×3 mm^2, bande passante de 10 MHz). Optimisation du recouvrement sur le cristal entre les faisceaux sonde et pompe : b) Configuration où les faisceaux sont incidents à 90 °, c) Combinaison des faisceaux en entrée de la fibre à cœur liquide, d) Combinaison avant le cryostat. PBS : cube séparateur de polarisation. Images de transmission du cristal éclairé par e), g), j) la sonde et par f), h), k) la pompe. L'échelle d'intensité est qualitative.

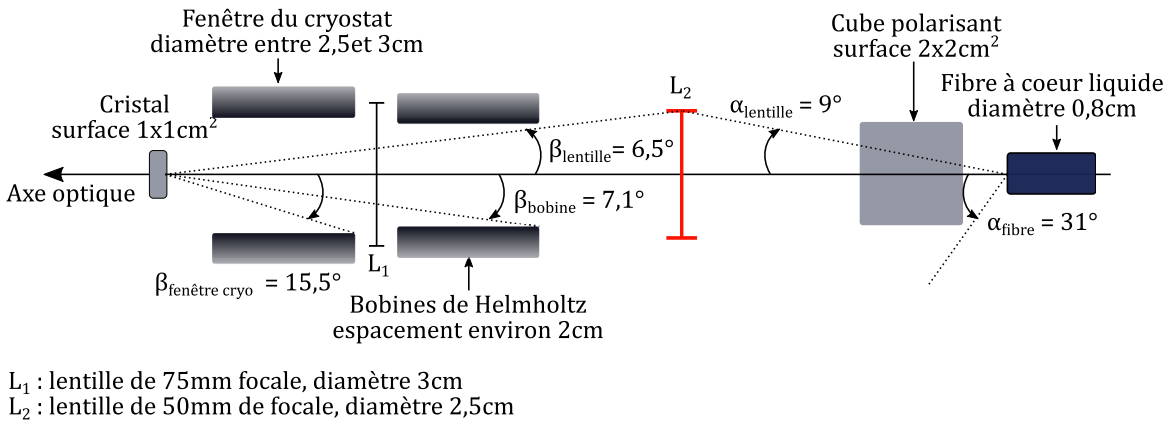

FIGURE 4.6 – Calcul de l'étendue, le schéma respecte les proportions du montage optique (les différents éléments sont à l'échelle). La lentille L2 limite actuellement l'étendue de l'ensemble du système d'imagerie. L'étendue du système d'imagerie utilise la lentille L_2 et le cristal. L'étendue du cryostat est calculée avec l'ensemble cristal, cryostat et bobines de champ magnétique.

le filtre spectral creusé n'est pas lu par la sonde, alors la sonde est absorbée et le filtre spectral n'a pas servi. Plusieurs montages ont été testés au cours de cette thèse. La proposition initiale est présentée par le schéma 4.5 b) elle a été retenue par Jean-Baptiste Laudereau lorsqu'il a commencé à mettre en place l'imagerie acousto-optique utilisant le creusement de trou spectral. Les grandes lentilles utilisées pour focaliser la lumière diffuse sur le cryostat étant encombrantes, nous faisions arriver la pompe perpendiculairement sur le cristal tourné de 10 ° environ par rapport à l'axe optique de la sonde. Les photos prises par la caméra, les images e) de la fluorescence de la sonde et f) de la pompe, nous montrent que les deux faisceaux avaient un faible recouvrement spatial. Ce montage a donc été mis de côté.

Nous avons donc testé le montage 4.5 c) où les deux faisceaux sont combinés avant la fibre à cœur liquide avec un cube séparateur de faisceau polarisant, afin d'obtenir un meilleur recouvrement spatial. En sortie de fibre les deux faisceaux ont une propagation à peu près similaire, et nous avons constaté que le recouvrement sur le cristal était satisfaisant. Les images g) et h) montrent la transmission du cristal illuminé respectivement par les faisceaux sonde et pompe. Néanmoins le creusement spectral n'était pas efficace. Nous pensons que le recouvrement au niveau microscopique sur le cristal n'est pas bon, car en sortie de fibre les deux faisceaux sont composés de lumière diffuse et donc ils forment chacun une figure de speckle différente. De plus il y avait aussi un problème sur la similarité des modes de propagation des deux faisceaux dans la fibre. La fibre étant très multimode (diamètre de 8 mm), elle n'effectue aucun filtrage de mode. C'est pourquoi les faisceaux pompe et sonde n'ayant pas des modes spatiaux identiques en entrée de fibre, ils ont des modes différents en sortie. Ainsi la pompe a une forme d'anneau en sortie de la fibre (très visible avant le cryostat et moins visible lorsque le faisceau est focalisé sur le cristal), au lieu des tavelures de la sonde. Les modes de propagation sont à nouveau différents en sortie de fibre. En conséquence le recouvrement sur le cristal n'est pas optimal.

Parallèlement nous avons réfléchi aux types de lentilles à utiliser pour la focalisation partielle du faisceau de sonde. L'idée est d'avoir un faisceau globalement collimaté ce qui permet d'optimiser la transmission à travers le cryostat, et une légère focalisation au niveau du cristal pour maximiser la puissance utile à la gravure et la lecture. Les grandes lentilles (diamètre d'une dizaine de cm) sont généralement incontournables lorsque l'on travaille avec de la lumière diffusée. Néanmoins celles à notre disposition ne permettent ni une focalisation du faisceau sur le cristal, ni une collimation efficace dans le cryostat. En effet, l'encombrement dû au cryostat et aux bobines de champ magnétique ne permet

pas de placer ces lentilles librement. Nous avons donc utilisé des lentilles plano-convexes plus petites. En sortie de fibre, la lentille a un diamètre d de 25 mm, une focale f' de 50 mm et son ouverture numérique vaut donc $NA = \frac{d}{2f'} = \frac{25}{2\times 50} = 0,25$ comparé à l'ouverture numérique de 0,78 de la fibre. Autour du cryostat on a glissé deux lentilles de diamètre 30 mm correspondant à celui des fenêtres du cryostat, de focale 75 mm et d'ouverture numérique 0,2. Le bord du faisceau est donc perdu pour l'imagerie, mais le centre plus intense focalise mieux sur le cristal et est détecté par la photodiode à avalanche. L'étendue du système reste actuellement restreinte par la lentille L_2 de focale 50 mm ($4\,\mathrm{sr}\cdot\mathrm{mm}^2$), cependant elle ne peut pas dépasser la limite imposée par l'ensemble des fenêtres du cryostat et de la bobine de champ magnétique ($6\,\mathrm{sr}\cdot\mathrm{mm}^2$). Les étendues ont été calculées avec le schéma de la figure 4.6 qui est aux dimensions du montage.

La configuration choisie pour optimiser le recouvrement des faisceaux est représentée dans le schéma 4.5 d). Les faisceaux sont recombinés après la fibre avec un cube polarisant séparateur de faisceaux. La pompe est étendue avec une lentille de focale 8 mm afin d'avoir une divergence similaire à celle de la sonde. Un ajustement fin de la position de cette lentille et l'alignement du faisceau permettent d'optimiser la taille des trous. Ce montage n'est cependant pas idéal car la sonde subit de fortes pertes entre la sortie de la fibre et la photodiode à avalanche. On estime qu'il y a 70% de pertes liées à l'ouverture des fenêtres du cryostat et des lentilles. Le cube polarisant en entrée du cryostat dévie 50% de la sonde non polarisée. Il faut ajouter les pertes dues à l'absence de traitement antireflet sur les six fenêtres du cryostat, soit environ 40% et celles dues aux faces non traitées du cristal qui ajoutent encore 16% de perte (l'indice optique du YAG est égal à 1,8245 à 800 nm). La puissance transmise à la photodiode à avalanche vaut donc environ 7% de la puissance en sortie de fibre. La seconde raison pour laquelle ce montage n'est pas idéal est que la sonde et la pompe ont des polarisations croisées, ce qui n'optimise pas le nombre de sites gravés et lus comme expliqué dans la sous-partie 3.1.1. Mais l'adéquation des polarisations ne peut pas être parfaite à cause de la lumière diffuse non polarisée. Le montage présenté sur le schéma d) nous semble néanmoins être le meilleur compromis pour réaliser une expérience d'imagerie acousto-optique sur un échantillon diffusant.

La figure 4.7 a) montre le montage optique final autour du cryostat, à l'exception de la caméra CCD. La pompe est combinée à la sonde avant le cryostat par un cube polarisant séparateur de faisceau. En sortie du cryostat elle est déviée par un autre cube polarisant. La déviation permet d'éviter l'endommagement de la photodiode à avalanche en cas de mauvaise synchronisation de l'obturateur mécanique. Cependant, une partie de la pompe a été dépolarisée lors de la propagation dans le cryostat, elle est donc détectée par la photodiode à avalanche qui sature. L'obturateur mécanique synchronisé avec la sonde permet de bloquer la pompe et d'éviter la saturation.

Nous avons réalisé des tests complémentaires sur le montage optique afin d'optimiser le signal des photons marqués. La courbe 4.7 b) représente l'évolution du signal intégré des photons marqués en fonction de l'ouverture d'un diaphragme placé à moins d'un centimètre après la sortie de la fibre à cœur liquide. Le diamètre du guide de lumière de la fibre est environ de 8 mm. On constate qu'il y a un maximum de signal lorsque le diamètre d'ouverture du diaphragme est de 7 mm. Cela signifie qu'une partie de la sonde n'est pas filtrée par le trou spectral sur le montage présent quand le diaphragme est complètement ouvert, probablement parce que cette partie est coupée par les optiques ou le cryostat. Cet optimum est très dépendant de l'alignement des faisceaux pompe et sonde et n'a pas un effet important. La recherche de cet optimum n'est intéressante que pour un montage mature qui ne sera plus beaucoup modifié.

Nous avons enfin exploré la possibilité de recycler le faisceau de pompe en le renvoyant dans le cristal, ce que l'on appelle la rétrogravure. Les courbes 4.7 c) montre l'effet de la rétrogravure sur le signal intégré des photons marqués. Le faisceau de gravure est très étendu en sortie du cryostat et la table optique est encombrée. Par conséquent la refocalisation de la gravure dans le cristal est

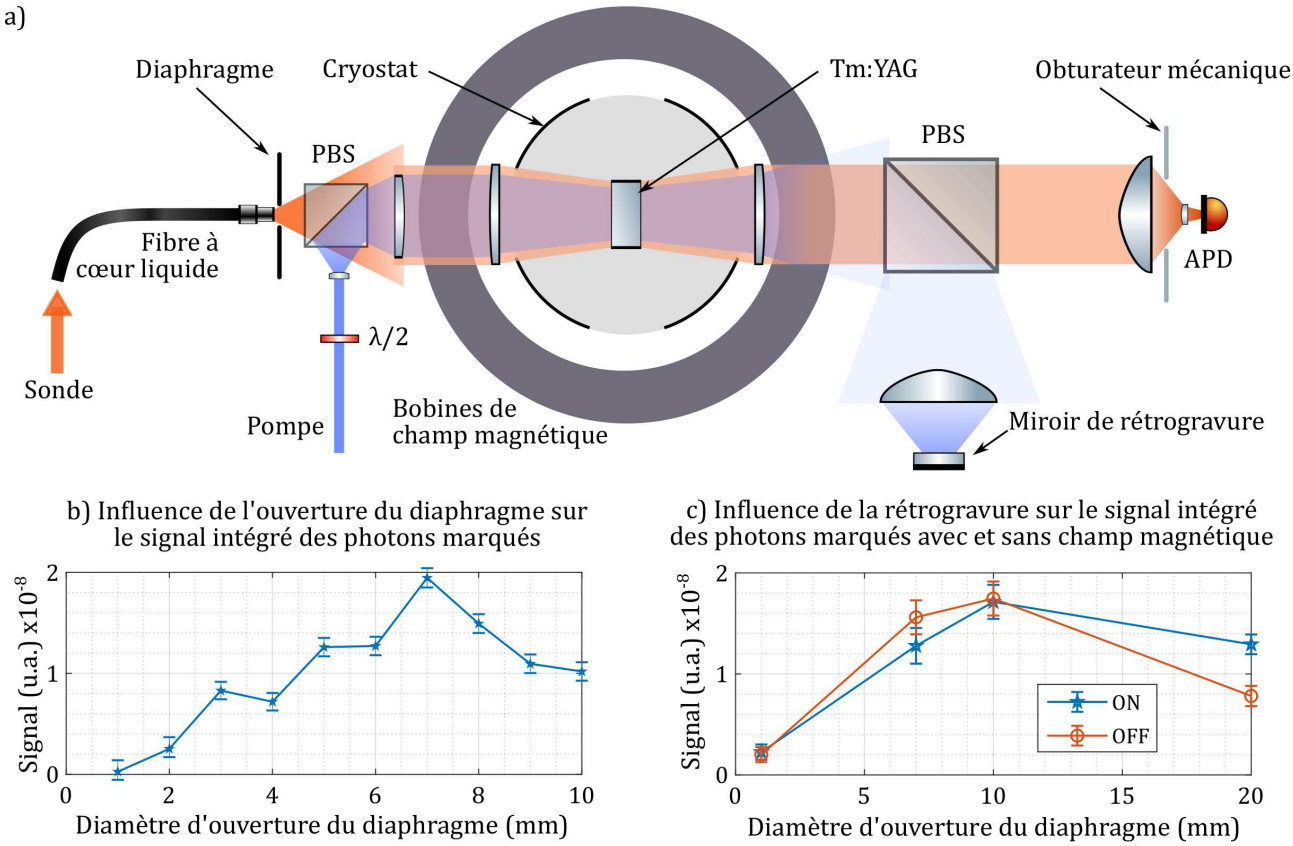

FIGURE 4.7 – Montage optique autour du cristal. a) Configuration copropageante des faisceaux sonde et pompe. b) Étude de l'effet de la réduction du diamètre du faisceau pompe avec un diaphragme sur le signal intégré des photons marqués. c) Étude de l'effet de la rétrogravure sur le signal intégré des photons marqués. PBS : cube séparateur de polarisation.

compliquée et difficile à quantifier. On estime qu'il y a au plus 8% de la puissance de pompe initiale qui est renvoyée dans le cristal. Cette configuration de rétrogravure est représentée sur le schéma a) et on constate que son effet est faible. Lorsque le diaphragme est complètement ouvert, le signal des photons marqués est un peu plus grand avec la rétrogravure. Le filtre moyen sur le cristal est donc un peu plus transparent, les trous les moins bien gravés par la gravure principale profitent de cette rétrogravure.

Nous avons estimé l'efficacité de détection des photons marqués de notre montage optique avec la méthode décrite dans l'article [191]. Ils définissent l'efficacité totale du montage acousto-optique avec l'expression 4.1.

$$\eta_{tot} = QE_{det} \cdot T_{setup} \cdot T_{filter} \cdot \eta_{LG} \tag{4.1}$$

L'efficacité quantique du détecteur QE_{det} est estimée égale à 75 % pour notre photodiode à avalanche à 800 nm [192]. La transmission de la lumière par les optiques et le cryostat entre la fibre en entrée du cryostat et le détecteur T_{setup} a été estimée à 7 %. La transmission moyenne du filtre T_{filter} a été mesurée dans le chapitre 3 et vaut environ 5 dB = 3,2 %. L'efficacité de collection de la lumière diffuse par la fibre après l'échantillon η_{LG} a été estimé grâce à l'angle d'ouverture de la fibre à cœur liquide 62 ° : $\eta_{LG} = \sin(62°)^2 = 78\,\%$ [193].

Donc on a $\eta_{tot} = 0{,}04\,\%$ par rapport à l'optimum 0,6% annoncé [191]. Notre montage pourrait encore être amélioré en particulier si l'on avait un filtre qui transmet mieux les photons marqués et si l'on pouvait encore optimiser la transmission par les optiques du montage et le cryostat.

4.2 Séquences d'imageries comparées : filtre persistant ou transitoire

Les modulateurs acousto-optiques, la sonde ultrasonore, l'obturateur mécanique, la carte d'acquisition et l'oscilloscope sont synchronisés grâce à un générateur de fonction arbitraire Tektronix AWG5004.

Nos images acousto-optiques sont formées de 51 lignes obtenues en translatant la sonde ultrasonore dans la direction transverse y. Chaque ligne représente l'amplitude du signal des photons marqués en fonction de leur position x dans la direction longitudinale. Les traces temporelles sont converties en coordonnées x en utilisant la propagation balistique des ultrasons à la vitesse de 1,5 mm/µs. Chaque ligne est moyennée n_{moy} fois. L'acquisition d'une ligne commence par le positionnement mécanique de la sonde en environ $T_{mech} \approx 185$ ms. Un cycle d'acquisition est décrit dans la figure 4.8 et il est défini comme suit. L'obturateur reste fermé tant que la pompe creuse les deux trous spectraux dans le cristal de Tm : YAG à ±5 MHz de la fréquence porteuse pendant 10 ms, soit 5 ms par trou. La gravure est composée de 2×500 impulsions de 10 µs balayées en fréquence sur 0,5 MHz et centrées à $f_L + f_{US}$ ou $f_L - f_{US}$. Les impulsions sont alternées entre les deux trous. Cette alternance est représentée en deux blocs sur le chronogramme *Fréquence de la pompe* pour des raisons de lisibilité sur la figure.

L'obturateur s'ouvre ensuite en 4 ms et une série d'impulsions ultrasonores est émise toutes les $T_{US} = 0{,}1$ ms tandis que l'échantillon est illuminé en continu par la sonde. Il est aussi possible d'utiliser la sonde en régime impulsionnel. Ainsi, il y aura moins de lumière diffuse à la fréquence porteuse absorbée par le cristal. C'est un avantage car cette lumière creuse un trou spectral, même si sa puissance est faible. Le trou parasite creusé diminue l'absorption de la porteuse par le cristal et par conséquent diminue l'efficacité du filtre. Ainsi si on diminue l'illumination du cristal à la fréquence de la porteuse, le trou parasite grandit moins vite et dégrade moins le signal des photons marqués.

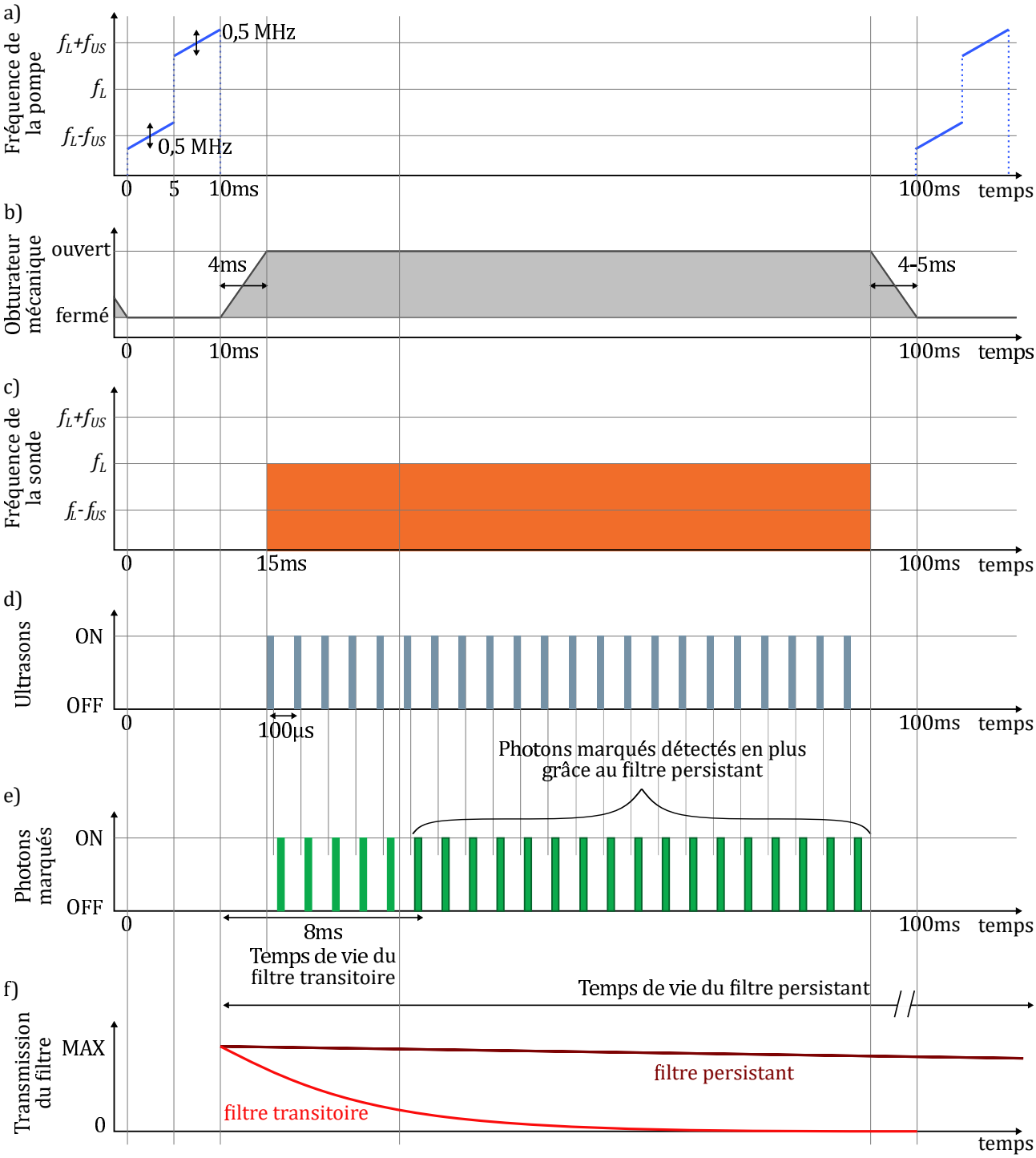

FIGURE 4.8 – Chronogrammes comparés des séquences d'imagerie acousto-optique avec les filtres transitoire et persistant. La pompe (a)*Fréquence de pompe* (en bleu) est allumée en début de cycle pour creuser les trous.b) Ensuite l'*obturateur mécanique* s'ouvre afin que la photodiode à avalanche puisse détecter la sonde. La sonde à fréquence constante (c)*Fréquence de la sonde* (en orange) illumine l'échantillon insonifié par les impulsions ultrasonores (d)*Ultrasons* en bleu-gris). Des photons marqués sont créés (e)*Photons marqués* en vert), mais ils ne sont efficacement filtrés que durant le temps de vie du filtre utilisé.f) L'évolution comparée des transmissions des deux filtres est schématisé sur les courbes.

L'obturateur se ferme à la fin du cycle.

Le paramètre clé qui permet de quantifier l'efficacité de l'imagerie est n_p le nombre d'impulsions ultrasonores utiles pendant un cycle. En d'autres termes n_p représente le nombre d'impulsions ultrasonores qui créent des photons marqués détectés par la photodiode à avalanche au cours d'un cycle. Le filtre transitoire a un temps de vie de 8 ms. Il ne permet que $n_p^{transitoire} = 5$ impulsions par cycle, avant que le signal ne soit dégradé par la décroissance exponentielle de la transmission des trous. Le filtre persistant a une durée de vie environ 100 fois plus grande, on notera en particulier que cette durée est supérieure au taux de répétition du cycle. Il permet donc une augmentation de $n_p^{persistant}$ jusqu'à la limite de $n_p^{persistant} = 800$, car il est possible d'utiliser environ 80% du cycle pour l'imagerie avec le filtre persistant. Dans la suite, nous choisissons que le nombre d'impulsions ultrasonores émises soit égal au nombre de moyennes à réaliser $n_p^{persistant} = n_{moy}$.

Un cycle dure $T_{cy} = 100$ ms qui est la période de répétition de l'obturateur mécanique. Cette durée ne permet une vitesse d'acquisition plus rapide que si la période du cycle était égale à la durée de vie du trou. À la fin de chaque cycle, les données sont transférées à l'ordinateur. Un cycle sera effectué $n_{cy} = n_{moy}/n_p$ fois pour obtenir des lignes moyennées n_{moy} fois. Par exemple pour réaliser 100 moyennes d'une ligne le cycle ne sera répété qu'une seule fois avec le filtre persistant, mais il sera répété $100/5 = 20$ fois avec le filtre transitoire. Par conséquent l'imagerie sera plus rapide avec le filtre persistant.

4.3 Images comparées : filtre persistant ou transitoire

Nous imageons d'abord l'échantillon 1 ($\mu_s' = 1\,\mathrm{cm}^{-1}$) car il est faiblement diffusant. Il a une inclusion absorbante au milieu de son volume, elle est colorée à l'encre de Chine et ses dimensions mesurées lors de la fabrication de l'échantillon sont $2\times2\times2\,\mathrm{mm}^3$. L'effet du champ magnétique sur les performances de l'imagerie est mis en évidence par les images prises avec les filtres transitoire et persistant qui sont montrées respectivement dans les figures 4.9 a) et 4.9 b). Le signal des photons marqués se décrit avec deux éléments. D'abord la tache claire d'environ 10 mm de diamètre correspond à la coupe de lumière diffuse dans l'échantillon. Le disque bleu foncé dans cette tache correspond à la baisse du nombre de photons marqués au niveau de l'inclusion absorbante.

Les images sont prises ligne par ligne, chaque ligne est moyennée $n_{moy} = 100$ fois. On confirme que le temps nécessaire pour générer une image est grand avec le filtre transitoire $T_{acq}^{transitoire} = 8{,}5$ min. Alors que ce temps est réduit à $T_{acq}^{persistant} = 30$ s avec l'utilisation d'un filtre persistant. Néanmoins il faut garder en mémoire que les données sont transférées à l'ordinateur après chaque cycle d'acquisition, ce qui prend un temps important et variable. Ce temps de numérisation des données augmente non-linéairement avec le nombre d'acquisitions n_a = nombre de lignes $\times\, n_{cy}$: il est d'une centaine de millisecondes pour $n_a < 300 - 500$ et augmente très rapidement au delà, de l'ordre de la seconde, pour les dernières lignes quand les valeurs de n_{cy} sont élevées. C'est pourquoi nous allons calculer le temps uniquement dédié à l'imagerie pour réaliser une comparaison plus juste. Le temps d'imagerie peut se réduire à la relation suivante :

$$T_{img} = n_l(T_{mech} + n_{cy}T_{cy}) \tag{4.2}$$

avec T_{img} le temps uniquement dédié à l'imagerie, n_l le nombre de lignes dans l'image, T_{mech} le temps dédié au positionnement mécanique de la sonde ultrasonore, n_{cy} le nombre de cycles et T_{cy} la durée d'un cycle.

La durée d'imagerie est donc $T_{img}^{transitoire} = 111$ s ($n_{cy} = 20$) avec le filtre transitoire et $T_{img}^{persistant} = 14$ s ($n_{cy} = 1$) avec le filtre persistant. C'est pourquoi le nombre n_p d'impulsions ultrasonores qui

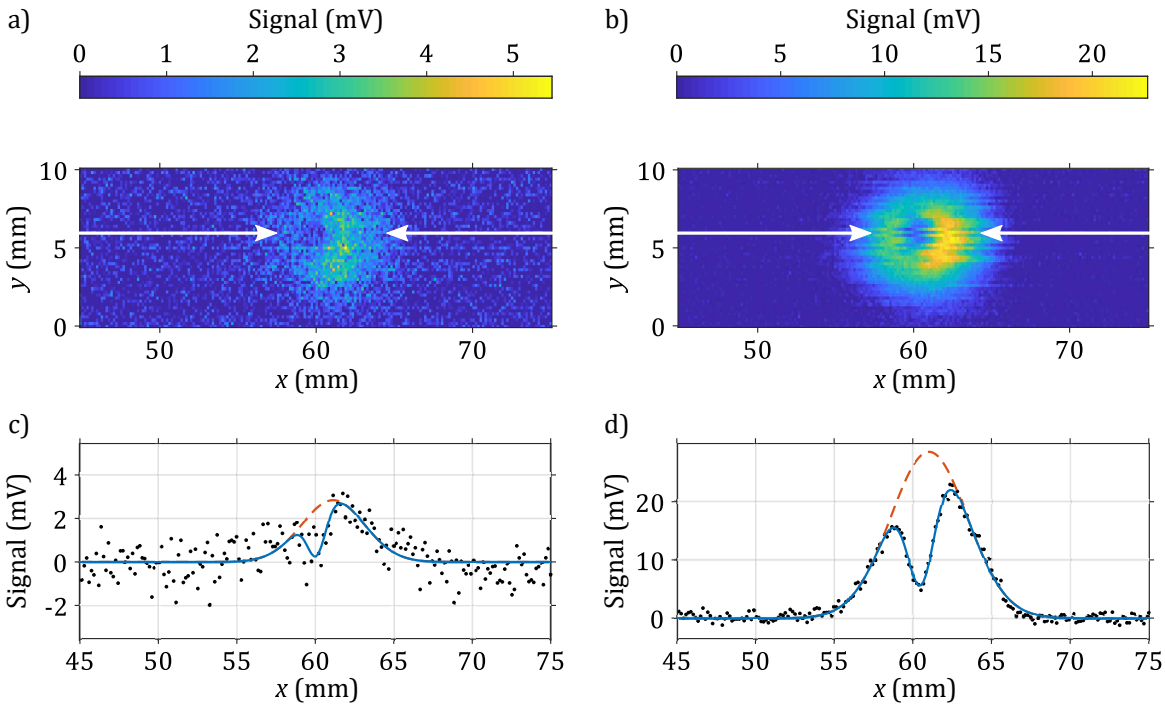

FIGURE 4.9 – Images acousto-optiques d'une inclusion absorbante dans un gel faiblement diffusant ($\mu'_s = 1\,\mathrm{cm}^{-1}$) avec a) un filtre transitoire (sans champ magnétique) et avec un filtre persistant (champ magnétique de 234 G). Chaque image est moyennée 100 fois. c) et d) sont les coupes transverses selon les flèches blanches des images a) et b) respectivement. Les données sont représentées par les points noirs, la courbe bleue est ajustée aux données et la courbe en tirets rouges est une gaussienne représentant l'allure du signal acousto-optique à travers un gel sans inclusion. x représente les coordonnées longitudinales en mm ; y représente les coordonnées transverse en mm ; et le signal est l'intensité lumineuse détectée par la photodiode à avalanche en mV. C'est le signal des photons marqués.

peuvent être émises avant de rafraichir le filtre spectral est un paramètre crucial pour une acquisition rapide. Actuellement le délai T_{mech} reste un temps limitant. L'utilisation d'une sonde échographique c'est-à-dire une matrice de transducteurs permettrait de scanner l'échantillon de manière électronique plutôt que mécanique. De telles sondes peuvent émettre des impulsions ultrasonores toutes les $T_{US} = 0{,}5\,\mathrm{ms}$ et permettent une orientation instantanée $T_{mech} = 0$ de l'impulsion. L'acquisition serait ainsi raccourcie de $n_l \cdot T_{mech} = 185\,\mathrm{ms} \cdot 51 = 9\,\mathrm{s}$. La figure 4.10 permet de visualiser les différents temps qui permettent la génération d'une image.

Les coupes des images 4.9 c) et d) ont été choisies pour passer au centre de l'inclusion. Une large gaussienne représentant l'enveloppe de la lumière diffuse, et une gaussienne plus étroite pour l'inclusion ont ensuite été ajustées aux coupes. La gaussienne large permet de visualiser la forme du signal des photons marqués s'il n'y avait pas d'inclusions dans l'échantillon (tirets rouges des coupes des images). La somme des deux gaussiennes est ajustée aux données expérimentales et permet de déduire la taille observée de l'inclusion et le rapport contraste à bruit. Le rapport contraste à bruit est le rapport entre la chute de signal due à l'inclusion et l'écart-type du bruit, il se calcule comme suit :

$$\text{Rapport contraste à bruit} = \frac{\text{hauteur de la gaussienne de l'inclusion}}{\text{écart-type du bruit}} \tag{4.3}$$

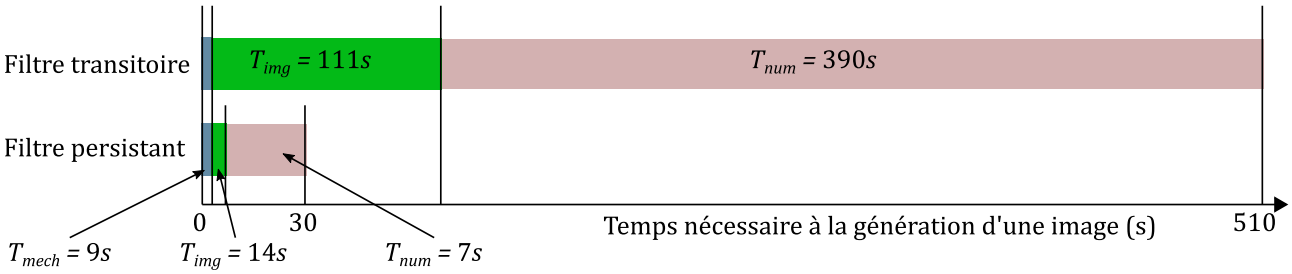

FIGURE 4.10 – Visualisation du temps nécessaire à la génération d'une image acousto-optique en utilisant un filtre persistant ou transitoire. La durée bleue correspond au temps dédié au déplacement de la sonde ultrasonore, T_{mech} identique pour les deux filtres. La durée verte correspond au temps dédiée à l'imagerie, T_{img}. La durée grisée correspond au temps dédié à la numérisation des données, T_{num}.

Les images mettent en avant que le rapport contraste à bruit de l'inclusion augmente de $3,3 \pm 0,6$ pour le filtre transitoire à $32 \pm 0,7$ pour le filtre persistant. Cette augmentation spectaculaire vient de l'amélioration de la transmission des trous spectraux grâce à l'application du champ magnétique sur le cristal.

Les images ont été prises avec des impulsions ultrasonores longues de deux cycles, la résolution théorique maximale dans la direction de propagation des ultrasons x est donc de 0,6 mm.L'ajustement gaussien nous permet d'estimer que la largeur de l'inclusion (largeur à mi-hauteur de la gaussienne) est de $4,1 \pm 0{,}1$ mm, ce qui est plus grand que la taille de l'inclusion attendue (2 mm). Cette valeur s'explique car on voit la convolution de l'inclusion par l'impulsion ultrasonore et parce que l'encre diffuse de manière incontrôlée dans le gel.

Cette expérience montre le double avantage d'utiliser un filtre persistant. D'abord le long temps de vie du filtre permet d'accélérer la vitesse d'imagerie. Ensuite les trous spectraux sont plus profonds, donc le filtre est plus transparent et il y a plus de signal des photons marqués. Ces résultats ont été publiés dans le journal Optics Letters [194].

4.4 Estimation de la résolution

Nous imageons maintenant l'échantillon 2 ($\mu'_s = 10\,\mathrm{cm}^{-1}$ et deux inclusions absorbantes séparées de 2 mm) afin d'évaluer la résolution spatiale de notre système d'imagerie acousto-optique. La figure 4.11 a) montre une image de l'échantillon 2 moyennée 200 fois. On y voit le cône de lumière diffuse (en vert-jaune) de forme ovale et les deux inclusions plutôt circulaires au niveau de la ligne $x = 57$ (bleu foncé). Le temps d'acquisition de cette image a été de $T_{acq}^{persistant} = 47\,\mathrm{s}$, ce qui est juste un peu plus long que les 30 s de l'image avec 100 moyennes.

Nous avons réalisé un ajustement gaussien sur l'image 4.11 a) utilisant des fonctions à deux dimensions. Nous avons utilisé une large gaussienne à deux dimensions pour l'enveloppe de la lumière diffuse, et deux petites gaussiennes à deux dimensions pour les inclusions. La gaussienne large permet de visualiser la forme du signal des photons marqués s'il n'y avait pas d'inclusions dans l'échantillon (tirets rouges des coupes de l'image). La gaussienne large moins les deux petites gaussiennes permettent d'ajuster finement la courbe théorique aux données (lignes bleues) et d'en déduire la taille observée des inclusions et le rapport contraste à bruit.

Les inclusions sont visibles malgré un rapport contraste à bruit plus faible $7,5 \pm 0,4$. Ce faible rapport contraste à bruit est principalement dû au coefficient de diffusion élevé $\mu'_s = 10\,\mathrm{cm}^{-1}$ de

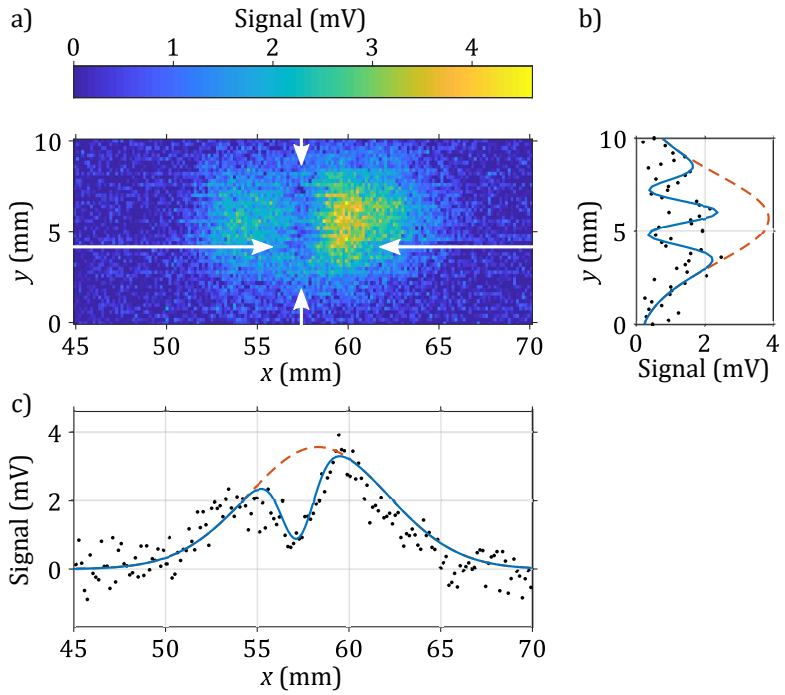

FIGURE 4.11 – a) Image acousto-optique de deux inclusions absorbantes dans un gel diffusant ($\mu'_s = 10\,\mathrm{cm}^{-1}$ d'épaisseur 1 cm) sous un champ magnétique de 234 G, l'image est moyennée 200 fois. b) Coupe selon $x = 57$ mm. c) Coupe selon $y = 4{,}4$ mm. Les données sont représentées par les points noirs, la courbe bleue est ajustée aux données et la courbe en tirets rouges est une gaussienne représentant l'allure du signal acousto-optique à travers un gel sans inclusion. x représente les coordonnées longitudinales en mm ; y représente les coordonnées transverses en mm ; et le signal est l'intensité lumineuse détectée par la photodiode à avalanche en mV. C'est le signal des photons marqués.

l'échantillon 2 qui est partiellement compensé par la réalisation de 200 moyennes au lieu de 100. Il y a environ sept fois moins de signal que dans l'image b) de l'échantillon 1 (figure 4.9). Par conséquent on peut estimer que le signal collecté en sortie de l'échantillon 2 est environ 7 fois moins important que celui en sortie de l'échantillon 1, qui est dix fois moins diffusant.

Les largeurs à mi-hauteur des inclusions de l'échantillon 2 sont considérées comme identiques pour les deux inclusions. Elles sont mesurées égales à $(1,5 \pm 0,2) \times (2,1 \pm 0,2)\,\mathrm{mm}^2$ dans les directions x et y respectivement. Elles sont significativement plus grandes que la taille initiale de $0{,}5\times0{,}5\,\mathrm{mm}^2$ des inclusions mesurée lors de la fabrication de l'échantillon. Cette valeur plus grande s'explique partiellement car la taille de l'inclusion sur l'image est le résultat de la convolution entre la taille réelle de l'inclusion et la résolution des ultrasons. Dans la direction x, la résolution est liée à la longueur d'onde ultrasonore et aux nombres de cycles de l'impulsion, elle est de 0,6 mm. Dans la direction transverse y la résolution théorique est liée à la largeur du point focal, et elle est d'environ 0,4 mm. Le deuxième facteur pouvant expliquer la taille mesurée des inclusions est la diffusion incontrôlée de l'encre dans le gel. En effet la nature chimique de l'inclusion est similaire à celle du gel, ce qui favorise la diffusion de l'encre. Néanmoins on n'explique pas la perte de symétrie des inclusions. Malgré le rapport contraste à bruit modeste, ces mesures valident l'utilisation du filtre persistant pour l'imagerie d'inclusions de taille millimétrique dans des milieux diffusants. Ces résultats ont aussi été publiés dans l'article [194].

4.5 Conclusion

L'optimisation du montage optique et de la séquence d'imagerie nous a permis de réaliser la première démonstration expérimentale de l'imagerie acousto-optique utilisant un filtre spectral persistant dans un cristal de Tm : YAG. Ce filtre persistant est créé grâce à l'application d'un champ magnétique sur le cristal maintenu à une température de 2 K. Notre expérience a été réalisée sur un gel diffusant imitant les tissus biologiques dans leurs caractéristiques acoustiques et optiques, et montre qu'il serait possible d'imager des tissus biologiques *in vivo* à 793 nm. Par rapport à des preuves de concept antérieures, nous avons accès à un rapport contraste à bruit plus grand grâce aux trous plus profonds qui augmentent la transmission des photons marqués d'un facteur 10. La plus grande durée de vie du trou permet de réaliser au moins 40 fois plus d'acquisitions par cycle d'acquisition. Ce travail ouvre la voie vers une imagerie acousto-optique à cadence vidéo et *in vivo*.

La performance de cette preuve de principe est principalement limitée par des aspects techniques. En effet, le temps d'imagerie pourrait être réduit en utilisant une sonde échographique. Le rapport contraste à bruit pourrait être amélioré par une augmentation de la puissance du faisceau sonde tout en restant dans les limites fixées par les normes médicales [195] et en appliquant un traitement de surface anti-reflet sur les fenêtres du cryostat et sur le cristal. De plus une puissance de pompe plus importante permettrait de creuser des trous spectraux plus profonds et donc d'obtenir un rapport contraste à bruit plus important. Finalement nous pourrions améliorer l'étendue de notre montage, en choisissant un cryostat avec un meilleur accès optique.

Le montage utilisé pour cette démonstration est typique d'un montage de laboratoire, donc sa prise en main est plus ardue que celle d'un appareil complexe mais bien conçu. Il y a en particulier trois points à relever : le laser maître, le montage optique dans sa globalité et le cryostat. Le laser maître et l'asservissement de sa fréquence ont été réalisé au laboratoire dans le cadre d'une précédente thèse. Le montage optique de l'expérience reste suffisamment petit pour être utilisé par une seule personne mais il est aussi assez étendu pour qu'il y ait plusieurs points cruciaux qui ne doivent pas se désaligner. Finalement le cryostat demande aussi un temps de prise en main pour obtenir une température de l'échantillon la plus stable possible quand il est en froid. Dans les chapitres suivants nous verrons comment faire évoluer le montage sur le plan de la facilité d'utilisation et de la compacité.

Chapitre 5

Stabilisation laser

Sommaire

5.1 Nécessité de la stabilisation laser 104
5.1.1 Décalage en fréquence du laser 104
5.1.2 Accumulation des trous spectraux 104
5.2 Stabilisation en fréquence d'un laser 107
5.2.1 Principe général 107
5.2.2 Asservissement à flanc de frange 107
5.2.3 Approche qualitative de la méthode Pound-Drever-Hall 108
5.2.4 Éléments quantitatifs de la méthode PDH 108
5.2.5 La référence de fréquence 113
5.2.6 État de l'art : stabilisation sur trou spectral 114
5.3 Études préliminaires à la stabilisation 116
5.3.1 Cahier des charges de l'asservissement 116
5.3.2 Simulation de signal d'erreur pour différentes formes de trous 116
5.4 Stabilisation laser pour l'imagerie acousto-optique 120
5.4.1 Le circuit de rétroaction 120
5.4.2 Laser asservi 124
5.5 Conclusion 126

Dans le cadre de l'imagerie acousto-optique, le long temps de vie des trous persistants mis en évidence dans le chapitre 3 apporte de nouveaux défis, en particulier sur l'exigence de stabilité du laser. Initialement il fallait une bonne stabilité à court terme pour creuser des trous spectraux fins. Maintenant il faut aussi une stabilité long terme permettant de tirer profit au mieux de la longue durée de vie du filtre spectral.

La première partie de ce chapitre détaille les raisons pour lesquelles la stabilisation du laser maître a été revisitée. La deuxième partie introduit les principes fondamentaux de la stabilisation en fréquence d'un laser. La troisième présente les études préliminaires à la stabilisation de notre laser. La dernière partie décrit comment nous avons stabilisé notre laser.

5.1 Nécessité de la stabilisation laser

Nous avons vu dans le chapitre 2 l'intérêt d'avoir un laser avec peu de gigue ou *jitter*. Dans cette partie nous présentons plus en détail les inconvénients d'une dérive de fréquence du laser avec un trou persistant. Puis nous présentons comment cela affecte les trous spectraux via le phénomène d'accumulation.

5.1.1 Décalage en fréquence du laser

Les fréquences des trous spectraux du filtre pour l'imagerie acousto-optique sont fixes pour toute leur durée de vie si l'environnement du cristal ne change pas. La fréquence des photons marqués suit les variations de fréquence du laser, car elle est définie par rapport à celle-ci. Les équations 5.1 définissent les fréquences d'intérêt pour l'imagerie acousto-optique et la figure 5.1 illustre ces différentes fréquences.

$$\begin{cases} f_{PM\pm}(t) &= f_L(t) \pm f_{US} \\ f_{trou\pm} &= f_{PM\pm}(t=0) \end{cases} \tag{5.1}$$

avec $f_{PM\pm}(t)$ les fréquences des photons marqués, $f_L(t)$ la fréquence du laser, f_{US} la fréquence fixe des ultrasons, $f_{trou\pm}$ les fréquences des deux trous spectraux du filtre.

Quand les trous spectraux du filtre viennent d'être créés, ils sont à la même fréquence que les photons marqués. Mais après un temps t_1, la fréquence du laser a pu dériver un peu, donc les fréquences des photons marqués ne sont plus identiques à celles des deux trous du filtre. Les photons marqués ne sont plus aussi bien transmis qu'au début. Si après un temps t_2 le laser a trop dérivé, les photons marqués peuvent même être absorbés par le filtre. Dans le pire des cas la lumière diffuse à la fréquence du laser pourrait être transmise par le filtre. La figure 5.1 illustre les situations à $t = 0$, t_1 et t_2. Donc la fréquence du laser doit être stabilisée au moins pour que la dérive en fréquence ne dégrade pas l'efficacité du filtre sur l'ensemble de sa durée de vie.

5.1.2 Accumulation des trous spectraux

Le principe d'accumulation des trous spectraux a déjà été mentionné dans le chapitre 2. La figure 5.2 l'illustre plus en détail pour le cas d'un trou spectral unique utilisé comme filtre pour l'imagerie acousto-optique. Les étapes de gravure sont numérotées de 1 à 4 pour commenter plus facilement la figure, mais la numérotation ne correspond pas à la situation réelle. On réalise un nombre de gravures plus élevé (au moins une centaine) pour atteindre un état stationnaire.

Le cas idéal est représenté par la série 5.2 a) où le laser est monochromatique et ne dérive pas. La première gravure creuse un trou qui n'atteint pas sa profondeur maximale. Pendant l'imagerie le trou

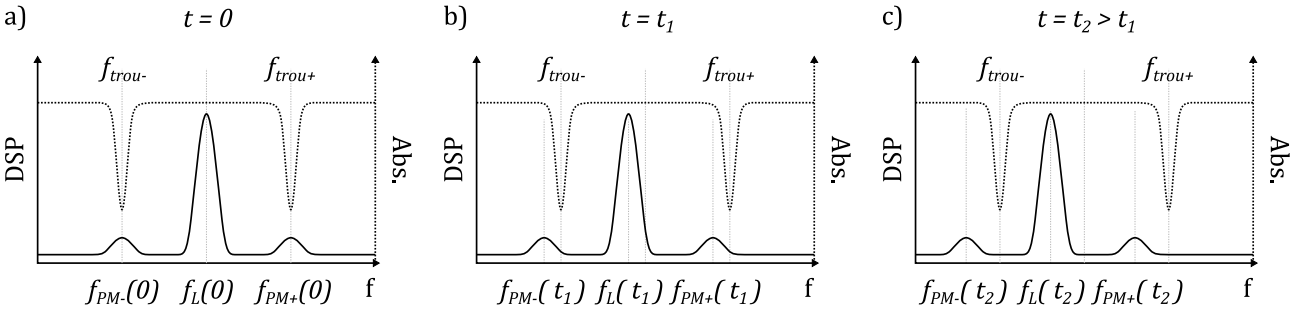

FIGURE 5.1 – Influence du long temps de vie du filtre et du décalage en fréquence du laser sur l'efficacité du filtre spectral. Les trous spectraux du filtre restent à la même fréquence pendant toute leur durée de vie. Le laser se décale en fréquence, donc après un certain temps les photons marqués ne sont plus à la fréquence des trous spectraux, ils ne sont plus transmis par le filtre. f : fréquence, $f_{PM\pm}(t)$: les fréquences des photons marqués, $f_L(t)$: la fréquence du laser, $t_{trou\pm}$: les fréquences des deux trous spectraux du filtre.

décroit partiellement. La gravure n°2 creuse un trou sur le trou initial, en conséquence le trou résultant est plus profond. Il décroit à nouveau pendant l'imagerie. La gravure n°3 permet au trou d'atteindre sa profondeur maximale. On a atteint un régime stationnaire, la décroissance du trou pendant l'imagerie est compensée à chaque gravure pour atteindre la profondeur maximale. La gravure n°4 rafraichit le trou spectral précédent, il atteint la profondeur maximale du régime stationnaire.

La série 5.2 b) représente l'évolution du trou avec l'accumulation de la gravure pour un laser avec du jitter. L'évolution temporelle est identique à la série avec le laser parfaitement monochromatique : on atteint un régime stationnaire. Cependant le trou est moins profond et plus large.

La série 5.2 c) représente l'évolution du trou avec l'accumulation de la gravure pour un laser monochromatique aux temps courts, mais dont la fréquence dérive entre deux gravures consécutives. La gravure n°1 crée un trou semblable à celui du laser idéal monochromatique. Après le temps d'imagerie la fréquence du laser n'est plus égale à celle du premier trou, donc la gravure n°2 creuse un nouveau trou à côté du premier. Le trou résultant est élargi et peu profond par rapport au trou idéal. Au fur et à mesure des gravures consécutives, le trou s'élargit de plus en plus et ne gagne pas beaucoup en profondeur. Il est aussi possible d'atteindre un régime stationnaire si la dérive se fait à vitesse constante.

La série 5.2 d) représente l'évolution du trou avec l'accumulation de la gravure qui est balayée en fréquence pour creuser des trous larges à dessein. Un trou d'une largeur adéquate permet de mieux filtrer le signal des photons marqués. Leur largeur spectrale est plus grande que celle du laser dans notre expérience. L'évolution temporelle est identiques aux séries a) et b) : on atteint un régime stationnaire. Le trou est globalement moins profond que si on utilisait un laser monochromatique. Il faut donc trouver un compromis entre la largeur et la profondeur du trou. A noter que pour les applications de filtrage des photons marqués, il peut être avantageux d'avoir un trou plus large car le signal à filtrer peut être large spectralement.

La série 5.2 e) représente l'évolution du trou avec l'accumulation de la gravure élargie si le laser se décale en fréquence. De même que pour la série c) avec le laser monochromatique qui dérive, le trou spectral s'élargit de manière importante et n'atteint pas une profondeur très importante. Dans ces conditions, l'efficacité finale du filtre spectral n'est pas grande.

L'accumulation de la gravure permet de creuser des trous spectraux plus profonds, et donc a priori de créer un filtre spectral plus contrasté. La profondeur maximale du trou dépend de sa largeur, des conditions d'éclairement et de son temps de vie, elle ne peut pas être atteinte si le laser dérive. L'efficacité du filtre est maximale si la fréquence du laser ne dérive pas.

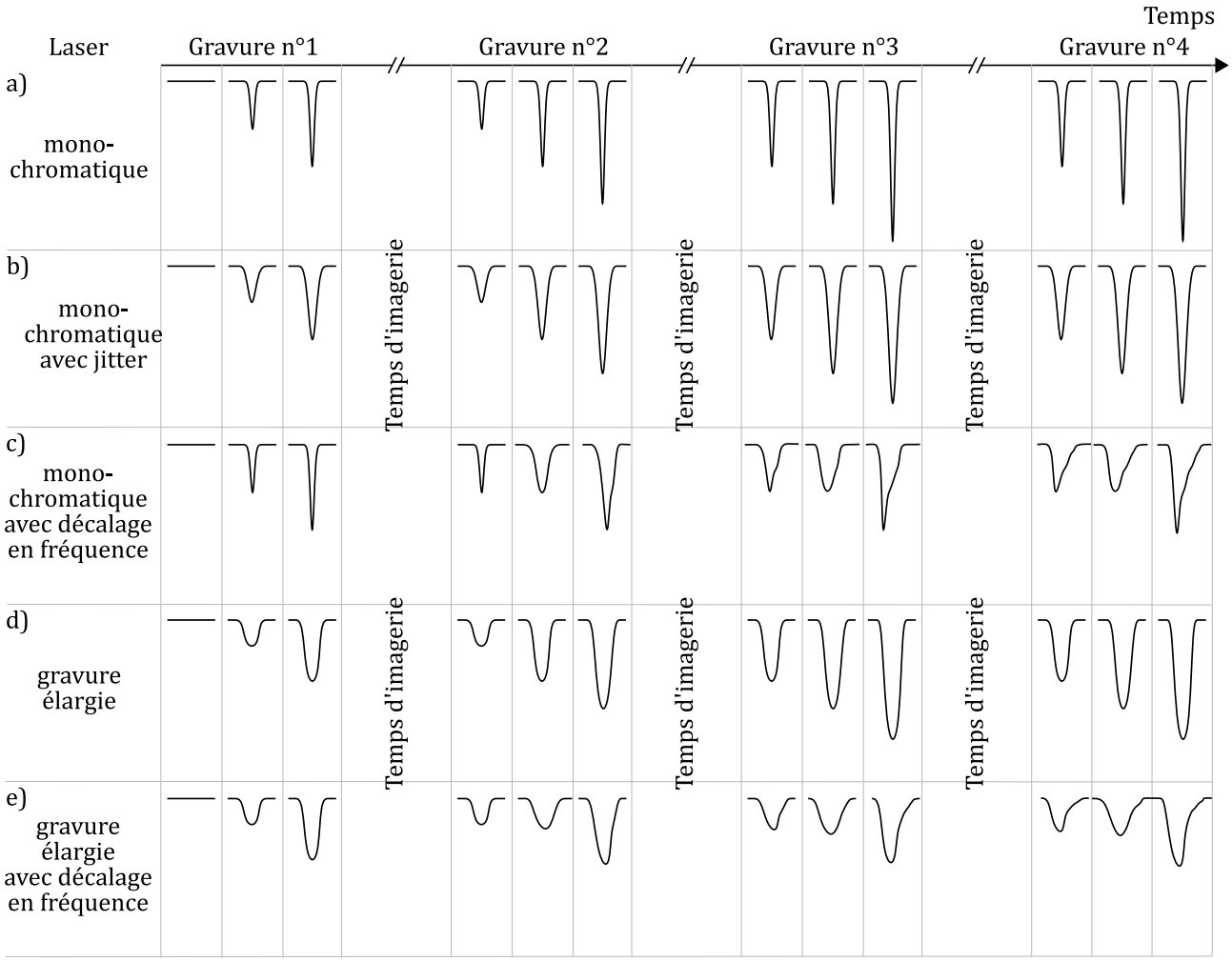

FIGURE 5.2 – Effets combinés de l'accumulation de la gravure et décalage en fréquence du laser sur un trou spectral. Les séries de trois courbes montrent l'évolution du profil du trou spectral au cours de la gravure avec différentes hypothèses faites sur le laser. Une ligne de courbe montre l'évolution du trou pour des gravures consécutives réalisées pendant le temps de vie du trou, comme c'est le cas pour le rafraîchissement du filtre utilisée lors de l'imagerie acousto-optique. Quand il n'y a pas de décalage en fréquence du laser, les deux dernières gravures montrent un état stationnaire du trou spectral.

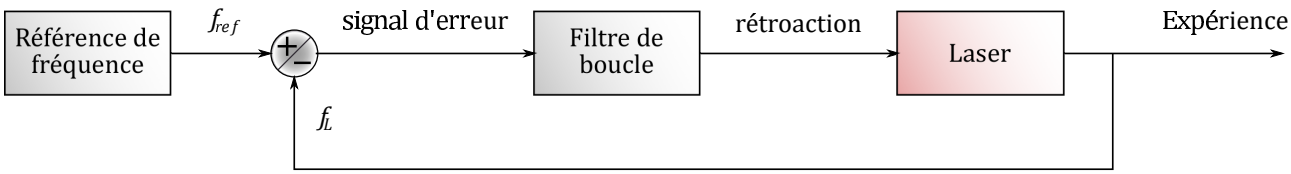

FIGURE 5.3 – Principe de la stabilisation laser. Une partie du faisceau laser est prélevée afin de pouvoir comparer la fréquence du laser f_L à une fréquence de référence f_{ref}. Le signal d'erreur issu de cette comparaison est ensuite transformé en signal de rétroaction par un filtre de boucle. La fréquence du laser peut ainsi être corrigée en continu.

5.2 Stabilisation en fréquence d'un laser

Cette partie présente dans un premier temps le principe général de la stabilisation en fréquence d'un laser. Puis la méthode d'obtention du signal d'erreur développée par Pound, Drever et Hall sera présentée plus en détail car nous voulons la mettre en œuvre pour stabiliser notre laser. Ensuite nous comparons les avantages et inconvénients des deux références à notre disposition : la cavité Fabry-Perot et le trou spectral dans un cristal dopé aux ions de terre rare. Enfin nous faisons une revue des différentes méthodes de stabilisation sur trou spectral qui ont été développées.

5.2.1 Principe général

La stabilisation en fréquence d'un laser est simple sur le papier : la fréquence du laser est comparée à une référence afin de générer un signal d'erreur qui rétroagit sur le laser. On parle alors de boucle de rétroaction, comme schématisée dans la figure 5.3. Usuellement une petite portion de la puissance du laser est prélevée pour la rétroaction, le reste de la puissance est utilisé pour l'expérience principale. La référence de fréquence est l'élément le plus important de la boucle de rétroaction : elle détermine la stabilité ultime que le laser peut atteindre. Il existe deux types principaux : les raies atomiques (gaz ou cristaux) ou les cavités Fabry-Perot très répandues pour la stabilisation de diodes laser. Le deuxième élément crucial de la boucle de rétroaction est la méthode permettant de calculer le signal d'erreur. Il existe aussi différentes techniques, mais c'est la méthode Pound-Drever-Hall (PDH) qui fait figure de référence. Le filtre de boucle permet de mettre en forme le signal d'erreur pour avoir une rétroaction efficace. Ce filtre peut contenir trois types d'éléments : proportionnel, intégrateur et dérivateur. Le réglage de ces éléments permet d'ajuster le gain et la phase de la boucle de rétroaction. Si plusieurs éléments du laser (typiquement pour une diode laser en cavité étendue la longueur de celle-ci et le courant d'alimentation) sont asservis, il y aura autant de signaux de rétroaction qui pourront avoir des caractéristiques différentes. Par exemple un asservissement du courant du laser permet une correction rapide de la fréquence, tandis que celui sur la longueur de la cavité permet plutôt de corriger des dérives plus lentes.

5.2.2 Asservissement à flanc de frange

L'asservissement à flanc de frange est une méthode assez intuitive et basique pour asservir la fréquence d'un laser. Nous donnons ici une approche qualitative de cet asservissement et ses limitations.

Une cavité Fabry-Perot est une référence de fréquence. Quand la fréquence du laser est résonante avec celle de la cavité, alors le faisceau laser est parfaitement transmis par la cavité. Au contraire le faisceau d'un laser hors résonance est complètement réfléchi. Si le laser est proche de la résonance il ne sera que partiellement transmis (ou réfléchi). Dans cette condition là une faible variation de la fréquence du laser entraine une variation proportionnelle de l'intensité transmise (ou réfléchie). La

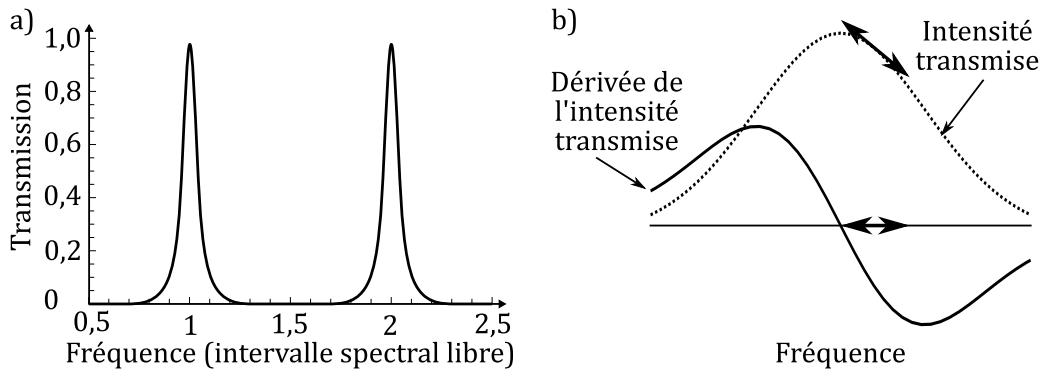

FIGURE 5.4 – Approche qualitative de la mesure du signal d'erreur par la méthode Pound-Drever-Hall. a) Transmission d'une cavité Fabry-Perot d'une faible finesse (< 20), pour bien visualiser les pics de transmission. b) Intensité lumineuse transmise par une cavité Fabry-Perot et sa dérivée en fonction de la fréquence du laser proche de la résonance. Une faible modulation de la fréquence du laser entraine une variation de la phase du faisceau transmis qui permet de déterminer si la fréquence centrale du laser est avant ou après la résonance.

mesure de cette intensité permet de créer un signal d'erreur et donc de stabiliser la fréquence du laser. La figure 5.4 a) représente la transmission d'une cavité Fabry-Perot en fonction de la fréquence du laser [196].

Cette méthode de stabilisation est sensible aux fluctuations de l'intensité du laser, qui peuvent être confondues avec une fluctuation de la fréquence. Pour corriger ce problème l'intensité du faisceau laser est mesurée avant la cavité. Cependant il n'est pas possible de vérifier le côté de la résonance sur lequel le laser se trouve, car la résonance est symétrique. Ainsi, si la fréquence du laser quitte son point d'asservissement il n'est pas possible de savoir dans quel sens appliquer la rétroaction pour l'y ramener.

5.2.3 Approche qualitative de la méthode Pound-Drever-Hall (PDH)

La méthode PDH s'intéresse à la phase de l'intensité transmise (ou réfléchie) par la cavité Fabry-Perot. En effet si le laser est légèrement modulé en fréquence de manière sinusoïdale, alors les variations de phase subséquentes du faisceau transmis varient de manière antisymétrique autour de la résonance. Conceptuellement, ces variations de phase ressemblent à la dérivée de l'intensité transmise. Cette dérivée est représentée dans la figure 5.4 b). Les variations de phase permettent ainsi d'obtenir un signal d'erreur adéquat pour asservir la fréquence d'un laser. Après la résonance l'intensité transmise est en phase avec la modulation en fréquence du laser tandis qu'elle est en opposition de phase avant la résonance. À résonance une petite modulation de fréquence du laser n'entraine pas de changement de l'intensité transmise. Le signal d'erreur est sensible à ces variations et permet de garder la fréquence du laser à résonance avec la cavité.

5.2.4 Éléments quantitatifs de la méthode PDH

Le calcul du signal d'erreur avec la méthode PDH se fait en deux étapes. D'abord nous déterminons la fonction de transfert de la référence, nous prendrons l'exemple d'une cavité Fabry-Perot en transmission, qui n'est pas la technique standard (cavité utilisée en réflexion). Ensuite le champ incident sur la cavité est modulé en fréquence : les bandes latérales seront utiles pour le calcul du signal d'erreur. Nous utilisons la fonction de transfert pour calculer la transmission du signal modulé qui est ensuite détecté par une photodiode. Le signal électronique issu de la photodiode est démodulé :

on a le signal d'erreur. Nous présentons les éléments principaux permettant le calcul du signal d'erreur d'une cavité Fabry-Perot en transmission. Nous suivons la méthode décrite dans la thèse de Vincent Crozatier [197], qui a calculé le signal d'erreur pour une cavité en réflexion.

Fonction de transfert en transmission d'une cavité Fabry-Perot On suppose une cavité Fabry-Perot de haute finesse avec deux miroirs identiques. On utilise les fréquences de résonance des modes fondamentaux gaussiens (TEM 00). Ils sont séparés par l'Intervalle Spectral Libre (ISL) de la cavité $\Delta f_{ISL} = \frac{c}{2L}$ avec c la vitesse de la lumière dans le vide, et L la longueur de la cavité. La largeur spectrale des modes gaussiens est noté Δf_{FP}. La finesse réflective $\mathcal{F}$ de la cavité est définie par 5.2.

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta f_{ISL}}{\Delta f_{FP}} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \tag{5.2}$$

avec le coefficient de réflexion en intensité R.

On note le coefficient de transmission en intensité T. R et T vérifient $R + T = 1$ en l'absence d'absorption.

Pour une fréquence proche de la résonance de la cavité, la fonction de transfert de la cavité Fabry-Perot en transmission s'écrit comme dans la formule 5.3 dans le domaine de Fourier.

$$\widetilde{t_{FP}}(f) = \frac{T \cdot \mathrm{e}^{i(\varphi - \pi f/\Delta f_{ISL})}}{1 - R \cdot \mathrm{e}^{i(\varphi - 2\pi f/\Delta f_{ISL})}} \tag{5.3}$$

avec f la fréquence du laser et $\varphi/2$ le déphasage subi par l'onde à la transmission.

Lorsque l'on est proche de la résonance de la cavité, on exprime la fréquence f du laser par 5.4.

$$f = f_{FP} + \delta f \tag{5.4}$$

avec f_{FP} la fréquence du laser à résonance et δf le désaccord en fréquence par rapport à la résonance.

À résonance $\varphi - \frac{2\pi f}{\Delta f_{ISL}} = 2p\pi$ (p entier) donc $\varphi - \frac{\pi f}{\Delta f_{ISL}} = \phi$ un déphasage constant. On peut ainsi exprimer la fonction de transfert de la cavité en transmission par rapport à δf le désaccord en fréquence comme dans l'expression 5.5

$$\widetilde{t_{FP}}(\delta f) = \frac{T \cdot \mathrm{e}^{i\phi}\mathrm{e}^{i\pi\delta f/\Delta f_{ISL})}}{1 - R \cdot \mathrm{e}^{-2i\pi\delta f/\Delta f_{ISL}}} \tag{5.5}$$

Proche de la résonance le rapport $\frac{\delta f}{\Delta f_{ISL}} \ll 1$ est très petit, on peut donc faire un développement limité de l'exponentielle. On exprime ensuite Δf_{ISL} en fonction du coefficient de réflexion R et de la largeur de la résonance Δf_{FP} de la cavité. Si on considère en plus que la finesse de la cavité est grande ($R \approx 1$) on obtient la relation 5.6.

$$\widetilde{t_{FP}}(\delta f) = \frac{\mathrm{e}^{i\phi}}{1 + \dfrac{i\delta f}{\Delta f_{FP}}} \tag{5.6}$$

Le champ transmis $E_t(t)$ par la cavité est la convolution de la fonction de transfert $T_{FP}(t)$ par le champ incident $E_i(t)$ sur la cavité, comme explicité dans la relation 5.7

$$E_t(t) = t_{FP}(t) \otimes E_i(t) \tag{5.7}$$

Modulation du champ incident et puissance détectée par la photodiode Le champ incident modulé en phase à la fréquence f_m s'écrit comme suit :

$$E_i(t) = \frac{E_0}{2}\exp(2i\pi f_L t + imsin(2\pi f_m t)) + c.c. \tag{5.8}$$

avec f_L la fréquence du laser, m l'amplitude de la modulation de phase aussi appelé indice de modulation.

Il est possible de développer l'exponentielle en une série de fonctions de Bessel du premier ordre $J_n(m)$. Si m est suffisamment petit, on peut se limiter aux trois premiers termes $n = 0, \pm 1$. Le champ incident devient :

$$\begin{aligned} E_i(t) &= \frac{E_0}{2}\,\mathrm{e}^{2i\pi f_L t}\left[J_0(m) + \frac{J_1(m)}{2}\mathrm{e}^{2i\pi f_m t} - \frac{J_1(m)}{2}\mathrm{e}^{-2i\pi f_m t}\right] + c.c. \\ &= E_0'\,\mathrm{e}^{2i\pi f_L t}\left[J + \mathrm{e}^{2i\pi f_m t} - \mathrm{e}^{-2i\pi f_m t}\right] + c.c. \end{aligned} \tag{5.9}$$

avec $E_0' = \dfrac{E_0}{2} \times \dfrac{J_1(m)}{2}$ et $J = 2 \cdot J_0(m)/J_1(m)$.

La modulation crée deux bandes latérales de signe opposé $\pm f_m$. Le champ transmis par la cavité Fabry-Perot s'exprime comme suit :

$$\begin{aligned} E_t(t) &= t_{FP}(t) \otimes E_i(t) \\ E_t(t) &= E_0' \int_{-\infty}^{+\infty} t_{FP}(t')\,\mathrm{e}^{2i\pi f_L(t-t')}\left[J + \mathrm{e}^{2i\pi f_m t} - \mathrm{e}^{-2i\pi f_m t}\right]\mathrm{d}t' + c.c. \\ E_t(t) &= E_0'\,\mathrm{e}^{2i\pi f_L t}\left[J\int_{-\infty}^{+\infty} t_{FP}(t')\,\mathrm{e}^{-2i\pi f_L t'}\,\mathrm{d}t'\right. \\ &\quad + \mathrm{e}^{+2i\pi f_m t}\int_{-\infty}^{+\infty} t_{FP}(t')\,\mathrm{e}^{-2i\pi(f_L+f_m)t'}\,\mathrm{d}t' \\ &\quad \left. - \mathrm{e}^{-2i\pi f_m t}\int_{-\infty}^{+\infty} t_{FP}(t')\,\mathrm{e}^{-2i\pi(f_L-f_m)t'}\,\mathrm{d}t'\right] + c.c. \end{aligned} \tag{5.10}$$

On reconnaît dans chacune des trois intégrales les transformées de Fourier de $t_{FP}(t)$ prises en f_L et $f_L \pm f_m$, c'est-à-dire les fonctions de transfert $\widetilde{t_{FP}}(f_L)$ et $\widetilde{t_{FP}}(f_L \pm f_m)$. Le champ $E_t(t)$ correspond à la somme des composantes à f_L et $f_L \pm f_m$ pondérées par la fonction de transfert de la cavité à ces fréquences.

$$E_t(t) = E_0'\,\mathrm{e}^{2i\pi f_L t}\left[J\,\widetilde{t_{FP}}(f_L) + \mathrm{e}^{+2i\pi f_m t}\,\widetilde{t_{FP}}(f_L + f_m) - \mathrm{e}^{-2i\pi f_m t}\,\widetilde{t_{FP}}(f_L - f_m)\right] + c.c. \tag{5.11}$$

L'intensité détectée $I_d(t)$ par la photodiode est le carré du module de $E_t(t)$, qu'on peut mettre sous la forme :

$$\begin{aligned} I_d(t) = I_0 \;\Big\{ & J^2|\widetilde{t_{FP}}(f_L)|^2 + |\widetilde{t_{FP}}(f_L + f_m)|^2 + |\widetilde{t_{FP}}(f_L - f_m)|^2 \\ & + 2J \cdot \Re\left[\widetilde{t_{FP}}(f_L)\widetilde{t_{FP}}^*(f_L + f_m) - \widetilde{t_{FP}}^*(f_L)\widetilde{t_{FP}}(f_L - f_m)\right] \times \cos(2\pi f_m t) \\ & + 2J \cdot \Im\left[\widetilde{t_{FP}}(f_L)\widetilde{t_{FP}}^*(f_L + f_m) - \widetilde{t_{FP}}^*(f_L)\widetilde{t_{FP}}(f_L - f_m)\right] \times \sin(2\pi f_m t) \\ & + 2J \cdot \Re\left[\widetilde{t_{FP}}(f_L + f_m)\widetilde{t_{FP}}^*(f_L - f_m)\right] \times \cos(4\pi f_m t)\Big\} \end{aligned} \tag{5.12}$$

avec $I_0 = |E_0'|^2$, $\Re$ et $\Im$ désignent respectivement les parties réelle et imaginaire.

Le signal détecté par la photodiode est composé de quatre parties : un signal continu, deux signaux oscillants à f_m en quadrature, et un signal oscillant à $2f_m$. La partie continue du signal correspond à la puissance de la porteuse et des bandes latérales.

On démodule le signal détecté I_d par un signal de la forme $s(t) = \sin(2\pi f_m t + \varphi)$ avec φ la phase réglable du signal. En sortie du démodulateur, on filtre pour ne garder que les composantes oscillant à f_m. On choisit la quadrature $\sin(2\pi f_m t)$ (la partie imaginaire) en ajustant la phase φ du signal de la démodulation. Cette quadrature est le signal d'erreur et son amplitude dépend de la fonction de transfert de la cavité T_{FP}. Si la fréquence du laser est proche d'une fréquence de résonance de la cavité telle que la différence entre les deux fréquences soit δf, alors on peut utiliser l'expression 5.6. Le signal d'erreur $u(\delta f)$ s'exprime comme suit

$$u(\delta f) = -I_0 J \cdot \frac{4\dfrac{\delta f}{\Delta f_{FP}}}{1 + 4\left(\dfrac{\delta f}{\Delta f_{FP}}\right)^2} \tag{5.13}$$

avec δf le désaccord de fréquence entre le laser et la résonance de la cavité Fabry-Perot.

Lorsque le désaccord de fréquence δf entre le laser et la résonance du Fabry-Perot est faible, le dénominateur de 5.13 est approximativement égal à 1 et donc l'amplitude du signal d'erreur est proportionnel au décalage en fréquence δf. Ainsi le signal d'erreur discrimine les fréquences et il permet la correction des variations de fréquence du laser. La pente du signal est inversement proportionnelle à la largeur de la résonance de la cavité Δf_{FP}. Il faut donc avoir des résonances les plus étroites possibles pour augmenter la discrimination de fréquence par le signal d'erreur. L'amplitude du signal d'erreur dépend aussi de l'amplitude de la modulation par le terme $I_0 \cdot J = |E_0|^2 \times J_1(m) \times J_0(m)/8$. Elle est maximale quand $m = 1,08$ comme l'amplitude du signal d'erreur calculé pour une cavité Fabry-Perot en réflexion [196].

Le principe du calcul du signal d'erreur est identique si on change de référence de fréquence. Le choix classique est de considérer une cavité Fabry-Perot en réflexion mais il est aussi possible de choisir un trou spectral comme référence. Néanmoins la fonction de transfert d'un trou spectral est une fonction complexe qui ne se résume pas à sa transmission en intensité. D'une part la forte variation d'absorption aux abords des trous spectraux engendre une forte dispersion de la lumière (relations de Kramers-Kronig). D'autre part les trous spectraux ont une durée de vie limitée, il existe donc aussi des phénomènes de relaxations à prendre en compte. C'est pourquoi si on veut modéliser la propagation d'un faisceau lumineux dans un cristal dans lequel on a creusé un trou spectral, alors il faut utiliser les équations de Bloch optique comme ce qui a été fait dans l'article [198].

Nous avons adopté une approche plus simple même si elle est inexacte pour comparer visuellement le signal d'erreur issu d'un trou spectral et d'une cavité Fabry-Perot en transmission. Nous avons juste changé la fonction de transfert de la référence dans le calcul du signal d'erreur. Nous présentons dans la figure 5.5 les parties réelles et imaginaires du signal d'erreur calculé pour une cavité Fabry-Perot en transmission et un trou spectral lorentzien supposé invariant sur l'ensemble du volume du cristal et dans le temps. Ces hypothèses permettent de visualiser le meilleur signal d'erreur réalisable avec un trou spectral comme référence de fréquence. Les simulations ont été réalisées avec des paramètres proches des paramètres expérimentaux utilisés dans la partie 4 du présent chapitre.

On voit que pour les deux références les signaux d'erreur sont similaires. Leurs parties réelles présentent deux pics inversés à plus ou moins la fréquence de modulation et une courte pente à la fréquence centrale. Les parties réelles ne permettent pas une bonne discrimination en fréquence. Les parties imaginaires présentent une grande pente linéaire à la fréquence centrale. Cette pente est

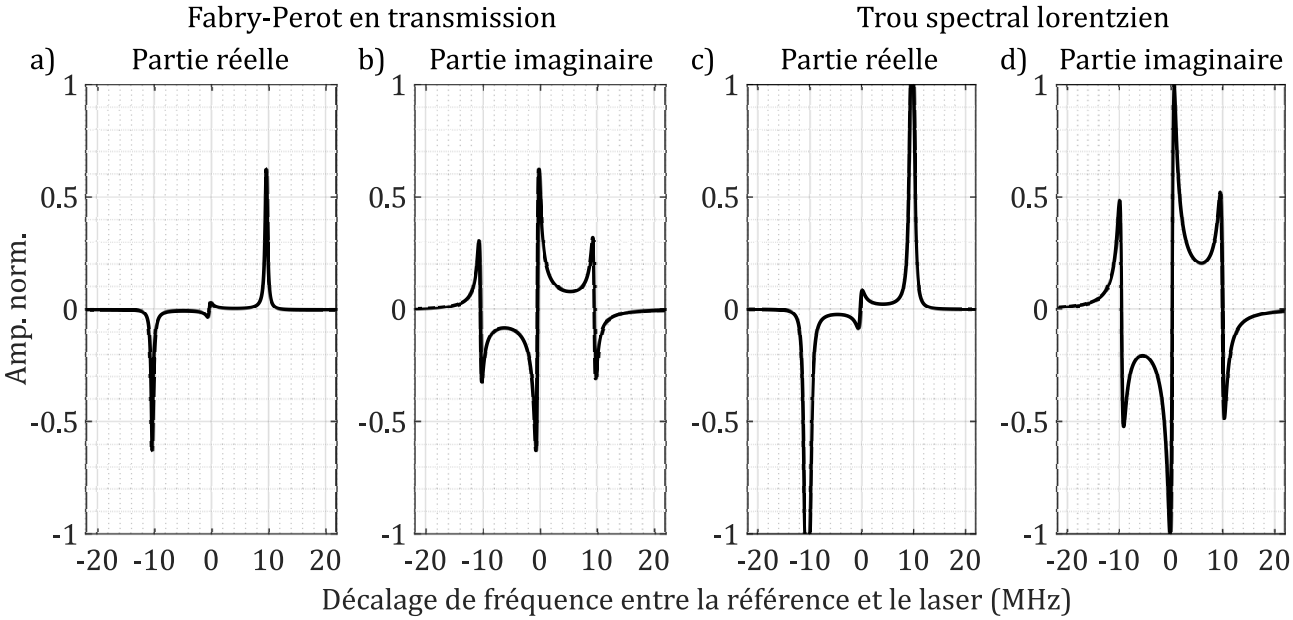

FIGURE 5.5 – Quadrature du signal d'erreur. Le choix du déphasage φ lors de la démodulation permet de choisir la quadrature du signal d'erreur qui sera utilisée par l'asservissement : la partie réelle ($\varphi = 0$) ou la partie imaginaire ($\varphi = 90\,°$). Amp. norm. : amplitude normalisée de manière identique pour les deux graphiques. Les simulations ont été réalisées à la longueur d'onde 793 nm, pour une fréquence de modulation de 10 MHz et l'amplitude de modulation $m = 5.10^{-5}$. La cavité Fabry-Perot a une finesse $\mathcal{F} = 2000$ et un intervalle spectral libre $\Delta f_{ISL} = 1$ GHz. Le trou spectral est lorentzien de largeur à mi-hauteur 1,1 MHz.

adaptée à la discrimination en fréquence. À plus ou moins la fréquence de modulation, on retrouve une pente linéaire de sens inverse et plus courte que la pente centrale. Lors de l'asservissement la plage fréquentielle d'accroche du laser correspond à la pente centrale et la plage d'asservissement est égale à deux fois la fréquence de modulation.

5.2.5 La référence de fréquence

Nous avons vu qu'il était possible de calculer un signal d'erreur avec la méthode PDH pour différentes références de fréquence. Il s'agit maintenant de déterminer quel type de référence est la mieux adaptée au filtre spectral de l'imagerie acousto-optique.

Cavité Fabry-Perot Les cavités Fabry-Perot les plus stables sont ultimement limitées par le mouvement brownien des atomes des miroirs de la cavité [199]. Ce mouvement entraine un déplacement des miroirs et donc de la longueur de la cavité. Par conséquent la fréquence du mode de la cavité choisi pour la stabilisation du laser est modifiée selon la relation ci-dessous :

$$\frac{\delta f}{\nu} = \frac{\Delta L}{L} \tag{5.14}$$

avec ν la fréquence du mode de la cavité et L la longueur de la cavité [200].

Cependant il n'est pas nécessaire d'atteindre ce niveau de stabilité pour la plupart des asservissements de lasers. Prenons l'exemple d'un laser asservi sur une cavité dans le but de graver des trous spectraux fins. La finesse des trous spectraux est limitée par la largeur homogène. En conséquence la stabilisation du laser doit juste assurer une variation de fréquence inférieure à la largeur homogène pendant le creusement spectral. Le laser utilisé dans les chapitres 3 et 4 répond à ces caractéristiques. Il est stabilisé sur une cavité Fabry-Perot en invar sous vide, contrôlée en température par une résistance chauffante [190].

Néanmoins, cette stabilisation n'est pas bien adaptée à l'imagerie acousto-optique réalisée avec un filtre spectral persistant. En effet la stabilisation présente de bonnes caractéristiques pour des temps courts, mais aux temps longs le mode de référence de la cavité est sensible aux variations de température de la pièce, donc sa fréquence change. Ces changements sont décorrélés des éventuelles variations de la fréquence du filtre spectral. C'est pourquoi l'efficacité du filtre en est donc diminuée.

Trou spectral Deux trous spectraux creusés dans deux cristaux de même composition dans un même cryostat évoluent de la même manière, si les conditions expérimentales sont identiques (orientation du cristal, température, champ magnétique). En conséquence la fréquence d'un laser stabilisé sur un trou spectral peut évoluer de la même manière que celle du filtre spectral. L'asservissement sur un trou spectral permettrait d'améliorer la stabilisation aux temps longs.

Néanmoins il faut prendre en compte la photosensibilité des cristaux contrairement aux cavités Fabry-Perot. Les trous spectraux s'effacent progressivement avec le retour des populations atomiques dans leur état d'équilibre et peuvent s'élargir si la puissance du faisceau d'asservissement est importante.

L'équipe de Stefan Kröll a réalisé le calcul du signal d'erreur par la méthode PDH pour un trou spectral gaussien en prenant en compte la propagation du laser dans le cristal [198]. Ils modélisent simplement les variations de fréquence du laser incident et étudient la propagation du laser dans le cristal. Ils supposent que le laser est quasiment monochromatique et que sa fréquence ne fait pas de grandes variations rapides. Ainsi les équations de Bloch pour un système à trois niveaux (fondamental, excité et réservoir) sont linéaires pour le calcul de la fonction de transfert du milieu atomique. Ensuite avec l'expression du champ sortant, ils obtiennent le signal d'erreur pour la stabilisation en fréquence.

L'expression obtenue permet de tirer quelques conclusions sur les paramètres expérimentaux à choisir. Premièrement, plus la photodiode détecte de lumière plus le signal d'erreur est important. Mais augmenter l'éclairement du cristal élargit les trous spectraux par saturation. En conséquence il vaut mieux éclairer une surface plus grande. Il est intéressant de noter que la largeur du trou dépend de deux paramètres : l'intensité et le temps de vie, si on exclut les variations en fréquence du laser. On obtient une largeur équivalente si le temps de vie est court et que le laser est intense, ou si un long temps de vie est associé à une faible intensité laser. Deuxièmement il faut s'assurer que le trou central est toujours plus large que les trous spectraux creusés par les bandes latérales. Cette condition est vérifiée si la largeur des trous spectraux creusés par les bandes latérales est le plus proche possible de la largeur minimum. Dans l'article ils trouvent un indice de modulation optimal $m = 0,56$ si on ne considère que l'optimisation de l'amplitude du signal d'erreur. Troisièmement des trous fins permettent d'avoir accès à des temps de cohérence plus longs et donc d'améliorer la stabilité de la phase du laser à long terme. Finalement il faut que la transmission du cristal soit suffisamment élevée, c'est-à-dire que la densité optique αL soit assez faible, avec α l'absorption et L l'épaisseur du cristal. Dans leurs expériences ils ont trouvé que $\alpha L \approx 1$ est une bonne valeur c'est-à-dire que le cristal transmet environ $\exp(-\alpha L) = 30\%$ de l'intensité incidente.

5.2.6 État de l'art : stabilisation sur trou spectral

Trois architectures ont été développées pour verrouiller la fréquence d'un laser à un trou spectral. Nous allons les décrire ici.

Signal d'erreur lié à l'intensité transmise par le trou spectral Cette méthode de stabilisation n'utilise pas la méthode PDH de calcul du signal d'erreur. Elle est conceptuellement plus proche de l'asservissement à flanc de frange. Elle asservit le laser sur les trous les plus fins possibles. Par contre sonder les trous les élargit, la méthode a donc été perfectionnée pour la gestion de l'élargissement des trous spectraux.

Le laser est pré-stabilisé sur une cavité Fabry-Perot, afin que les trous gravés soient suffisamment fins. Il crée ensuite plusieurs trous spectraux, qui forment un motif régulier. Au cours de la gravure du motif, il y a des trous finalisés prêts à être utilisés pour l'asservissement et des trous en cours de gravure. Les trous finalisés sont utilisés pour asservir le laser. L'ingéniosité de cette méthode réside dans le maintien de la largeur minimum (deux fois la largeur homogène $2\Gamma_h$) des trous spectraux, les trous finalisés ont été très peu gravés avec une puissance suffisamment faible pour éviter tout élargissement par saturation du pompage optique. Ils sont ensuite sondés alternativement à droite et à gauche de leur fréquence centrale, ce qui génère un signal d'erreur ad hoc. Lorsqu'un trou atteint sa profondeur maximale, il n'est plus utilisé pour l'asservissement car il s'élargirait au-delà de sa largeur minimale $2\Gamma_h$. La stabilité du laser est comparée à une cavité de référence, la mesure de fréquence du laser est faite sur les trous spectraux qui ne sont plus utilisés pour l'asservissement [176].

Cette méthode a été réalisée au *National Institute of Standards and Technology* sur un laser à colorant dans un cristal de $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ à 580 nm dans lequel $\Gamma_h = 122$ Hz. Ils creusent des trous de largeur minimale 500 Hz. Elle a permis d'atteindre une stabilité relative de 6.10^{-16} (écart-type d'Allan) pour un temps d'intégration compris entre 2 et 8 s [176]. Ces performances sont assez extrêmes, car elles doivent être compatibles avec des applications métrologiques.

Signal d'erreur calculé par la méthode PDH La méthode PDH a été mise en place pour stabiliser un laser sur des trous spectraux dans plusieurs expériences [201, 202]. Par rapport à la méthode précédente, la méthode PDH apporte un asservissement avec une plus grande bande passante et une sensibilité aux fluctuations d'amplitude basse fréquence moindre.

Le groupe de la *Montana State University* a été le premier à développer un asservissement sur un trou spectral dans le spectre d'absorption de cristaux dopés aux ions de terre rare [201]. Ils ont réalisé la stabilisation de lasers pour une grande variété de cristaux et de longueurs d'onde en utilisant toujours la même méthode :

— $Tm^{3+} : D^{-} : CaF_2$ à 798 nm [201, 203] ;
— $Tm^{3+} : Y_3Al_5O_{12}$ à 793 nm [204] ;
— $Er^{3+} : Y_2SiO_5$ à 1536 nm [205, 206] ;
— $Er^{3+} : D^{-} : CaF_2$ à 1523 nm [203, 207].
— $Er^{3+} : KTiOPO_4$ à 1537 nm [203].

La méthode est la suivante. Les deux lasers sont verrouillés indépendamment sur deux cristaux indépendants qui sont dans le même cryostat. Le signal d'erreur est créé avec la méthode PDH. La fréquence de modulation est choisie bien supérieure à la largeur du trou afin que le signal d'erreur soit proportionnel à la dispersion de l'indice de réfraction induite par le trou spectral d'asservissement [208, 209]. Cette méthode ne demande pas de pré-stabilisation du laser, mais il faut trouver le bon compromis pour la puissance du faisceau d'asservissement. Si le faisceau est trop puissant il peut creuser un nouveau trou sur lequel le laser peut se stabiliser et par conséquent la dérive de fréquence n'est plus aussi bien corrigée. Néanmoins la puissance lumineuse permet d'avoir plus de signal et donc plus de gain dans la boucle de rétroaction. La gigue ou *jitter* du laser n'est a priori pas un problème. Le laser en cours de stabilisation continue de creuser un trou mais sur une largeur plus étroite que le trou initial. Pendant ce temps-là le trou initial disparait progressivement. Donc le trou et la largeur spectrale du laser s'affinent au cours de la stabilisation. L'entretien des trous par le laser en cours de stabilisation permet de diminuer la largeur des trous dans la limite de la largeur homogène ou de l'éclairement du faisceau d'asservissement sur le cristal. La profondeur d'équilibre du trou est déterminée par un compromis entre la décroissance spontanée du trou et la puissance du faisceau [204].

Une autre méthode utilisant le calcul de signal d'erreur avec la méthode du PDH a été développée au *National Institute of Standards and Technology* sur un laser à colorant dans un cristal de $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ à 580 nm [202, 210]. Cette méthode est très similaire à celle décrite plus haut [176] sauf qu'au lieu de sonder le trou alternativement de droite à gauche, elle utilise la méthode PDH. Par conséquent elle a une plus grande bande passante d'asservissement et une plus faible sensibilité au bruit d'intensité du laser. Le laser est pré-stabilisé sur une cavité Fabry-Perot, il est ensuite utilisé pour creuser 201 trous spectraux. Les trous spectraux sont interrogés successivement afin de conserver leur finesse le plus longtemps possible. La puissance du faisceau d'asservissement est de $2\,W/cm^2$, l'élargissement des trous est de 1,6 kHz après 110 min d'asservissement [202].

Signal d'erreur calculé avec deux lasers Cette méthode de stabilisation a été développée au SYRTE dans l'équipe de Yann Le Coq. Elle utilise comme la méthode PDH la dispersion de l'indice de diffraction créée par un trou spectral. Mais au lieu de moduler la phase du laser d'asservissement et obtenir de faibles bandes latérales, elle utilise deux faisceaux bien plus écartés en fréquence. Le laser maître est pré-stabilisé sur une cavité Fabry-Perot ultra-stable et il injecte un laser esclave. La fréquence du laser maître est choisie telle qu'elle se situe en bord de raie d'absorption. Le faisceau qui passe par le cristal subit une faible dispersion et constitue donc une référence. La fréquence du laser esclave est décalée avec un modulateur acousto-optique au centre de la raie d'absorption. La phase du faisceau esclave est modifiée lorsqu'il se propage dans le trou spectral. Plus le trou est étroit, plus les effets dispersifs sont importants, donc plus la phase est sensible à la fréquence. Le battement entre le faisceau esclave et le faisceau maître permet de déterminer le décalage de phase et donc le décalage de fréquence entre le trou spectral et le laser esclave. Une stabilité de quelques 10^{-14} a été atteinte à une seconde de temps d'intégration avec un trou spectral dans un cristal de $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ à 580 nm

[211].

Cette méthode permet d'obtenir un signal de rétroaction plus important qu'avec la méthode PDH. En effet le faisceau maître peut apporter de la puissance au battement, même si le faisceau esclave doit être faible pour limiter la saturation du trou spectral [200, 211].

Toutes les méthodes décrites dans cette sous-partie utilisent un système à trois niveaux d'énergie ou plus. Seuls les asservissements du groupe de la *Montana State University* ne demandent pas que les trous spectraux de stabilisation soient creusés avec un laser pré-stabilisé sur une cavité Fabry-Perot. Ils ont montré qu'il était possible d'asservir des lasers sur des trous spectraux creusés dans une grande variété de cristaux. Les autres méthodes sont à la recherche d'une référence de fréquence pouvant concurrencer les cavités Fabry-Perot ultra-stables, et utilisent en conséquence des systèmes expérimentaux complexes.

5.3 Études préliminaires à la stabilisation

5.3.1 Cahier des charges de l'asservissement

Nous voulons que notre laser commercial soit asservi en fréquence afin de réduire sa largeur spectrale et la dérive de sa fréquence. Nous voulons aussi que l'asservissement soit le plus compact possible. Notre idée est donc de stabiliser le laser sur un trou spectral dans un cristal de même nature que le cristal d'imagerie et dans le même cryostat. La dérive du laser verrouillé sur le cristal devient identique à la dérive du filtre spectral de l'imagerie acousto-optique. L'autre avantage à asservir le laser sur un cristal est de ne pas avoir besoin d'une cavité Fabry-Perot ultrastable. L'asservissement réalisé est a priori plus robuste aux vibrations.

La compacité de l'asservissement est une contrainte à garder en mémoire. En effet les montages d'imagerie et d'asservissement doivent être sur la même table optique. Il est donc avantageux de mettre un deuxième cristal dans le cryostat de ce point de vue là aussi.

Le cristal d'asservissement est dans les mêmes conditions expérimentales (température, orientation et champ magnétique) que le cristal d'imagerie. Les conditions expérimentales sont réglées pour optimiser l'imagerie, donc il faut s'en accommoder pour l'asservissement. L'avantage est que la décroissance des trous spectraux sera la même dans les deux cristaux.

5.3.2 Simulation de signal d'erreur pour différentes formes de trous

L'idéal serait d'avoir un unique cristal pour l'asservissement et l'imagerie. Nous aurions aimé pouvoir utiliser le double trou spectral de l'imagerie pour l'asservissement, mais ce n'est pas possible car il est très saturé et le cristal est très absorbant (la profondeur optique αL est grande) comme cela a été expliqué dans la sous-partie 5.2.5 et dans l'article [198].

Nous avons ensuite comparé différentes formes de trous spectraux afin de vérifier que le double trou utilisé pour le filtre spectral n'était pas adapté à l'asservissement.

Nous avons comparé six types références de fréquence : le Fabry-Perot en transmission, un trou élargi artificiellement dénommé trou carré, un double trou carré, un trou lorentzien, un trou lorentzien avec des anti-trous et un double trou lorentzien avec ses anti-trous. Les fonctions de transferts sont représentées dans la figure 5.6. Elles sont calculées sans prendre en compte la propagation du laser dans le cristal : les interactions entre la lumière et les ions de terre rare engendrent la création d'un trou spectral par absorption de la lumière, le faisceau est atténué au cours de sa propagation et cette atténuation varie temporellement à cause de la décroissance temporelle du trou. Ces hypothèses permettent de visualiser un signal d'erreur idéalisé. Les simulations ont été réalisées avec des paramètres proches des paramètres expérimentaux utilisés dans la partie 4 du présent chapitre. La

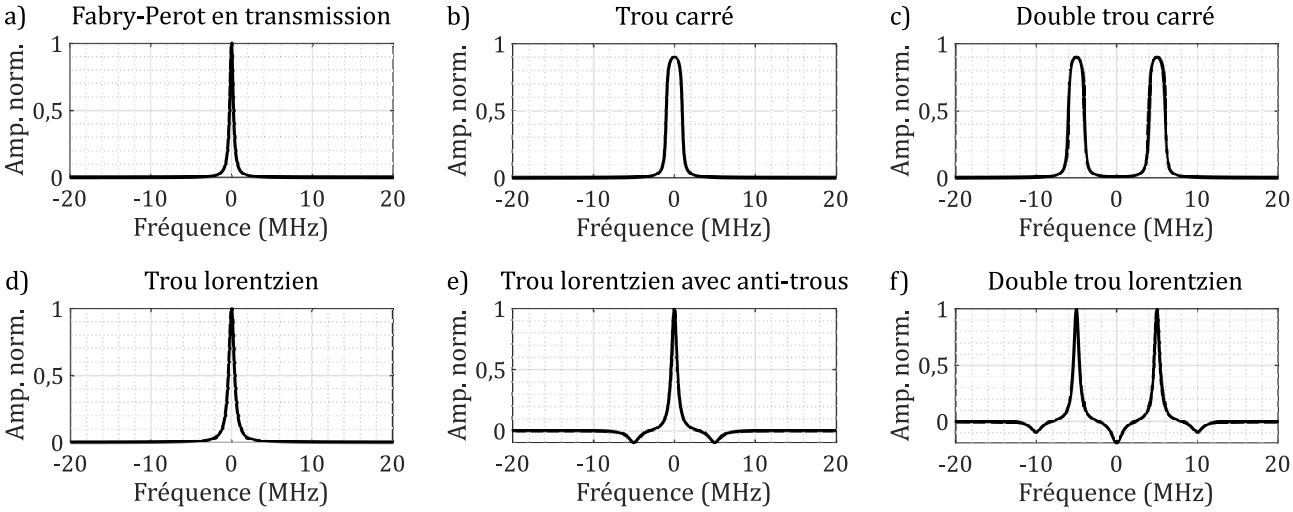

FIGURE 5.6 – Simulation des fonctions de transfert de différents types de références de fréquence pour l'asservissement. Les trous spectraux sont considérés à un instant donné. Amp. norm. : Amplitude normalisée.

longueur d'onde du laser est 793 nm, la fréquence de modulation est 10 MHz et l'amplitude des bandes latérales est $m = 5.10^{-5}$. La cavité Fabry-Perot a une finesse $\mathcal{F} = 2000$ et un intervalle spectral libre $\Delta f_{ISL} = 1$ GHz. Les trous spectraux lorentziens ont une largeur à mi-hauteur de 1,1 MHz. Les trous spectraux carrés ont une largeur à mi-hauteur de 2 MHz. Les doubles trous sont positionnés à ± 5 MHz de la fréquence centrale. Le champ magnétique est réglé tel que les anti-trous soient aussi positionnés à ± 5 MHz de la fréquence du trou. La transmission des références de fréquence est modélisée en intensité (fonction d'une variable réelle). L'utilisation d'une transformée de Hilbert permet de l'étendre au domaine complexe : on a obtenu la transmission en amplitude requise pour calculer le signal d'erreur.

Les signaux d'erreur des différents types de références de fréquence sont présentés dans la figure 5.7. Les références de fréquence dont la fonction de transfert présente une résonance unique (courbes a), d) et b)), donnent des signaux d'erreur avec une pente linéaire autour de la fréquence centrale. Ils permettent la discrimination en fréquence. Les formes du signal PDH (le signal d'erreur balayé en fréquence) sont presques identiques pour les courbes a) et d). La pente de la courbe b) est moins grande que celle de la courbe d) ce qui confirme qu'il faut des trous spectraux fins pour avoir un signal d'erreur permettant une bonne discrimination de fréquence. La courbe e) présente des motifs supplémentaires à ± 5 MHz de la fréquence centrale dûs aux anti-trous. Nous confirmons qu'il faut privilégier les simples trous lorentziens comme référence spectrale. On voit sur les courbes c) et f) qu'une référence de fréquence avec des doubles trous ne donne pas un bon signal d'erreur (absence de pente linéaire à la fréquence centrale).

Néanmoins les conditions expérimentales imposent d'être sous champ magnétique, donc la présence d'anti-trous. En conséquence nous sommes dans une configuration telle que la fonction de transfert est plus proche de la courbe 5.6 e) et le signal PDH de la courbe 5.7 e).

Nous avons réalisé une étude partielle de l'amplitude du signal d'erreur en fonction de la fréquence de modulation pour deux types de référence de fréquence : la cavité Fabry-Perot en transmission et le trou lorentzien avec ses anti-trous. Les résultats sont montrés dans la figure 5.8. Nous constatons d'abord que l'évolution est similaire entre la cavité et notre modèle simplifié de trou spectral. Plus la fréquence de modulation est faible plus la pente linéaire du signal d'erreur grande. Néanmoins une

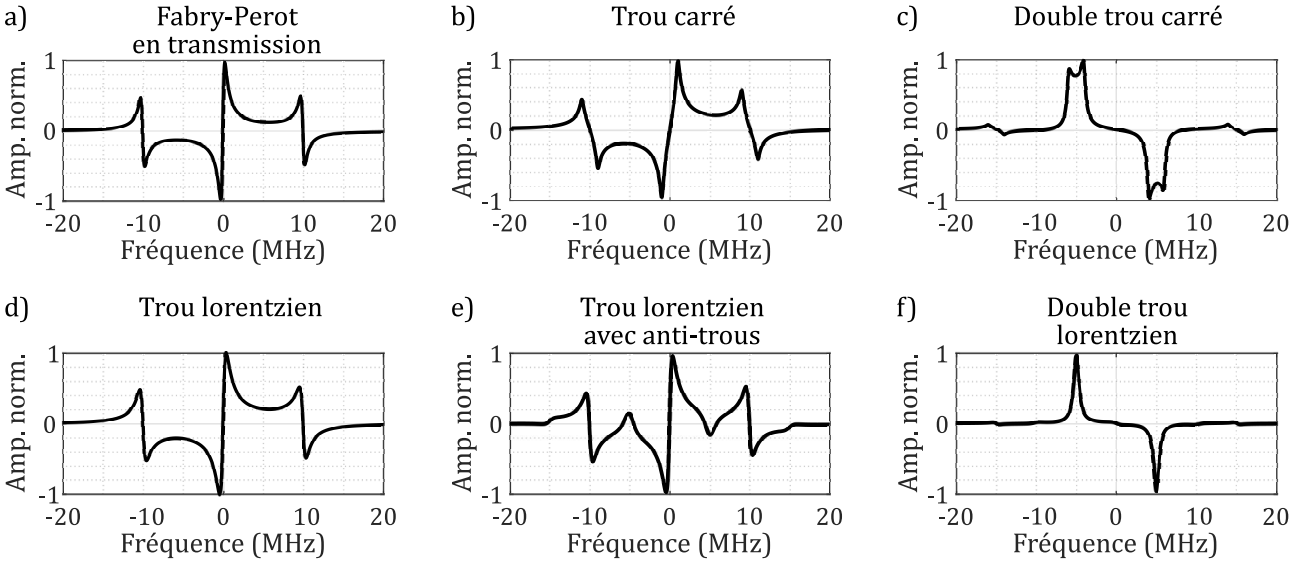

FIGURE 5.7 – Simulation du signal d'erreur de l'asservissement pour différents types de références de fréquence. Amp. norm. : Amplitude normalisée du signal d'erreur.

trop faible fréquence de modulation n'est pas souhaitable pour le trou spectral, car les bandes latérales pourraient accélérer son élargissement.

Nous avons choisi dans un premier temps une fréquence de modulation de 10 MHz pour des considérations liées aux anti-trous qui sont à ±5 MHz de leurs trous avec la valeur choisie du champ magnétique. Le trou central crée deux anti-trous et les bandes latérales créent deux fois deux anti-trous aussi. Nous ne voulons pas que les anti-trous puissent être à la même fréquence que les trous spectraux (central ou latéraux). La fréquence de modulation à 10 MHz permet de superposer les anti-trous positionnés entre le trou central et l'une ou l'autre des bandes latérales. Néanmoins, le signal PDH simulé est plus important pour une fréquence de modulation à 5 MHz, ce qui nous encourage à ne pas négliger cette possibilité pour une optimisation de l'asservissement.

La figure 5.9 présente une étude partielle de l'évolution du signal d'erreur en fonction de la largeur du trou lorentzien avec ses anti-trous. La fréquence démodulation est fixée à 10 MHz et l'aire de la fonction de transfert est maintenue constante, ce qui correspond à une puissance de gravure identique pour chaque largeur de trou testée. Nous avons considéré un trou spectral idéal invariant dans le temps et dans l'espace. Les fonctions de transfert utilisées sont représentées par la figure 5.9 a). Les signaux d'erreur sont présentés par la figure 5.9 b). On constate que l'amplitude du signal diminue avec la largeur du trou spectral en accord avec l'étude bibliographique. On retrouve que la pente du signal d'erreur à la fréquence centrale est plus importante quand le trou spectral est étroit.

Nous retrouvons de manière qualitative les conclusions des équipes ayant étudié l'asservissement sur trou spectral. Nos simulations ont été réalisées avec un modèle très simplifié. Nous avons pu vérifier qu'il n'était pas possible d'utiliser le double trou spectral du filtre de l'imagerie, car le signal d'erreur résultant ne permet pas une bonne discrimination en fréquence. L'asservissement du laser doit donc être effectué sur un trou spectral lorentzien le plus étroit possible.

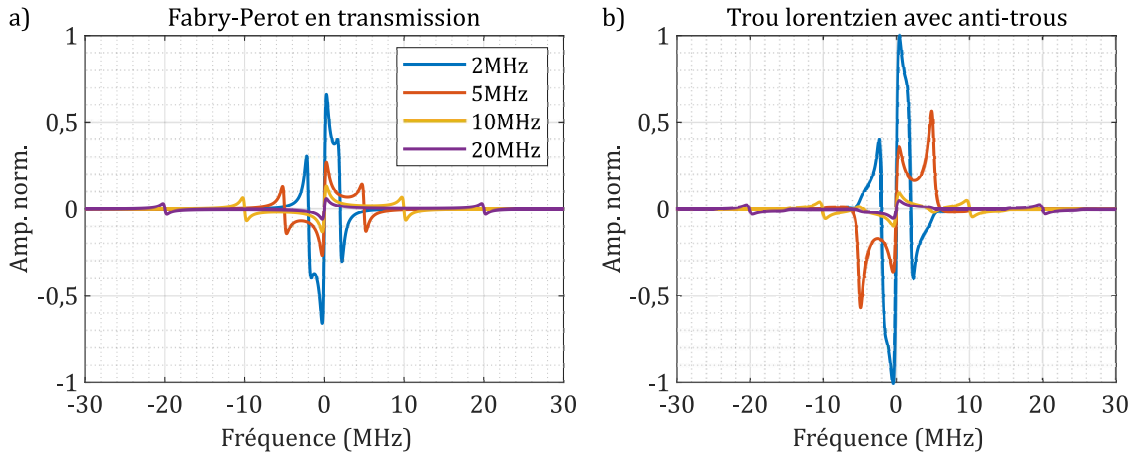

FIGURE 5.8 – Influence de la fréquence de modulation sur le signal d'erreur pour deux références de fréquence : le Fabry-Perot en transmission et un trou lorentzien de 1,1 MHz de largeur avec ses anti-trous à ±5 MHz. Amp. norm. : amplitude normalisée de manière identique pour les deux graphiques.

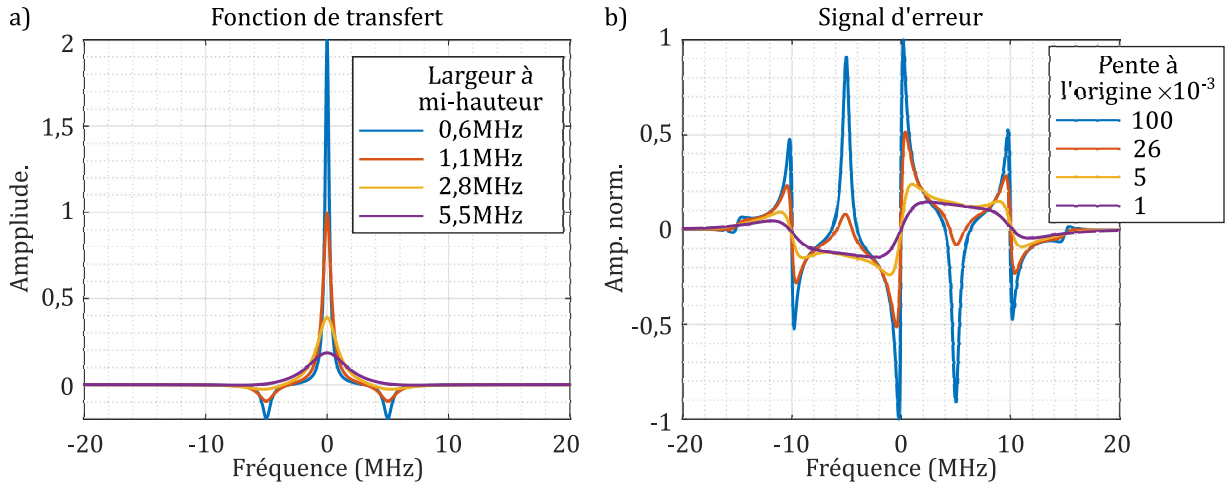

FIGURE 5.9 – Influence de la largeur à mi-hauteur du trou lorentzien avec ses anti-trous sur le signal d'erreur. La hauteur du trou varie de telle sorte que l'intégrale du trou spectral et de ses anti-trou soit constante (ce qui correspond à un puissance de gravure équivalente pour les différentes largeurs à mi-hauteur testées). La fréquence de modulation choisie est de 10 MHz. Amp. norm. : amplitude normalisée.

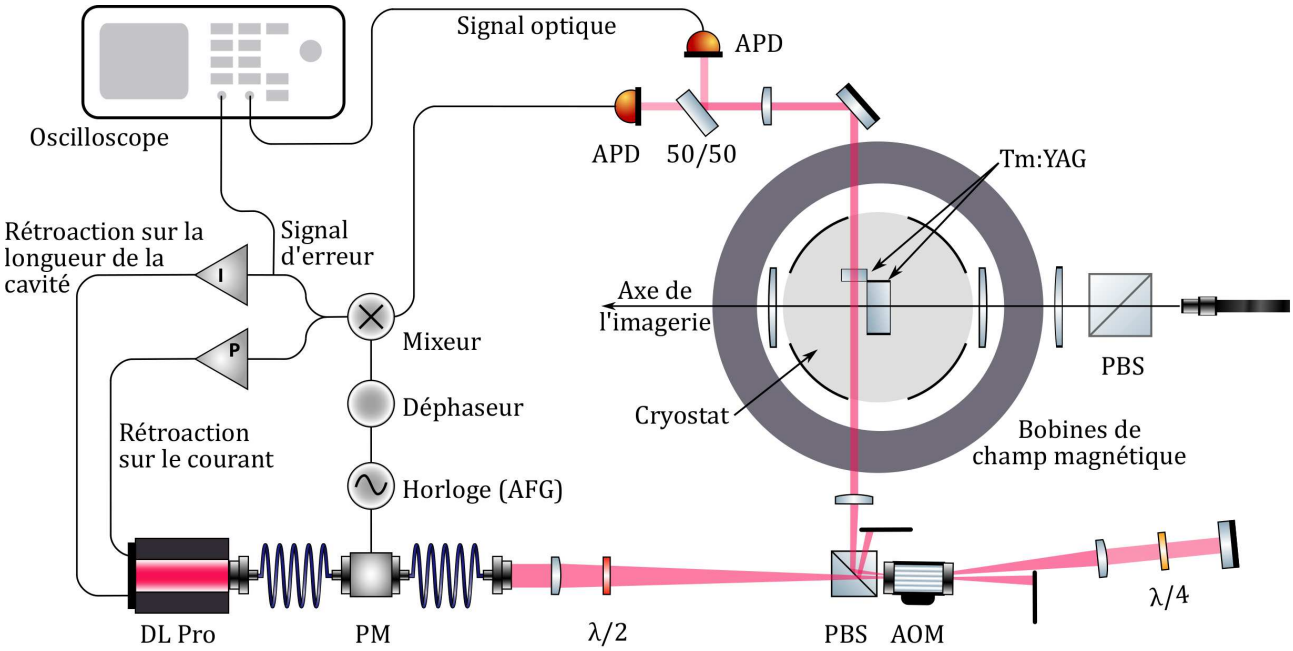

FIGURE 5.10 – Montage de l'asservissement laser. Le cristal de Tm : YAG dopé à 1% est ajouté dans le cryostat perpendiculairement au cristal d'imagerie. Une fraction du faisceau en sortie du laser DL Pro est modulé en phase par un modulateur électro-optique de phase (PM). Il est ensuite mis en forme par un modulateur acousto-optique (AOM) monté en double passage. Le faisceau passe ensuite dans le cristal d'asservissement, puis est séparé en deux et est enfin détecté par deux photodiodes à avalanche (APD). Le signal d'erreur en sortie du mixeur est envoyé dans les filtres de chaque boucle de rétroaction. On applique une correction proportionnelle sur le signal de rétroaction sur le courant de la diode et une correction intégrale sur la longueur de la cavité. L'oscilloscope permet d'observer le signal optique et le signal d'erreur. $\lambda/2$: lame demie-onde, $\lambda/4$: lame quart-onde, PBS : cube polarisant séparateur de faisceau, 50/50 : lame séparateur de faisceau 50/50, AFG : générateur de fonction arbitraire.

5.4 Stabilisation de la DL Pro 780 pour l'imagerie acousto-optique

Le montage optique décrit dans le chapitre 4 a permis la mise en place de l'imagerie acousto-optique. Nous voulons maintenant pouvoir déplacer le montage afin de tester l'imagerie acousto-optique *in vivo*. La première étape est de changer le laser développé au laboratoire Aimé Cotton par un laser commercial qui est plus compact et transportable. Nous avons choisi un laser DL Pro de Toptica. Il a une largeur spectrale fine, il peut donc creuser des trous spectraux, mais elle n'est pas suffisamment fine pour creuser des trous dont la largeur est égale à $2\Gamma_h$. C'est pourquoi nous voulons le stabiliser en fréquence afin de réduire encore plus sa largeur spectrale et sa dérive en fréquence à long terme.

5.4.1 Le circuit de rétroaction

Le montage optique de l'asservissement est schématisé dans la figure 5.10.

La DL Pro de Toptica est une diode laser en cavité étendue centrée à 793 nm avec une sortie fibrée et de largeur spectrale de 200 kHz sur 10 µs.

L'axe optique de l'imagerie est encombré autour du cryostat. Nous plaçons donc le cristal dédié à l'asservissement perpendiculairement au cristal de l'imagerie afin d'utiliser le deuxième axe optique traversant du cryostat et qui n'est pas encombré. Ce cristal est aussi un cristal de Tm : YAG dopé

à 1% de surface $\approxeq 4 \times 4\,\mathrm{mm}^2$ et d'épaisseur 2 mm de Scientific Materials. Il est moins dopé pour la même épaisseur que le cristal d'imagerie donc il est moins absorbant que celui-ci, ce qui permet de creuser des trous spectraux avec des puissances lasers moins importantes. Ce cristal est orienté tel que son axe cristallographique [111] est aligné sur la direction du champ magnétique, comme le cristal d'imagerie.

Le montage optique est le suivant. On extrait environ 10% de la puissance de sortie du laser grâce à un coupleur fibré. Ce faisceau est ensuite modulé en phase par un modulateur électro-optique de phase fibré (Photline / IXblue photonics) alimenté par un générateur de fonction arbitraire AFG3000 Tektronix. Le signal de modulation est sinusoïdal de fréquence $f_m = 10\,\mathrm{MHz}$ avec une amplitude de 50 mV ce qui correspond à un indice de modulation $m = 0,08$. En sortie de la fibre le faisceau modulé est envoyé dans un modulateur acousto-optique MT80 de AA Optoelectronics en double passage. Il est contrôlé par un générateur de fonction arbitraire Tektronix AWG5004. On choisit les ordres de diffraction opposés à ceux choisis pour l'imagerie afin que le décalage en fréquence soit suffisant pour que les deux faisceaux ne se perturbent pas. Nous choisissons d'avoir un faisceau large et non focalisé dans le cristal afin de maximiser le signal reçu par la photodiode à avalanche tout en gardant un trou spectral fin. Nous estimons que le faisceau fait environ 2 mm de diamètre sur le cristal dont la surface utile est de $2 \times 4\,\mathrm{mm}$. En sortie du cryostat, le faisceau d'asservissement est séparé en deux par une lame séparatrice de faisceau 50/50 pour être détecté par deux photodiodes à avalanche (module C5460 de Hamamatsu de surface active carré de 1,5 mm de côté).

Le signal de la première photodiode à avalanche est utilisé pour la visualisation du trou. Le signal de la seconde est envoyé dans le circuit de rétroaction, aussi représenté dans la figure 5.10. Il est démodulé par le mixeur alimenté par le générateur de fonction arbitraire AFG3000 Tektronix. Le signal de démodulation est sinusoïdal de fréquence égale à celle de modulation $f_m = 10\,\mathrm{MHz}$, son amplitude est plus grande (300 mV) afin d'obtenir un signal d'erreur plus important et sa phase est ajustable et choisie pour optimiser le signal d'erreur. Le signal démodulé en sortie du mixeur est ensuite envoyé dans les contrôleurs d'asservissement (LB1005 High-Speed Servo Controller de New Focus). Il y a un contrôleur pour la rétroaction sur le courant d'alimentation de la diode laser et un contrôleur pour la rétroaction sur le piézoélectrique qui ajuste la longueur de la cavité laser.

Les contrôleurs ont trois fonctions principales qui permettent chacune une grande variété de réglage, la figure 5.11 a) schématise le fonctionnement du contrôleur et montre les entrées, sorties et les paramètres ajustables. La première fonction est de fournir un signal d'erreur : elle prend en entrée le signal démodulé, permet une compensation de la tension *input offset* pour régler le point d'asservissement. La deuxième fonction est celle du filtre de boucle : on peut ajuster le gain de la correction proportionnelle et l'intégrateur. Le schéma 5.11 b) montre comment les trois paramètres d'ajustement *LF gain limit, gain, PI corner* modifient la fonction de transfert du filtre. Le signal est prêt à être envoyé dans le laser pour fermer la boucle de rétroaction. Quand l'asservissement est en route, une mesure interne vérifie que le signal de rétroaction n'est en butée nulle part ce qui permet un bon fonctionnement de la rétroaction. La troisième fonction du contrôleur est de permettre d'ajouter un balayage, une modulation ou un décalage de fréquence au signal de rétroaction, ce qui est utile lors de la caractérisation et de la mise en place de la boucle de rétroaction. Cette fonction permet aussi de limiter l'amplitude des signaux de rétroaction afin de ne pas endommager les circuits du laser.

Le signal de rétroaction sur le courant de la diode laser est directement envoyé dans une entrée de modulation du laser prévue à cet effet. L'amplitude du signal est limitée à $\pm 1\,\mathrm{V}$ pour ne pas endommager le laser. Nous utilisons l'entrée labellisée *DC* qui offre une efficacité de modulation de fréquence sur une plage allant de 20 Hz à 1 MHz contrairement à la plage réduite de l'entrée *AC*, comme illustré sur la figure 5.12. La correction du courant de la diode est uniquement proportionnelle. Elle est rapide et n'a pas de mémoire.

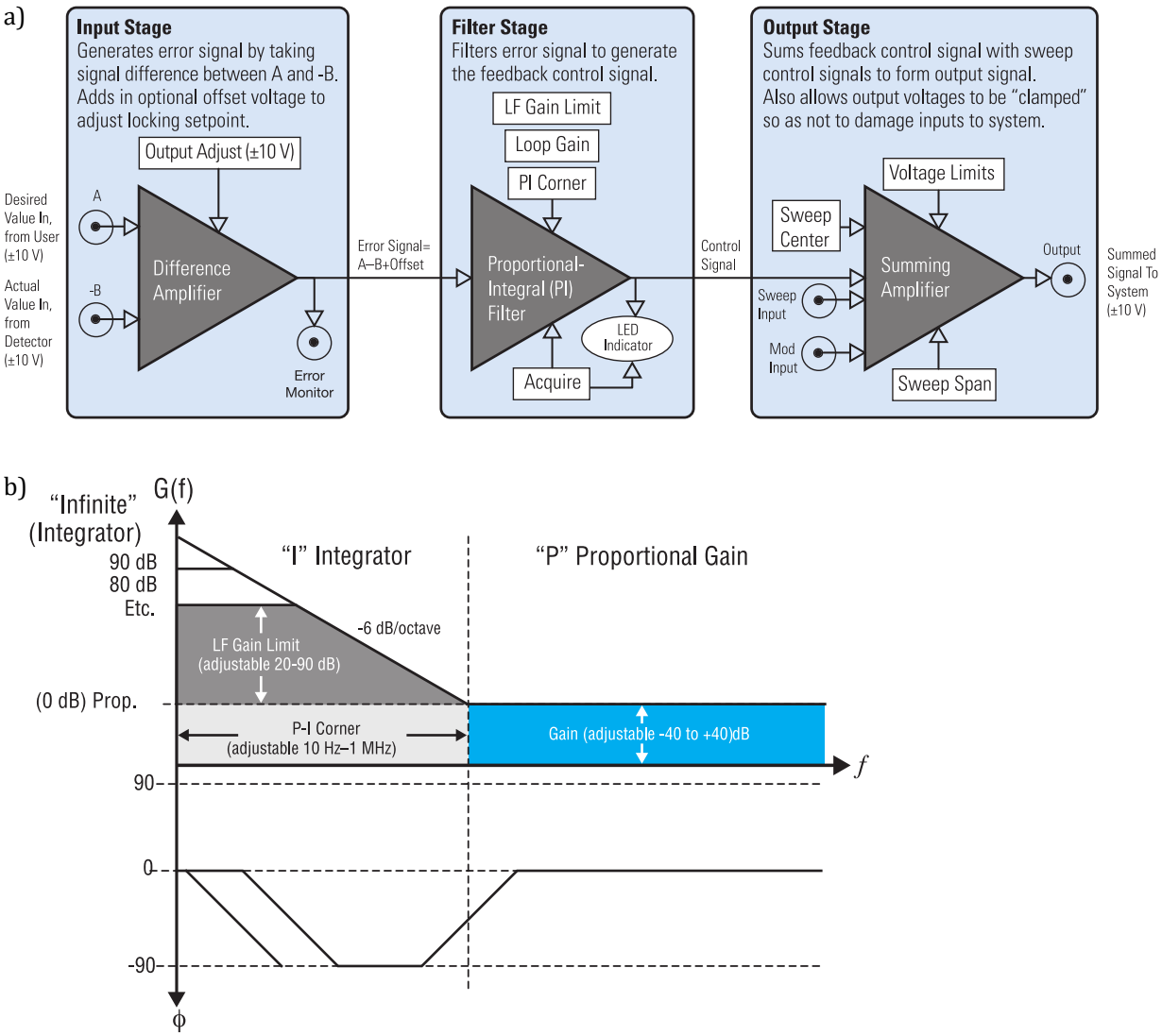

FIGURE 5.11 – Caractéristiques du contrôleur de l'asservissement. a) Architecture d'un contrôleur LB1005 avec ses trois fonctions. L'entrée fournit le signal d'erreur. Le filtre modifie le signal d'erreur en lui appliquant une fonction de transfert ajustable par l'utilisateur pour que les bonnes corrections soit appliquées sur le laser. La sortie finalise la mise en forme du signal de rétroaction. Les éléments dans les encadrés blancs sont réglables par l'utilisateur. Les cercles avec un point au centre représentent les entrées ou les sorties BNC du contrôleur. b) Fonction de transfert du filtre du contrôleur. Le gain et la phase du filtre sont ajustables par l'utilisateur à travers trois paramètres : *LF gain limit, gain, PI corner*. Illustrations issues des documents techniques de New Focus.

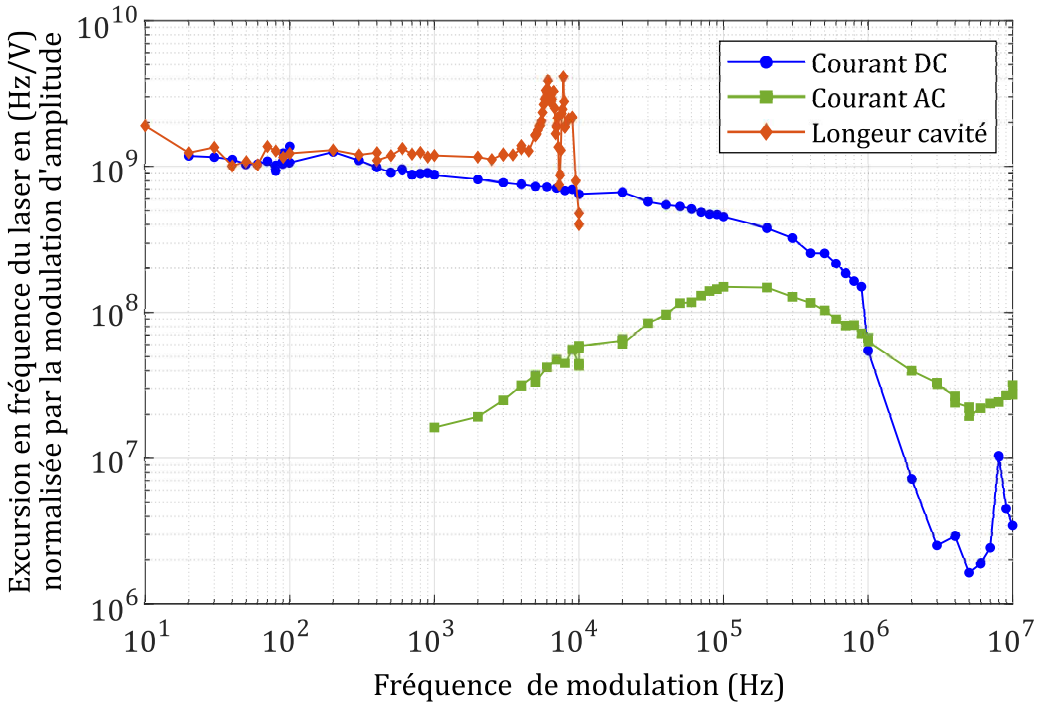

FIGURE 5.12 – Caractérisation des entrées de modulation du laser en courant (entrée DC en bleu, entrée AC en vert) et de la longueur de la cavité (entrée de modulation de la position de l'élément piézoélectrique en rouge).

Le signal de rétroaction sur la longueur de la cavité a son amplitude limitée à ± 1 V. L'alimentation du laser DL Pro est composée de différents modules connectés entre eux, dont il faut tenir compte lors de la mise au point du système de rétroaction. Le signal de rétroaction est envoyé dans le module DCB110 de l'alimentation de la DL Pro. Ce module est connecté au module SC110 qui permet de réaliser de grands balayages de fréquence sans sauts de mode grâce au *feedforward*. Le *feedforward* permet d'ajuster le courant de la diode au déplacement du piézoélectrique. Si le module SC110 est utilisé pour un asservissement, il faut s'assurer que les rampes de balayage en fréquence du laser soient mises à zéro dans le module SC100. À sa sortie, la tension du signal de rétroaction a été amplifiée de manière adéquate pour moduler la position du piézoélectrique sur toute la gamme accessible sans endommager le laser. L'entrée de modulation du piézoélectrique sur le laser offre une efficacité de modulation stable entre le régime continu et les premières résonances à 6 kHz qu'il faut éviter absolument sous peine de perdre l'asservissement, comme le montre la figure 5.12. C'est pourquoi nous utilisons uniquement une correction intégrale sur la boucle de rétroaction sur le piézoélectrique de façon à privilégier les basses fréquences. Ce type de correction est aussi adapté à notre usage car nous voulons que la longueur de la cavité corrige les dérives lentes de fréquence. La correction effectuée est lente avec une mémoire.

L'observation en temps réel de l'asservissement se fait sur un oscilloscope Agilent DSO5034A. Le signal optique en sortie du cryostat est visualisé grâce à la deuxième photodiode à avalanche. Il permet de faire une estimation qualitative directe de l'asservissement. En effet si le laser est asservi à la fréquence centrale du trou alors l'intensité transmise par le cristal doit toujours être à une valeur maximale. Si au contraire le laser s'écarte de sa fréquence de verrouillage alors l'intensité transmise diminue. On observe aussi le signal d'erreur grâce aux sorties de visualisation du signal d'erreur sur les contrôleurs.

La séquence d'asservissement est contrôlée par le générateur de fonction arbitraire AWG5004 de

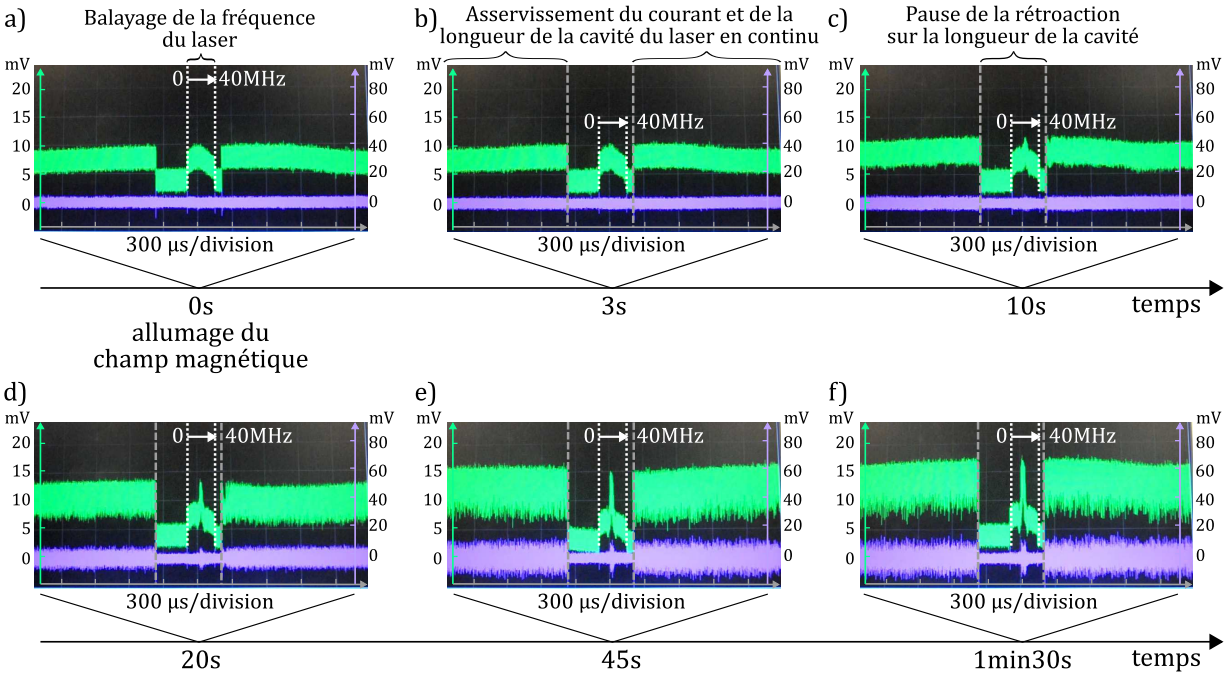

FIGURE 5.13 – Mise en place de l'asservissement (capture d'écran de l'oscilloscope). Le signal optique (en vert) montre le trou spectral quand le laser est balayé en fréquence entre 0 et 40 MHz (entre les pointillés blancs). Le signal violet montre le signal d'erreur quand l'asservissement fonctionne en continu (en dehors des tirets gris), et le signal PDH quand le laser est balayé en fréquence (entre les pointillés blancs). À partir de l'allumage du champ magnétique, le trou spectral de l'asservissement se creuse petit à petit (images a) à e)) jusqu'à atteindre un état stationnaire (images e) et f)).

Tektronix via le modulateur acousto-optique. Elle se découpe en deux étapes principales et a une fréquence de répétition de 10 Hz. Une partie continue où le modulateur fonctionne en continu : l'asservissement fonctionne. L'autre partie permet l'observation du trou spectral et du signal PDH (qui est juste le signal d'erreur balayé en fréquence) : le modulateur acousto-optique crée un balayage linéaire en fréquence. Pendant cette partie, nous gardons constant le signal de rétroaction de la boucle du courant de la diode, mais la correction intégrale sur la position du piézoélectrique est temporairement stoppée. La valeur de la correction est gardée en mémoire et utilisée jusqu'à la remise en marche de l'asservissement en régime continu.

La procédure de réglage de l'asservissement est décrite dans l'annexe B, celle-ci permet de trouver les bons paramètres expérimentaux.

5.4.2 Laser asservi

La figure 5.13 montre la mise en place de l'asservissement par une série de captures d'écran de l'oscilloscope. Les images montrent le signal optique détecté par les photodiodes en sortie du cryostat et le signal d'erreur après la démodulation. La fenêtre d'observation des signaux met en évidence trois régimes : l'asservissement en continu, le balayage de la fréquence du laser pour l'observation du trou spectral et du signal PDH et un régime sans signal. Dans les deux derniers régimes, la rétroaction sur la longueur de la cavité laser est en pause tandis que celle sur le courant d'alimentation de la diode laser est toujours active. La fréquence du laser est balayée sur 40 MHz pour avoir la possibilité d'observer les bandes latérales de modulation et les anti-trous si le signal optique est suffisamment important. Les paramètres ont été réglés tel que le signal de rétroaction de la boucle sur la longueur

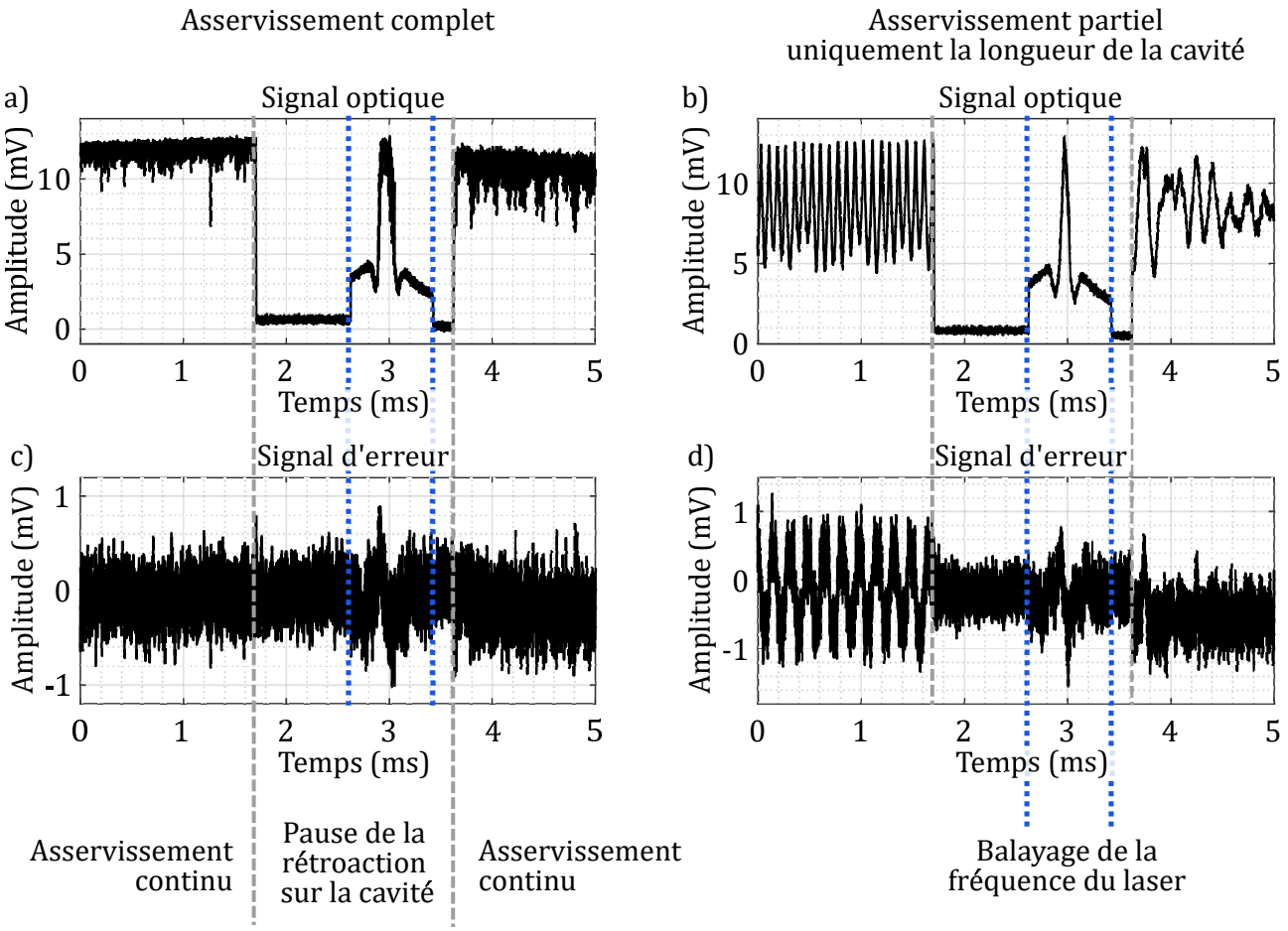

FIGURE 5.14 – Comparaison d'un asservissement complet et partiel

de la cavité soit stable. Le décompte est lancé à l'allumage du champ magnétique.

Initialement sur l'image 5.13 a) on ne voit pas le trou spectral car la puissance laser est très faible. Il se creuse au fur et à mesure grâce à l'accumulation de la gravure continue par le système. Le trou commence à devenir visible après 3 s d'illumination continue du cristal (image 5.13 b)). Au fur et à mesure que le trou spectral grandit, la transmission de la longueur d'onde du laser augmente, donc le niveau haut du signal optique en régime d'asservissement continu augmente. Ce niveau haut est constant sur chaque image, car le laser est asservi. Néanmoins le laser a encre un *jitter* : sa fréquence se déplace dans le trou spectral. L'estimation de la largeur réelle du trou spectral n'est pas aisée, car la rétroaction proportionnelle sur le courant de la diode est en fonctionnement et elle élargit visuellement le trou spectral. En effet le laser balayé en fréquence tente de s'asservir sur le trou spectral. On peut seulement estimer que la largeur du trou spectral est inférieure à 5 MHz.

On constate que le signal d'erreur est bruité et que son amplitude augmente quand le trou spectral devient plus profond.

Nous avons quand même comparé l'asservissement complet avec une rétroaction sur la longueur de la cavité et le courant à un asservissement incomplet avec une rétroaction uniquement sur la cavité sur la figure 5.14. Elle est composée de quatre courbes qui montrent les signaux optiques et ceux d'erreur pour les deux types d'asservissement (complet ou partiel). Sur chaque courbe on retrouve les trois régimes décrits plus haut : asservissement continu, balayage en fréquence et absence de signal.

Les courbes sont partiellement lissées pour plus de visibilité, le signal brut étant plus semblable aux signaux présentés par la figure 5.13.

Les courbes 5.14 a) et c) sont similaires à celles présentées dans l'image 5.13 f). Sur la courbe 5.14 a), le trou spectral a atteint son état stationnaire, il est visuellement élargi par l'asservissement proportionnel sur le courant de la diode. On voit que le laser est asservi car le niveau haut du signal optique en régime continu est similaire à celui de la transmission maximale du trou spectral. Sur la courbe 5.14 c), le signal d'erreur est bruité (amplitude observée est moins grande que sur l'image 5.13 f) car la courbe est lissée). Néanmoins on distingue bien le signal PDH quand le laser est balayé en fréquence.

Les courbes 5.14 b) et d) montrent le cas où l'asservissement est partiel : on n'utilise qu'une seule boucle de rétroaction sur la longueur de la cavité laser. Quand la fréquence est balayée, la courbe b) montre que le trou spectral est plus étroit que dans le cas de l'asservissement complet : il n'y a pas de correction proportionnelle qui élargit le trou. Sur la courbe 5.14 d) on voit que l'amplitude du signal PDH est équivalente à celui de l'asservissement complet. Mais la courbe 5.14 b) montre que l'asservissement partiel continu n'est pas aussi stable que l'asservissement complet. La reprise après le balayage en fréquence n'atteint pas une phase stationnaire aussi rapidement (à droite du balayage de fréquence) et cette phase stationnaire présente des oscillations (à gauche du balayage de fréquence) issues des résonances de l'élément piézoélectrique de la cavité qui sont rattrapées par la rétroaction rapide dans le cas de l'asservissement complet. Il est donc bien nécessaire d'asservir le laser avec les deux boucles de rétroaction.

Nous avons pu vérifier que l'asservissement réalisé est suffisamment robuste pour résister à des perturbations usuelles (vibration, acoustique, lumineuse) à condition que les photodiodes soient dans une boite noire.

La méthode classique pour mesurer l'efficacité de la stabilisation du laser est de comparer sa fréquence avec celle d'une autre référence [201]. On pourrait imaginer sonder le trou avec un second faisceau issu d'un laser indépendant et de faible largeur de raie mais nous sommes confrontés au problème du réglage délicat de la superposition spatiale et fréquentielle entre les deux faisceaux. Nous ne pouvons pas non plus comparer les signaux d'erreur du laser asservi ou non asservi car on n'observe pas de signal d'erreur quand le laser n'est pas asservi. En effet la puissance laser est trop faible pour creuser un trou spectral suffisamment profond pour créer un signal d'erreur. Notre difficulté principale est que nous n'avons qu'un seul laser à disposition : on l'asservit et il doit aussi servir à caractériser l'asservissement. C'est pourquoi l'estimation de la largeur spectrale du laser doit se faire par l'observation du trou spectral non élargi, il faudrait donc mettre la rétroaction proportionnelle sur le courant de la diode en pause durant l'observation. Un autre bon signe du fonctionnement de l'asservissement est l'observation de l'accumulation du trou spectral sur des dizaines de secondes, qui ne se produit pas sans asservissement.

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que la stabilisation en fréquence du laser est avantageuse pour l'imagerie acousto-optique. En effet le filtre spectral peut ainsi conserver une efficacité optimale sur l'ensemble de sa durée de vie.

La stabilisation en fréquence d'un laser est réalisée en comparant sa fréquence à celle d'une référence. Le signal d'erreur produit par la comparaison permet la correction de la fréquence du laser. Les diodes lasers en cavité étendue sont généralement corrigées par une rétroaction sur leur courant d'alimentation et la position de l'un des miroirs de la cavité contrôlée par un élément piézoélectrique.

On utilise souvent la méthode Pound-Drever-Hall (PDH) pour générer le signal d'erreur. Il est en effet proportionnel aux variations de phase du signal modulé transmis à travers la référence. Il est donc antisymétrique par rapport à la résonance et est linéaire pour de faibles décalages en fréquence. Nous avons vu qu'un trou spectral est une référence plus adaptée au montage d'imagerie acousto-optique utilisant le filtrage spectral que la cavité Fabry-Perot. Les trous spectraux ont été utilisés pour asservir des diodes lasers en cavité étendue de fréquence avec la méthode PDH ou un laser à colorant à 580 nm avec plusieurs méthodes demandant une pré-stabilisation du laser sur une cavité Fabry-Perot. Les performances atteintes par les asservissements du laser à colorant sont bien supérieures à celles dont nous avons besoin, nous avons donc choisi un protocole plus simple qui ne demande pas de pré-stabilisation du laser.

Nous avons ensuite vérifié avec des simulations simples que le trou spectral idéal pour fournir un signal d'erreur satisfaisant avec la méthode PDH est un trou lorentzien. Il faut donc que le trou spectral ne soit pas trop élargi par saturation.

Nous avons mis en place le montage optique de l'asservissement qui s'adapte à l'encombrement de l'axe optique dédié à l'imagerie dans le cryostat. Nous utilisons donc un autre cristal qui a l'avantage d'être moins absorbant. Nous avons établi un protocole d'asservissement du laser avec des paramètres adaptés aux conditions expérimentales dictées par la partie imagerie du montage.

Nous avons constaté que l'asservissement fonctionne et qu'il est robuste par rapport aux perturbations usuelles qu'il peut y avoir dans le laboratoire. L'asservissement a besoin des deux boucles de rétroaction sur le courant de la diode et le piézoélectrique pour être le plus efficace.

Des contraintes matérielles et de temps ne nous ont pas permis de poursuivre plus avant les tests sur l'asservissement. Nous voulons en effet le caractériser plus précisément, vérifier qu'il fonctionne bien quand l'imagerie acousto-optique est en route et nous voulons aussi complètement découpler les montages d'imagerie et d'asservissement, en particulier par rapport à l'alimentation et au contrôle des modulateurs acousto-optiques. Réciproquement nous voulons aussi vérifier que la diffusion du faisceau d'asservissement ne perturbe pas l'imagerie acousto-optique et n'entraine pas de réduction du rapport contraste à bruit.

Chapitre 6

Vers l'imagerie *in vivo*

Sommaire

6.1 Préparation au déménagement 129
6.1.1 Contraintes 129
6.1.2 Le nouveau cryostat 130
6.1.3 Modification du montage optique pour le déménagement 132
6.2 Remise en place du système d'imagerie acousto-optique 132
6.2.1 Remonter l'expérience d'imagerie acousto-optique 132
6.2.2 Problème de puissance laser pour l'imagerie 134
6.2.3 Difficultés de la remise en place de l'asservissement 137
6.3 Conclusion 138

Le filtrage spectral est adapté à la détection du signal acousto-optique *in vivo*, donc nous ne prévoyons d'avoir que des complications purement techniques. En conséquence, nous voulons essayer l'imagerie *in vivo*. Le montage d'imagerie acousto-optique utilisant un filtre spectral se trouve au Laboratoire Aimé Cotton. Dans ce laboratoire, il n'est pas possible de réaliser des expériences *in vivo* car il n'y a pas de personnel formé ou de pièces ayant les autorisations pour mener ce type d'expériences. De plus nous voulons tester dans un premier temps notre dispositif sur des souris et l'absence d'animalerie dans le bâtiment est un frein logistique important. C'est pourquoi nous avons mis en place une collaboration avec Nathalie Mignet et Johanne Seguin du laboratoire UTCBS de la faculté de Pharmacie de l'université Paris Descartes. Nous voulons déménager le système d'imagerie acousto-optique dans ce laboratoire. Ils ont suffisamment de place pour nous accueillir et ils ont les compétences et les autorisations nécessaires réaliser des tests *in vivo*.

Johanne Seguin et Jean-Luc Gennisson ont établi un protocole pour l'imagerie acousto-optique de souris. Ce protocole détaille en particulier le traitement des souris, quelles seraient les tumeurs que nous pourrions essayer de détecter et comment elles sont implantées. Nous voulons d'abord imager des souris saines avec comme objectif d'obtenir un premier signal et ensuite sur des souris avec des tumeurs avec pour but de distinguer les tumeurs du tissu environnant. Les tumeurs peuvent être de différents types : allogreffées en sous-cutanées sans tissu environnant, des tumeurs du côlon et du poumon qui engendrent une forte migration de métastases dans le foie. Le protocole détaille aussi comment les souris seront suivies, les différentes techniques utilisées pour les imager en plus de l'imagerie acousto-optique (échographie, élastographie et bioluminescence). Ce protocole a été accepté, il faut maintenant remettre en place le système d'imagerie à la faculté de Pharmacie pour passer à la phase de test.

Le déménagement d'une expérience sous-entend un avant et un après. La première partie décrit les contraintes de la nouvelle salle d'expérience et les modifications subséquentes du dispositif d'imagerie. La deuxième partie du chapitre se focalise sur les difficultés rencontrées lors de la remise en place de l'expérience dans le nouveau laboratoire.

6.1 Préparation au déménagement

6.1.1 Contraintes

La pièce dédiée à l'imagerie acousto-optique au Laboratoire Aimé Cotton est une pièce adaptée aux expériences d'optique : voyants lumineux extérieurs informant de la présence de faisceaux laser, puissance électrique bien dimensionnée pour les expériences, possibilité d'être dans le noir. Il est aussi possible de s'approvisionner et de recycler l'hélium liquide utilisé dans le cryostat. La pièce est aussi grande (environ $30\,\mathrm{m}^2$), dispose de beaucoup de rangements et d'une grande table optique $3\,\mathrm{m} \times 1{,}2\,\mathrm{m}$ accessible de tous les côtés.

La nouvelle pièce à la faculté de Pharmacie est partagée avec d'autres utilisateurs, ne permet pas d'être dans le noir (fenêtres sans volets), n'est pas climatisée. Il a fallu effectuer des travaux pour bien dimensionner la puissance électrique de la salle aux besoins de l'expérience. L'espace à notre disposition est plus restreint qu'au laboratoire Aimé Cotton : environ $10\,\mathrm{m}^2$ le long d'un mur pour la table optique, l'armoire avec les équipements électriques et le stockage du matériel et des cartons de transport tout en gardant de l'espace pour circuler. Nous avons donc acheté une nouvelle table optique plus petite $1{,}5\,\mathrm{m} \times 0{,}9\,\mathrm{m}$ et apportons le minimum de matériel d'optique, d'électronique ou autre. Il n'y a pas non plus de rangement à notre disposition dans cette salle ou dans une autre pièce de la faculté de la Pharmacie.

La contrainte majeure de la nouvelle pièce est l'absence d'accès à l'hélium liquide. Nous avons acheté un nouveau cryostat pour cette raison d'autant que cela améliore la transportabilité de l'expérience. Ce cryostat fonctionne avec un circuit d'hélium fermé ce qui lui permet d'être utilisable dans n'importe

quel laboratoire. Le nouveau cryostat et la nouvelle table ont été livrés directement à la faculté de Pharmacie pour des raisons de logistique. C'est pourquoi tout le montage optique qui s'articule autour du cryostat devra être fait sur place. Le reste du montage (en particulier la cascade d'amplification) est réalisé avant le déménagement sur un petit breadboard qui sera transporté avec les optiques montées dessus.

6.1.2 Le nouveau cryostat

Nous avons acheté une Cryostation de chez Montana Instrument. Ce nouveau cryostat fonctionne de manière autonome, c'est-à-dire qu'il n'a pas besoin d'être rechargé en hélium liquide à chaque fois que l'on veut descendre en température. De plus il a un faible coût de maintenance, il peut fonctionner plusieurs jours d'affilée et il est facile d'utilisation pour les non-spécialistes. La Cryostation est composée de quatre éléments : la tête où il y a la chambre d'expérience et l'ordinateur de commande qui sont sur la table optique, le compresseur positionné à côté de la table optique et le contrôleur qui est en dessous de celle-ci.

La Cryostation est un cryostat autonome de type Gifford-McMahon [212]. Le refroidissement s'effectue grâce à un cycle de compression et de décompression d'un fluide (hélium 4) répété environ 50 fois par minute. La Cryostation dispose de deux étages de refroidissement, chacun étant composé d'une valve tournante qui gère les flux d'hélium, d'un compresseur qui entretient le différentiel de pression entre l'entrée et la sortie d'hélium, d'un piston et d'un échangeur de chaleur entre l'hélium et la chambre à refroidir. La chambre refroidie par le premier étage de la Cryostation permet de refroidir l'hélium utilisé dans le deuxième étage. La chambre refroidie par le deuxième étage est en contact thermique avec l'échantillon via un doigt froid situé dans la chambre d'expérience. La température du doigt froid est réglable, la température minimum accessible est de 3 K après quelques heures de refroidissement. Les cristaux sont en contact avec le doigt froid grâce au porte-échantillon, si le contact thermique est bon l'échantillon atteint lui aussi une température de 3 K.

Nous avons conçu un porte-échantillon spécifique pour notre expérience. Dans le cryostat précédent la fonction du porte-échantillon était uniquement de maintenir les cristaux car le froid était transmis par l'intermédiaire du gaz d'hélium. Dans le nouveau cryostat, la chambre d'expérience est sous vide, donc les cristaux sont refroidis par contact avec le doigt froid via le porte-échantillon. Il doit maintenir les cristaux d'asservissement et d'imagerie afin qu'ils soient accessibles optiquement et orientés selon nos souhaits. Le porte-échantillon assure aussi le contact thermique entre le doigt froid et les cristaux, ce qui leur permet de descendre en température. Nous avons donc utilisé une partie du porte-échantillon fourni par Montana Instrument et nous lui avons ajouté deux pièces de notre conception. Nous avons choisi le cuivre sans oxygène à forte conductivité thermique (OFHC) pour les pièces additionnelles car ce matériau conduit très bien le froid aux températures cryogéniques. Les vis utilisées pour l'assemblage sont fournies par Montana Instrument. La pièce de Montana Instrument est en contact avec le doigt froid de manière optimale. Pour cette raison, le cristal d'imagerie est plaqué sur cette pièce par une autre pièce de notre conception, dénommée "bride d'imagerie" dans la suite. La bride d'imagerie est refroidie par l'intermédiaire du cristal. On mesure la température de cette bride avec une sonde de température, qui permet de suivre la température des cristaux. Le cristal d'asservissement est plaqué sur la bride d'imagerie avec une autre bride en cuivre OFHC. Les photos des cristaux placés dans leur porte-échantillon sont en figure 6.1 b).

L'accès optique du nouveau cryostat est sans commune mesure avec l'ancien, car son étendue maximale est d'environ $2 \times 10^3\,\mathrm{sr} \cdot \mathrm{mm}^2$ si on considère le cristal d'imagerie dans sa monture. Ce qui est trois ordres de grandeurs au-dessus de l'étendue de $6\,\mathrm{sr} \cdot \mathrm{mm}^2$ offerte par l'ancien cryostat et ses bobines de Helmholtz.

La chambre d'expérience de la Cryostation est représentée sur la figure 6.1. L'enceinte à vide permet une bonne isolation thermique avec l'extérieur, en supprimant les échanges de chaleur par

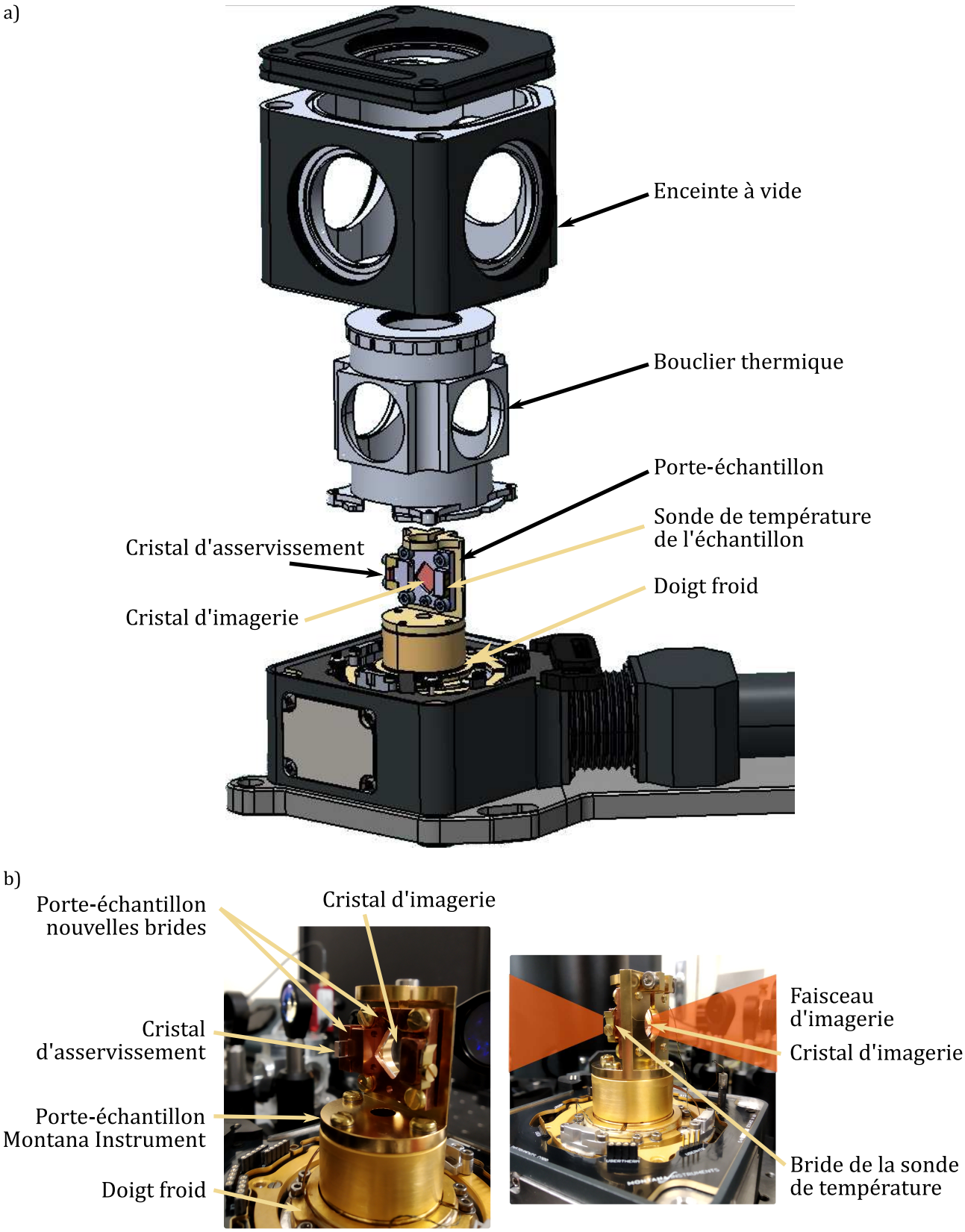

FIGURE 6.1 – a) Chambre d'expérience de la Cryostation et cristaux. b) Photos des cristaux dans le porte-échantillon.

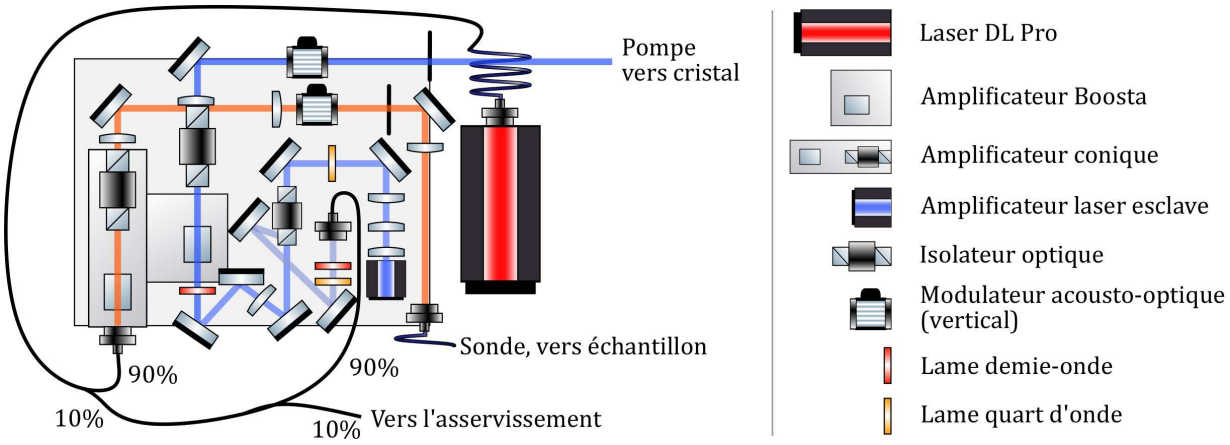

FIGURE 6.2 – Cascade d'amplification sur plaque optique en prévision du déménagement. le breadboard et les éléments volumineux (laser, amplificateurs) sont représentés à la même échelle. En rouge le faisceau laser commun, en bleu le faisceau de pompe, en orange en faisceau de sonde.

convection. Elle entoure le bouclier thermique, dont le rôle est de limiter les échanges radiatifs de chaleur. Les fenêtres de l'enceinte à vide et du bouclier thermique sont traitées anti-reflet à 800 nm. Le porte-échantillon est à l'intérieur du bouclier thermique.

Une fois installé à la faculté de Pharmacie, nous avons pu vérifier qu'après 3 à 4 heures de descente en température, la température des cristaux passe de la température ambiante à 3 - 3,2 K. Nous avons un bon contact thermique entre les cristaux et le doigt froid et le porte-échantillon remplit son rôle.

6.1.3 Modification du montage optique en préparation du déménagement

Le montage optique autour du cryostat ne peut pas être transporté pré-monté, car comme nous changeons de cryostat, les hauteurs des fenêtres et l'accès optique à l'échantillon vont changer. Nous allons donc monter cette partie du montage directement au nouveau laboratoire. En prévision nous avons donc emporté une plus grande sélection de lentilles de collimations et des supports d'optiques de différentes hauteurs.

Néanmoins, la cascade d'amplification du laser n'est pas en contact direct avec le cryostat donc nous pouvons travailler sur cette partie du montage avant, afin de déménager les optiques déjà montées. La cascade d'amplification est montée sur un breadboard de $60 \times 40\,\mathrm{cm}^2$, alors qu'elle était étalée sur une surface de $120 \times 100\,\mathrm{cm}^2$ au laboratoire Aimé Cotton. La cascade modifiée est schématisée sur la figure 6.2. Le laser DL Pro a une puissance suffisante pour saturer l'injection de l'amplificateur conique de Sacher Technik tout en gardant un peu de puissance pour injecter la diode laser esclave (Arroyo instrument) qui permet une amplification faible bruit qui injecte correctement l'amplificateur Boosta de Toptica. Le montage optique est plus comprimé. Nous avons entre autres placé les modulateurs acousto-optiques en position verticale pour un gain d'espace et nous avons constaté que les efficacités de diffractions élevées sont plus simples à obtenir que lorsqu'ils sont à l'horizontal.

6.2 Remise en place du système d'imagerie acousto-optique

6.2.1 Remonter l'expérience d'imagerie acousto-optique

Le défi principal pour le montage optique est la réduction de l'espace disponible. La figure 6.4 compare les tables optiques du laboratoire Aimé Cotton et de la faculté de Pharmacie. Il y a moins d'espace

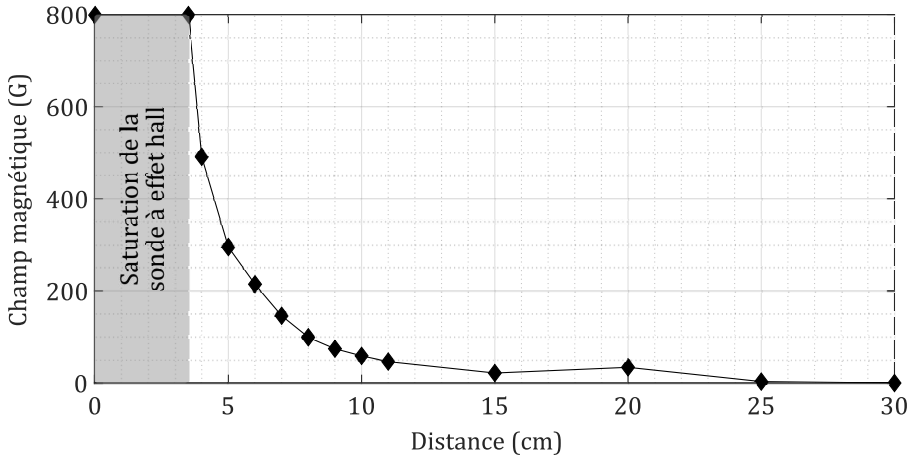

FIGURE 6.3 – Champ magnétique de l'aimant permanent. Le champ est mesuré avec une sonde à effet Hall sur l'axe de révolution de l'aimant, la distance est mesurée par rapport au bord de l'aimant.

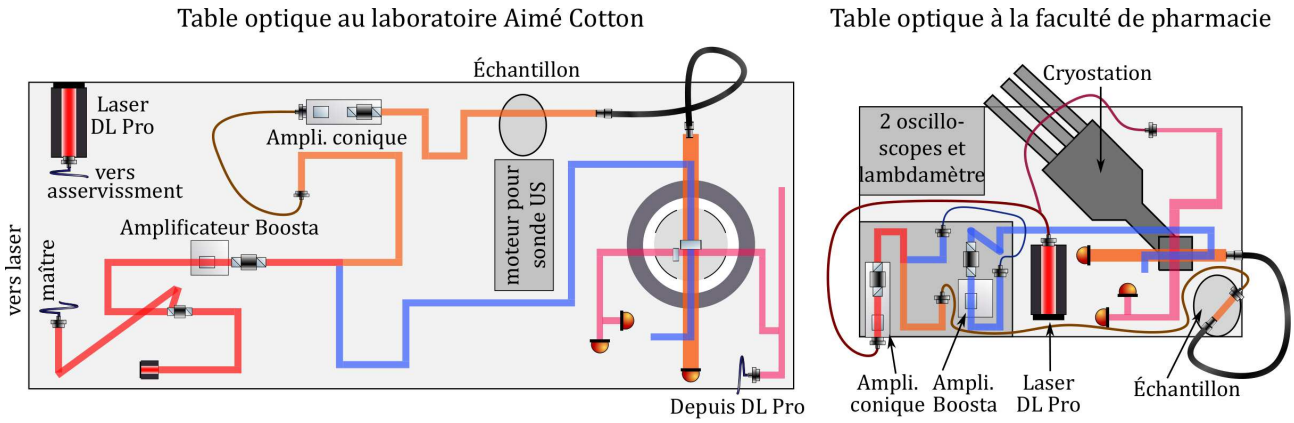

FIGURE 6.4 – Comparaison entre les tables optiques du laboratoire Aimé Cotton et de la faculté de Pharmacie. Les tables optiques et les éléments volumineux (laser, amplificateurs, cryostats) sont représentés à la même échelle. En rouge le faisceau optique commun, en bleu le faisceau pompe, en orange le faisceau sonde et en rose le faisceau d'asservissement.

à la faculté de Pharmacie et on a aussi moins d'accès à la table optique (deux côtés inaccessibles).

Dans un souci de transportabilité, de réduction de volume et d'alimentation électrique, nous utilisons maintenant un aimant permanent cylindrique au néodyme de dimensions $45 \times 30\,\mathrm{mm}^2$ (Supermagnete). On peut régler la valeur du champ magnétique au niveau de l'échantillon en ajustant la position de l'aimant qui est posé sur la fenêtre supérieure de la Cryostation. On cherche à obtenir un champ magnétique d'environ 200 G au niveau échantillon, l'aimant doit donc être à 6 cm du cristal d'après la figure 6.3.

Nous avons aussi moins d'espace disponible pour l'ensemble du matériel électronique nécessaire à l'expérience. Nous utilisons donc une seule armoire standard pour l'électronique remplie au maximum de sa capacité grâce à un empilement optimal des différents appareils. Les éléments qui n'ont pas trouvé leur place dans l'armoire sont les deux oscilloscopes, l'ordinateur de la Cryostation et le lambdamètre (Burleigh WA1500) qui sont sur la table optique, le compresseur de la Cryostation et l'ordinateur qui contrôle l'expérience sont à côté de la table optique et enfin le contrôleur de la Cryostation et le compresseur d'air comprimé pour la table optique sont en dessous de celle-ci.

Nous entreposons le matériel en supplément dans des cartons sous la table optique et sur une commode qui lui est adjacente.

Des photographies de l'installation à la faculté de pharmacie sont montrées dans la figure 6.5.

La figure 6.6 montre le détail du montage optique autour de la Cryostation. Le montage d'imagerie est similaire à celui réalisé au laboratoire Aimé Cotton. La sortie fibrée du laser DL Pro est séparée en deux par un coupleur fibré à maintien de polarisation (Idil Fibres optiques) : 90% de la puissance part vers l'amplification pour devenir les faisceaux de pompe et de sonde et les 10% restants sont utilisés pour l'asservissement.

Le faisceau sonde est apporté devant la chambre d'expérience de la Cryostation par la fibre à cœur liquide. L'accès optique étant meilleur, nous pouvons rapprocher la sortie de la fibre du cristal et n'utiliser qu'une seule lentille de collimation avant le cristal. Le faisceau sonde est ensuite collimaté par une autre lentille en sortie du cryostat avant d'être focalisée sur la photodiode à avalanche. Nous avons supprimé la caméra CCD imageant le cristal pour deux raisons. Nous avons un meilleur accès physique aux cristaux dans le cryostat, ce qui permet de vérifier facilement la superposition des faisceaux quand le cryostat n'est pas en route. La deuxième raison est liée à l'encombrement de la table optique : on ne peut pas avoir à la fois l'asservissement et la caméra CCD.

Le faisceau pompe est apporté en espace libre le long de la Cryostation jusqu'au cristal. Un cube polarisant permet de combiner les faisceaux pompe et sonde sur l'axe d'imagerie. En sortie de la chambre d'expérience un autre cube polarisant dévie la majorité du faisceau pompe pour protéger la photodiode à avalanche. L'obturateur mécanique finalise la protection.

Le faisceau d'asservissement est fibré lors du passage dans le modulateur de phase électro-optique (Photline / IXblue photonics). Nous utilisons maintenant un modulateur acousto-optique 110 MHz (AA Opto-Electronic) en simple passage. Il a une plage de modulation plus grande, donc on peut réaliser une rampe de fréquence de 40 MHz avec un simple passage, on a accès à plus de puissance que si on utilisait le modulateur en double passage. Si la puissance optique est trop importante, on utilise des densités pour la diminuer. Le faisceau est imagé sur le cristal d'asservissement de telle sorte que la plus grande surface possible du cristal soit éclairé (faisceau de diamètre d'environ 2 mm). En sortie de la Cryostation la lame séparatrice de faisceau permet de détecter le signal sur deux photodiodes à avalanche (C5460 Hamamatsu). L'un des signaux est envoyé dans la boucle d'asservissement et l'autre permet l'observation à l'oscilloscope.

Le modulateur acousto-optique est alimenté par un oscillateur contrôlé en tension (VCO, AA Opto-Electronic) modulé en fréquence et en amplitude par un générateur de fonction arbitraire (Agilent 33250A 80 MHz). La modulation de fréquence réalise un balayage de fréquence entre 80 et 120 MHz sur 400 µs à une fréquence de répétition de 10 Hz (rampe de tension centrée sur 1,7 V d'amplitude comprise entre 6,3 et 6,6 V). La modulation d'amplitude coupe le signal incident sur les photodiodes à avalanche et sur le cristal avant la rampe de fréquence.

L'étendue du cryostat et de la lentille de collimation, qui est le facteur limitant, est estimée à $50\,\mathrm{sr}\cdot\mathrm{mm}^2$ d'après la figure 6.7 qui est à l'échelle. Cette étendue est comparable à l'étendue de la fibre à cœur liquide ($45\,\mathrm{sr}\cdot\mathrm{mm}^2$, de diamètre 0,8 cm et de demi-anlge d'ouverture 31 °), donc l'étendue du système est de $45\,\mathrm{sr}\cdot\mathrm{mm}^2$, ce qui dix fois plus grand celle du montage du chapitre 4.

6.2.2 Problème de puissance laser pour l'imagerie

La cascade d'amplification réalisée au laboratoire Aimé Cotton était en limite de saturation pour la partie pompe. Après le déménagement lorsque nous avons réaligné le montage, nous avons obtenu une puissance un peu trop faible pour injecter la diode laser esclave. Sa puissance de sortie n'est donc pas stable dans le temps : sa puissance moyenne oscille entre 8 et 22 mW. Nous soupçonnons un

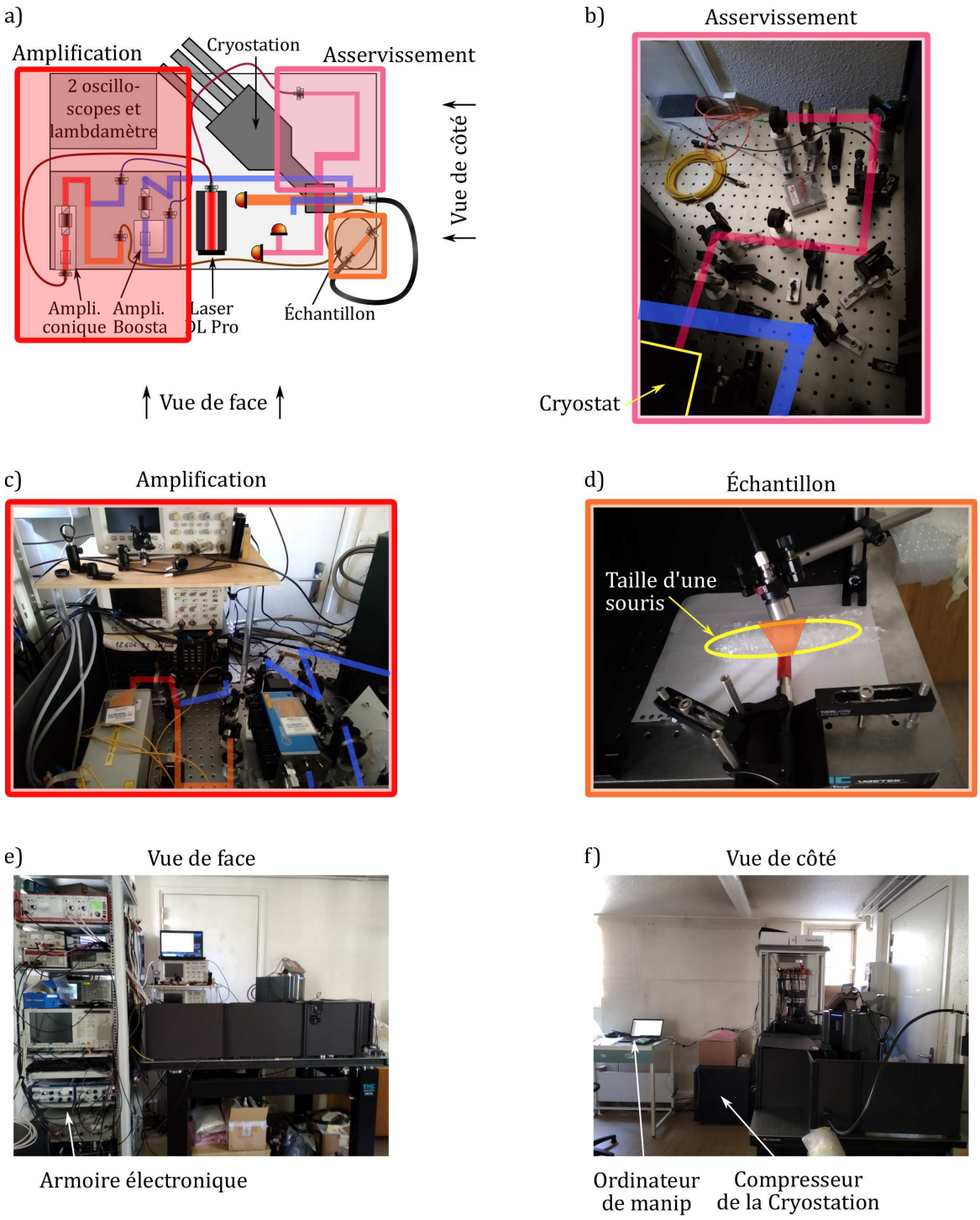

FIGURE 6.5 – Photographies de l'installation. a) Schéma du montage. b) Une partie de montage d'asservissement, faisceau schématisé en rose. c) Vue du montage d'amplification laser (faisceaux commun en rouge, sonde en orange et pompe en bleu) au fond on voit le lambdamètre et les deux oscilloscopes. d) Zone de l'échantillon où le volume de la souris est en jaune. e) Vue du montage de face. d) Vue du montage de côté.

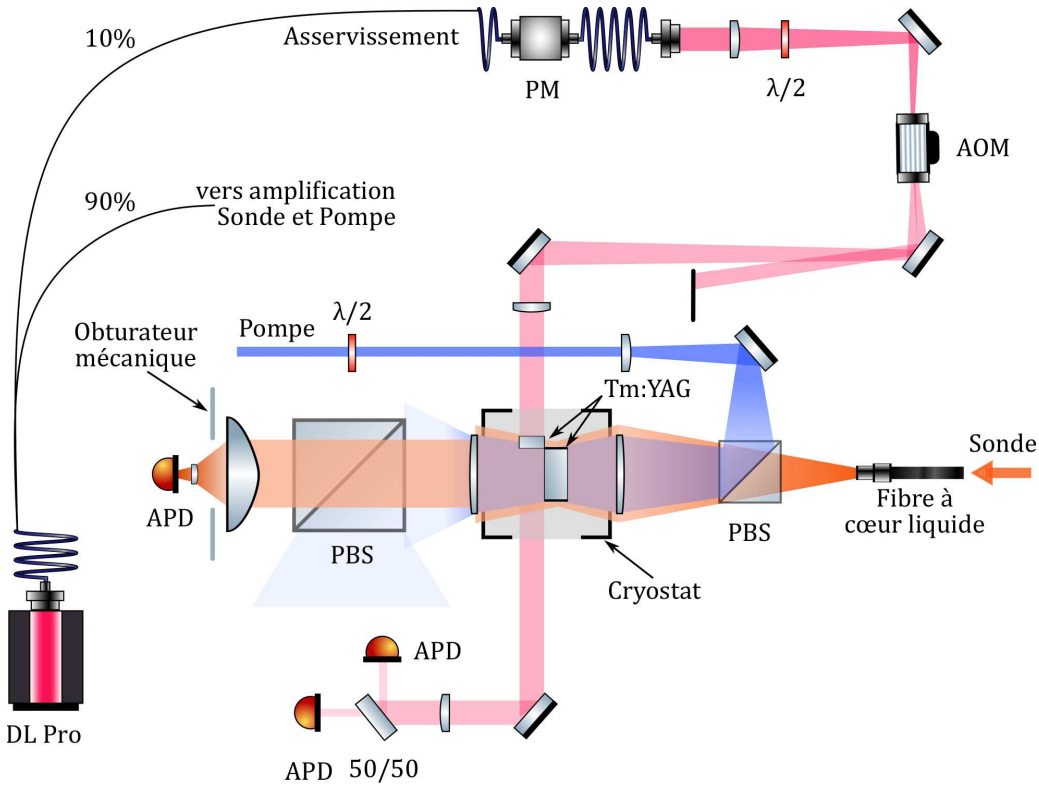

FIGURE 6.6 – Montage optique autour de la Cryostation. Le faisceau d'asservissement (en rose) est contrôlé par un modulateur acousto-optique, il est étendu et collimaté pour que le cristal de Tm : YAG soit éclairé sur une grande surface. Il est détecté par deux photodiodes à avalanche. Le faisceau sonde (en orange) est amené par la fibre à cœur liquide devant le cryostat, il est imagé sur le cristal et est détecté par une photodiode à avalanche. Le faisceau pompe (en bleu) est amené en espace libre jusqu'au cube polarisant qui le met dans l'axe du faisceau sonde. La photodiode à avalanche est protégée par le cube polarisant en sortie de la Cryostation et par l'obturateur mécanique. PM : modulateur de phase, $\lambda/2$: lame demi-onde, AOM : modulateur acousto-optique, 50/50 : lame séparatrice de faisceau 50/50, APD : photodiode à avalanche, PBS : cube séparateur de polarisation.

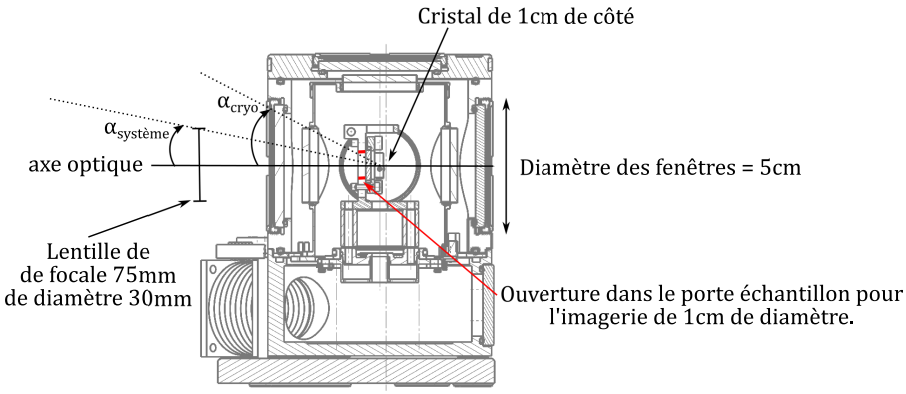

FIGURE 6.7 – Calcul d'étendue de la cryostation. Les différents élements du schéma sont à l'échelle.

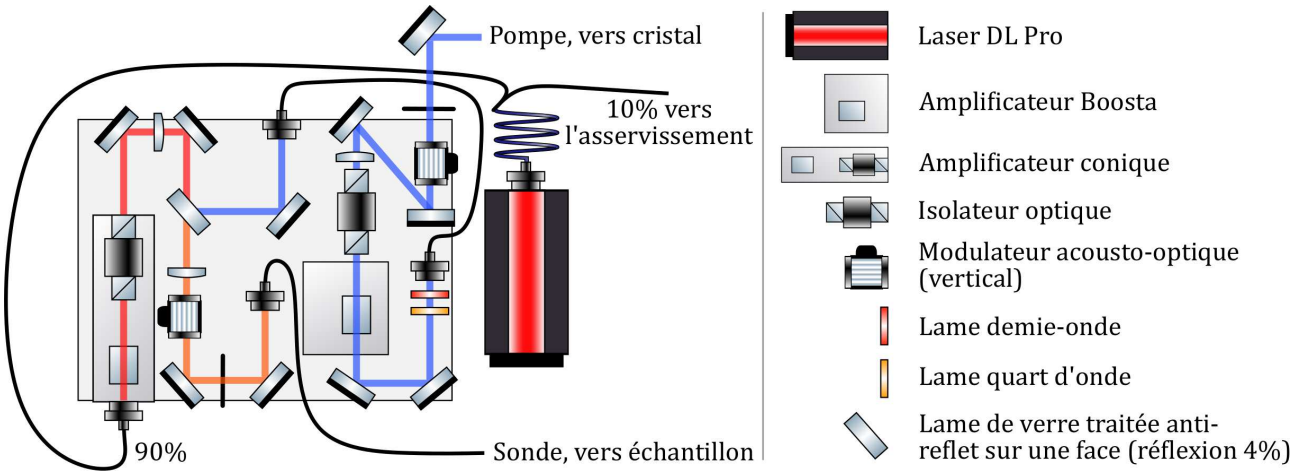

FIGURE 6.8 – Nouvelle cascade d'amplification. le breadboard et les éléments volumineux (laser, amplificateurs) sont représentés à la même échelle. En rouge le faisceau optique commun, en bleu le faisceau pompe et en orange le faisceau sonde.

vieillissement ou une dégradation de la diode laser. Par conséquent nous avons choisi de changer la cascade d'amplification.

Nous n'utilisons plus la diode laser esclave, à la place l'amplificateur conique de Sacher Lasertechnik injecte l'amplificateur Boosta. La figure 6.8 représente le nouveau montage plaque optique. 96% du faisceau en sortie de l'amplificateur conique est utilisé pour le faisceau sonde comme précédemment. Les 4% prélevés sont filtrés par une fibre monomode avant d'injecter l'amplificateur Boosta. Il a besoin d'être saturé en puissance (entre 20 et 30 mW) avec un faisceau gaussien pour fonctionner de manière optimale. Il peut ensuite créer le faisceau pompe.

6.2.3 Difficultés de la remise en place de l'asservissement

La remise en place de l'asservissement comporte plusieurs défis. D'abord nous avons changé de cryostat et l'environnement du cristal : hausse de température entre 0,5 et 1 K, nouvelle source de champ magnétique et accès optique différent. Nous avons aussi changé de modulateur acousto-optique, son alimentation et la génération de son signal, afin d'être indépendant du générateur de fonction arbitraire utilisé pour l'imagerie. La résolution des divers problèmes (branchements de l'électronique, montage optique) a donc été plus longue que pour la partie imagerie.

Les changements de matériel ont modifié la boucle de rétroaction du laser. La mise en place de l'asservissement sur la boucle de rétroaction sur la longueur de la cavité laser n'a pas pu être finalisée. En effet une fois fermée cette boucle de rétroaction engendre une dérive du laser qui ne s'arrête que lorsque le signal de rétroaction est en butée du contrôleur d'asservissement. Nous pensons soit qu'un élément de la boucle de rétroaction entraine une dérive en fréquence du laser soit que les fortes températures atteintes dans la pièce (pas de climatisation en été) déstabilisent la régulation en température du laser.

Des tests complémentaires ont été réalisés en novembre quand la température extérieure avait baissée. Un point de fonctionnement de l'asservissement a été trouvé, mais la boucle de rétroaction sur la longueur de la cavité ne semblait pas avoir beaucoup d'effet. Des mesures préliminaires de temps de vie du trou spectral d'asservissement ont mis en évidences un temps de vie de quelques dizaines de millisecondes. Ce court temps de vie serait dû à une température trop importante du cristal utilisé pour l'asservissement. Une modification du porte échantillon est à prévoir pour améliorer le contact

thermique entre le doigt froid et le cristal d'asservissement.

6.3 Conclusion

Nous avons déménagé l'expérience à la faculté de Pharmacie afin de pouvoir tester l'imagerie acousto-optique *in vivo*. La majorité du montage optique est en place ainsi que toute l'électronique attenante, en accord avec les contraintes spatiales de la nouvelle pièce. Nous avons pu tester le nouveau cryostat qui nous apporte satisfaction. En effet le cristal d'imagerie atteint une température de 3 K ce qui signifie que le porte-échantillon remplit bien son rôle de contact thermique. De plus l'accès optique du nouveau cryostat est sans commune mesure avec l'ancien, car son étendue maximale est d'environ $2 \times 10^3\,\mathrm{sr} \cdot \mathrm{mm}^2$.

Le travail de remise en place est encore en cours, principalement à cause des épisodes caniculaires du début de l'été 2019. La pièce n'étant pas climatisée la température était très importante, en particulier quand la Cryostation est en marche car le compresseur chauffe beaucoup. En conséquence, le laser et les amplificateurs se déréglaient en 30 min–1 h. La cascade d'amplification laser et l'asservissement sont donc encore à finaliser. Néanmoins on s'attend à obtenir une puissance de pompe comprise entre 50 et 100 mW sur le cristal et une puissance avant le milieu diffusant dans les environs de 300 mW.

Il y a encore du travail à fournir sur le montage, dans un premier temps nous voudrions valider l'asservissement du laser. Ensuite il faudra vérifier que l'asservissement fonctionne toujours lorsque l'imagerie est en marche. L'étape suivante est la caractérisation du système : temps de vie des trous spectraux, contraste du filtre spectral et obtention du signal acousto-optique sur un échantillon simple tel que de l'eau. Après nous voudrions améliorer le montage en replaçant la sonde ultrasonore mono-élément par un véritable échographe, il sera alors possible d'effectuer des tests d'imagerie acousto-optique sur des gels diffusants. À plus long terme, une fois toutes les étapes précédentes validées une campagne d'imagerie *in vivo* pourra être entreprise en collaboration avec les chercheurs de la faculté de Pharmacie.

Chapitre 7

Conclusion et perspectives

Sommaire

7.1 Conclusion générale **140**
7.2 Vers l'imagerie à deux couleurs **141**
7.3 Devenir du système **142**

7.1 Conclusion générale

Au cours de cette thèse nous avons développé un système d'imagerie acousto-optique utilisant un filtre spectral. L'intérêt de cette méthode d'imagerie réside dans sa capacité à localiser l'origine d'un signal optique au sein d'un milieu diffusant. Nous nous inscrivons dans un contexte d'amélioration des techniques d'imagerie médicale afin d'avoir plus d'informations aidant à la prise de décision des médecins.

Nous avons d'abord étudié les différentes techniques d'imagerie classiques présentes en hôpitaux : la tomodensitométrie, l'imagerie par résonance magnétique, la tomographie par émission de positron et l'échographie. Actuellement il y a de plus en plus de plateformes d'imagerie multimodales qui permettent d'obtenir des informations différentes en une seule session d'imagerie. Nous avons aussi vu que l'échographie est une technique très versatile et peu coûteuse même si elle peut manquer de contraste pour certaines applications comme par exemple la détermination de tissus cancéreux. L'imagerie optique est un outil puissant qui est à même de compléter une échographie, mais elle ne permet pas une détection résolue en profondeur (<1 mm) dans les tissus diffusants. Afin de pallier à cette faiblesse, des techniques hybrides alliant optique et ultrasons sont en développement. L'imagerie photoacoustique a atteint une maturité suffisante pour avoir commencé le transfert de technologie entre les laboratoires de recherche vers les professionnels de santé. L'imagerie acousto-optique s'est développée plus lentement car la mise en place d'expérience, en particulier *in vivo* n'est pas aussi aisée. Néanmoins cette modalité d'imagerie est prometteuse car elle peut être quantitative, elle a accès aux contrastes d'absorption et de diffusion en profondeur dans les tissus et elle pourra utiliser les développements de la photoacoustique et de l'échographie.

Nous avons choisi d'utiliser un filtre créé à partir de trous spectraux dans des cristaux dopés aux ions de terre rare pour développer l'imagerie acousto-optique vers des applications *in vivo*. Les cristaux dopés aux ions de terre rare ont des propriétés tout à fait particulières : l'élargissement inhomogène de la raie d'absorption du cristal est plusieurs ordres de grandeur plus grand que la largeur homogène des ions de terre rare à température cryogénique. Les cristaux sont donc très absorbants et adaptés au creusement de trou spectral (*Spectral Hole Burning*). Ces propriétés en font des objets d'étude de choix pour l'information quantique, mais nous pouvons aussi les utiliser pour créer un filtre spectral ultra-fin.

Nous utilisons un cristal de Tm^{3+} : YAG dont la raie d'absorption est centrée autour de 793 nm au milieu de la fenêtre thérapeutique optique. Lorsque le cristal est soumis à un champ magnétique extérieur modéré, la structure de ses niveaux énergétiques change. Les trous spectraux creusés sous champ magnétique sont plus profonds et ont de très longues durées de vie (>1 s), ils sont dits persistants, contrairement aux trous spectraux transitoires creusés sans champ magnétique.

L'optimisation du montage optique et de la séquence d'imagerie nous a permis de réaliser la première démonstration expérimentale de l'imagerie acousto-optique utilisant un filtre spectral persistant dans un cristal de Tm : YAG sur un gel diffusant simulant un tissu biologique. Nous avons constaté que le filtre persistant est plus efficace en terme de rapport contraste à bruit et vitesse d'acquisition que le filtre transitoire. Nous avons aussi validé que le filtre persistant permet d'imager des inclusions de taille millimétrique dans un milieu diffusant.

L'imagerie acousto-optique *in vivo* ne peut pas être réalisée dans le laboratoire où nous avions monté notre système d'imagerie. Nous devons donc travailler sur la transportabilité et la compacité du système. Dans ce but nous avons changé de laser maître, donc nous l'avons stabilisé en fréquence. Cette nouvelle stabilisation devrait augmenter l'efficacité du filtre spectral sur l'ensemble de sa durée de vie.

Ensuite nous avons déménagé le système d'imagerie à la faculté de Pharmacie de Paris Descartes

où des campagnes d'imagerie *in vivo* pourront être menées. À ce jour, la majorité du montage optique est en place ainsi que toute l'électronique attenante, en accord avec les fortes contraintes d'espace dans la nouvelle pièce. Nous avons pu tester le nouveau cryostat qui nous apporte satisfaction.

7.2 Vers l'imagerie à deux couleurs

Au cours de la thèse j'ai été associée à deux autres publications, dont les résultats visent à développer l'imagerie acousto-optique à deux longueurs d'onde.

Nous avons vu que les propriétés optiques des tissus biologiques peuvent être dépendantes de leur métabolisme. Par exemple on peut mesurer l'oxygénation du sang ou le volume sanguin dans un tissu grâce à la variation locale de son coefficient d'absorption. Le coefficient d'absorption local est lié aux concentrations locales des absorbeurs par la loi de Beer-Lambert-Bouguer. La mesure de ce coefficient d'absorption local à plusieurs longueurs d'onde permet de comparer quantitativement des concentrations inconnues entre elles. L'imagerie acousto-optique répond à la plus grande difficulté de cette démarche : l'estimation locale du coefficient d'absorption. Nous avons en effet montré qu'il était possible de mesurer la concentration relative d'une encre dans un gel diffusant par une interpolation à deux couleurs du signal acousto-optique dans la région d'intérêt [213]. Si on a accès à des lasers accordables en longueur d'onde dans le proche infrarouge, alors il serait possible d'imager les milieux diffusants de manière quantitative.

Nous avions choisi l'ion thulium trivalent car il a une transition optique centrée autour de 790-800 nm. Le choix subséquent de la matrice de grenat d'yttrium aluminium (YAG) a été fait car il existe une littérature importante sur le cristal de Tm : YAG. Néanmoins ce cristal n'est peut-être pas le plus adapté à l'imagerie acousto-optique. Pour cette raison, nous voulons étudier l'ion thulium trivalent dans une autre matrice cristalline. Parmi les différents choix à notre disposition la matrice d'orthosilicate d'yttrium Y_2SiO_5 est particulièrement intéressante. En effet le cristal Tm^{3+} : Y_2SiO_5 a l'élargissement inhomogène de quelques GHz et peu de sites cristallographiques de substitution : cela engendre un coefficient d'absorption important. La largeur homogène des trous spectraux est inférieure au MHz. En conséquence, de grandes dynamiques de filtrage pourraient être accessibles. Néanmoins ce cristal a été peu étudié car il n'est pas bien adapté aux applications d'information quantique. En effet il est très sensible aux fluctuations du champ magnétique et présente donc un faible temps de cohérence. Nous l'avons donc étudié en vue d'une application de filtrage pour l'imagerie acousto-optique où les paramètres d'intérêts sont : la dynamique de filtrage autrement dit le contraste du filtre et le temps de vie des trous spectraux qui a une incidence directe sur le temps dédié à l'imagerie proprement dite.

L'étude spectroscopique du cristal de Tm : YSO par creusement de trou spectral nous a permis d'identifier l'orientation de la polarisation pour que le cristal soit le plus absorbant possible. Nous avons aussi identifié l'un des mécanismes de creusement spectral sans champ magnétique. Nous avons ensuite partiellement caractérisé le cristal sous un champ magnétique modéré (quelques mT). Nous avons trouvé une configuration adéquate pour le filtrage spectral sous champ magnétique : les trous spectraux sont persistants (durée de vie supérieure à la seconde) et profonds, ce qui permet d'avoir un filtre spectral bien contrasté. Enfin nous avons estimé les caractéristiques d'un filtre spectral pour l'imagerie acousto-optique créé avec un cristal de Tm : YSO. L'ensemble de tests sont concluants : un cristal de Tm : YSO a du potentiel comme filtre spectral. Ces résultats sont publiés dans l'article [214].

7.3 Devenir du système

À très long terme après la première campagne d'imagerie *in vivo* à la faculté de Pharmacie, plusieurs axes de développement pourront être poursuivis .

Un premier axe concerne l'évolution du filtre spectral. Actuellement il ne permet de filtrer la lumière qu'à une seule longueur d'onde, mais nous voulons pouvoir à terme créer un filtre adapté à l'imagerie multi-spectrale. Ainsi l'imagerie acousto-optique deviendra une modalité d'imagerie fonctionnelle. Dans ce but il faut utiliser un autre ion de terre rare et débuter l'étude spectroscopique liée du filtrage simultané aux deux longueurs d'ondes.

Un deuxième axe de développement est la maturation technologique du système d'imagerie pour se préparer à un déploiement en hôpital. Nous travaillons actuellement sur le développement d'une sonde acousto-optique qui intègre la sonde ultrasonore, l'éclairement de l'échantillon et la collection de la lumière en sortie. Ensuite fibrer entièrement le montage optique représenterait un gain d'espace et faciliterait l'alignement des optiques et le déplacement du système. Enfin l'augmentation de la cadence d'imagerie (prise de plusieurs images par seconde) permettrait une imagerie en temps réel.

Annexe A

Normes de sécurité pour l'imagerie médicale

Dans cette annexe j'explicite les normes de sécurité pour l'imagerie optique et l'échographie biomédicale. Les normes françaises sont en générales les mêmes que les normes européennes et sont identiques ou très similaires aux normes américaines. Le but de ces normes est d'éviter l'endommagement des tissus.

A.1 Normes acoustiques

Les normes internationales [215], européennes [216] et américaines [23] sont équivalentes par rapport aux normes acoustiques, les plus récentes apportant parfois des précisions sur des points peu définies [217]. Leur but est de limiter la dégradation des tissus par des effets thermiques ou mécaniques. La norme américaine *Food and Drug Administration* (FDA) se compose de deux critères à respecter simultanément :

— La puissance acoustique moyenne doit être inférieure à la valeur seuil I_{SPTA}.

— La puissance crête acoustique doit être inférieure à I_{SPPA} en d'autres termes l'index mécanique $MI = \frac{PNP}{\sqrt{f_c}}$ doit être inférieur à la valeur seuil MI_S. PNP est le pic de pression négative en MPa, et f_c est la fréquence centrale d'émission acoustique.

Les valeurs seuils varient selon les tissus insonifiés et sont récapitulées dans le tableau A.1.

A.2 Normes optiques

Les normes de sécurité présentées ici sont tirées du document NF EN 6085-1 de l'AFNOR (Association Française de Normalisation) datant de 1994 [195]. Elles font référence à la notion d'exposition maximale permise (EMP).

Application	I_{SPTA}(mW cm^{-2}	I_{SPPA}(W cm^{-2})	MI_S
Vaisseaux périphériques	720	190	1,9
Coeur	430	190	1,9
Foetus et autres*	94	190	1,9
Œil	17	28	0,23

Table A.1 – Valeurs seuils des normes acoustiques médicales. * imagerie abdominale, peropératoire, pédiatrique, petit organe (sein, thyroïde, testicules, etc.), céphalique néonatal, céphalique adulte

Régime continu Pour une durée d'exposition Δt supérieure à 10 s et pour une longueur d'onde λ entre 700 et 1400 nm, l'exposition maximale permise sur la peau est :

$$EMP_{peau,CW(\lambda)} = 200C_4(\lambda)\mathrm{mW\,cm^{-2}} \tag{A.1}$$

où $C_4 = min(10^{0,002(\lambda-700)}; 5)$ est un facteur de correction. La longueur d'onde λ est exprimée en nm.

La norme à $\lambda = 780$ nm est donné par la relation A.2.

$$EMP_{peau,CW} \leq 290\,\mathrm{mW\,cm^{-2}} \tag{A.2}$$

Régime quasi-continu Pour une durée d'exposition Δt comprise entre 0,1 µs et 10 s et pour une longueur d'onde λ entre 700 et 1400 nm, l'exposition maximale permise sur la peau est donné par la relation A.3.

$$EMP_{peau}(\lambda) = 1,1C_4(\lambda)\Delta t^{0,25}\mathrm{J\,cm^{-2}} \tag{A.3}$$

Annexe B

Procédure de mise en place de l'asservissement

Nous décrivons ici une marche à suivre développée de manière empirique qui permet l'asservissement du laser.

1) On commence avec un champ magnétique nul.

2) L'étape suivante consiste à visualiser le signal PDH en l'absence de champ magnétique. Dans ce but on utilise un faisceau de quelques centaines de µW afin de créer un trou spectral transitoire. Cela nous permet de vérifier les branchements et de faire quelques réglages préliminaires. On visualise alors aussi le signal PDH. Il est possible de régler la phase du signal de démodulation afin de sélectionner la bonne quadrature du signal PDH, c'est-à-dire celle qui présente la plus grande pente linéaire au niveau du centre du trou spectral.

On en profite aussi pour vérifier l'entrée du contrôleur (A ou B voir figure 5.11) qu'on a choisi (différence de phase de π entre les deux). Lorsque l'asservissement est mis en route et que la fréquence est balayée, le laser doit tenter de s'asservir sur le trou central et pas sur les bandes latérales. On doit voir que le trou central s'élargit visiblement tandis que les bandes latérales s'affinent. Si on observe le contraire, le branchement doit être changé. À partir du branchement de la boucle sur le courant, on en déduit celui de la boucle du piézoélectrique qui lui est opposé. Nous avons trouvé que la bonne configuration est d'utiliser l'entrée A pour la boucle du courant et l'entrée B pour celle du piézoélectrique.

On règle aussi l'*input offset* tel que la moyenne du signal PDH soit égale à zéro. Le signal d'erreur est nul quand le laser est à la bonne fréquence et par conséquent il n'y a pas de correction proportionnelle de la fréquence.

Enfin on ferme la boucle. On choisit les modes LFGL et $INT = 0$ qui permettent d'avoir une correction purement proportionnelle.

3) Ensuite il s'agit de régler la boucle de rétroaction de la longueur de la cavité contrôlée par un piézoélectrique sans champ magnétique. Nous avons constaté que le laser dérive systématiquement lors de la mise en route de l'asservissement sur le piézoélectrique. De même nous observons une variation de l'intensité détectée par les photodiodes à avalanches lorsque l'on allume le module SC110. Nous pensons que ces variations sont dues au déplacement de la fréquence du laser dans la raie d'absorption du cristal. Néanmoins nous n'avons pas mesuré l'amplitude de ce déplacement. La cause des déplacements est probablement liée au gain de la boucle de rétroaction. Il doit y avoir une différence non négligeable quand elle est ouverte ou fermée. Cependant nous n'avons pas identifié le ou les éléments qui sont à

l'origine de cette variation du gain.

On diminue la puissance du laser pour qu'elle soit d'environ 2 µW en entrée du cryostat. On ne voit alors plus le trou car il est gravé trop partiellement et que sans champ magnétique l'accumulation est peu efficace. Nous avons en effet constaté que pour un asservissement sur une longue durée, les bandes latérales ne doivent pas être saturées. Nous les choisissons donc très petites et nous diminuons la puissance laser sur le cristal. Ainsi elles vont lentement creuser des trous spectraux et ils seront plus petits.

De même que pour la boucle de rétroaction sur le courant, on règle l'*input offset* tel que la valeur moyenne du signal PDH soit à zéro.

On peut ajouter une tension additionnelle en sortie du contrôleur par la fonction *sweep center*. On choisit une valeur proche du minimum, mais on ne se place pas au minimum car on serait en butée du paramètre, donc le contrôleur ne pourrait plus assurer l'asservissement. Le but de cette manœuvre est de se donner plus de temps pour l'étape où on stabilise la dérive du laser à la main, dérive qui se fait toujours dans la même direction.

Enfin on peut fermer la boucle d'asservissement. La correction intégrale pure est obtenue en choisissant l'option *Lock ON*. Il faut maintenant stabiliser la dérive du laser en réglant le gain de la boucle de la rétroaction et l'*input offset*. Il faut trouver le point de fonctionnement. On procède comme suit : on observe la tension en sortie du contrôleur et on modifie délicatement la valeur du gain jusqu'à ce qu'elle se stabilise à une valeur moyenne (c'est-à-dire ni le maximum ni le minimum). La valeur du gain obtenue est en général proche du milieu de la gamme, il n'y a donc que peu d'amplification ou d'atténuation. Si la tension de sortie du contrôleur ne se stabilise pas, on peut tenter de diminuer le gain (et donc changer la valeur de l'*input offset*). Si la tension de sortie se stabilise mais que l'on constate un gain trop élevé ou trop faible il faut à nouveau retrouver un bon point de fonctionnement pour le gain et l'*input offset*.

4) L'étape suivante consiste à mettre le champ magnétique en route et attendre de voir grandir le trou spectral central, ce qui prend une trentaine de secondes. Il est possible qu'il faille à nouveau délicatement stabiliser le gain de la boucle du piézoélectrique.

5) Il faut ensuite ajuster délicatement la valeur du gain de la boucle sur le courant de la diode de façon à être juste en dessous du seuil d'oscillation. Le gain obtenu est proche du milieu.

6) Enfin il faut ajuster de manière encore plus délicate le gain de la boucle du piézoélectrique pour être à nouveau en dessous du seuil d'oscillation. Si l'on modifie trop ce gain, le laser se remet à dériver et on perd l'asservissement. Quand l'asservissement tient, il ne faut surtout pas modifier les valeurs des *sweep center* des deux contrôleurs ni celle de l'*offset* du module SC110. Cela engendre des variations trop brutales du gain qui font décrocher l'asservissement.

Annexe C

Articles

C.1 Ultrasound modulated optical tomography in scattering media : flux filtering based on persistent spectral hole burning in the optical diagnosis window

Le lecteur trouvera dans les pages suivantes l'article [194] dont il a été question dans le chapitre 4. Nous montrons dans cet article la réalisation d'un filtre spectral pour l'imagerie acousto-optique avec des trous spectraux persistants dans un cristal de Tm : YAG.

Ultrasound modulated optical tomography in scattering media: flux filtering based on persistent spectral hole burning in the optical diagnosis window

Caroline Venet[1,2,*], Maïmouna Bocoum[1], Jean-Baptiste Laudereau[1], Thierry Chaneliere[2], François Ramaz[1], Anne Louchet-Chauvet[2]

[1]Institut Langevin, Ondes et Images, ESPCI ParisTech, PSL Research University, CNRS UMR 7587, INSERM U979, Université Paris VI Pierre et Marie Curie, 1 rue Jussieu, 75005 Paris, France
[2] Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Univ. Paris-Sud, ENS Cachan, Université Paris-Saclay, Bât.505, Campus d'Orsay, 91400 Orsay France
**Corresponding author: caroline.venet@espci.fr*

Received 25 Mai 2018; revised 18 July 2018; accepted 19 July 2018; posted 24 July 2018 (Doc. ID 332657); published 15 August 2018

Ultrasound modulated optical tomography (UOT) is a powerful imaging technique to discriminate healthy from unhealthy biological tissues based on their optical signature. Among the numerous detection techniques developed for acousto-optic imaging, only those based on spectral filtering are intrinsically immune to speckle decorrelation. This paper reports on UOT imaging based on spectral hole burning in Tm:YAG crystal under a moderate magnetic field (200G) with a well-defined orientation. The deep and long-lasting holes translate into a more efficient UOT imaging with a higher contrast and faster imaging frame rate. We demonstrate the potential of this method by imaging calibrated phantom scattering gels.

http://dx.doi.org/10.1364/OL.43.003993

Non-invasive optical imaging is an active field of research because local absorption and scattering of tissues are critical to medical diagnosis. For example, histology of malignant breast tumors shows they have an optical signature which differs from benign cysts [1]. Optical imaging of biological tissues at depths greater than a few mm is however challenging because of light multiple scattering, making imaging techniques relying on ballistic light inapplicable. Over the last twenty years, ultrasound modulated optical tomography (UOT) has emerged as one of the bimodal-imaging technique allowing to bypass this limitation. UOT exploits the acousto-optic effect [2] which occurs between ballistic ultrasounds (US) focused along a chosen direction and diffused light. As it propagates, an US burst of carrier frequency f_{US} on the MHz range modulates both the refractive index and the scattering particle positions [2]. This results in the creation of ultrasonically tagged photons shifted from the carrier frequency f_L by $\pm f_{US}$ [3] [see Figure 1(a)]. By filtering these tagged photons, we retrieve a signal proportional to the local optical irradiance along the US path, with the spatial resolution of the US [4]. The ratio of tagged photons to the total number of photons lies between 10^{-3} and 10^{-4} with short bursts [5].

Two parameters are critical for imaging applications. First, because of scatterers random motion, the technique used to detect the tagged photons must handle speckle decorrelation. Second, the signal to noise ratio (SNR) should be maximal to ensure a large imaging frame rate (>Hz). A good SNR is reached when the tagged and transmitted photons are effectively discriminated for large detection *etendue*.

The most mature techniques for the detection of tagged photons are based on self-adaptive wavefront holography. Holographic response times close to 1ms or below have been reported, which is promising but still insufficient for *in vivo* imaging [6-7]. Digital holography is far less sensitive to speckle decorrelation [8]. However, the CCD camera needs to process multiple speckles in parallel thus imposes a frame rate too slow for real-time tracking of the US propagation. As opposed to holographic techniques, the confocal Fabry-Perot detection consists in spectrally filtering the tagged photons. It is intrinsically immune to speckle decorrelation but operates with limited *etendue* [9].

Spectral Hole Burning (SHB) allows, among other applications, the generation of narrow-band filters, which can discriminate ultrasonically tagged photons over a large *etendue*. In rare-earth doped crystals at cryogenic temperature, the inhomogeneous absorption linewidth is at least one order of magnitude larger that the homogeneous linewidth. This is why narrow spectral classes of atoms within the inhomogeneous broadening can be selected with SHB. To burn a spectral hole, a spectrally narrow laser saturates the homogeneous line absorption thereby creating a transparency window in the absorption profile, called spectral hole. Biological imaging requires the SHB transition to be in the optical diagnosis window [10]. Among many of the materials exhibiting the SHB

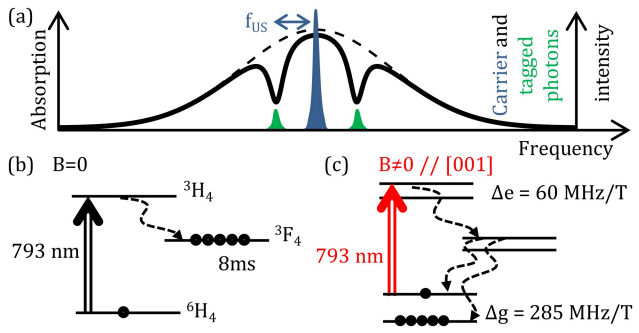

Fig. 1. (a) Spectral filtering of UOT tagged photons. Dashed line: initial absorption spectrum. Solid line: absorption spectrum after spectral holeburning at two frequencies. Colored area: spectrum of the light coming out of the scattering medium (blue: photons at the carrier frequency and green: tagged photons). f_{US} is the ultrasound frequency (typically 5 MHz). (b) Tm:YAG level scheme in the absence of magnetic field. Optically excited atoms are stored in the metastable $^3F_4$ level for 8ms. (c) Level scheme under magnetic field: optically excited atoms are stored in one of the two ground state sublevels with a 30s lifetime. Δg and Δe are the Zeeman splitting dependence of the ground and excited levels, respectively [19].

property, Tm^{3+} and Nd^{3+} doped crystals operate at appropriate wavelengths (793nm and 883nm respectively).

UOT-SHB in Tm-doped YAG has been reported in [11-13]. Under laser excitation the resonant atoms at 793nm in Tm:YAG are promoted to the $^3H_4$ excited state, as depicted in Figure 1(b) without magnetic field. In about 200µs [14], 30% of the atoms relax straight to the ground state while 70% remain in the metastable level $^3F_4$, whose lifetime is 8ms [14]. This time defines the spectral hole lifetime, which is a key parameter for UOT because it will set the maximum number of signals acquired for a given US burst repetition rate. Because refreshing the hole is a time consuming step, a longer lifetime would in overall speed up the imaging process.

If a ground state level substructure exists (hyperfine or nuclear Zeeman structure), the hole lifetime can be extended much above the excited state lifetime, typically above a few seconds. This is called the Persistent spectral hole burning (PSHB) regime [15], and allows a more efficient optical pumping process, together with deeper holes. This was demonstrated for example in praseodymium-doped Y_2SiO_5, where a hole lifetime of several thousand seconds was observed at 606nm [16]. Additionally, the optical dispersion due to the steep absorption variation induces a slowing of the tagged photons going through the filter compared to untagged photons. This so-called slow light approach has been used to enhance the filter sensitivity. So far, most significant PSHB-UOT experiments were conducted using slow light at the wavelength (606nm) which is not well adapted for deep tissue imaging [17-18].

In the case of thulium, PSHB can be achieved by applying a static magnetic field, revealing the Zeeman structure [19], as shown in Figure 1(c). As a consequence, atoms relax to their ground state sublevel which acts as a new long lived shelving state. PSHB at convenient operation wavelength is therefore possible using thulium.

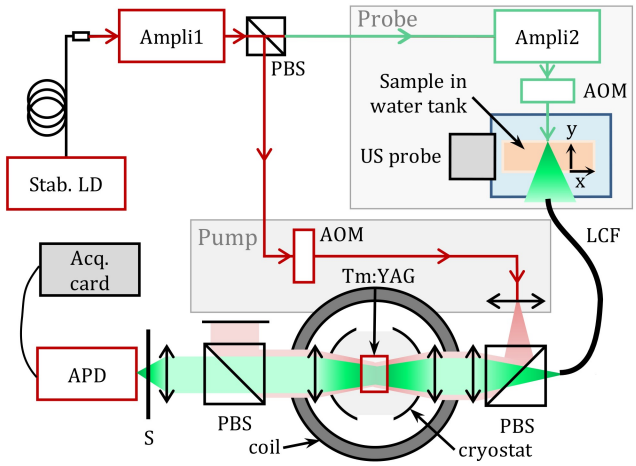

Fig. 2. Optical setup, with a probe beam (green) and a pump beam (red). Stab. LD stabilized laser diode, Ampli 1, 2: laser amplifiers, PBS: polarizing beam splitter, AOM: acousto-optic modulator, US probe: ultrasound probe, x: longitudinal coordinates along US propagation, y: transverse coordinates perpendicular to US propagation, LCF liquid core fiber with high numerical aperture, S: mechanical shutter, APD: avalanche photodiode, Acq. card: acquisition card.

In this article, we report the first demonstration of UOT-imaging based on PSHB in thulium, without slow light. To improve the detection dynamics, two spectral holes are tuned at the two tagged photons' frequencies as illustrated in Figure 1(a). We first compare the SHB and PSHB filters on a weakly scattering sample, and then demonstrate mm imaging resolution on a 1cm scattering sample with two embedded absorbing inclusions.

The experiments are conducted using a 10x10x2 mm^3 2% at. Tm^{3+}:YAG single crystal (Scientific Materials Corp.) with an optical thickness close to $\alpha L = 6$ along the 2mm dimension, where α and L are respectively the absorption coefficient and the crystal length. The temperature of the crystal is set at about 2K with a variable liquid helium cryostat (SMC-TBT) so that the homogeneous linewidth is a few kHz, and the measured inhomogeneous bandwidth 30GHz. The 234G magnetic field is created by a pair of water-cooled Helmholtz coils. It is oriented along the [001] crystallographic axis [19]. Under these conditions, the lifetime of Zeeman sublevels is about 30s [20]. Indeed, both heteronuclear cross-relaxation with neighboring Al ions observed at 30 and 60G [21] and spin-lattice relaxation due to phonons observed above 500G [22] are prevented. By controlling the power, duration and spectral width of the pump pulse, the spectral holes width (FWHM) is adjusted to 1.7MHz. This corresponds to a tradeoff between the US pulse width (2.4MHz) and an efficient blocking of untagged photons.

The master laser is an extended cavity diode laser stabilized on a Fabry-Perot cavity [23], leading to a measured frequency drift of about 0.1MHz over 30s. The laser is amplified and split into two optical paths (see Figure 2). In the first path, a 200mW probe beam illuminates the scattering sample, and in the second path a 110mW/cm^2 pump beam burns the spectral hole. Both beams are temporally shaped with acousto-optic modulators (AOM, AA Opto-Electronic MT80). US pulses are emitted with a spherical single-

element transducer (Olympus 5MHz) of 5cm focal length. The axial resolution calculated for a two-cycle US pulse at 5MHz is 0.6mm and the lateral resolution set by the US waist is 0.6mm.

We prepare two agar gel phantoms of 7x7x1cm³ gels with different intralipid solution concentrations, leading to different scattering coefficients $\mu_S' \approx 1cm^{-1}$(sample 1) and $\mu_S' \approx 10cm^{-1}$(sample 2), the latter being equal to that of biological tissues [24]. A 2x2x2mm³ black Indian ink inclusion is buried inside sample 1, while sample 2 has two inclusions of 0.5x0.5x0.5mm³ separated by 2mm, close to the sample input surface.

The probe scattered light is collected at the output of the sample with a 1m-long liquid core fiber (LOT-Oriel) with a 45sr.mm² *etendue*. The fiber output is slightly focused into the crystal to illuminate its whole volume. Light exiting the cryostat is collected and focused on an avalanche photodiode (Hamamatsu APD module C12703-01) connected to an acquisition card (Tiepie Handyscope HS5). The *etendue* of the overall collection is limited to 12sr.mm² by the cryostat windows. In addition, the probe light undergoes significant losses between the fiber output and the APD, due to the lenses and cryostat optical apertures (estimated to 70%) and to uncoated cryostat windows (61%).

We choose a co-propagating geometry between the probe and pump beams to maximize their overlap on the crystal. The pump beam is expanded with an 8mm focal lens to approximately match the light cone of the divergent scattered light coming from the liquid core fiber. The two beams are combined with a polarizing beamsplitter (PBS), despite the 50% losses on the probe depolarized light. At the output of the cryostat, another PBS deviates most of the pump power, but the remaining partially depolarized pump light is still transmitted and saturates the APD, therefore it must be blocked with a mechanical shutter (Uniblitz VS14). The AOMs, the ultrasound probe, the mechanical shutter and the acquisition card are all synchronized with an arbitrary waveform generator (Tektronix AWG5004).

Our 2D UOT-images are acquired in $n_l = 51$ lines by translating the US probe in the transverse direction y. Each line represents the conversion of temporal traces of the probe pulse into x coordinates, using the ballistic propagation of the US pulse at 1500 m.s^{-1}, and it is averaged n_{avg} times. To begin the acquisition of one line, the US probe is mechanically translated in about $T_{mech} \approx 185$ms to its position. One acquisition cycle is depicted on Figure 3(a) and defined as follows: the shutter remains closed while the pump pulse burns 2 spectral holes in the Tm:YAG crystal at ±5MHz from the carrier frequency during 10ms (5ms per hole). The shutter then opens in 4ms, and a series of US pulses are emitted every $T_{US} = 0.1$ms while the sample is continuously illuminated by the probe beam. The shutter closes at the end of the cycle. The key parameter to quantify the imaging efficiency is n_p, the number of US pulses emitted per cycle. In the case of SHB, the 8ms lifetime allows only $n_p = 5$ pulses per cycle, above which the exponential decay of the hole transmission degrades the signal. In the case of PSHB, the hole lifetime is 3 orders of magnitude longer, allowing for a commensurate increase of n_p, e.g. $n_p = n_{avg}$ for the following images. Figure 3(b) shows the decay of the recorded tagged photons when the pump beam is blocked at $t = 0$. After a rapid 25% decay due to partial storage in the metastable level, the filter transmission loses another 20% in 10s, which is consistent with the 35s spectral hole lifetime measured using independent time-resolved spectroscopy. Tagged photons are attenuated by a factor

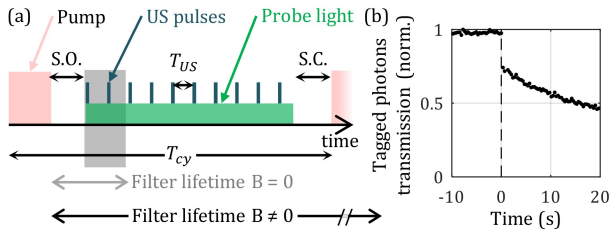

Fig. 3. (a) Pulse cycle for UOT. The pump pulse (red) creates the 2 spectral holes at the tagged photons frequency. The simultaneous ultrasound pulse (blue) and probe light (green) create the tagged photons at T_{US} repetition period. When $B = 0$, only the 5 first US pulses are exploitable due to the short filter lifetime (gray area). SO: shutter opening, SC: shutter closing. (b) Transmission of the normalized tagged photons.

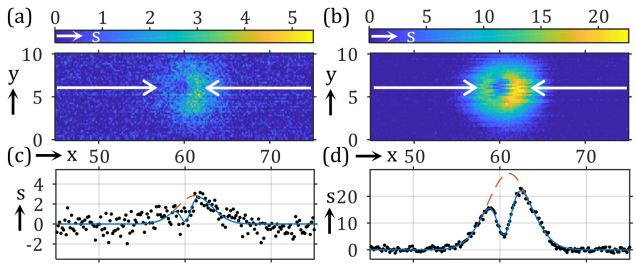

Fig. 4. UOT image of sample 1 ($\mu_S' = 1\ cm^{-1}$) (a) with a spectral hole (no magnetic field) and (b) with a persistent hole (234G magnetic field). Each image is averaged 100 times. (c) and (d) are the profiles along the white arrows in images (a) and (b) respectively. Black dots: data, blue line: fit, red dashed line: Gaussian fit (see text for details), x: longitudinal coordinates (mm), y: transverse coordinates (mm) and s: transmitted light detected by the APD (mV).

of -20dB, which is 6dB less than untagged light. One cycle lasts $T_{cy} = 100ms$ as set by the shutter repetition rate, allowing a faster frame rate than in the case of a cycle with a period equal to the hole lifetime. At the end of each cycle, data are transferred to the computer. One cycle will be repeated $n_{cy} = n_{avg}/n_p$ times to reach n_{avg} averaging for each line.

We first image sample 1 to study the effect of the magnetic field on the imaging performance. SHB and PSHB images are respectively shown on Figure 4(a) and (b), with each line averaged n_{avg} =100 times. The first striking result is that $T_{acq}^{SHB} = 8.5$min are required to generate an image using SHB while this time is reduced to $T_{acq}^{PSHB} = 30$s in the case of PSHB. Since data are in the present case digitized after each cycle, which is time consuming especially for high n_{cy}, for a fair comparison we calculate the relevant time dedicated to imaging only. It fundamentally reduces to $T_{img} = (T_{mech} + n_{cy}T_{cy})n_l$ and gives a duration of $T_{img}^{SHB} = 111$s ($n_{cy} = 20$) and $T_{img}^{PSHB} = 14$s ($n_{cy} = 1$). Hence the number n_p of successive US pulses which can be emitted without refreshing the hole is crucial for fast acquisition. The delay T_{mech} remains nonetheless a limiting time and could be reduced using a transducer array to perform electronic rather that mechanical scanning in the transverse direction, e.g. one US pulse every $T_{US} = 0.5$ms and $T_{mech} = 0$. The acquisition time would then be shorten by $T_{mech} \cdot n_l = 185\text{ms} \cdot 51 = 9$s.

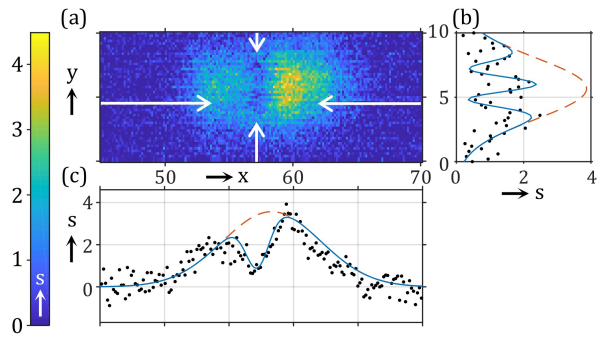

Fig. 5. Imaging resolution with persistent SHB (a) Image of sample 2, averaged 200 times. (b) Profile along $x = 57mm$. (c) Profile along $y = 4.4mm$. Black dots: data, blue line: fit, red dashed line: Gaussian fit (see text for details), x: longitudinal coordinates (mm), y: transverse coordinates (mm) and s: transmitted light detected by the APD (mV).

The second striking result is that the contrast-to-noise ratio (CNR) of the inclusion increases from 3.3±0.6 for SHB to 32±0.7 for PSHB. This is due to a tenfold improvement of the spectral holes transmission. Therefore, with this experiment, we demonstrate the double benefit of PSHB filter in terms of hole depth (resulting in an increase of the tagged photon signal) and imaging speed.

In a second experiment, we evaluate the spatial imaging resolution of our PSHB-UOT setup. In Figure 5, we show a UOT image of sample 2, averaged over 200 single images corresponding to $T_{acq}^{PSHB} = 47s$ acquisition time. The inclusions are clearly visible despite a modest CNR (7.5 ± 0.4). This CNR is mainly limited by the strong scattering coefficient of sample 2 (μ_s'=10cm^{-1}), leading to a lower signal collection compared to sample 1. The image is fitted with a wide 2D-Gaussian function representing the beam envelope minus a pair of narrower 2D-Gaussian functions for the inclusions (same method used for Fig. 4). We obtain a FWHM size (1.8±0.2mm)^2, significantly larger than the (0,5mm)^2 initial inclusions size at the time of fabrication. This is essentially explained by the finite US resolution (0.6mm) and by the possible uncontrolled diffusion of the ink inside the gel due to chemical similarity of the inclusions and the surrounding gel. In spite of a modest CNR, this experiment validates the possibility of using Tm:YAG PSHB filter to image millimeter-sized inclusions in strongly scattering samples.

The performance of this proof of principle is mostly limited by technical issues. Indeed, in addition to switching to an ultrasound probe array to reduce the scanning time, one can improve the CNR by increasing the light probe power within the medical safety limit [25] and anti-reflection-coated cryostat windows and crystal. Furthermore, a larger pump power and a more absorbing Tm:YAG crystal would lead to a deeper spectral hole, and a larger CNR. Finally, although the *etendue* of our setup is close to the state of the art [17], it could still be improved by using a cryostat with better optical access.

In summary, we have conducted the first experimental demonstration of UOT imaging using a filter based on PSHB in Tm:YAG, by applying a magnetic field on the crystal maintained at 2K. Our experiment performed on scattering phantom gels shows the possibility to perform *in vivo* cm-depth imaging of scattering tissues at 793nm. Indeed, compared to anterior demonstrations deeper spectral holes increases the number of detected tagged photons by a factor 10, leading to a larger CNR. In addition, the extended hole lifetime allows up to 40 times more acquisitions per refreshing cycle. Our work therefore opens the possibility of UOT imaging at video rate. Such a probe will be integrated in our future UOT setup where Tm:YAG PSHB detection will be tested on actual living tissues.

Funding. ITMO Cancer AVIESAN MALT project (C16027HS); CNRS (Défi Instrumentation aux Limites 2016); LABEX WIFI (ANR-10-LABX-24 and ANR-10-IDEX-0001-02 PSL*).

References

1. R. Choe, S. D. Konecky, A. Corlu, K. Lee, T. Durduran, D. R. Busch, S. Pathak, B. J. Czerniecki, J. Tchou, D. L. Fraker, A. DeMichele, B. Chance, S. R. Arridge, M. Schweiger, J. P. Culver, M. D. Schnall, M. E. Putt, M. A. Rosen, and A. G. Yodh, *J. Biomed. Opt.*, **14**, 24020 (2009).
2. L. V. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 043903 (2001).
3. J. Gunther and S. Andersson-Engels, *Front. Optoelectron*. **10**, 211–238 (2017).
4. A. Walther, L. Rippe, L. V. Wang, S. Andersson-Engels, and S. Kröll, *Biomed. Opt. Express* **8**, 4523 (2017).
5. G. D. Mahan, W. E. Engler, J. J. Tiemann, and E. Uzgiris, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **95**, 14015–14019 (1998).
6. J.-B. Laudereau, E. B. à la Guillaume, V. Servois, P. Mariani, A. A. Grabar, M. Tanter, J.-L. Gennisson, F. Ramaz, *J. Biophotonics* **8**, 429–436 (2015).
7. B. Jayet, J.-P. Huignard, and F. Ramaz, *Opt. Express* **22**, 20622 (2014).
8. M. Gross, P. Goy, B. C. Forget, M. Atlan, F. Ramaz, A. C. Boccara, A. K. Dunn, *Opt. Lett.* **30**, 1357–1359 (2005).
9. G. Rousseau, A. Blouin, and J.-P. Monchalin, *Opt. Lett.* **34**, 3445 (2009).
10. R. Richards-Kortum and E. Sevick-Muraca, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **47**, 555–606 (1996).
11. Y. Li, H. Zhang, C. Kim, K. H. Wagner, P. Hemmer, and L. V. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 11111 (2008).
12. X. Xu, S.-R. Kothapalli, H. Liu, and L. V. Wang, *J. Biomed. Opt.* **15** 66018-66018-5 (2010).
13. J. W. Tay, P. M. Ledingham, and J. J. Longdell, *Appl. Opt.* **49**, 4331–4334 (2010).
14. G. Armagan, A. M. Buoncristiani, and B. Di Bartolo, *Opt. Mater.* **1**, 11–20 (1992).
15. W. E. Moerner, *Persistent Spectral Hole-Burning: Science and Applications*. Springer Science & Business Media (2012).
16. K. Holliday, M. Croci, E. Vauthey, and U. P. Wild, *Phys. Rev. B* **47**, 14741–14752 (1993).
17. H. Zhang, M. Sabooni, L. Rippe, C. Kim, S. Kröll, L. V. Wang, and P. R. Hemmer, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 131102 (2012).
18. A. Kinos, Q. Li, L. Rippe, and S. Kröll, *Appl. Opt.* **55**, 10442 (2016).
19. F. de Seze, A. Louchet, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and P. Goldner, *Phys. Rev. B* **73**, 085112 (2006).
20. N. Ohlsson, M. Nilsson, and S. Kröll, R.K.Mohan *Optics Letters* **28**, 450-452 (2002).
21. L. Veissier, C. W. Thiel, T. Lutz, P. E. Barclay, W. Tittel, and R. L. Cone, *Phys. Rev. B* **94**, 205133 (2016).
22. R. L. Ahlefeldt, M. F. Pascual-Winter, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët, *Phys. Rev. B* **92**, 094305 (2015).
23. V. Crozatier, F. de Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët, *Opt. Commun.* **241**, 203–213 (2004).
24. D. Grosenick, H. Wabnitz, K. T. Moesta, J. Mucke, P. M. Schlag, and H. Rinneberg, *Phys. Med. Biol.* **50**, 2451–2468 (2005).
25. *Sécurité des appareils à laser – Partie 1 : classification des matériels – Prescription et guide de l'utilisateur*, AFNOR NF EN 608251-1 (1994).

C.2 Deep and persistent spectral holes in thulium-doped yttrium orthosilicate for imaging applications

Le cristal de Tm^{3+} : Y_2SiO_5 a été peu étudié car il n'est pas bien adapté aux applications liées à l'information quantique. En effet il est très sensible aux fluctuations du champ magnétique et présente donc un faible temps de cohérence. Néanmoins le cristal est très absorbant à 791 nm grâce à la conjonction entre son faible élargissement inhomogène (Γ_{inh} = 2,6 GHz et 4,5 GHz respectivement pour les sites de substitution 1 et 2) et le peu de sites cristallographiques de substitution. Par exemple, pour un dopage donné, le coefficient d'absorption dans le Tm : YSO est sept fois plus grand que dans le Tm : YAG. La largeur homogène des trous spectraux est inférieure au MHz. En conséquence, de grandes dynamiques de filtrage pourraient être accessibles.

Nous résumons ici les résultats principaux de l'article [214] que le lecteur trouvera dans les pages suivantes. Nous avons étudié le cristal de Tm : YSO par creusement de trou spectral en vue d'une application de filtrage pour l'imagerie acousto-optique. Les paramètres clés du filtre sont son contraste et son temps de vie. Nous avons mesuré un coefficient d'absorption par unité de concentration en dopant (%) du cristal de 110 $cm^{-1}/\%$ selon l'axe D_2. Nous avons identifié un mécanisme de creusement spectral transitoire d'une durée de 740 µs que nous attribuons à du stockage des populations atomiques excitées dans le niveau métastable $^3F_4$. Sous champ magnétique, nous avons mis en évidence une interaction Zeeman nucléaire exacerbée dans les états électroniques fondamentaux et excités. Les tenseurs gyromagnétiques correspondants ont été partiellement caractérisés dans le plan (D_1, D_2) de la matrice cristalline. Malgré notre étude incomplète, nous avons trouvé une configuration du champ magnétique permettant d'avoir à la fois des trous spectraux persistants (temps de vie supérieurs à la seconde) et profonds. Le long temps de vie permet de diminuer le temps dédié rafraîchissement du filtre en faveur de celui dédié à l'imagerie. Une augmentation de la profondeur des trous améliore le contraste du filtre. Enfin nous avons estimé quels sont les paramètres idéaux (concentration du dopage, épaisseur du cristal, puissance laser, paramètre de la création de trous spectraux) pour réaliser un filtre spectral avec un cristal de Tm : YSO. Ce matériau est effectivement prometteur pour l'imagerie acousto-optique.

Deep and persistent spectral holes in thulium-doped yttrium orthosilicate for imaging applications

C. Venet,[1,2] B. Car,[2] L. Veissier,[2] F. Ramaz,[1] and A. Louchet-Chauvet[2,*]
[1]*Institut Langevin, ESPCI Paris, CNRS UMR7587, PSL Research University, 1 rue Jussieu, 75005 Paris, France*
[2]*Laboratoire Aimé Cotton, CNRS UMR 9188, Université Paris-Sud, ENS-Cachan, Université Paris-Saclay, 91405 Orsay, France*

(Received 21 December 2018; revised manuscript received 15 February 2019; published 1 March 2019)

With their optical wavelength in the near infrared (790–800 nm) and their unique spectroscopic properties at cryogenic temperatures, thulium-doped crystals are at the center of many architectures linked to classical signal processing and quantum information. In this work, we focus on Tm-doped YSO, a compound that was left aside in the mid-1990s due to its rather short optical coherence lifetime. By means of time-resolved hole-burning spectroscopy, we investigate the anisotropic enhanced nuclear Zeeman effect and demonstrate deep, sub-MHz, persistent spectral hole burning under specific magnetic field orientation, and magnitude. By estimating the experimental parameters corresponding to a real-scale ultrasound optical tomography setup using Tm:YSO as a spectral filter, we validate Tm:YSO as a promising compound for medical imaging in the human body.

DOI: 10.1103/PhysRevB.99.115102

I. INTRODUCTION

Rare-earth-doped compounds have been attracting growing attention over the past three decades due to the exceptional spectroscopic properties they display at cryogenic temperature. They are characterized by the combination of a broad inhomogeneous absorption line and a narrow homogeneous width, leading to spectral holeburning and photon echo capacity. These compounds are particularly versatile since there are numerous host-dopant combinations leading to a wide variety of spectroscopic properties [1,2]. First considered as possible materials for optical data storage [3], they became the cornerstone of many signal processing architectures, including spectral analysis and processing of optically carried radiofrequency signals [4,5]. The attention is even greater today as they are considered for quantum information storage and quantum technology challenges [6,7]. This huge research effort at the international scale has driven the search for the perfect compound over the last 20 years, with a strong focus on demonstrating long optical and spin coherence lifetimes [8].

Nevertheless, propositions using rare-earth doped materials have been made recently addressing new applications, including laser stabilization for optical clocks [9] and spectral filtering for *in vivo* medical imaging [10]. In these domains, the performance criteria can strongly differ from that of signal processing or quantum memory architectures. It is therefore appealing to reconsider some rare-earth-doped compounds in the light of these new paradigms.

Let us focus on spectral filtering, and more specifically, on ultrasound optical tomography, where rare-earth based spectral filters can be used to isolate the signal of interest [10]. These spectral filters are particularly relevant for medical purposes because they are intrinsically immune to speckle decorrelation, allowing for *in vivo* imaging. For these applications, the operation wavelength (determined by the dopant) must be in the optical therapeutic window (650–1000 nm) where the absorbance of living tissues is minimized [11]. In this wavelength range, only Nd-, Yb-, Ho-, and Tm-doped compounds are available. Up to now, the only ultrasound optical tomography demonstrations in the optical therapeutic window using a rare-earth-doped crystal as a spectral filter involve the Tm^{3+} ion with its $^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$ transition around 790–800 nm, and more specifically Tm-doped YAG [10,12]. Praseodymium-based filters have also been demonstrated [13], but their 606-nm operation wavelength is not compatible with medical imaging because of the absorbance of hemoglobin. The choice of Tm:YAG over the many other possible Tm-doped compounds is justified by the abundant literature on this material [1, and references therein], mainly driven by research towards signal processing and quantum memories. However, for ultrasound optical tomography, coherence lifetimes are not crucial parameters, whereas the contrast and lifetime of the spectral holes are paramount to allow large filtering contrast and maximize the duty cycle dedicated to imaging [12].

Among the other possible candidates (Tm:YSO, Tm:YGG, Tm:LuAG, Tm:LaF_3, Tm:$LiNbO_3$,...), Tm:YSO (yttrium orthosilicate Y_2SiO_5) is the crystal where the optical inhomogeneous linewidth is narrowest [1]: $\Gamma_{inh} = 2.6$ GHz and 4.5 GHz for sites 1 and 2, respectively. This line narrowness combined with the low number of crystallographic substitution sites results in a large absorption coefficient. As an example, for a given doping concentration, the absorption coefficient in Tm:YSO is seven times larger than in YAG. This is interesting for ultrasound optical tomography since large filtering dynamics are needed, and a minimal inhomogeneous linewidth of only a few tens of MHz is necessary. Tm:YSO was left aside from quantum information applied research mainly due to the proximity of the nearest Stark level in the electronic ground state $^3H_6$ (around 13 cm^{-1} and 1.6 cm^{-1} for sites 1

*anne.louchet-chauvet@u-psud.fr

 ©2019 American Physical Society

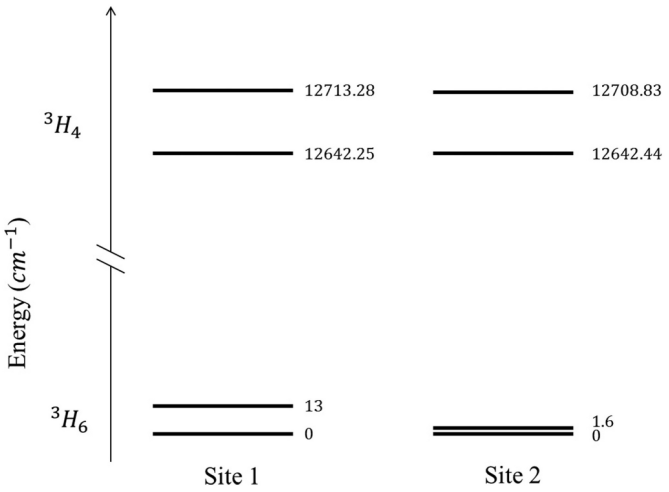

FIG. 1. Energy level diagram for sites 1 and 2 of Tm:YSO (as measured by Equall [15]).

and 2, respectively) (see Fig. 1). These close-by Stark levels induce an enhanced nuclear magnetic moment [14], which results in a strong sensitivity to magnetic fluctuations and therefore to low optical coherence lifetimes in both sites ($T_2 = 4.8\,\mu$s and $1.3\,\mu$s) [15]. The minimal spectral hole width being given by $2/\pi T_2$, such coherence lifetimes still make 1-MHz-wide spectral holes possible. Therefore Tm:YSO may still be compatible with ultrasound optical tomography.

Overall, the narrow optical absorption line, the low number of sites, and the MHz-wide spectral holes make Tm:YSO a promising compound for ultrasound optical tomography applications. However, persistent spectral holeburning with high contrast has yet to be demonstrated to consider Tm:YSO as a valid substitute for Tm:YAG for this application.

With its even number of electrons, Tm^{3+} is a non-Kramers ion. When it is placed in a low symmetry environment, the electronic level degeneracy can be totally lifted by the crystal field [14]. The only natural isotope ^{169}Tm exhibits a $I = 1/2$ nuclear spin. Therefore the two nuclear states are degenerate in the absence of external magnetic field due to the quenching of the total electronic angular momentum J. One way to create a persistent spectral hole in such a system is to apply a magnetic field to split the ground state, and use one of these ground states as a storage level. This has been done successfully in Tm:YAG [16]. In that respect, Tm strongly differs from all the other non-Kramers rare-earth ions that exhibit a quadrupole structure at zero magnetic field ($I = 3/2$ or higher, and particularly $I = 5/2$ in Pr^{3+} and both isotopes of Eu^{3+}).

The first section of this paper is devoted to the description of the experimental setup. In the second section, we present absorption and holeburning measurements in Tm:YSO without a magnetic field, and observe transient storage in the metastable state. In the third section, we study the effect of an external magnetic field on the holeburning relaxation dynamics, and evidence deep and persistent spectral holes. Finally, we extrapolate the experimental results to evaluate the potential of Tm:YSO for realistic imaging applications.

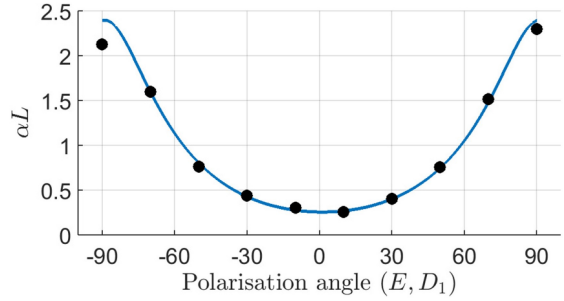

FIG. 2. Absorption vs polarization.

II. EXPERIMENTAL DETAILS

The work reported in this paper is based on experimental work using a 0.1% at. Tm:YSO crystal (Scientific Materials). The crystal is cooled down to 2.1 K in a liquid helium cryostat from ICE Oxford equipped with AR-coated windows. The crystal is held in helium vapor above the superfluid liquid helium surface. It is mounted on an Attocube ANRv51 rotator. The crystal is cut in such a way that the b axis coincides with the rotation axis and the light propagation direction. Its thickness along the propagation direction is 2 mm.

The crystal orientation in the laboratory frame can be measured optically by finding the principal axes direction, which gives an angular accuracy of a few degrees. The light polarization is linear and parallel to D_2 unless stated otherwise. A vertical homogeneous magnetic field is applied using a 3 T superconducting Helmholtz coil pair in the sample space. When the crystal is rotated, the magnetic field spans the (D_1, D_2) plane. The field orientation is defined by the angle θ that it forms with the D_1 axis.

The optical pulse sequence is obtained from a free-running continuous-wave Toptica DLPro laser source emitting at 12642.25 cm^{-1} (i.e., 791 nm). This wavelength specifically addresses the Tm^{3+} ions in site 1. The light is amplified with a Toptica BoosTA tapered amplifier, and shaped with 110 MHz acoustooptic modulator (AOM, AA Opto-Electronic) driven by an arbitrary waveform generator (Tektronix AWG5004). The beam is loosely focused on a 200-μm diameter spot on the crystal, with a peak power of the order of 50 μW. The transmitted light is collected on an avalanche photodetector (Thorlabs APD110A).

III. SPECTROSCOPY WITH NO MAGNETIC FIELD

A. Absorption

We measure the optical depth αL along the $^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$ optical transition for various linear input polarization orientations in the (D_1, D_2) plane by performing an optical nutation experiment [17] and comparing the transmitted power at the beginning and end of the nutation signal (see Fig. 2). The crystal absorption varies by a factor of $\sim$10 when the polarization direction is rotated from D_1 to D_2. The absorption is maximal when the light is polarized along D_2.

In agreement with Equall's work [15], we measure an absorption coefficient per unit doping percentage of 110/cm/% along D_2. It is much larger than in Tm:YAG (16/cm/%). The

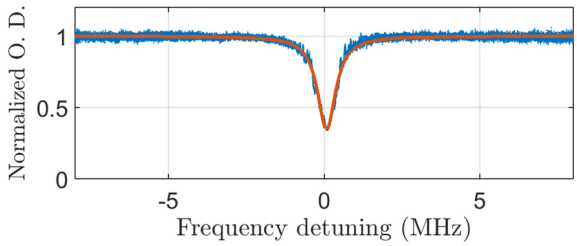

FIG. 3. Normalized optical depth of Tm:YSO 100 μs after burning a spectral hole, without a magnetic field. The red line is a Lorentzian function fitted to the data.

oscillator strength is [18]

$$f_{\mathrm{YSO}} = 1.9 \times 10^{-8}, \tag{1}$$

significantly smaller compared to $f_{\mathrm{YAG}} = 8.3 \times 10^{-8}$ in YAG, but thanks to the low number of sites (two sites in YSO, compared to six sites in YAG) and the narrow inhomogeneous broadening, quite large opacities are accessible while keeping a low doping concentration and small crystal size.

B. Hole burning

We set up a holeburning sequence, composed as follows: first the crystal is pumped with a 5-ms-long monochromatic laser pulse. After a 100-μs waiting time, the hole is read out with an attenuated 400-μs pulse, frequency chirped over 20 MHz.

Figure 3 shows a spectral hole in the absorption profile of Tm:YSO measured with such a pulse sequence. The hole is present although the waiting time is significantly larger than the excited state lifetime (55 μs according to Ref. [15]), indicating that the atoms are briefly stored in another state which we assume is the intermediate $^3F_4$ state, often labeled as metastable. The hole shape is lorentzian, and its width is 705 kHz (FWHM), in excess compared to the limit imposed by the coherence lifetime $[2/(\pi T_2) = 133$ kHz$]$ due to saturation broadening.

By varying the waiting time up to 4 ms, we observe an exponential decay of the hole area (see Fig. 4), which we assign to the metastable level population decay $T_m = 740\,\mu$s. This lifetime is considerably shorter than the fluorescence lifetimes reported in more strongly doped Tm:YSO samples [19], suggesting that the decay is mostly nonradiative.

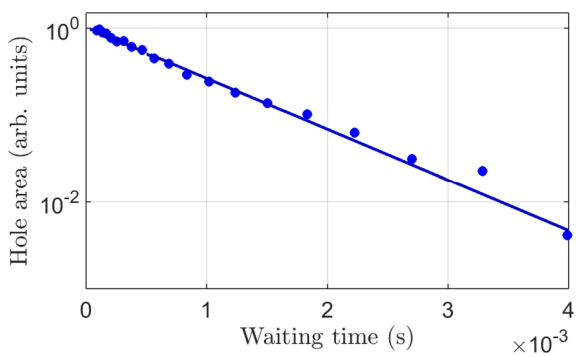

FIG. 4. Hole burning decay without magnetic field, revealing a 740 μs lifetime. The dots correspond to experimental data and the line to the exponential decay fit.

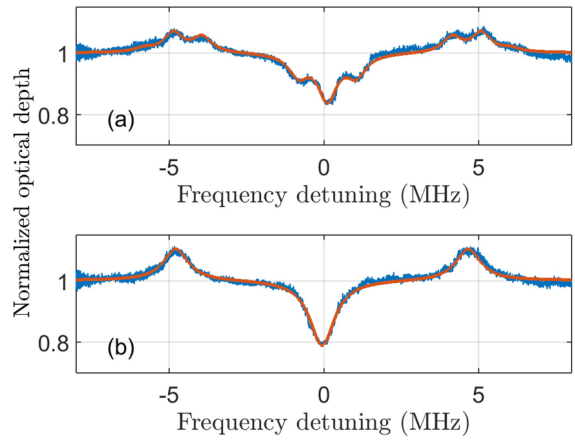

FIG. 5. Tm:YSO optical depth 2 ms after burning a spectral hole (a) with a 45 mT magnetic field 41° from the D_1 axis, (b) with a 6.6 mT magnetic field 330° from the D_1 axis. The red lines are sums of Lorentzian functions to guide the eye.

IV. SPECTRAL HOLEBURNING UNDER MAGNETIC FIELD

Applying a magnetic field on Tm-doped YSO splits each electronic level into a pair of Zeeman sublevels. We will note these splittings Δ_g and Δ_e (expressed in Hz), for the ground and excited states, respectively. We refer to these levels as Zeeman but the splitting mechanism is expected to include other interactions such as the second-order coupling between the electronic Zeeman interaction and the hyperfine interaction, resulting in a so-called *enhanced nuclear Zeeman interaction*. In a low symmetry site such as in YAG, this leads to strongly anisotropic Zeeman splittings in both electronic states $^3H_6$ and $^3H_4$, with maximum sensitivities in the ground state of the order of 400 MHz/T.

In YSO the substitution sites 1 and 2 have even lower symmetry (C_1). We expect a behavior of the Tm ion under magnetic field very similar to that in YAG. Due to the larger Stark splitting in the excited state (71 cm^{-1}), the enhancement of the nuclear Zeeman effect is expected to be smaller than in the ground state where the Stark splitting is only 13 cm^{-1}. Some spectroscopic studies under magnetic field in Tm:YSO were reported in Ref. [15], but the orientation was not known and the magnetic fields were very large (over 4 T).

For moderate ground state splittings ($\Delta_g \ll k_B T/h$), the initial population is equally distributed among the two ground state sublevels. Therefore we expect the monochromatic excitation to optically pump Tm ions out of the resonant ground Zeeman sublevel and accumulate them in the nonresonant one, leading to side holes and antiholes. A fraction of ions may still be stored in the metastable state and visible at small delays. Thus the holeburning spectrum evolves in two ways: extra features will appear on each side of the main hole, and this complex structure will exhibit multiple lifetimes.

Figure 5 shows holeburning spectra recorded 2 ms after shining a monochromatic pulse on the crystal, with a magnetic field in two different orientations in the (D_1, D_2) plane: $\theta =$

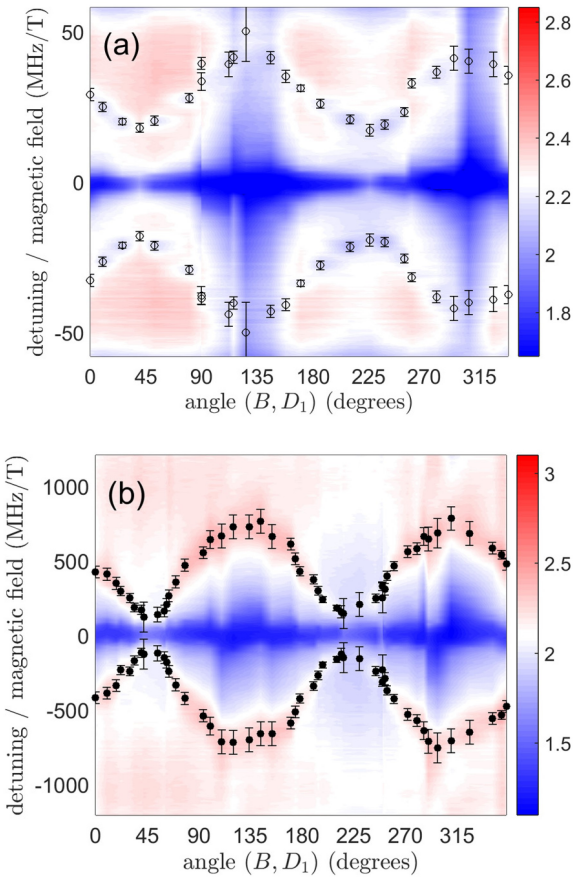

FIG. 6. Hole burning spectrograms with (a) $B = 170$ mT and (b) $B = 6.6$ mT, the magnetic field being rotated in the (D_1, D_2) plane. The colorscale represents the value of the optical depth αL. The positions of the side holes and antiholes are determined manually (without any fitting procedure) and drawn in the plot as a guide to the eye (open and closed circles, respectively). The error bars correspond to the uncertainty of the manual determination.

41° [Fig. 5(a)] and $\theta = 330°$ [Fig. 6(b)]. The positions of the holes and antiholes provide us with a direct measurement of the Zeeman splitting values [20]. In both experiments, the magnetic field is adjusted so that all the side structures are visible in the limited chirp range allowed by the AOM.

In Fig. 5(a) we observe two side holes and six antiholes. The side holes are located $\pm\Delta_e$ from the central hole. The six antiholes are located at positions $\pm(\Delta_g - \Delta_e)$, $\pm(\Delta_g)$, and $\pm(\Delta_g + \Delta_e)$. In Fig. 5(b) the side holes are not resolved and there are only two visible antiholes. As will be shown later, this is due to the small value of Δ_e with respect to Δ_g, leading to significant overlapping. Figures 5(a) and 5(b) are fitted with a sum of Lorentzian functions with 745 and 979 kHz FWHM, respectively.

Note that the magnetic field in Fig. 5(a) is seven times stronger than in Fig. 5(b). This anisotropic Zeeman effect is investigated in more detail in the following paragraph.

A. Anisotropy of the enhanced nuclear Zeeman effect

We perform holeburning spectroscopy for various magnetic field orientations in the (D_1, D_2) plane, by rotating the crystal around its b-axis. The chirp interval being limited by the AOM bandwidth, we adjust the magnetic field to keep the side structures visible. Due to the very large discrepancy between the ground and excited state splittings, we perform two independent series of measurements, with a low magnetic field to probe the ground state splitting and a larger magnetic field to probe the excited state splitting.

For the excited state we explore 25 magnetic field orientations with a $B = 170$ mT magnetic field and record the corresponding holeburning spectra. We plot these spectra together as a color plot in Fig. 6(a). The side holes are observed with positions varying between 18 and 42 MHz/T. For the ground state we explore 47 orientations with a $B = 6.6$ mT magnetic field and plot the various spectra as a color plot in Fig. 6(b). The side antiholes are found at magnetic sensitivities comprised between 120 and 800 MHz/T.

The splittings are one to two orders of magnitude larger than the pure nuclear Zeeman effect which, according to the ^{169}Tm nuclear magnetic moment $\mu = -0.2316\,\mu_N$, yields 3.5 MHz/T splittings in the ground and excited states. Therefore we evidence an enhanced nuclear Zeeman interaction in both electronic states.

The enhanced nuclear Zeeman interaction is characterized by its gyromagnetic tensor $\overline{\overline{\gamma}}$, so that the splittings in ground and excited states read as

$$\Delta_i = \|\overline{\overline{\gamma}}_i \cdot \vec{B}\|, \tag{2}$$

where $i \in \{g, e\}$ and $\vec{B}$ is the applied magnetic field vector with $\|\vec{B}\| = B$. The tensor's principal axes are not known, and they are not necessarily aligned with the crystal axes [21]. Complete gyromagnetic tensor characterization is beyond the scope of this paper. Nevertheless, we can derive effective gyromagnetic factors in the (D_1, D_2) plane, by writing

$$\Delta_i = \sqrt{\gamma_{i_x}^2 B_x^2 + \gamma_{i_y}^2 B_y^2}, \tag{3}$$

where x and y refer to a projection of the gyromagnetic tensor basis in the (D_1, D_2) plane. This projection is characterized by the angle θ_0 between the x axis and D_1, so that the previous equation now reads as

$$\Delta_i = B\sqrt{\gamma_{i_x}^2 \cos(\theta - \theta_0)^2 + \gamma_{i_y}^2 \sin(\theta - \theta_0)^2}. \tag{4}$$

We locate manually the hole and antihole positions and fit their angular behavior using Eq. (4) (see Fig. 7). The reference angle $\theta_0 = 41°$ derived from the fit is the same for both states. The antihole experimental data exhibit a slight asymmetry, indicating that the magnetic field does not lie exactly in the crystal rotation plane. We finally obtain the following effective gyromagnetic coefficients in the (D_1, D_2) plane:

$$\gamma_{g_x} = 120\,\text{MHz/T}, \qquad \gamma_{g_y} = 801\,\text{MHz/T}, \tag{5}$$

$$\gamma_{e_x} = 18\,\text{MHz/T}, \qquad \gamma_{e_y} = 42\,\text{MHz/T}. \tag{6}$$

These effective gyromagnetic coefficients have the same order of magnitude as the ones measured in Tm:YAG [20]. The anisotropy is perhaps a little weak ($\gamma_y/\gamma_x \simeq 7$ and 2 in the ground and excited states, respectively, to be compared to 20 and 5 for Tm:YAG), but this could simply be explained by the possibility that none of the principal axes of the gyromagnetic tensor lie in the (D_1, D_2) plane.

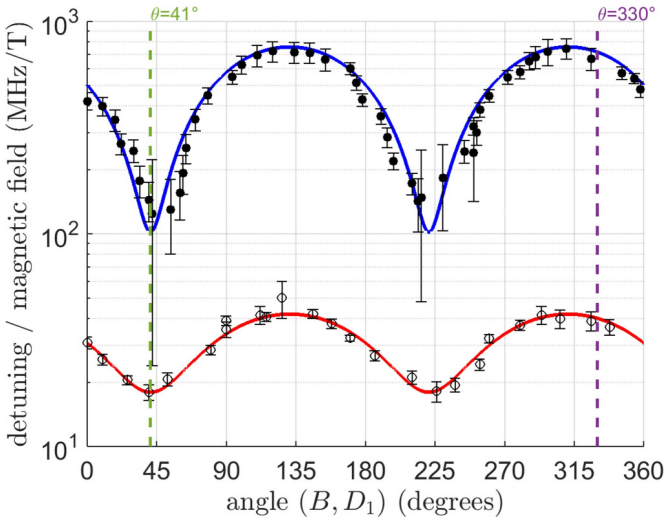

FIG. 7. Position sensitivity of side holes (open circles) and antiholes (closed circles). The red and blue lines represent a visual fit to the data using Eq. (4).

B. Hole lifetimes

With our 5-ms-long pumping step, significantly longer than the metastable level lifetime, we perform several optical pumping cycles and accumulate atoms in the nonresonant Zeeman ground level. We therefore expect a double exponential decay of the hole, with a fast component corresponding to the metastable state decay, and a slow decay related to population equalization in the two Zeeman sublevels of the ground states, described by the lifetime T_Z.

Given the gyromagnetic anisotropy in Tm:YSO, we expect the ground level lifetime T_Z to be strongly anisotropic. We focus on two orientations where the magnetic sensitivity of the ground state is close to its minimum or maximum, that is $\theta = 41^\circ$ and $\theta = 330^\circ$, corresponding to $\theta - \theta_0 = 0^\circ$ and $\theta - \theta_0 = 289^\circ$, respectively. In both cases we set the magnetic field such that the antihole lies ~5 MHz away from the central hole. This value is chosen to be of the order of the ultrasound frequencies for imaging in biological tissues (between 2 and 15 MHz). For comparison we also measure the hole decay with $\theta = 41^\circ$ but with an inadequate field value.

The spectral hole area evolution for waiting times between 2 ms and 2 s is shown in Fig. 8 and fitted with a single exponential decay e^{-t/T_Z}. The measured values of T_Z are summed up in Table I. The combination of $B = 6.6$ mT and large magnetic sensitivity ($\theta = 330^\circ$) leads to a persistent spectral hole, with a lifetime exceeding one second (1.6 ± 0.25 s). In the other magnetic field orientation, the Zeeman effect is seven times smaller, and intermediate storage times are observed (between 25 and 35 ms). The spin-lattice relaxation processes, and in particular, the direct process should, in principle, lead to a larger Zeeman lifetime for smaller magnetic sensitivity [22]. The inverse behavior observed here indicates the presence of a relaxation mechanism which is frozen out by the moderate applied magnetic field, in a similar way as what was observed for example in Nd:YVO_4 [23].

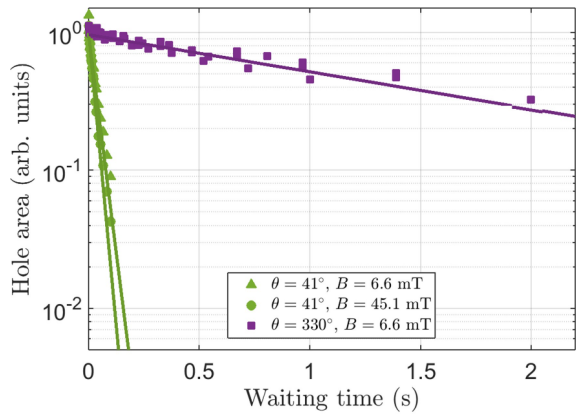

FIG. 8. Spectral hole decay for two magnetic field orientations in the (D_1, D_2) plane. The symbols correspond to experimental data and the lines to the exponential decay fit.

C. Burning deep holes in Tm:YSO

The spectral holes shown in Fig. 5 are obtained with a very small laser power and therefore the residual absorption is quite substantial ($\geqslant$80%). For ultrasound tomography, deep holes are necessary to ensure large filtering dynamics. Persistent spectral holes do not always guarantee that it is possible to burn deep holes. Indeed, the depth of a hole also depends on how efficiently one can transfer atoms from their initial state into the storage state. In the case where the storage state is reached by relaxation, the relaxation branching parameters are essential.

In Tm-doped crystals, the relaxation from the excited state follows two paths: one direct path to the ground state, and one indirect path via the levels $^3H_5$ and $^3F_4$. In Tm:YAG for example, the transfer between Zeeman states via optical pumping is quite efficient due to the prevalence of the indirect relaxation path. The long lifetime (~10 ms) of the metastable state $^3F_4$ then ensures a good mixing of the atomic states [24]. In Tm:YSO, measuring these branching parameters is not an easy task because the excited state lifetime (55 μs) is shorter than the usual holeburning sequence. Therefore, in this work, we directly demonstrate the burning of deep spectral holes.

We use a different sample holder with a fixed orientation, so that the magnetic field is now oriented with $\theta = 300^\circ$ with respect to D_1, which is still close to the maximum Zeeman sensitivity. The magnetic field is adjusted so that the antiholes are 4.4 MHz from the central hole. We verify the persistency of the hole in this configuration and obtain a hole lifetime of 1.36 s. We choose a 200-μs waiting time, and vary the burning pulse duration over more than 2 orders of magnitude.

TABLE I. Hole lifetimes in Tm:YSO under some magnetic field orientations and magnitudes at 2.1 K. These data correspond to the spectral hole decays plotted in Fig. 8.

θ (°)	B(mT)	Δ_g(MHz)	Δ_g/B(MHz/T)	T_Z(ms)
41	6.6	0.7	120	34 ± 1.5
41	45.1	4.6	120	26 ± 1
330	6.6	5.0	700	1612 ± 250

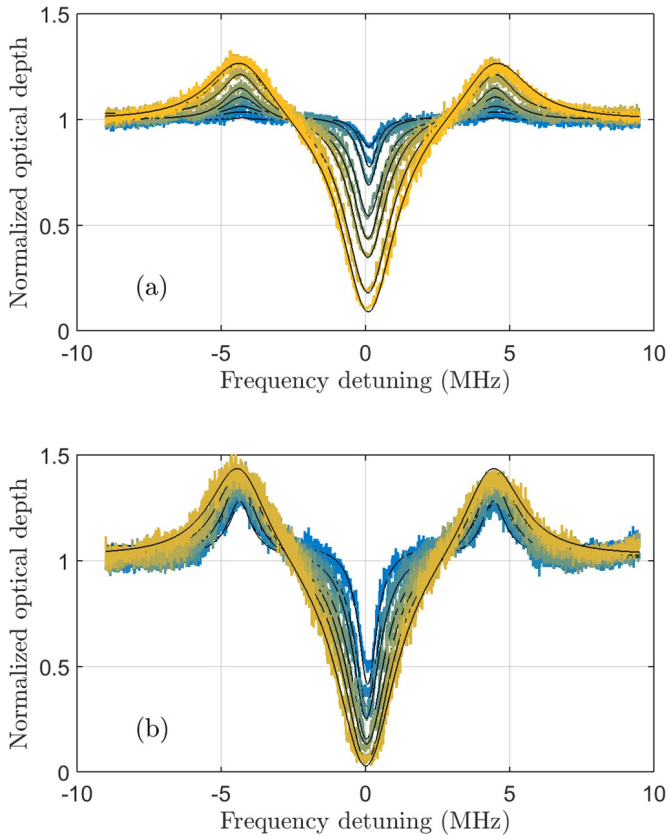

FIG. 9. (a) Spectral holes with burning pulse durations comprised between 50 μs and 10 ms. (b) Spectral holes with burning pulse durations comprised between 50 μs and 5 ms, repeated every 100 ms. In both graphs the experimental data are fitted with a sum of three Lorentzian functions (black lines). The optical depth is normalized with respect to the initial optical depth $\alpha L = 1.65$.

The incoming light power is 920 μW and the beam radius is 250 μm in the crystal.

Figure 9(a) shows the resulting spectral holes in the absorption profile. This profile is normalized with respect to the optical depth $\alpha_0 L = 1.65$, the laser being slightly detuned from the absorption peak for this experiment. As expected, the hole depth steadily increases with the burning pulse duration [see Fig. 10(a)], until the residual absorption at the center is only 10% of the initial absorption. The hole width also increases with the burning duration due to saturation, from 700 kHz up to 2.2 MHz [see Fig. 10(b)]. The position of the antiholes ± 5 MHz from the central hole actually limits this width to half the distance of the antiholes, i.e., 2.5 MHz, due to competing pumping and depumping processes in the two ground Zeeman sublevels.

D. Towards ultrasound optical tomography in Tm:YSO

We demonstrated deep, long-lived, sub-MHz spectral holes in Tm:YSO under magnetic field. This is very promising for implementing a spectral filter in a ultrasound optical tomography (UOT) setup. However, realistic UOT conditions require a quasistationary spectral hole shape over the acquisition time which can last several minutes while still allowing for a large duty cycle dedicated to imaging. UOT also requires

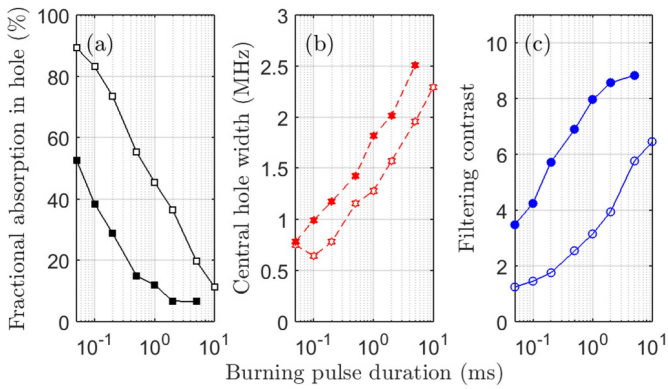

FIG. 10. Comparison of the spectral hole characteristics with respect to burning pulse duration and accumulation. (a) Fractional absorption at the bottom of the central hole. (b) Width of the central hole, derived from the Lorentzian fits in Fig. 9. (c) Filtering contrast between the center hole and a side antihole, using $\alpha L = 1.65$ as initial optical depth. In all three graphs, the open symbols correspond to the experiment using a single burning pulse, whereas the closed symbols correspond to the periodically repeated burning pulses.

a large pumping beam waist (of the order of 1 cm^2) to be compatible with large optical *étendue*, and a large filtering dynamic range, ideally above 30 dB.

To fully appreciate the potential of Tm:YSO as a spectral filter for UOT, we perform additional holeburning experiments, similar to those presented in Sec. IV C but with periodically repeated burning pulses every 100 ms. This way, the hole is refreshed when it has lost only 7% of its maximum size and can be considered as stationary. As shown in Figs. 9(b) and 10, the repetition of the burning pulses leads to deeper and wider spectral holes thanks to accumulated optical pumping. In particular, we reach as little as 6% residual absorption at the bottom of the central hole with repeated 5-ms pulses. In this configuration, only 5% of the duty cycle is occupied by the maintenance of the spectral hole, leaving the remaining 95% for imaging.

In a standard UOT experiment, the signal of interest is tuned to the minimum of absorption (the center of the hole). The carrier light (a few MHz away), on the other hand, undergoes the nominal absorption [10]. As already shown in Ref. [12], the dynamic range of the filter can be enhanced if the carrier light coincides with one of the antiholes where the absorption is enhanced. We define the filtering contrast as the ratio between the crystal transmission at the center of the main hole and the crystal transmission at the position of the antiholes. This filtering contrast is equal to 8.8 for the present value of $\alpha L = 1.65$, with repeated 5-ms pulses. This number can be easily increased by tuning the laser to the center of the line, and also by using a longer crystal or a larger doping concentration. We extrapolate the filtering contrasts for larger values of the crystal optical depth in Fig. 11, neglecting the absorption of the burning pulses through the crystal and assuming a uniform spectral hole over the crystal thickness. This assumption is supported by the small value of the residual absorption in the main hole. With a 0.1%-doped Tm:YSO sample three times longer (6 mm) and with a laser tuned exactly on resonance, we calculate a nominal optical depth

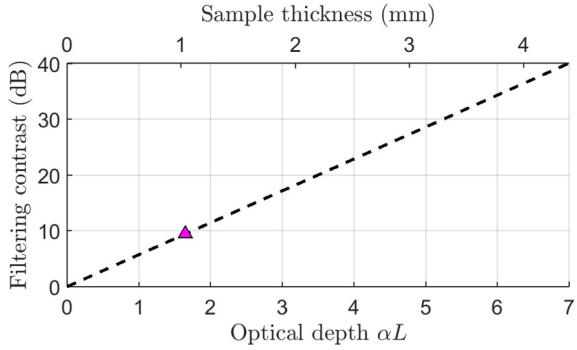

FIG. 11. Extrapolation of the filtering contrast, expressed in dB, as a function of the optical depth. The corresponding sample thickness is also shown in the top x-axis, considering a 0.1%-doped Tm:YSO sample and considering the laser tuned to the center of the inhomogeneous absorption line. The triangle shows the maximal experimental filtering contrast demonstrated in Fig. 9(b).

of $\alpha L = 6.6$ and expect a filtering contrast around 6000. The emblematic 30-dB limit should be reached with $\alpha L \simeq 5.5$.

Regarding the spatial extension of the spectral hole, the pumping rate is proportional to the optical irradiance expressed in $\mathrm{W/cm^2}$. Extending the beam size up to 1 cm in diameter (by a factor of 20) leads to a dramatic drop of the irradiance which can be compensated by increasing the laser power by a factor of 400, i.e., 370 mW. Such a laser power value is accessible with standard tapered amplifiers.

Although extrapolated and based on simple assumptions, these orders of magnitude show the promising potential of Tm:YSO as a spectral filter for UOT, with fully manageable laser power and crystal size.

V. CONCLUSION

We investigate Tm-doped YSO under magnetic field via holeburning spectroscopy. We find the input polarization configuration maximizing the absorption. We identify a transient holeburning mechanism lasting 740 μs that we assign to storage in the metastable state $^3F_4$. By applying an external magnetic field, we observe the anisotropic enhanced nuclear Zeeman effect and partly characterized the gyromagnetic tensor coefficients in the ground and excited states in the (D_1, D_2) plane of the YSO host. Although our study is far from exhaustive, we find a magnetic field configuration where Tm:YSO exhibits persistent spectral hole burning, with hole lifetimes longer than a second, and succeeded in burning deep spectral holes. Using our experimental results with a limited crystal optical depth we estimate the experimental parameters that would correspond to a real-scale ultrasound optical tomography setup, requiring a large hole contrast together with a wide beam radius, and establish that these parameters are accessible. Combined with the optical therapeutic window wavelength compatibility, the large absorption coefficient, the narrow inhomogeneous optical line, and the sub-MHz width of the spectral holes, these results confirm Tm:YSO as a promising compound for this application.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors acknowledge fruitful discussions with Thierry Chanelière and Philippe Goldner, as well as financial support from the MALT project (Grant No. C16027HS) from ITMO Cancer AVIESAN (Alliance Nationale pour les Sciences de la Vie et de la Santé, National Alliance for Life Sciences & Health) within the framework of the Cancer Plan.

[1] Y. C. Sun, *Rare Earth Materials in Optical Storage and Data Processing Applications*, edited by G. Liu and B. Jacquier, (Springer, Berlin, 2005), Vol. 83, Chap. 7, p. 379.
[2] C. W. Thiel, T. Böttger, and R. L. Cone, J. Lumin. **131**, 353 (2011).
[3] M. Mitsunaga, R. Yano, and N. Uesugi, Opt. Lett. **16**, 1890 (1991).
[4] W. R. Babbitt, Z. W. Barber, S. H. Bekker, M. D. Chase, C. Harrington, K. D. Merkel, R. K. Mohan, T. Sharpe, C. R. Stiffler, A. S. Traxinger, and A. J. Woidtke, Laser Phys. **24**, 094002 (2014).
[5] P. Berger, Y. Attal, M. Schwarz, S. Molin, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, J.-L. Le Gouët, D. Dolfi, and L. Morvan, J. Lightwave Technol. **34**, 4658 (2016).
[6] W. Tittel, M. Afzelius, T. Chanelière, R. L. Cone, S. Kröll, S. A. Moiseev, and M. J. Sellars, Laser Photonics Rev. **4**, 244 (2010).
[7] C. Simon, Nat. Photon. **11**, 678 (2017).
[8] M. Rančić, M.P. Hedges, R. L. Ahlefeldt, and M. J. Sellars, Nat. Phys. **14**, 50 (2018).
[9] M. J. Thorpe, L. Rippe, T. M. Fortier, M. S. Kirchner, and T. Rosenband, Nat. Photon. **5**, 688 (2011).
[10] Y. Li, H. Zhang, C. Kim, K. H. Wagner, P. Hemmer, and L. V. Wang, Appl. Phys. Lett. **93**, 011111 (2008).
[11] R. Richards-Kortum and E. Sevick-Muraca, Annu. Rev. Phys. Chem. **47**, 555 (1996).
[12] C. Venet, M. Bocoum, J.-B. Laudereau, T. Chanelière, F. Ramaz, and A. Louchet-Chauvet, Opt. Lett. **43**, 3993 (2018).
[13] H. Zhang, M. Sabooni, L. Rippe, C. Kim, S. Kröll, L. V. Wang, and P. R. Hemmer, Appl. Phys. Lett. **100**, 131102 (2012).
[14] A. Abragam and B. Bleaney, *Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions* (Oxford University Press, New York, 1970).
[15] R. W. Equall, Photon echo studies of rare-earth activated materials for optical memory and signal processing devices, Ph.D. thesis, Montana State University, 1995.
[16] A. Louchet, J. S. Habib, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Goldfarb, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and P. Goldner, Phys. Rev. B **75**, 035131 (2007).
[17] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two-Level Atoms* (Courier Dover Publications, New York, 1987).
[18] R. C. Hilborn, Am. J. Phys. **50**, 982 (1982).
[19] C. Li, J.-C. Souriau, and R. Moncorge, J. Phys. IV France **01**, C7-371 (1991).
[20] F. de Seze, A. Louchet, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and P. Goldner, Phys. Rev. B **73**, 085112 (2006).

[21] Y. Sun, T. Böttger, C. W. Thiel, and R. L. Cone, Phys. Rev. B **77**, 085124 (2008).
[22] R. Orbach, Proc. R. Soc. London A **264**, 458 (1961).
[23] S. R. Hastings-Simon, M. Afzelius, J. Minář, M. U. Staudt, B. Lauritzen, H. de Riedmatten, N. Gisin, A. Amari, A. Walther, S. Kröll, E. Cavalli, and M. Bettinelli, Phys. Rev. B **77**, 125111 (2008).
[24] R. L. Ahlefeldt, M. F. Pascual-Winter, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët, Phys. Rev. B **92**, 094305 (2015).

Bibliographie

[1] Cees Ronda, Herfried Wieczorek, Vasilii Khanin et Piotr Rodnyi. « Review : Scintillators for Medical Imaging : A Tutorial Overview ». In : *ECS Journal of Solid State Science and Technology* 5.1 (2016), R3121-R3125. doi : 10.1149/2.0131601jss.

[2] Martin T. Freitag, Jan P. Radtke, Boris A. Hadaschik, A. Kopp-Schneider, Matthias Eder, Klaus Kopka, Uwe Haberkorn, Matthias Roethke, Heinz-Peter Schlemmer et Ali Afshar-Oromieh. « Comparison of hybrid 68Ga-PSMA PET/MRI and 68Ga-PSMA PET/CT in the evaluation of lymph node and bone metastases of prostate cancer ». In : *European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging* 43.1 (1er jan. 2016), p. 70-83. doi : 10.1007/s00259-015-3206-3.

[3] Brige P. Chugh, Jason P. Lerch, Lisa X. Yu, Martin Pienkowski, Robert V. Harrison, R. Mark Henkelman et John G. Sled. « Measurement of cerebral blood volume in mouse brain regions using micro-computed tomography ». In : *NeuroImage* 47.4 (oct. 2009), p. 1312-1318. doi : 10.1016/j.neuroimage.2009.03.083.

[4] Yoganand Balagurunathan, Virendra Kumar, Yuhua Gu, Jongphil Kim, Hua Wang, Ying Liu, Dmitry B. Goldgof, Lawrence O. Hall, Rene Korn, Binsheng Zhao, Lawrence H. Schwartz, Satrajit Basu, Steven Eschrich, Robert A. Gatenby et Robert J. Gillies. « Test–Retest Reproducibility Analysis of Lung CT Image Features ». In : *Journal of Digital Imaging* 27.6 (déc. 2014), p. 805-823. doi : 10.1007/s10278-014-9716-x.

[5] Ruben T H M Larue, Gilles Defraene, Dirk De Ruysscher, Philippe Lambin et Wouter van Elmpt. « Quantitative radiomics studies for tissue characterization : a review of technology and methodological procedures ». In : *The British Journal of Radiology* 90.1070 (fév. 2017), p. 20160665. doi : 10.1259/bjr.20160665.

[6] Atul Padole, Ranish Deedar Ali Khawaja, Mannudeep K. Kalra et Sarabjeet Singh. « CT Radiation Dose and Iterative Reconstruction Techniques ». In : *American Journal of Roentgenology* 204.4 (avr. 2015), W384-W392. doi : 10.2214/AJR.14.13241.

[7] P. C. Lauterbur. « Image Formation by Induced Local Interactions : Examples Employing Nuclear Magnetic Resonance ». In : *Nature* 242.5394 (mar. 1973), p. 190. doi : 10.1038/242190a0.

[8] P Mansfield. « Multi-planar image formation using NMR spin echoes ». In : *Journal of Physics C : Solid State Physics* 10.3 (14 fév. 1977), p. L55-L58. doi : 10.1088/0022-3719/10/3/004.

[9] Dina V. Hingorani, Adam S. Bernstein et Mark D. Pagel. « A review of responsive MRI contrast agents : 2005-2014 ». In : *Contrast Media & Molecular Imaging* 10.4 (juil. 2015), p. 245-265. doi : 10.1002/cmmi.1629.

[10] Chien-Hsiang Huang, Chiao-Chi V. Chen, Tiing-Yee Siow, Sheng-Hsiou S. Hsu, Yi-Hua Hsu, Fu-Shan Jaw et Chen Chang. « High-Resolution Structural and Functional Assessments of Cerebral Microvasculature Using 3D Gas ΔR2*-mMRA ». In : *PLOS ONE* 8.11 (4 nov. 2013), e78186. doi : 10.1371/journal.pone.0078186.

[11] Oren N Jaspan, Roman Fleysher et Michael L Lipton. « Compressed sensing MRI : a review of the clinical literature ». In : *The British Journal of Radiology* 88.1056 (déc. 2015), p. 20150487. doi : 10.1259/bjr.20150487.

[12] Vijayalaxmi, Mahsa Fatahi et Oliver Speck. « Magnetic resonance imaging (MRI) : A review of genetic damage investigations ». In : *Mutation Research/Reviews in Mutation Research* 764 (avr. 2015), p. 51-63. doi : 10.1016/j.mrrev.2015.02.002.

[13] William H. Sweet. « The Uses of Nuclear Disintegration in the Diagnosis and Treatment of Brain Tumor ». In : *New England Journal of Medicine* 245.23 (6 déc. 1951), p. 875-878. doi : 10.1056/NEJM195112062452301.

[14] Paul E. Kinahan, Bruce H. Hasegawa et Thomas Beyer. « X-ray-based attenuation correction for positron emission tomography/computed tomography scanners ». In : *Seminars in Nuclear Medicine* 33.3 (juil. 2003), p. 166-179. doi : 10.1053/snuc.2003.127307.

[15] Johannes Czernin, Martin Allen-Auerbach et Heinrich R. Schelbert. « Improvements in Cancer Staging with PET/CT : Literature-Based Evidence as of September 2006 ». In : *Journal of Nuclear Medicine* 48.1 (1er jan. 2007), 78S-88S.

[16] Anastasia Chalkidou, Michael J. O'Doherty et Paul K. Marsden. « False Discovery Rates in PET and CT Studies with Texture Features : A Systematic Review ». In : *PLOS ONE* 10.5 (4 mai 2015). Sous la dir. de Daniel L Rubin, e0124165. doi : 10.1371/journal.pone.0124165.

[17] Matthias Hofmann, Bernd Pichler, Bernhard Schölkopf et Thomas Beyer. « Towards quantitative PET/MRI : a review of MR-based attenuation correction techniques ». In : *European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging* 36 (S1 mar. 2009), p. 93-104. doi : 10.1007/s00259-008-1007-7.

[18] Stefaan Vandenberghe et Paul K Marsden. « PET-MRI : a review of challenges and solutions in the development of integrated multimodality imaging ». In : *Physics in Medicine and Biology* 60.4 (21 fév. 2015), R115-R154. doi : 10.1088/0031-9155/60/4/R115.

[19] Karl Theo Dussik. « Über die Möglichkeit, hochfrequente mechanische Schwingungen als diagnostisches Hilfsmittel zu verwerten ». In : *Zeitschrift für die gesamte Neurologie und Psychiatrie* 174.1 (1er déc. 1942), p. 153-168. doi : 10.1007/BF02877929.

[20] Abid Haleem et Mohd. Javaid. « 3D scanning applications in medical field : A literature-based review ». In : *Clinical Epidemiology and Global Health* (mai 2018). doi : 10.1016/j.cegh.2018.05.006.

[21] Vidya K Sudarshan, Muthu Rama Krishnan Mookiah, U Rajendra Acharya, Vinod Chandran, Filippo Molinari, Hamido Fujita et Kwan Hoong Ng. « Application of wavelet techniques for cancer diagnosis using ultrasound images : A Review ». In : *Computers in Biology and Medicine* 69 (fév. 2016), p. 97-111. doi : 10.1016/j.compbiomed.2015.12.006.

[22] Claudia Errico, Juliette Pierre, Sophie Pezet, Yann Desailly, Zsolt Lenkei, Olivier Couture et Mickael Tanter. « Ultrafast ultrasound localization microscopy for deep super-resolution vascular imaging ». In : *Nature* 527.7579 (nov. 2015), p. 499-502. doi : 10.1038/nature16066.

[23] Food et Drug Administration (FDA). *Information for Manufacturers Seeking Marketing Clearance of Diagnostic Ultrasound Systems and Transducers 2008*. 9 oct. 2008. url : https://www.fda.gov/do (visité le 07/03/2019).

[24] M. Tanter et M. Fink. « Ultrafast imaging in biomedical ultrasound ». In : *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* 61.1 (jan. 2014), p. 102-119. doi : 10.1109/TUFFC.2014.2882.

[25] Qinghua Huang et Zhaozheng Zeng. « A Review on Real-Time 3D Ultrasound Imaging Technology ». In : *BioMed Research International* 2017 (2017), p. 1-20. doi : 10.1155/2017/6027029.

[26] Christian Poelma. « Ultrasound Imaging Velocimetry : a review ». In : *Experiments in Fluids* 58.1 (jan. 2017). doi : 10.1007/s00348-016-2283-9.

[27] Thomas L. Szabo. *Diagnostic Ultrasound Imaging : Inside Out*. Academic Press, 21 sept. 2004. 585 p. isbn : 978-0-12-680145-3.

[28] Michael L. Oelze et Jonathan Mamou. « Review of Quantitative Ultrasound : Envelope Statistics and Backscatter Coefficient Imaging and Contributions to Diagnostic Ultrasound ». In : *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* 63.2 (fév. 2016), p. 336-351. doi : 10.1109/TUFFC.2015.2513958.

[29] Francis A Duck. « Nonlinear acoustics in diagnostic ultrasound ». In : *Ultrasound in Medicine & Biology* 28.1 (1er jan. 2002), p. 1-18. doi : 10.1016/S0301-5629(01)00463-X.

[30] Jorgen A. Jensen, Svetoslav Nikolov, Alfred C.H. Yu et Damien Garcia. « Ultrasound Vector Flow Imaging : I : Sequential Systems ». In : *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* (2016), p. 1-1. doi : 10.1109/TUFFC.2016.2600763.

[31] Jorgen Arendt Jensen, Svetoslav Ivanov Nikolov, Alfred C. H. Yu et Damien Garcia. « Ultrasound Vector Flow Imaging—Part II : Parallel Systems ». In : *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* 63.11 (nov. 2016), p. 1722-1732. doi : 10.1109/TUFFC.2016.2598180.

[32] Armen P Sarvazyan, Oleg V Rudenko, Scott D Swanson, J.Brian Fowlkes et Stanislav Y Emelianov. « Shear wave elasticity imaging : a new ultrasonic technology of medical diagnostics ». In : *Ultrasound in Medicine & Biology* 24.9 (déc. 1998), p. 1419-1435. doi : 10.1016/S0301-5629(98)00110-0.

[33] Maudy Gayet, Anouk van der Aa, Harrie P. Beerlage, Bart Ph. Schrier, Peter F.A. Mulders et Hessel Wijkstra. « The value of magnetic resonance imaging and ultrasonography (MRI/US)-fusion biopsy platforms in prostate cancer detection : a systematic review ». In : *BJU International* 117.3 (mar. 2016), p. 392-400. doi : 10.1111/bju.13247.

[34] Ali Işin, Cem Direkoğlu et Melike Şah. « Review of MRI-based Brain Tumor Image Segmentation Using Deep Learning Methods ». In : *Procedia Computer Science* 102 (2016), p. 317-324. doi : 10.1016/j.procs.2016.09.407.

[35] LiteCure. *Photobiomodulation Glossary*. LiteCure. 22 jan. 2018. url : http://www.litecure.com/about- (visité le 16/10/2018).

[36] Rebecca Richards-Kortum et Eva Sevick-Muraca. « Quantitative Optical Spectroscopy for Tissue Diagnosis ». In : *Annual Review of Physical Chemistry* 47.1 (1996), p. 555-606. doi : 10.1146/annurev.physchem.47.1.555.

[37] Akira Ishimaru. *Wave Propagation and Scattering in Random Media*. 2 t. Elsevier, 1978. isbn : 978-0-12-374701-3. doi : 10.1016/B978-0-12-374701-3.X5001-7.

[38] W. F. Cheong, S. A. Prahl et A. J. Welch. « A review of the optical properties of biological tissues ». In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26.12 (déc. 1990), p. 2166-2185. doi : 10.1109/3.64354.

[39] Steven L Jacques. « Optical properties of biological tissues : a review ». In : *Physics in Medicine and Biology* 58.11 (7 juin 2013), R37-R61. doi : 10.1088/0031-9155/58/11/R37.

[40] Tuan Vo-Dinh, éd. *Biomedical photonics handbook*. Boca Raton, Fla : CRC Press, 2003. 1 p. isbn : 978-0-8493-1116-1.

[41] Dirk Grosenick, Heidrun Wabnitz, K Thomas Moesta, Jörg Mucke, Peter M Schlag et Herbert Rinneberg. « Time-domain scanning optical mammography : II. Optical properties and tissue parameters of 87 carcinomas ». In : *Physics in Medicine and Biology* 50.11 (7 juin 2005), p. 2451-2468. doi : 10.1088/0031-9155/50/11/002.

[42] Regine Choe, Soren D. Konecky, Alper Corlu, Kijoon Lee, Turgut Durduran, David R. Busch, Saurav Pathak, Brian J. Czerniecki, Julia Tchou, Douglas L. Fraker, Angela DeMichele, Britton Chance, Simon R. Arridge, Martin Schweiger, Joseph P. Culver, Mitchell D. Schnall, Mary E. Putt, Mark A. Rosen et Arjun G. Yodh. « Differentiation of Benign and Malignant Breast Tumors by In-Vivo Three-Dimensional Parallel-Plate Diffuse Optical Tomography ». In : *Journal of biomedical optics* 14.2 (2009), p. 024020. doi : 10.1117/1.3103325.

[43] Rami Nachabé, Daniel J. Evers, Benno H. W. Hendriks, Gerald W. Lucassen, Marjolein van der Voort, Jelle Wesseling et Theo J. M. Ruers. « Effect of bile absorption coefficients on the estimation of liver tissue optical properties and related implications in discriminating healthy and tumorous samples ». In : *Biomedical Optics Express* 2.3 (1er mar. 2011), p. 600. doi : 10.1364/BOE.2.000600.

[44] Bruce J. Tromberg, Natasha Shah, Ryan Lanning, Albert Cerussi, Jennifer Espinoza, Tuan Pham, Lars Svaasand et John Butler. « Non-Invasive In Vivo Characterization of Breast Tumors Using Photon Migration Spectroscopy ». In : *Neoplasia* 2.1 (jan. 2000), p. 26-40. doi : 10.1038/sj.neo.7900082.

[45] Christoph-Thomas Germer, André Roggan, Joerg P. Ritz, Christoph Isbert, Dirk Albrecht, Gerhard Müller et Heinz J. Buhr. « Optical properties of native and coagulated human liver tissue and liver metastases in the near infrared range ». In : *Lasers in Surgery and Medicine* 23.4 (1998), p. 194-203. doi : 10.1002/(SICI)1096-9101(1998)23:4<194::AID-LSM2>3.0.CO;2-6.

[46] Carlos Macias-Romero, Marie E. P. Didier, Pascal Jourdain, Pierre Marquet, Pierre Magistretti, Orly B. Tarun, Vitalijs Zubkovs, Aleksandra Radenovic et Sylvie Roke. « High throughput second harmonic imaging for label-free biological applications ». In : *Optics Express* 22.25 (15 déc. 2014), p. 31102-31112. doi : 10.1364/OE.22.031102.

[47] Bettina Weigelin, Gert-Jan Bakker et Peter Friedl. « Third harmonic generation microscopy of cells and tissue organization ». In : *Journal of Cell Science* 129.2 (15 jan. 2016), p. 245-255. doi : 10.1242/jcs.152272.

[48] Michael J. Rust, Mark Bates et Xiaowei Zhuang. « Sub-diffraction-limit imaging by stochastic optical reconstruction microscopy (STORM) ». In : *Nature Methods* 3.10 (oct. 2006), p. 793. doi : 10.1038/nmeth929.

[49] Samuel T. Hess, Thanu P. K. Girirajan et Michael D. Mason. « Ultra-High Resolution Imaging by Fluorescence Photoactivation Localization Microscopy ». In : *Biophysical Journal* 91.11 (1er déc. 2006), p. 4258-4272. doi : 10.1529/biophysj.106.091116.

[50] Stefan W. Hell et Jan Wichmann. « Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission : stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy ». In : *Optics Letters* 19.11 (1er juin 1994), p. 780-782. doi : 10.1364/OL.19.000780.

[51] Baptiste Jayet. « Acousto-optic and photoacoustic imaging of scattering media using wavefront adaptive holography techniques in NdYO4 ». Thèse de doct. Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2015.

[52] Saba Adabi, Zahra Turani, Emad Fatemizadeh, Anne Clayton et Mohammadreza Nasiriavanaki. « Optical Coherence Tomography Technology and Quality Improvement Methods for Optical Coherence Tomography Images of Skin : A Short Review ». In : *Biomedical Engineering and Computational Biology* 8 (jan. 2017), p. 117959721771347. doi : 10.1177/1179597217713475.

[53] Amir Nahas. « Imagerie multimodale optique, élastique et photo-thermique des tissus biologiques par OCT plein champ. » Thèse de doct. Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2014. 160 p.

[54] Eric A. Swanson et James G. Fujimoto. « The ecosystem that powered the translation of OCT from fundamental research to clinical and commercial impact [Invited] ». In : *Biomedical Optics Express* 8.3 (1er mar. 2017), p. 1638. doi : 10.1364/BOE.8.001638.

[55] D. Huang, E. A. Swanson, C. P. Lin, J. S. Schuman, W. G. Stinson, W. Chang, M. R. Hee, T. Flotte, K. Gregory, C. A. Puliafito et James G. Fujimoto. « Optical coherence tomography ». In : *Science* 254.5035 (22 nov. 1991), p. 1178-1181. doi : 10.1126/science.1957169.

[56] Johannes F. de Boer, Barry Cense, B. Hyle Park, Mark C. Pierce, Guillermo J. Tearney et Brett E. Bouma. « Improved signal-to-noise ratio in spectral-domain compared with time-domain optical coherence tomography ». In : *Optics Letters* 28.21 (1er nov. 2003), p. 2067. doi : 10.1364/OL.28.002067.

[57] E. Beaurepaire, A. C. Boccara, M. Lebec, L. Blanchot et H. Saint-Jalmes. « Full-field optical coherence microscopy ». In : *Optics Letters* 23.4 (15 fév. 1998), p. 244. doi : 10.1364/OL.23.000244.

[58] Mark Zarella, David E. Breen, Fernando U. Garcia, Shantel Maharaj et Gautham Nandakumar. « Image processing to extend effective OCT penetration depth in tissue ». In : *Medical Imaging 2018 : Digital Pathology*. Digital Pathology. Sous la dir. de Metin N. Gurcan et John E. Tomaszewski. Houston, United States : SPIE, 6 mar. 2018, p. 42. doi : 10.1117/12.2293650.

[59] Michael Pircher et Robert J Zawadzki. « Review of adaptive optics OCT (AO-OCT) : principles and applications for retinal imaging [Invited] ». In : *Biomedical Optics Express* 8.5 (1er mai 2017), p. 2536. doi : 10.1364/BOE.8.002536.

[60] N. D. Gladkova, G. A. Petrova, N. K. Nikulin, S. G. Radenska-Lopovok, L. B. Snopova, Yu P. Chumakov, V. A. Nasonova, V. M. Gelikonov, G. V. Gelikonov, R. V. Kuranov, A. M. Sergeev et F. I. Feldchtein. « In vivo optical coherence tomography imaging of human skin : norm and pathology ». In : *Skin Research and Technology* 6.1 (2000), p. 6-16. doi : 10.1034/j.1600-0846.2000.006001006.x.

[61] Benjamin J. Vakoc, Dai Fukumura, Rakesh K. Jain et Brett E. Bouma. « Cancer imaging by optical coherence tomography : preclinical progress and clinical potential ». In : *Nature reviews. Cancer* 12.5 (5 avr. 2012), p. 363-368. doi : 10.1038/nrc3235.

[62] Labrinus van Manen, Paulien L. Stegehuis, Arantza Fariña-Sarasqueta, Lorraine M. de Haan, Jeroen Eggermont, Bert A. Bonsing, Hans Morreau, Boudewijn P. F. Lelieveldt, Cornelis J. H. van de Velde, Alexander L. Vahrmeijer, Jouke Dijkstra et J. Sven D. Mieog. « Validation of full-field optical coherence tomography in distinguishing malignant and benign tissue in resected pancreatic cancer specimens ». In : *PLOS ONE* 12.4 (17 avr. 2017), e0175862. doi : 10.1371/journal.pone.0175862.

[63] Andrew Mamalis, Derek Ho et Jared Jagdeo. « Optical Coherence Tomography Imaging of Normal, Chronologically Aged, Photoaged and Photodamaged Skin : A Systematic Review ». In : *Dermatologic Surgery* (août 2015), p. 1. doi : 10.1097/DSS.0000000000000457.

[64] Joseph P. Angelo, Sez-Jade Chen, Marien Ochoa, Ulas Sunar, Sylvain Gioux et Xavier Intes. « Review of structured light in diffuse optical imaging ». In : *Journal of Biomedical Optics* 24.7 (14 sept. 2018), p. 1. doi : 10.1117/1.JBO.24.7.071602.

[65] T Durduran, R Choe, W B Baker et A G Yodh. « Diffuse Optics for Tissue Monitoring and Tomography ». In : *Reports on progress in physics. Physical Society (Great Britain)* 73.7 (juil. 2010). doi : 10.1088/0034-4885/73/7/076701.

[66] Jeremy C. Hebden et Topun Austin. « Optical tomography of the neonatal brain ». In : *European Radiology* 17.11 (1er mai 2007), p. 2926. doi : 10.1007/s00330-007-0659-1.

[67] Adam Gibson et Hamid Dehghani. « Diffuse optical imaging ». In : *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 367.1900 (13 août 2009), p. 3055-3072. doi : 10.1098/rsta.2009.0080.

[68] Alberto Dalla Mora, Davide Contini, Simon Arridge, Fabrizio Martelli, Alberto Tosi, Gianluca Boso, Andrea Farina, Turgut Durduran, Edoardo Martinenghi, Alessandro Torricelli et Antonio Pifferi. « Towards next-generation time-domain diffuse optics for extreme depth penetration and sensitivity ». In : *Biomedical Optics Express* 6.5 (1er mai 2015), p. 1749. doi : 10.1364/BOE.6.001749.

[69] Antonio Pifferi, Davide Contini, Alberto Dalla Mora, Andrea Farina, Lorenzo Spinelli et Alessandro Torricelli. « New frontiers in time-domain diffuse optics, a review ». In : *Journal of Biomedical Optics* 21.9 (17 juin 2016), p. 091310. doi : 10.1117/1.JBO.21.9.091310.

[70] Hubin Zhao et Robert J. Cooper. « Review of recent progress toward a fiberless, whole-scalp diffuse optical tomography system ». In : *Neurophotonics* 5.1 (26 sept. 2017), p. 1. doi : 10.1117/1.NPh.5.1.011012.

[71] Lihong V Wang et Junjie Yao. « A practical guide to photoacoustic tomography in the life sciences ». In : *Nature Methods* 13.8 (août 2016), p. 627-638. doi : 10.1038/nmeth.3925.

[72] Srivalleesha Mallidi, Geoffrey P. Luke et Stanislav Emelianov. « Photoacoustic imaging in cancer detection, diagnosis, and treatment guidance ». In : *Trends in Biotechnology* 29.5 (mai 2011), p. 213-221. doi : 10.1016/j.tibtech.2011.01.006.

[73] Judith Weber, Paul C. Beard et Sarah E. Bohndiek. « Contrast agents for molecular photoacoustic imaging ». In : *Nature Methods* 13.8 (août 2016), p. 639-650. doi : 10.1038/nmeth.3929.

[74] J Copland, M Eghtedari, V Popov, N Kotov, N Mamedova, M Motamedi et A Oraevsky. « Bioconjugated gold nanoparticles as a molecular based contrast agent : implications for imaging of deep tumors using optoacoustic tomography ». In : *Molecular Imaging & Biology* 6.5 (oct. 2004), p. 341-349. doi : 10.1016/j.mibio.2004.06.002.

[75] E. M. Strohm, M. J. Moore et M. C. Kolios. « Single Cell Photoacoustic Microscopy : A Review ». In : *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 22.3 (mai 2016), p. 137-151. doi : 10.1109/JSTQE.2015.2497323.

[76] Amos Danielli, Konstantin I. Maslov, Alejandro Garcia-Uribe, Amy M. Winkler, Chiye Li, Lidai Wang, Yun Chen, Gerald W. Dorn et Lihong V. Wang. « Label-free photoacoustic nanoscopy ». In : *Journal of Biomedical Optics* 19.8 (août 2014), p. 086006. doi : 10.1117/1.JBO.19.8.086006.

[77] U.S. Food et Drugs Administration (FDA). *Medical Imaging - Ultrasound Imaging*. 1988. url : https://www.fda.gov/Radiation-EmittingProducts/RadiationEmittingProductsandProcedures/Me (visité le 05/03/2019).

[78] Eric M. Strohm, Elizabeth S. L. Berndl et Michael C. Kolios. « Probing Red Blood Cell Morphology Using High-Frequency Photoacoustics ». In : *Biophysical Journal* 105.1 (2 juil. 2013), p. 59-67. doi : 10.1016/j.bpj.2013.05.037.

[79] Guan Xu, Zhuo-Xian Meng, Jiandie D. Lin, Jie Yuan, Paul L. Carson, Bhuwan Joshi et Xueding Wang. « The Functional Pitch of an Organ : Quantification of Tissue Texture with Photoacoustic Spectrum Analysis ». In : *Radiology* 271.1 (15 jan. 2014), p. 248-254. doi : 10.1148/radiol.13130777.

[80] Fei Gao, Xiaohua Feng et Yuanjin Zheng. « Advanced photoacoustic and thermoacoustic sensing and imaging beyond pulsed absorption contrast ». In : *Journal of Optics* 18.7 (1er juil. 2016), p. 074006. doi : 10.1088/2040-8978/18/7/074006.

[81] Paul Kumar Upputuri et Manojit Pramanik. « Recent advances toward preclinical and clinical translation of photoacoustic tomography : a review ». In : *Journal of Biomedical Optics* 22.4 (22 nov. 2016), p. 041006. doi : 10.1117/1.JBO.22.4.041006.

[82] P. Debye et F. W. Sears. « On the Scattering of Light by Supersonic Waves ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences* 18.6 (1er juin 1932), p. 409-414. doi : 10.1073/pnas.18.6.409.

[83] René Lucas et Pierre Biquard. « Propriétés optiques des milieux solides et liquides soumis aux vibrations élastiques ultra sonores ». In : *Journal de Physique et le Radium* 3.10 (1er oct. 1932), p. 464-477. doi : 10.1051/jphysrad:01932003010046400.

[84] D. S. Elson, R. Li, C. Dunsby, R. Eckersley et M.-X. Tang. « Ultrasound-mediated optical tomography : a review of current methods ». In : *Interface Focus* 1.4 (6 août 2011), p. 632-648. doi : 10.1098/rsfs.2011.0021.

[85] Lihong V. Wang. « Mechanisms of Ultrasonic Modulation of Multiply Scattered Coherent Light : An Analytic Model ». In : *Physical Review Letters* 87.4 (10 juil. 2001). doi : 10.1103/PhysRevLett.8

[86] Sava Sakadžić et Lihong V. Wang. « Correlation transfer equation for multiply scattered light modulated by an ultrasonic pulse ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 24.9 (1er sept. 2007), p. 2797. doi : 10.1364/JOSAA.24.002797.

[87] Mooseok Jang, Haowen Ruan, Benjamin Judkewitz et Changhuei Yang. « Model for estimating the penetration depth limit of the time-reversed ultrasonically encoded optical focusing technique ». In : *Optics Express* 22.5 (10 mar. 2014), p. 5787. doi : 10.1364/OE.22.005787.

[88] Clément Dupuy. « Image reconstruction for acousto-optics : Towards quantitative imaging ». Thèse de doct. Paris Science et Lettre (PSL), 3 oct. 2017.

[89] Matthijs Draijer, Erwin Hondebrink, Ton van Leeuwen et Wiendelt Steenbergen. « Review of laser speckle contrast techniques for visualizing tissue perfusion ». In : *Lasers in Medical Science* 24.4 (3 déc. 2008), p. 639. doi : 10.1007/s10103-008-0626-3.

[90] Muhammad Mohsin Qureshi, Joshua Brake, Hee-Jae Jeon, Haowen Ruan, Yan Liu, Abdul Mohaimen Safi, Tae Joong Eom, Changhuei Yang et Euiheon Chung. « In vivo study of optical speckle decorrelation time across depths in the mouse brain ». In : *Biomedical Optics Express* 8.11 (1er nov. 2017), p. 4855. doi : 10.1364/BOE.8.004855.

[91] Lihong Wang, Steven L. Jacques et Xuemei Zhao. « Continuous-wave ultrasonic modulation of scattered laser light to image objects in turbid media ». In : *Optics Letters* 20.6 (15 mar. 1995), p. 629-631. doi : 10.1364/OL.20.000629.

[92] Jean-Baptiste Laudereau, Alexander A. Grabar, Mickaël Tanter, Jean-Luc Gennisson et François Ramaz. « Ultrafast acousto-optic imaging with ultrasonic plane waves ». In : *Optics Express* 24.4 (22 fév. 2016), p. 3774. doi : 10.1364/OE.24.003774.

[93] Maïmouna Bocoum, Jean-Luc Gennisson, Jean-Baptiste Laudereau, Anne Louchet-Chauvet, Jean-Michel Tualle et François Ramaz. « Structured ultrasound modulated optical tomography ». In : *Applied Optics* 58.8 (10 mar. 2019), p. 1933. doi : 10.1364/AO.58.001933.

[94] Kinia Barjean, Kevin Contreras, Jean-Baptiste Laudereau, Éric Tinet, Dominique Ettori, François Ramaz et Jean-Michel Tualle. « Fourier transform acousto-optic imaging with a custom-designed CMOS smart-pixels array ». In : *Optics Letters* 40.5 (1er mar. 2015), p. 705. doi : 10.1364/OL.40.000705.

[95] Kinia Barjean, François Ramaz et Jean-Michel Tualle. « Theoretical study of Fourier-transform acousto-optic imaging ». In : *JOSA A* 33.5 (1er mai 2016), p. 854-862. doi : 10.1364/JOSAA.33.00

[96] Kinia Barjean. « Mise en oeuvre de circuits intégés dédiés à l'analyse des corrélations temporelles des tavelures optiques ». Thèse de doct. Paris 13, 30 mar. 2016. 171 p.

[97] M. Kempe, M. Larionov, D. Zaslavsky et A. Z. Genack. « Acousto-optic tomography with multiply scattered light ». In : *JOSA A* 14.5 (1er mai 1997), p. 1151-1158. doi : 10.1364/JOSAA.14.001151.

[98] Emilie Benoit À La Guillaume. « Imagerie acousto-optique dans les milieux diffusants épais : de l'amélioration technique à l'application pré-clinique ex vivo ». Thèse de doct. Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2013.

[99] S. Lévêque, A. C. Boccara, M. Lebec et H. Saint-Jalmes. « Ultrasonic tagging of photon paths in scattering media : parallel speckle modulation processing ». In : *Optics Letters* 24.3 (1er fév. 1999), p. 181-183. doi : 10.1364/ol.24.000181.

[100] Jacqueline Gunther et Stefan Andersson-Engels. « Review of current methods of acousto-optical tomography for biomedical applications ». In : *Frontiers of Optoelectronics* 10.3 (sept. 2017), p. 211-238. doi : 10.1007/s12200-017-0718-4.

[101] Jun Li et Lihong V. Wang. « Methods for parallel-detection-based ultrasound-modulated optical tomography ». In : *Applied Optics* 41.10 (1er avr. 2002), p. 2079. doi : 10.1364/AO.41.002079.

[102] Zeinab Hajjarian, Jingqun Xi, Farouc A. Jaffer, Guillermo J. Tearney et Seemantini K. Nadkarni. « Intravascular laser speckle imaging catheter for the mechanical evaluation of the arterial wall ». In : *Journal of Biomedical Optics* 16.2 (2011), p. 026005. doi : 10.1117/1.3533322.

[103] Jun Li, Geng Ku et Lihong V. Wang. « Ultrasound-modulated optical tomography of biological tissue by use of contrast of laser speckles ». In : *Applied Optics* 41.28 (1er oct. 2002), p. 6030. doi : 10.1364/AO.41.006030.

[104] M. Gross, P. Goy et M. Al-Koussa. « Shot-noise detection of ultrasound-tagged photons in ultrasound-modulated optical imaging ». In : *Optics Letters* 28.24 (15 déc. 2003), p. 2482-2484. doi : 10.1364/OL.28.002482.

[105] F. Le Clerc, L. Collot et M. Gross. « Numerical heterodyne holography with two-dimensional photodetector arrays ». In : *Optics Letters* 25.10 (15 mai 2000), p. 716-718. doi : 10.1364/OL.25.000716.

[106] F. Ramaz, B. C. Forget, M. Atlan, A. C. Boccara, M. Gross, P. Delaye et G. Roosen. « Photorefractive detection of tagged photons in ultrasound modulated optical tomography of thick biological tissues ». In : *Optics Express* 12.22 (1er nov. 2004), p. 5469-5474. doi : 10.1364/OPEX.12.005469.

[107] Todd W. Murray, Lei Sui, Gopi Maguluri, Ronald A. Roy, Alex Nieva, Florian Blonigen et Charles A. DiMarzio. « Detection of ultrasound-modulated photons in diffuse media using the photorefractive effect ». In : *Optics Letters* 29.21 (1er nov. 2004), p. 2509. doi : 10.1364/OL.29.002509.

[108] M. Gross, F. Ramaz, B. C. Forget, M. Atlan, A. C. Boccara, P. Delaye et G. Roosen. « Theoretical description of the photorefractive detection of the ultrasound modulated photons in scattering media ». In : *Optics Express* 13.18 (2005), p. 7097. doi : 10.1364/OPEX.13.007097.

[109] Puxiang Lai, James R. McLaughlan, Andrew B. Draudt, Todd W. Murray, Robin O. Cleveland et Ronald A. Roy. « Real-Time Monitoring of High-Intensity Focused Ultrasound Lesion Formation Using Acousto-Optic Sensing ». In : *Ultrasound in Medicine & Biology* 37.2 (1er fév. 2011), p. 239-252. doi : 10.1016/j.ultrasmedbio.2010.11.004.

[110] Salma Farahi, Emilie Benoit, Alexander A. Grabar, Jean-Pierre Huignard et Francois Ramaz. « Time resolved three-dimensional acousto-optic imaging of thick scattering media ». In : *Optics Letters* 37.13 (1er juil. 2012), p. 2754-2756. doi : 10.1364/OL.37.002754.

[111] Jean-Baptiste Laudereau. « Acousto-optic imaging : challenges of in vivo imaging ». Thèse de doct. Paris 6, 2016.

[112] Guy Rousseau, Alain Blouin et Jean-Pierre Monchalin. « Ultrasound modulated optical imaging using a powerful long pulse laser ». In : *Optics Express* 16.17 (18 août 2008), p. 12577-12590. doi : 10.1364/OE.16.012577.

[113] Max Lesaffre. « Imagerie acousto-optique de milieux diffusants épais par détection photoréfractive ». Thèse de doct. Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2009.

[114] Puxiang Lai, Xiao Xu et Lihong V. Wang. « Ultrasound-modulated optical tomography at new depth ». In : *Journal of Biomedical Optics* 17.6 (juin 2012). doi : 10.1117/1.JBO.17.6.066006.

[115] Emilie Benoit a la Guillaume, Umberto Bortolozzo, Jean-Pierre Huignard, Stefania Residori et Francois Ramaz. « Dynamic ultrasound modulated optical tomography by self-referenced photorefractive holography ». In : *Optics Letters* 38.3 (1er fév. 2013), p. 287-289. doi : 10.1364/OL.38.000287.

[116] Yuta Suzuki, Puxiang Lai, Xiao Xu et Lihong Wang. « High-sensitivity ultrasound-modulated optical tomography with a photorefractive polymer ». In : *Optics letters* 38.6 (15 mar. 2013), p. 899-901.

[117] Jean-Baptiste Laudereau, Emilie Benoit à La Guillaume, Vincent Servois, Pascale Mariani, Alexander A. Grabar, Mickaël Tanter, Jean-Luc Gennisson et François Ramaz. « Multimodal acousto-optic/ultrasound imaging of ex vivo liver tumors at 790 nm using a Sn2P2S6 wavefront adaptive holographic setup ». In : *Journal of Biophotonics* 8.5 (1er mai 2015), p. 429-436. doi : 10.1002/jbio.201400071.

[118] B. Jayet, J-P. Huignard et F. Ramaz. « Fast wavefront adaptive holography in Nd :YVO_4 for ultrasound optical tomography imaging ». In : *Optics Express* 22.17 (25 août 2014), p. 20622. doi : 10.1364/OE.22.020622.

[119] B. Jayet, J.-P. Huignard et F. Ramaz. « Optical phase conjugation in Nd :YVO_4 for acousto-optic detection in scattering media ». In : *Optics Letters* 38.8 (15 avr. 2013), p. 1256-1258. doi : 10.1364/OL.38.001256.

[120] Sava Sakadžić et Lihong V. Wang. « High-resolution ultrasound-modulated optical tomography in biological tissues ». In : *Optics Letters* 29.23 (1er déc. 2004), p. 2770-2772. doi : 10.1364/OL.29.002770.

[121] Guy Rousseau, Alain Blouin et Jean-Pierre Monchalin. « Ultrasound modulated optical imaging using a high-power pulsed laser and a double-pass confocal Fabry–Perot interferometer ». In : *Optics Letters* 34.21 (1er nov. 2009), p. 3445. doi : 10.1364/OL.34.003445.

[122] Youzhi Li, Philip Hemmer, Chulhong Kim, Huiliang Zhang et Lihong V. Wang. « Detection of ultrasound-modulated diffuse photons using spectral-hole burning ». In : *Optics Express* 16.19 (15 sept. 2008), p. 14862. doi : 10.1364/OE.16.014862.

[123] Youzhi Li, Huiliang Zhang, Chulhong Kim, Kelvin H. Wagner, Philip Hemmer et Lihong V. Wang. « Pulsed ultrasound-modulated optical tomography using spectral-hole burning as a narrowband spectral filter ». In : *Applied Physics Letters* 93.1 (2008), p. 011111. doi : 10.1063/1.2952489.

[124] Juliette Selb, Lionel Pottier et Albert Claude Boccara. « Nonlinear effects in acousto-optic imaging ». In : *Optics Letters* 27.11 (1er juin 2002), p. 918-920. doi : 10.1364/OL.27.000918.

[125] Haowen Ruan, Melissa L. Mather et Stephen P. Morgan. « Ultrasound modulated optical tomography contrast enhancement with non-linear oscillation of microbubbles ». In : *Quantitative Imaging in Medicine and Surgery* 5.1 (fév. 2015), p. 9-16. doi : 10.3978/j.issn.2223-4292.2014.11.30.

[126] Haowen Ruan, Mooseok Jang et Changhuei Yang. « Optical focusing inside scattering media with time-reversed ultrasound microbubble encoded light ». In : *Nature Communications* 6 (24 nov. 2015), p. 8968. doi : 10.1038/ncomms9968.

[127] Ying Min Wang, Benjamin Judkewitz, Charles A. DiMarzio et Changhuei Yang. « Deep tissue focal fluorescence imaging with digitally time-reversed ultrasound encoded light ». In : *Nature Communications* 3 (26 juin 2012), p. 928. doi : 10.1038/ncomms1925.

[128] Altaf Hussain, Erwin Hondebrink, Jacob Staley et Wiendelt Steenbergen. « Photoacoustic and acousto-optic tomography for quantitative and functional imaging ». In : *Optica* 5.12 (20 déc. 2018), p. 1579. doi : 10.1364/OPTICA.5.001579.

[129] K. Daoudi, A. Hussain, E. Hondebrink et W. Steenbergen. « Correcting photoacoustic signals for fluence variations using acousto-optic modulation ». In : *Optics Express* 20.13 (18 juin 2012), p. 14117-14129. doi : 10.1364/OE.20.014117.

[130] Anne Louchet. « Manipulation optique d'une cohérence de spin nucléaire dans l'ion thulium en matrice cristalline ». Thèse de doct. Université Paris Sud-Paris XI, 2008.

[131] Matthieu Bonarota. « Optimisation de la programmation d'un cristal dopé aux ions de terres rares, opérant comme processeur analogique d'analyse spectrale RF, ou de stockage d'information quantique ». Thèse de doct. Université Paris Sud-Paris XI, 2012.

[132] Bernard Cagnac, Lydia Tchang-Brillet et Jean-Claude Pebay-Peyroula. *Physique atomique 2. L'atome : un édifice quantique*. 2ème. Sciences Sup. Dunod, août 2007. 368 p. isbn : 978-2-10-050461-9.

[133] G. H. Dieke et H. M. Crosswhite. « The Spectra of the Doubly and Triply Ionized Rare Earths ». In : *Applied Optics* 2.7 (1er juil. 1963), p. 675-686. doi : 10.1364/AO.2.000675.

[134] B G Wybourne. *Spectroscopic Properties of Rare Earths | Lanthanide | Electron Configuration*. Interscience publishers. John Wiley & Sons, Inc., 1965. 236 p. isbn : 978-0-470-96507-8.

[135] Roger M Macfarlane. « High-resolution laser spectroscopy of rare-earth doped insulators : a personal perspective ». In : *Journal of Luminescence* 100.1 (1er déc. 2002), p. 1-20. doi : 10.1016/S0022-2313(02)00450-7.

[136] Anatole Abragam et Brebis Bleaney. *Résonance paramagnétique électronique des ions de transition*. OCLC : 708320541. Saclay ; Paris : Institut national des sciences et techniques nucléaires ; Presses universitaires de France, 1971.

[137] R. Orbach et Brebis Bleaney. « Spin-lattice relaxation in rare-earth salts ». In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 264.1319 (5 déc. 1961), p. 458-484. doi : 10.1098/rspa.1961.0211.

[138] A. Szabo. « Observation of hole burning and cross relaxation effects in ruby ». In : *Physical Review B* 11.11 (1er juin 1975), p. 4512-4517. doi : 10.1103/PhysRevB.11.4512.

[139] John M. Hayes, Roland P. Stout et Gerald J. Small. « Hole burning, softon-phonon scattering, and ultrafast dephasing of impurity electronic transitions in glasses ». In : *The Journal of Chemical Physics* 74.8 (15 avr. 1981), p. 4266-4275. doi : 10.1063/1.441669.

[140] R. M. Macfarlane, R. J. Reeves et G. D. Jones. « Persistent spectral hole burning due to deuteron tunneling in $SrF_2 : Pr^{3+} : D^-$ ». In : *Optics Letters* 12.9 (1er sept. 1987), p. 660-662. doi : 10.1364/OL.12.000660.

[141] Silvia Völker et J. H. van der Waals. « Laser induced photochemical isomerization of free base porphyrin in an n-octane crystal at 4.2 K ». In : *Molecular Physics* 32.6 (1er déc. 1976), p. 1703-1718. doi : 10.1080/00268977600103021.

[142] Harmen de Vries et Douwe A. Wiersma. « Homogeneous Broadening of Optical Transitions in Organic Mixed Crystals ». In : *Physical Review Letters* 36.2 (12 jan. 1976), p. 91-94. doi : 10.1103/PhysRevLett.36.91.

[143] William E. Moerner, M. Gehrtz et A. L. Huston. « Measurement of quantum efficiencies for persistent spectral hole burning ». In : (1er déc. 1984). doi : 10.1021/j150669a078.

[144] R. M. Macfarlane. « Photon-echo measurements on the trivalent thulium ion ». In : *Optics Letters* 18.22 (15 nov. 1993), p. 1958. doi : 10.1364/OL.18.001958.

[145] John B. Gruber, Marian E. Hills, Roger M. Macfarlane, Clyde A. Morrison, Gregory A. Turner, Gregory J. Quarles, Gregory J. Kintz et Leon Esterowitz. « Spectra and energy levels of $Tm^{3+} : Y_3Al_5O_{12}$ ». In : *Physical Review B* 40.14 (15 nov. 1989), p. 9464-9478. doi : 10.1103/PhysRevB.40.9464.

[146] Yoann Attal. « Processeurs atomiques utilisant la propriété de creusement spectral : modélisation et application à l'analyse spectrale radiofréquence large bande sur porteuse optique ». Thèse de doct. Université Paris Sud, Orsay : Paris Saclay, 17 juil. 2017. 187 p.

[147] G. Armagan, A. M. Buoncristiani et Baldassare Di Bartolo. « Excited state dynamics of thulium ions in Yttrium Aluminum Garnets ». In : *Optical Materials* 1.1 (1992), p. 11-20.

[148] T. T. Basiev, Yu V. Orlovskii, K. K. Pukhov, V. B. Sigachev, M. E. Doroshenko et I. N. Vorob'Ev. « Multiphonon relaxation rates measurements and theoretical calculations in the frame of non-linear and non-Coulomb model of a rare-earth ion-ligand interaction ». In : *Journal of luminescence* 68.5 (1996), p. 241-253.

[149] Huiliang Zhang, Mahmood Sabooni, Lars Rippe, Chulhong Kim, Stefan Kröll, Lihong V. Wang et Philip R. Hemmer. « Slow light for deep tissue imaging with ultrasound modulation ». In : *Applied Physics Letters* 100.13 (26 mar. 2012), p. 131102. doi : 10.1063/1.3696307.

[150] R. W. Equall, R. L. Cone et R. M. Macfarlane. « Homogeneous broadening and hyperfine structure of optical transitions in Pr :YSO ». In : *Physical Review B* 52.6 (1er août 1995), p. 3963-3969. doi : 10.1103/PhysRevB.52.3963.

[151] Keith Holliday, Mauro Croci, Eric Vauthey et Urs P. Wild. « Spectral hole burning and holography in an Pr :YSO crystal ». In : *Physical Review B* 47.22 (1er juin 1993), p. 14741-14752. doi : 10.1103/PhysRevB.47.14741.

[152] I. D. Abella, N. A. Kurnit et S. R. Hartmann. « Photon Echoes ». In : *Physical Review* 141.1 (7 jan. 1966), p. 391-406. doi : 10.1103/PhysRev.141.391.

[153] D. P. Burum, R. M. Shelby et R. M. Macfarlane. « Hole burning and optically detected fluorine NMR in ${\mathrm{Pr}}^{3+}$: Ca${\mathrm{F}}_{2}$ ». In : *Physical Review B* 25.5 (1er mar. 1982), p. 3009-3019. doi : 10.1103/PhysRevB.25.3009.

[154] F. Schlottau, M. Colice, K. H. Wagner et W. R. Babbitt. « Spectral hole burning for wideband, high-resolution radio-frequency spectrum analysis ». In : *Optics Letters* 30.22 (15 nov. 2005), p. 3003-3005. doi : 10.1364/OL.30.003003.

[155] Max Colice, Friso Schlottau et Kelvin H. Wagner. « Broadband radio-frequency spectrum analysis in spectral-hole-burning media ». In : *Applied Optics* 45.25 (1er sept. 2006), p. 6393-6408. doi : 10.1364/AO.45.006393.

[156] *S2 Corporation The Spectrum in a Flash*. S2 Corporation. url : https://www.s2corporation.com (visité le 26/09/2019).

[157] L. Ménager, J.-L. Le Gouët et I. Lorgeré. « Time-to-frequency Fourier transformation with photon echoes ». In : *Optics Letters* 26.18 (15 sept. 2001), p. 1397-1399. doi : 10.1364/OL.26.001397.

[158] V. Lavielle, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, S. Tonda et D. Dolfi. « Wideband versatile radio-frequency spectrum analyzer ». In : *Optics Letters* 28.6 (15 mar. 2003), p. 384-386. doi : 10.1364/OL.28.000384.

[159] P. Berger, M. Schwarz, S. Molin, D. Dolfi, L. Morvan, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière et J. Le Gouët. « 20 GHz instantaneous bandwidth RF spectrum analyzer with high time-resolution ». In : *Microwave Photonics (MWP) and the 2014 9th Asia-Pacific Microwave Photonics Conference (APMP) 2014 International Topical Meeting on*. Microwave Photonics (MWP) and the 2014 9th Asia-Pacific Microwave Photonics Conference (APMP) 2014 International Topical Meeting on. Oct. 2014, p. 331-334. doi : 10.1109/MWP.2014.6994566.

[160] K. D. Merkel et W. R. Babbitt. « Optical coherent-transient true-time-delay regenerator ». In : *Optics Letters* 21.15 (1er août 1996), p. 1102-1104. doi : 10.1364/OL.21.001102.

[161] T. L. Harris, Y. Sun, R. L. Cone, R. M. Macfarlane et R. W. Equall. « Demonstration of real-time address header decoding for optical data routing at 1536nm ». In : *Optics Letters* 23.8 (15 avr. 1998), p. 636-638. doi : 10.1364/OL.23.000636.

[162] K. D. Merkel et W. R. Babbitt. « Chirped-pulse programming of optical coherent transient true-time delays ». In : *Optics Letters* 23.7 (1er avr. 1998), p. 528-530. doi : 10.1364/OL.23.000528.

[163] K. D. Merkel, W. R. Babbitt, K. E. Anderson et K. H. Wagner. « Variable-time-delay optical coherent transient signal processing ». In : *Optics Letters* 24.20 (15 oct. 1999), p. 1386-1388. doi : 10.1364/OL.24.001386.

[164] Zeb W. Barber, Calvin Harrington, R. Krishna Mohan, Trent Jackson, Colton Stiffler, P. B. Sellin et Kristian D. Merkel. « Spatial-spectral holographic real-time correlative optical processor with >100 Gb/s throughput ». In : *Applied Optics* 56.19 (1er juil. 2017), p. 5398-5406. doi : 10.1364/AO.56.005398.

[165] H. Linget, L. Morvan, J.-L. Le Gouët et A. Louchet-Chauvet. « Time reversal of optically carried radiofrequency signals in the microsecond range ». In : *Optics Letters* 38.5 (1er mar. 2013), p. 643-645. doi : 10.1364/OL.38.000643.

[166] Mikael Afzelius, Christoph Simon, Hugues de Riedmatten et Nicolas Gisin. « Multimode quantum memory based on atomic frequency combs ». In : *Physical Review A* 79.5 (21 mai 2009), p. 052329. doi : 10.1103/PhysRevA.79.052329.

[167] Hugues de Riedmatten, Mikael Afzelius, Matthias Staudt, Christoph Simon et Nicolas Gisin. « A solid state light-matter interface at the single photon level ». In : *Nature* 456.7223 (11 déc. 2008), p. 773-777. doi : 10.1038/nature07607. arXiv : 0810.0630.

[168] A. Amari, A. Walther, M. Sabooni, M. Huang, S. Kröll, M. Afzelius, I. Usmani, B. Lauritzen, N. Sangouard, H. de Riedmatten et N. Gisin. « Towards an efficient atomic frequency comb quantum memory ». In : *Journal of Luminescence*. Special Issue based on the Proceedings of the Tenth International Meeting on Hole Burning, Single Molecule, and Related Spectroscopies : Science and Applications (HBSM 2009) - Issue dedicated to Ivan Lorgere and Oliver Guillot-Noel 130.9 (1er sept. 2010), p. 1579-1585. doi : 10.1016/j.jlumin.2010.01.012.

[169] Mahmood Sabooni, Qian Li, Stefan Kröll et Lars Rippe. « Efficient Quantum Memory Using a Weakly Absorbing Sample ». In : *Physical Review Letters* 110.13 (26 mar. 2013), p. 133604. doi : 10.1103/PhysRevLett.110.133604.

[170] Mustafa Gündoğan, Patrick M. Ledingham, Kutlu Kutluer, Margherita Mazzera et Hugues de Riedmatten. « Solid State Spin-Wave Quantum Memory for Time-Bin Qubits ». In : *Physical Review Letters* 114.23 (12 juin 2015), p. 230501. doi : 10.1103/PhysRevLett.114.230501.

[171] Pierre Jobez, Cyril Laplane, Nuala Timoney, Nicolas Gisin, Alban Ferrier, Philippe Goldner et Mikael Afzelius. « Coherent Spin Control at the Quantum Level in an Ensemble-Based Optical Memory ». In : *Physical Review Letters* 114.23 (12 juin 2015), p. 230502. doi : 10.1103/PhysRevLett.114.230502.

[172] R. Lauro, T. Chanelière et J. L. Le Gouët. « Slow light using spectral hole burning in a thulium-doped yttrium-aluminum-garnet crystal ». In : *Physical Review A* 79.6 (30 juin 2009). doi : 10.1103/PhysRevA.79.063844.

[173] Thierry Chanelière. « Traiter l'information avec des processeurs atomiques ». Thèse d'habilitation. Laboratoire Aimé Cotton : Paris Sud, 10 juin 2013. 200 p.

[174] John S. Toll. « Causality and the Dispersion Relation : Logical Foundations ». In : *Physical Review* 104.6 (15 déc. 1956), p. 1760-1770. doi : 10.1103/PhysRev.104.1760.

[175] Kutlu Kutluer, María Florencia Pascual-Winter, Julian Dajczgewand, Patrick M. Ledingham, Margherita Mazzera, Thierry Chanelière et Hugues de Riedmatten. « Spectral-hole memory for light at the single-photon level ». In : *Physical Review A* 93.4 (8 avr. 2016), p. 040302. doi : 10.1103/PhysRevA.93.040302.

[176] Michael J. Thorpe, Lars Rippe, Tara M. Fortier, Matthew S. Kirchner et Till Rosenband. « Frequency-stabilization to 6x10e-16 via spectral-hole burning ». In : *Nature Photonics* 5.11 (nov. 2011), p. 688-693. doi : 10.1038/nphoton.2011.215. arXiv : 1106.0520.

[177] Charles W. Thiel, Rufus L. Cone et Thomas Böttger. « Laser linewidth narrowing using transient spectral hole burning ». In : *Journal of Luminescence*. 18th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids 152 (1er août 2014), p. 84-87. doi : 10.1016/j.jlumin.2013.11.038.

[178] Xiao Xu, Sri-Rajasekhar Kothapalli, Honglin Liu et Lihong V. Wang. « Spectral hole burning for ultrasound-modulated optical tomography of thick tissue ». In : *Journal of Biomedical Optics* 15.6 (2010), p. 066018–066018-5. doi : 10.1117/1.3505486.

[179] Jian Wei Tay, Patrick M. Ledingham et Jevon J. Longdell. « Coherent optical ultrasound detection with rare-earth ion dopants ». In : *Applied Optics* 49.23 (10 août 2010), p. 4331-4334. doi : 10.1364/AO.49.004331.

[180] Adam Kinos, Qian Li, Lars Rippe et Stefan Kröll. « Development and characterization of high suppression and high étendue narrowband spectral filters ». In : *Applied Optics* 55.36 (20 déc. 2016), p. 10442. doi : 10.1364/AO.55.010442.

[181] Andreas Walther, Lars Rippe, Lihong V. Wang, Stefan Andersson-Engels et Stefan Kröll. « Analysis of the potential for non-invasive imaging of oxygenation at heart depth, using ultrasound optical tomography (UOT) or photo-acoustic tomography (PAT) ». In : *Biomedical Optics Express* 8.10 (1er oct. 2017), p. 4523. doi : 10.1364/BOE.8.004523.

[182] D. L. McAuslan, L. R. Taylor et J. J. Longdell. « Using quantum memory techniques for optical detection of ultrasound ». In : *Applied Physics Letters* 101.19 (2012), p. 191112. doi : 10.1063/1.4766341.

[183] Lucile Veissier, Charles W. Thiel, Thomas Lutz, Paul E. Barclay, Wolfgang Tittel et Rufus L. Cone. « Quadratic Zeeman effect and spin-lattice relaxation of Tm3+ :YAG at high magnetic fields ». In : *Physical Review B* 94.20 (22 nov. 2016). doi : 10.1103/PhysRevB.94.205133. arXiv : 1608.06331.

[184] T. Chanelière, J. Ruggiero, M. Bonarota, M. Afzelius et J.-L. Le Gouët. « Efficient light storage in a crystal using an atomic frequency comb ». In : *New Journal of Physics* 12.2 (fév. 2010), p. 023025. doi : 10.1088/1367-2630/12/2/023025.

[185] M. Bonarota, J.-L. Le Gouët et T. Chanelière. « Highly multimode storage in a crystal ». In : *New Journal of Physics* 13.1 (jan. 2011), p. 013013. doi : 10.1088/1367-2630/13/1/013013.

[186] Ijaz Zafarullah. « Thulium ions in a yttrium aluminium garnet host for quantum computing applications : material analysis and single qubit operations ». Thèse de doct. Bozeman, Montana : Montana State university, mai 2008. 264 p.

[187] A. Louchet, J. S. Habib, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Goldfarb, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël et Ph. Goldner. « Branching ratio measurement of a Λ system in Tm^{3+} : YAG under a magnetic field ». In : *Physical Review B* 75.3 (31 jan. 2007). doi : 10.1103/PhysRevB.75.035131.

[188] Anne Louchet-Chauvet. « Processeurs atomiques pour le traitement de signaux optiques et radio-fréquence ». Thèse d'habilitation. Laboratoire Aimé Cotton : Paris Sud, 17 juin 2019. 108 p.

[189] R. L. Ahlefeldt, M. F. Pascual-Winter, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière et J.-L. Le Gouët. « Optical measurement of heteronuclear cross-relaxation interactions in Tm :YAG ». In : *Physical Review B* 92.9 (14 sept. 2015). doi : 10.1103/PhysRevB.92.094305.

[190] V. Crozatier, F. de Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgeré et J.-L. Le Gouët. « Laser diode stabilisation for coherent driving of rare earth ions ». In : *Optics Communications* 241.1 (nov. 2004), p. 203-213. doi : 10.1016/j.optcom.2004.07.011.

[191] Alexander Bengtsson, David Hill, Meng Li, Mengqiao Di, Magnus Cinthio, Tobias Erlöv, Stefan Andersson-Engels, Nina Reistad, Andreas Walther, Lars Rippe et Stefan Kröll. « Characterization and modeling of acousto-optic signal strengths in highly scattering media ». In : *Biomedical Optics Express* 10.11 (1er nov. 2019), p. 5565. doi : 10.1364/BOE.10.005565.

[192] RF wireless world. *Photodiode Quantum Efficiency-Definition,equation,calculator*. url : https://www.rfw (visité le 29/09/2019).

[193] Paulo R. Bargo, Scott A. Prahl et Steven L. Jacques. « Collection efficiency of a single optical fiber in turbid media ». In : *Applied Optics* 42.16 (1er juin 2003), p. 3187-3197. doi : 10.1364/AO.42.003187.

[194] Caroline Venet, Maïmouna Bocoum, Jean-Baptiste Laudereau, Thierry Chaneliere, François Ramaz et Anne Louchet-Chauvet. « Ultrasound-modulated optical tomography in scattering media : flux filtering based on persistent spectral hole burning in the optical diagnosis window ». In : *Optics Letters* 43.16 (15 août 2018), p. 3993-3996. doi : 10.1364/OL.43.003993.

[195] AFNOR. *NF EN 60825-1 - Sécurité des appareils à laser - Partie 1 : classification des matériels et exigences*. 1994. url : https://www.boutique.afnor.org/norme/nf-en-60825-1/securite-des-appa (visité le 13/04/2018).

[196] Eric D. Black. « An introduction to Pound–Drever–Hall laser frequency stabilization ». In : *American Journal of Physics* 69.1 (2001), p. 79. doi : 10.1119/1.1286663.

[197] Vincent Crozatier. « Développement de lasers solides agiles ultra-stables pour la manipulation cohérente de systèmes atomiques : applications au traitement optique de signaux radiofréquences et à l'information quantique ». Thèse de doct. Université de Paris-Sud. Faculté des Sciences d'Orsay (Essonne), 1er jan. 2006.

[198] B. Julsgaard, A. Walther, S. Kröll et L. Rippe. « Understanding laser stabilization using spectral hole burning ». In : *Optics Express* 15.18 (3 sept. 2007), p. 11444-11465. doi : 10.1364/OE.15.011444.

[199] Kenji Numata, Amy Kemery et Jordan Camp. « Thermal-Noise Limit in the Frequency Stabilization of Lasers with Rigid Cavities ». In : *Physical Review Letters* 93.25 (17 déc. 2004), p. 250602. doi : 10.1103/PhysRevLett.93.250602.

[200] Olivier Gobron. « Lasers ultra-stables asservis sur trous-brûlés spectraux : développement en vue d'une application aux horloges optiques ». Thèse de doct. Observatoire de Paris : UPMC, 3 mar. 2017. 159 p.

[201] P. B. Sellin, N. M. Strickland, J. L. Carlsten et R. L. Cone. « Programmable frequency reference for subkilohertz laser stabilization by use of persistent spectral hole burning ». In : *Optics Letters* 24.15 (1er août 1999), p. 1038. doi : 10.1364/OL.24.001038.

[202] David R. Leibrandt, Michael J. Thorpe, Chin-Wen Chou, Tara M. Fortier, Scott A. Diddams et Till Rosenband. « Absolute and relative stability of an optical frequency reference based on spectral hole burning in Eu :YSO ». In : *Physical Review Letters* 111.23 (3 déc. 2013). doi : 10.1103/PhysRevLett.111.237402. arXiv : 1307.5355.

[203] G.J Pryde, T Böttger, R.L Cone et R.C.C Ward. « Semiconductor lasers stabilized to spectral holes in rare earth crystals to a part in 10^{13} and their application to devices and spectroscopy ». In : *Journal of Luminescence* 98.1 (juil. 2002), p. 309-315. doi : 10.1016/S0022-2313(02)00285-5.

[204] N. M. Strickland, P. B. Sellin, Y. Sun, J. L. Carlsten et R. L. Cone. « Laser frequency stabilization using regenerative spectral hole burning ». In : *Physical Review B* 62.3 (15 juil. 2000), p. 1473-1476. doi : 10.1103/PhysRevB.62.1473.

[205] P. B. Sellin, N. M. Strickland, T. Böttger, J. L. Carlsten et R. L. Cone. « Laser stabilization at 1536 nm using regenerative spectral hole burning ». In : *Physical Review B* 63.15 (30 mar. 2001). doi : 10.1103/PhysRevB.63.155111.

[206] Thomas Böttger, Y. Sun, G.J. Pryde, G. Reinemer et R.L. Cone. « Diode laser frequency stabilization to transient spectral holes and spectral diffusion in Er :YSO at 1536nm ». In : *Journal of Luminescence* 94-95 (déc. 2001), p. 565-568. doi : 10.1016/S0022-2313(01)00324-6.

[207] Thomas Böttger, G. J. Pryde et R. L. Cone. « Programmable laser frequency stabilization at 1523 nm by use of persistent spectral hole burning ». In : *Optics Letters* 28.3 (1er fév. 2003), p. 200. doi : 10.1364/OL.28.000200.

[208] R. W. P. Drever, John L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley et H. Ward. « Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator ». In : *Applied Physics B* 31.2 (1983), p. 97-105.

[209] Miao Zhu et John L. Hall. « Stabilization of optical phase/frequency of a laser system : application to a commercial dye laser with an external stabilizer ». In : *JOSA B* 10.5 (1er mai 1993), p. 802-816. doi : 10.1364/JOSAB.10.000802.

[210] Shon Cook, Till Rosenband et David R. Leibrandt. « Laser-Frequency Stabilization Based on Steady-State Spectral-Hole Burning in Eu :YSO ». In : *Physical Review Letters* 114.25 (23 juin 2015). doi : 10.1103/PhysRevLett.114.253902.

[211] O. Gobron, K. Jung, N. Galland, K. Predehl, R. Le Targat, A. Ferrier, P. Goldner, S. Seidelin et Y. Le Coq. « Dispersive heterodyne probing method for laser frequency stabilization based on spectral hole burning in rare-earth doped crystals ». In : *Optics Express* 25.13 (26 juin 2017), p. 15539. doi : 10.1364/OE.25.015539.

[212] W. E. Gifford. « The Gifford-McMahon Cycle ». In : *Advances in Cryogenic Engineering*. Sous la dir. de K. D. Timmerhaus. Advances in Cryogenic Engineering. Springer US, 1966, p. 152-159. isbn : 978-1-4757-0522-5.

[213] Maïmouna Bocoum, Jean Luc Gennisson, Caroline Venet, Mingjun Chi, Paul Michael Petersen, Alexander A. Grabar et François Ramaz. « Two-color interpolation of the absorption response for quantitative acousto-optic imaging ». In : *Optics Letters* 43.3 (1er fév. 2018), p. 399-402. doi : 10.1364/OL.43.000399.

[214] C. Venet, B. Car, L. Veissier, F. Ramaz et A. Louchet-Chauvet. « Deep and persistent spectral holes in thulium-doped yttrium orthosilicate for imaging applications ». In : *Physical Review B* 99.11 (1er mar. 2019), p. 115102. doi : 10.1103/PhysRevB.99.115102.

[215] World Federation for Ultrasound in Medicine et Biology (WFUMB). *WFUMB World Federation for Ultrasound in Medicine and Biology*. Nov. 2018. url : https://www.wfumb.org/ (visité le 05/03/2019).

[216] European Federation of Societies for Ultrasound in Medecine et Biology (EFSUMB). *Guidelines & Recommendations – EFSUMB*. url : http://www.efsumb.org/blog/archives/1156 (visité le 05/03/2019).

[217] Stanley B Barnett, Gail R Ter Haar, Marvin C Ziskin, Hans-Dieter Rott, Francis A Duck et Kazuo Maeda. « International recommendations and guidelines for the safe use of diagnostic ultrasound in medicine ». In : *Ultrasound in Medicine & Biology* 26.3 (1er mar. 2000), p. 355-366. doi : 10.1016/S0301-5629(00)00204-0.

Communications scientifiques

Articles

Maïmouna Bocoum, Jean Luc Gennisson, **Caroline Venet**, Mingjun Chi, Paul Michael Petersen, Alexander A. Grabar et François Ramaz. « Two-color interpolation of the absorption response for quantitative acousto-optic imaging ». *Optics Letters* 43.3 (1er fév. 2018), p. 399-402. doi : 10.1364/OL.43.000399.

Caroline Venet, Maïmouna Bocoum, Jean-Baptiste Laudereau, Thierry Chaneliere, François Ramaz et Anne Louchet-Chauvet. « Ultrasound-modulated optical tomography in scattering media : flux filtering based on persistent spectral hole burning in the optical diagnosis window ». In : *Optics Letters* 43.16 (15 août 2018), p. 3993-3996. doi : 10.1364/OL.43.003993.

Caroline Venet, Benjamin Car, Lucile Veissier, François Ramaz et Anne Louchet-Chauvet. « Deep and persistent spectral holes in thulium-doped yttrium orthosilicate for imaging applications ». In : *Physical Review B* 99.11 (1er mar. 2019), p. 115102. doi : 10.1103/PhysRevB.99.115102.

Conférences

Présentations

Caroline Venet*, Maïmouna Bocoum, Jean-Baptiste Laudereau, Thierry Chanelière, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Ultra-thin spectral filter for acousto-optic imaging for medical applications", *International OSA Network of Students (IONS)*, Paris (France), juin 2017.

Caroline Venet*, Maïmouna Bocoum, Jean-Baptiste Laudereau, Thierry Chanelière, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Ultra narrow spectral filter for acousto-optic imaging for medical applications", *Rare earth ion crystal for quantum information workshop*, Karlsruhe (Allemagne), septembre 2017.

Caroline Venet*, Maïmouna Bocoum, Jean-Baptiste Laudereau, Thierry Chanelière, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Flux filtering for acousto-optic imaging in scattering media", *SPIE Photonics West BIOS*, San Francisco (États-Unis), janvier 2018.

Caroline Venet*, Maïmouna Bocoum, Thierry Chanelière, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Filtrage spectral ultra fin dédié à l'imagerie acousto-optique pour l'imagerie médicale *13ème journées Imagerie Optique Non-Conventionnelle (JIONC)*, mars 2018.

Caroline Venet*, Maïmouna Bocoum, Jean-Baptiste Laudereau, Thierry Chanelière, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Ultra-narrow spectral filter for acousto-optic imaging for medical applications", *SPIE Photonics Europe*, Strasbourg (France), avril 2018.

Caroline Venet*, Maïmouna Bocoum, Thierry Chanelière, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Filtrage spectral ultra fin dédié à l'imagerie acousto-optique pour l'imagerie médicale", *OPTDIAG 2018*, mai 2018.

Anne Louchet-Chauvet*, Caroline Venet, Maïmouna Bocoum, Thierry Chanelière, François Ramaz, "Filtrage spectral pour l'imagerie acousto-optique en milieu diffusant", *Optique Toulouse 2018*, Toulouse (France), juillet 2018.

Anne Louchet-Chauvet*, Caroline Venet, François Ramaz, "Trous spectraux profonds et persistants dans Tm :YSO : un filtre pour l'imagerie acousto-optique", *Congrès général de la Société Française de Physique (SFP)*, Nantes (France), juillet 2019.

* indique l'orateur.

Poster

Caroline Venet*, Jean-Baptiste Laudereau, Thierry Chanelière, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Filtrage spectral ultra fin dédié à l'imagerie acousto-optique pour l'imagerie médicale", *Congrès général de la Société Française de Physique (SFP)*, Orsay (France), juillet 2017.

Anne Louchet-Chauvet*, Caroline Venet, Maïmouna Bocoum, Thierry Chanelière, François Ramaz, "Filtrage spectral pour l'imagerie acousto-optique en milieu diffusant", *Optique Toulouse 2018*, Toulouse (France), juillet 2018.

Caroline Venet, Thierry Chanelière, Maïmouna Bocoum, François Ramaz*, Anne Louchet-Chauvet, "Narrow spectral filtering detection techniques for Ultrasound Optical Tomography of biological tissues with a Tm :YAG crystal submitted to a weak magnetic field", *Photorefractive Photonics and beyond 2019 (PR'19)*, Gérardmer (France), juin 2019.

Anne Louchet-Chauvet*, Caroline Venet, François Ramaz, "Trous spectraux profonds et persistants dans Tm :YSO : un filtre pour l'imagerie acousto-optique", *Congrès général de la Société Française de Physique (SFP)*, Nantes (France), juillet 2019.

Caroline Venet*, Thierry Chanelière, Maïmouna Bocoum, François Ramaz, Anne Louchet-Chauvet, "Narrow spectral filtering detection techniques for Ultrasound Optical Tomography of biological tissues with a Tm :YAG crystal submitted to a weak magnetic field", *Rare earth ion crystal for quantum information workshop*, Grenoble (France), octobre 2019.

* indique la personne présentant le poster

RÉSUMÉ

L'imagerie médicale optique est limitée par la perte de résolution spatiale due à la diffusion des tissus biologiques. L'imagerie acousto-optique permet de pallier à ce problème car elle utilise à la fois de lumière et des ondes ultrasonores. Par conséquent elle donne accès au contraste optique local en profondeur dans les tissus biologiques avec la résolution submillimétrique des ultrasons. Diverses méthodes interférométriques ont été développées pour détecter le signal acousto-optique, mais elles ne sont pas adaptées à l'imagerie *in vivo*. Au cours de cette thèse nous avons développé un filtre spectral intrinsèquement robuste à une mise en œuvre *in vivo* et capable de filtrer le signal de photons marqués. Ce filtre est basé sur le phénomène de creusement spectral, il est réalisé dans un cristal de grenat d'yttrium aluminium dopé au thulium (Tm : YAG) sous champ magnétique. Dans cette thèse, nous avons caractérisé le filtre spectral et mis au point un dispositif expérimental permettant d'imager un gel diffusant simulant un tissu biologique. Des images sur des fantômes calibrés ont été réalisées et confirment le potentiel de ce filtre spectral pour l'imagerie. Nous avons également fait évoluer le montage en remplaçant le laser par une source commerciale que nous avons asservie en fréquence. Enfin nous avons déplacé et compacté l'ensemble du montage dans un laboratoire accueillant une animalerie afin d'initier une campagne d'imagerie *in vivo*.

MOTS CLÉS

Imagerie acousto-optique, Creusement de trou spectral, Cristaux dopés aux ions de terre rare, Asservissement laser, Milieu diffusant, Imagerie médicale, Effet Zeeman.

ABSTRACT

Optical imaging for Medicine is limited by the spatial resolution loss due to light scattering in turbid media. A hybrid imaging method called ultrasound optical tomography can overcome this botteneck. Indeed the simultaneous use of light and ultrasound gives access to optical contrast in depth within scattering medium with the ultrasounds resolution. Several interferometric methods have been developed in order to detect an acousto-optic signal. However, none of them is adapted to *in vivo* imaging. For this reason a filter created with spectral hole burning is of special interest. This thesis presents the development of an ultra-narrow filter based on spectral hole burning in a thulium doped yttrium aluminum garnet crystal (Tm : YAG) under magnetic field. In this thesis, I have characterized the spectral filter in the imaging setup. Then I have imaged calibrated phatoms mimicking biological tissues. Then I have changed the main laser by a commercial source and I realised its frequency stabilization for technological maturation. Lastly I have compacted the experiment in order to bring it in a laboratory hosting a scientifi animal facility in order to launch *in vivo* imaging trials.

KEYWORDS

Ultrasound optical tomography, Spectral hole burning, Rare earth ions doped crystals, Laser stabilization, Turbid media, Medical imaging, Zeeman effect.