

Méthodes holographiques et spectroscopiques appliquées à l'imagerie acousto-optique de milieux diffusants épais Salma Farahi

► To cite this version:

Salma Farahi. Méthodes holographiques et spectroscopiques appliquées à l'imagerie acousto-optique de milieux diffusants épais. Optique [physics.optics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT: . tel-00656624v1

HAL Id: tel-00656624 https://theses.hal.science/tel-00656624v1

Submitted on 4 Jan 2012 (v1), last revised 5 Jan 2012 (v2)

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.







THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité

Optique physique expérimentale

(ED 389 - La Physique de la Particule à la Matière Condensée)

Préparée à l'Institut Langevin - Ondes et Images

Présentée par

Salma FARAHI

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

Méthodes holographiques et spectroscopiques appliquées à l'imagerie acousto-optique de milieux diffusants épais

Soutenue le 24 novembre 2011

devant le jury composé de :

M.	DOLFI	Daniel	Rapporteur
$\mathbf{M}.$	TUALLE	Jean-Michel	Rapporteur
$\mathbf{M}.$	BEAUREPAIRE	Emmanuel	$\mathbf{Examinateur}$
$\mathbf{M}.$	FRIGERIO	Jean-Marc	Examinateur
$\mathbf{M}.$	MOSER	Christophe	Examinateur
М.	RAMAZ	François	Directeur de thèse
$\mathbf{M}.$	HUIGNARD	Jean-Pierre	Membre invité

Université Pierre & Marie Curie - Paris VI Bureau d'accueil Inscription des doctorants et base de données Esc G, 2°étage 15 rue de l'École de Médecine 75270 PARIS Cedex 06

 $\begin{array}{c} \mbox{T\'el Secrétariat : 01 42 34 68 35} \\ \mbox{Fax : 01 42 34 68 40} \\ \mbox{T\'el pour les étudiants de A à EL : 01 42 34 69 54} \end{array}$

Tél pour les étudiants de EM à MON : 01 42 34 68 41 Tél pour les étudiants de MOO à Z : 01 42 34 68 51

E-mail : scolarite.doctorat@upmc.fr

Remerciements

M^a thèse a été pour moi une expérience inoubliable tant sur le point de vue scientifique que humain. Je souhaite donc remercier toutes les personnes qui m'ont permis de mener ces travaux à terme et qui m'ont accompagnées durant ces trois années.

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse, François Ramaz, pour m'avoir très bien encadrée durant ces trois années de thèse. François m'a permis d'aiguiser mon goût pour l'expérimentation et pour la recherche. Je doute d'avoir un jour sa patience et sa détermination en salle de *manip*, car il est capable de rester immobile des heures innombrables dans le noir à la recherche d'un signal (ma circulation sanguine en a été mise à rude épreuve...). Je le remercie aussi pour m'avoir donné l'occasion de forger mon goût pour l'enseignement en me proposant d'encadrer des travaux pratiques et dirigés à l'ESPCI.

Les rapporteurs de ce travail de thèse sont MM. Jean-Michel Tualle et Daniel Dolfi. J'exprime à tous deux ma gratitude pour le temps qu'ils y ont consacré et l'intérêt qu'ils y ont porté. Je tiens à remercier MM. Jean-Marc Frigério, Emmanuel Beaurepaire, Christophe Moser et Jean-Pierre Huignard de m'avoir fait l'honneur de participer à mon jury.

Je tiens à remercier très sincèrement Emilie pour sa relecture très attentive de cette thèse. Elle a su dénicher la moindre faute et ce manuscrit ne serait pas ce qu'il est sans elle. Je lui souhaite du courage et du succès pour la suite de sa thèse. Je remercie également Max pour m'avoir initié à l'imagerie acousto-optique et pour ses nombreuses explications claires et concises.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Claude Boccara de m'avoir accueilli dans son laboratoire. Sa présence apporte au laboratoire d'optique une richesse tant humaine que scientifique qui en fait le lieu idéal pour faire une thèse. Je remercie aussi Rémi Carminati pour ses nombreuses explications et sa grande pédagogie. Assister à son cours sur les ondes en milieux complexes au début de ma thèse m'a permis de comprendre réellement de nombreuses choses. Mes remerciements s'adressent aussi à Jean-Pierre Huignard, pour les nombreux conseils et idées qu'il nous a apportés. Sans Jean-Pierre et sa grande connaissance des cristaux photoréfractifs, une partie de ces travaux n'aura pas été possible. Grâce à lui, nous avons ainsi pu entamer une collaboration avec Alexander A. Grabar. Je tiens ainsi à remercier M. Grabar, de nous avoir fourni ce cristal exceptionnel qu'est le SPS :Te et d'avoir su répondre à nos grandes exigences quant à la fabrication des cristaux.

Je remercie aussi toutes les personnes avec qui j'ai eu l'occasion de travailler ou qui m'on apporté une aide durant ma thèse : Emmanuel Bossy, Sylvain Gigan, Arik Funke, Amaury Prost, Khalid Daoudi et Michel Gross.

Un grand merci à Delphine, Christelle, Stéphanie pour leur soutien administratif; et à Emmanuel et Patricia pour leur aide quotidienne. Merci à Romain pour toutes les réponses à mes questions et pour toutes les fois où il m'a résolu un problème informatique.

Ma thèse, a été pour moi, au delà du côté scientifique, une expérience humaine très enrichissante. J'ai côtoyé au laboratoire de nombreuses personnes qui pour la plupart sont devenus plus que des collègues mais de vrais amis.

Je tiens donc à remercier mes trois compagnons de thèse : Sarah, Etienne et Arthur, pour ces trois années passées ensemble et surtout pour la dure période qu'a été la rédaction du manuscrit. Je pense que nous avons réussi à créer un grand élan de motivation qui nous a tous permis de terminer nos thèse avec succès. Hormis la rédaction, je tiens bien sûr à les remercier tous les trois pour les nombreux moments qu'on a passé ensemble. Merci Arthur, pour toutes les pauses cannettes. Merci Etienne et Sarah, de m'avoir autant laissé "squatté" votre bureau et pour les bonbons (même si il faut réellement remercier Virginie pour cela... mais vous avez su perpétuer la tradition!).

Un grand merci à toutes mes co-bureaux filles. Je nomme Karla, Ioana, Nok et Emilie. Je n'oublierais pas toutes les pauses potins, shopping, déballages de colis, essayages, conseils divers...la liste est longue. Je sais que tout cela est maintenant fini avec l'arrivée de mâles dans le bureau.

Un très grand merci à tous les chercheurs, doctorants, post-doctorants et collègues avec qui j'ai passé de très bons moments au sein et en dehors du labo : Yannick, Karla, Sébastien, Sylvain, Sarah, Etienne, Emilie, Virginie, Anne, Jochen, Ioana, Nok, Rémi, Caroline, Mickaël, Arthur, Anis, Alexandre, Gilles, Charles, Stéphanie, Marc, Nicolas, Pierre, Matthieu...Merci aussi à l'équipe A pour les bons moments passés à Cargèse.

Je tiens également à remercier toute ma famille et mes parents pour leur soutien constant tout au long de mes études et de mon doctorat et sans qui tout cela n'aura pas été possible. Je remercie enfin tous mes amis pour leur présence et leur soutien et je tiens tout particulièrement à féliciter Némo pour avoir réussi sa thèse avec autant de brio!

Merci à tous!



Résumé

I mager à travers un milieu diffusant épais est difficile en utilisant des techniques d'imagerie optique conventionnelles. L'imagerie acousto-optique est une technique d'imagerie multimodale basée sur l'interaction entre une onde lumineuse et une onde acoustique. Cette dernière module la phase du champ lumineux. Il est alors possible d'accéder à un contraste optique local à la résolution millimétrique des ultrasons.

Plusieurs méthodes sont utilisées pour détecter les « photons marqués » par les ultrasons. Elles peuvent être de nature cohérente ou incohérente et tentent de répondre aux différentes problématiques qu'impose l'imagerie en régime de diffusion multiple. Dans cette thèse nous avons exploré trois techniques de détection à 800 nm, dans la fenêtre thérapeutique optique (région du spectre où l'absorption est minimale dans les tissus biologiques).

Le phénomène de *holeburning* spectral dans un cristal dopé ion terre rare nous a permis de réaliser un filtre spectral hyperfin centré sur la fréquence des photons marqués à basse température.

Une détection sensible des photons marqués a ensuite été réalisée par holographie numérique hétérodyne hors-axe couplée à un laser longues impulsions. Des profils acoustooptiques ont été obtenus à travers plusieurs centimètres d'épaisseur.

L'adaptation de front d'onde par holographie phototoréfractive dans un cristal de SPS :Te (Hypothiodiphosphate d'étain dopé tellure) nous a enfin permis de faire une imagerie en temps réel. Des images en deux et trois dimensions ont été réalisées à travers plusieurs centaines d'épaisseurs optiques. Le processus de conjugaison de phase par mélange à quatre ondes a aussi été exploré en perspective.

Mots clés : Imagerie acousto-optique, Milieux diffusant, Holographie numérique, Holographie photoréfractive, Holeburning spectral, Conjugaison de phase.

Abstract

I maging through a thick and scattering medium is difficult using conventional optical imaging techniques. Acousto-optic imaging is a multimodal imaging technique based on the interaction between a light wave and an acoustic wave. This acoustic wave modulates the phase of the light field. It is then possible to access a local optical contrast at the millimetric resolution of ultrasound.

Several methods are used to detect the ultrasound "tagged photons". They can be coherent or incoherent in nature and attempt to address the various issues imposed by imaging with multiple scattered light. In this thesis we explored three kind of detections at 800 nm, in the optical therapeutic window (region of the spectrum where absorption is minimal in biological tissues).

Spectral holeburning in a rare-earth ion doped crystal allowed us to achieve a hyperfine spectral filter centered on the tagged photons frequency at low temperatures.

A sensitive detection of tagged photons was then performed by heterodyne off-axis digital holography coupled with a long pulse laser. Acousto-optic profiles were obtained through several centimeters of thickness.

At last, wavefront adaption by photorefractive holography in a SPS :Te (tellurium-doped tin Hypothiodiphosphate) crystal allowed us to achieve a real-time imaging. Images in two and three dimensions were obtained through several hundreds of optical thicknesses. The process of phase conjugation by four-wave mixing has also been explored as a perspective.

English title : Spectroscopic and holographic filtering applied to acousto-optic imaging of thick scattering media.

Keywords : Ultrasound-modulated tomography, Turbid media, Digital holography, Photorefractive effet, Spectral Holeburning, Phase conjugation.

Table des matières

Introduction

Ι	\mathbf{M}	odula	tion acoustique de la lumière diffuse	1
1	Ima	iger av	ec la lumière diffuse	3
	1.1	Transp	port de la lumière dans les tissus biologiques	5
		1.1.1	Diffusion de la lumière	5
		1.1.2	Paramètres pertinents décrivant les milieux diffusants	6
		1.1.3	Ordres de grandeur dans les tissus biologiques	9
	1.2	Problé	ématiques expérimentales liées à la diffusion de la lumière	10
		1.2.1	Atténuation par absorption et diffusion	10
		1.2.2	Étendue géométrique d'émission d'un milieu diffusant	11
		1.2.3	Tavelures ou <i>speckle</i>	12
		1.2.4	Synthèse sur les limitations expérimentales liées à la diffusion mul-	
			tiple de la lumière	14
	1.3	Techn	iques d'imagerie optique des milieux diffusants	15
		1.3.1	Sélection des photons balistiques ou serpentiles	15
		1.3.2	Imagerie purement optique en régime multi-diffusif	19
		1.3.3	Imagerie multi-modale en régime multi-diffusif	21
	1.4	Conclu	usion	22
2	Ima	igerie a	acousto-optique	23
	2.1	Princi	pe de l'imagerie acousto-optique	25
		2.1.1	Modélisation de l'interaction acousto-optique dans les milieux dif-	
			fusants	25
		2.1.2	Application de l'interaction acousto-optique à l'imagerie	30
	2.2	Détect	tion des photons marqués	32
		2.2.1	Détection cohérente des photons marqués	32
		2.2.2	Détection incohérente des photons marqués	34
		2.2.3	Résolution axiale de l'imagerie acousto-optique	35
	2.3	Réalis	ation d'un filtre spectral hyperfin pour les photons marqués \ldots .	37
		2.3.1	Phénomènes de creusement spectral dans les cristaux dopés ions	
			terre rare	37
		2.3.2	Montage expérimental pour le <i>holeburning</i>	42
		2.3.3	Résultats préliminaires	45
		2.3.4	Discussion	48

83

	2.4	Conclu	asion	49
II	In	nager	ie acousto-optique par holographie numérique	51
3	Ima	gerie a	acousto-optique en régime longues impulsions	53
	3.1	Princip	pe de l'holographie numérique hétérodyne hors-axe	56
		3.1.1	Évolution des techniques holographiques	56
		3.1.2	Présentation du problème	57
		3.1.3	Filtrage spatial du signal utile	59
		3.1.4	Filtrage temporel du signal	61
		3.1.5	Couplage "holographie hétérodyne" et "holographie hors-axe"	63
	3.2	Princip	pe de la détection des photons marqués par holographie numérique	
		hétéro	dyne hors-axe	64
	3.3	Caract	érisation de l'expérience	65
		3.3.1	Description de l'expérience	66
		3.3.2	Efficacité radiométrique de la détection	67
		3.3.3	Utilisation d'un laser longues impulsions	69
		3.3.4	Étude du contraste de <i>speckle</i>	71
		3.3.5	Acquisition des spectres	73
	3.4	Applic	ation de l'holographie numérique hétérodyne hors-axe à la détection	
		des ph	otons marqués	75
		3.4.1	Analyse des contributions dans l'espace des fréquences spatiales	76
		3.4.2	Profils transverses acousto-optiques	79
		3.4.3	Perspectives	80
	3.5	Conclu	nsion	80

III Imagerie acousto-optique par holographie photoréfractive

4	Tra	Fransmission de signaux par mélange à deux ondes optique8		
	4.1 Mécanismes de l'effet photoréfractif			87
		4.1.1	Principe et caractéristiques	87
		4.1.2	Modèle de transport de bandes	89
		4.1.3	Réseau d'indice de réfraction	89
	4.2	Hologi	caphie photoréfractive	91
		4.2.1	Le mélange à deux ondes optique	92
		4.2.2	Transmission d'une modulation de phase par un cristal photoréfractif	95
		4.2.3	Bruit dans les amplificateurs photoréfractifs	96
	4.3	Caractérisation de cristaux à 800 nm		97
		4.3.1	Matériaux photoréfractifs pour l'imagerie acousto-optique	98
		4.3.2	Germanate de bismuth dopé cuivre (BGO :Cu)	100
		4.3.3	Tellurure de zinc dopé vanadium et manganèse (ZnTe :V,Mn) $~$	102
		4.3.4	Hypothiodiphosphate d'étain dopé tellure (SPS :Te)	103

	4.4	Conclusion	108	
5	Ima	gerie acousto-optique résolue en temps	111	
	5.1	Détection photoréfractive des photons marqués	112	
		5.1.1 État de l'art \ldots	112	
		5.1.2 Tomographie acousto-optique cohérente	113	
	5.2	Principe de l'imagerie acousto-optique résolue en temps	116	
	5.3	Modélisation de l'imagerie acousto-optique résolue en temps	118	
		5.3.1 Hologramme statique des photons non marqués	118	
		5.3.2 Transmission d'une modulation temporelle par un cristal photoré-		
		fractif	121	
		5.3.3 Détection du signal acousto-optique	122	
	5.4	Description de l'expérience	123	
		5.4.1 Montage expérimental	123	
		5.4.2 Acquisition des données	127	
	5.5	Résultats expérimentaux	129	
		5.5.1 Imager un contraste d'absorption	129	
		5.5.2 Dépendance du signal acousto-optique	137	
		5.5.3 Imager un objet diffusant	141	
		5.5.4 Imagerie acousto-optique en trois dimensions	143	
	5.6	Conclusion	144	
C	እ / / ነ		-1 4 17	
0	Mélange a quatre ondes pour la conjugaison de phase			
	0.1	Melange a quatre ondes degenere en frequence	150	
		6.1.1 Principe du melange a quatre ondes	150	
		6.1.2 Melange a quatre ondes dans le SPS : Ie	153	
	0.0	6.1.3 Mesure de la réflectivité du miroir à conjugaison de phase	155	
	6.2	Conjugaison de phase à travers un milieu diffusant	157	
		$6.2.1 \text{Etat de l'art} \qquad \dots \qquad $	157	
		6.2.2 Résultat préliminaire	159	
	6.3	Conclusion et perspectives	161	
Sy	nthè	ese	163	
Co	onclu	usion et Perspectives	167	
\mathbf{A}	Hol	eburning spectral : expression de l'absorption	171	
в	Ada	aptation de front d'onde par un cristal photoréfractif	177	
\mathbf{C}	Nor	mes biomédicales	181	
D	Acoustique 18:			
\mathbf{E}	Pré	parations des gels	189	

F Photos du montage expérimental	193
Références	195

Introduction

Plusieurs découvertes scientifiques ont pour origine une constatation simple souvent liée à la vie courante. Nous pouvons ainsi constater que la lumière nous permet de voir tout objet qui nous entoure, à condition que celui-ci ne soit pas caché. Le fait de voir, se matérialise par la formation d'une image. Cependant, il n'est possible de fabriquer une image optique que dans la mesure où l'objet est accessible à la lumière, que celle-ci se propage en ligne droite dans le milieu, et que le système optique utilisé pour la formation de l'image est quasi-stigmatique (œil, appareil photographique, microscope...).

En imagerie médicale, pour examiner de façon non invasive ce qui est inaccessible à l'œil, à un microscope ou à un endoscope, la lumière visible n'est plus l'onde de prédilection. Ainsi, pour imager le corps humain en profondeur, on a souvent recours aux rayons X, aux ultrasons, à la résonance magnétique et à bien d'autres techniques qui peuvent dans certains cas exposer à des rayonnements nocifs. Chacune de ces méthodes d'imagerie possède un contraste qui lui est propre : les propriétés élastiques pour l'échographie ultrasonore ou la distribution spatiale des temps de relaxation pour l'imagerie par résonance magnétique (IRM).

Utiliser la lumière dans le domaine de l'imagerie médicale peut avoir plusieurs avantages. Accéder aux propriétés optiques en profondeur peut ainsi nous donner des informations sur la couleur, la texture ou la composition des tissus. La présence ou non de sang oxygéné dans des tumeurs peut changer par exemple leurs propriétés optiques à des longueurs d'onde spécifiques [1,2]. En général, le coefficient d'absorption nous renseigne sur la couleur ou plus exactement sur la composition chimique alors que le coefficient de diffusion est plutôt lié à la structure (densité des cellules, présence de fibres, état d'hydratation). Arriver à révéler un contraste optique à l'échelle millimétrique en profondeur peut donc permettre de faire des biopsies optiques non invasives, comme le fait déjà très bien la tomographie de cohérence optique (*Optical Coherence Tomography*, OCT) mais sur quelques millimètres seulement. Si la lumière n'emporte pas autant de succès en imagerie médicale c'est que son utilisation s'accompagne de nombreuses difficultés, liées principalement à la diffusion et à l'absorption. L'absorption de la lumière par les différents constituants des tissus biologiques (eau, hémoglobine, mélanine...) n'est pas un obstacle majeur. En effet, la plupart des tissus possèdent une fenêtre spectrale de transparence, appelée fenêtre thérapeutique optique, entre 650 nm et $1.4 \ \mu m$, où la lumière possède une plus grande profondeur de pénétration. Mais la difficulté principale pour l'imagerie optique vient du fait que les tissus sont fortement diffusants, les photons y empruntent donc des trajectoires très complexes. Il devient alors difficile de localiser une information optique en profondeur (plusieurs centimètres). La plupart des techniques d'imagerie optique essayent de travailler avec les photons dits *balistiques* (qui se propagent en ligne droite), mais ceux-ci sont fortement atténués de façon exponentielle avec le coefficient de diffusion et l'épaisseur. Il devient donc nécessaire de développer des techniques d'imagerie propres à la lumière diffuse.

Chercher à imager à travers des milieux turbides s'inscrit d'une part dans l'optique de développer des techniques pour le domaine biomédical mais possède d'autre part un aspect plus fondamental lié à la compréhension et l'étude de la propagation de la lumière dans les milieux désordonnés. Il existe actuellement trois axes principaux plus ou moins avancés dans le domaine de l'imagerie en régime multi-diffusé. Le premier consiste à analyser un signal de diffusion résolu en temps. On remonte aux propriétés optiques locales en traitant un problème inverse (équation de transfert radiatif) en fonction de la fenêtre temporelle que l'on sélectionne. En Tomographie Optique Diffuse (Diffuse Optical Tomography, DOT), le milieu à étudier est éclairé par un ensemble de sources, puis on enregistre la lumière multi-diffusée par un ensemble de détecteurs. La résolution d'une telle imagerie dépend du maillage et plus ce maillage est fin plus le problème inverse est coûteux en temps. Le second axe est basé sur le contrôle cohérent de la lumière à travers le contrôle de la structure spatiale du front d'onde incident afin d'optimiser sa propagation dans le milieu. La conjugaison de phase optique permet dans ce cas de re-propager la lumière à travers un milieu diffusant et de restaurer le front d'onde initial ayant cumulé l'information sur les propriétés optiques du milieu. Le troisième axe utilise le couplage de la lumière avec des ultrasons et s'inscrit dans la tendance actuelle à développer des dispositifs d'imagerie multimodale. Ce dernier axe est développé expérimentalement à l'Institut Langevin à travers deux effets physiques : l'effet photo-acoustique et l'effet acousto-optique.

Contrairement aux ondes électromagnétiques dans le visible, les ondes acoustiques à quelques mégahertz sont très peu diffusées dans les tissus biologiques. L'idée de coupler des ondes acoustiques et optiques a pour objectif de tirer avantage de ce que peut apporter chacune d'entre elles : l'information optique pour la lumière et la résolution spatiale pour les ultrasons. En photo-acoustique, ou opto-acoustique, le milieu est illuminé par une source intense et la dilatation du milieu provoquée par l'absorption du rayonnement crée une onde acoustique qu'il est facile de détecter en profondeur. L'imagerie acousto-optique est, elle, basée sur l'interaction entre la lumière diffuse et une excitation ultrasonore focalisée. Les ultrasons vont perturber la phase de l'onde optique dans la zone de focale

acoustique et la mesure de cette modulation permet de caractériser les propriétés optiques de la région d'interaction. La résolution spatiale est uniquement liée au confinement de l'onde ultrasonore. Cette dernière technique d'imagerie est le sujet principal de cette thèse.

Ce travail de thèse expérimental traite de différentes approches liées à l'imagerie acoustooptique et de conjugaison de phase à travers les milieux diffusants dans une moindre mesure. La première partie traite de l'imagerie acousto-optique d'une façon générale, à travers la compréhension des phénomènes qui entrent en jeu dans l'interaction acousto-optique et une revue des différentes possibilités qui sont offertes pour la détection de photons modulés par les ultrasons. Nous verrons quelles sont les contraintes expérimentales liées à la diffusion multiple et intrinsèques à l'imagerie acousto-optique. Nous y présenterons enfin quelques travaux préliminaires sur la réalisation d'un filtre spectral hyperfin pour la détection des photons modulés par les ultrasons. Dans les deux parties suivantes, nous traiterons de deux techniques interférométriques de détection des photons modulés. La première est l'holographie numérique dont on essayera d'augmenter la sensibilité avec un laser à longues impulsions. La seconde est l'holographie photoréfractive. Cette dernière méthode s'appuie sur l'inscription d'un hologramme de phase dans un cristal massif photoréfractif. Nous allons en présenter une nouvelle évolution, due à l'utilisation d'un nouveau matériau permettant entre autres de faire une imagerie acousto-optique résolue en temps.

Toutes les méthodes présentées utilisent une longueur d'onde optique dans le proche infrarouge (autour de 800 nm), c'est à dire dans la fenêtre thérapeutique. Enfin, quelques parenthèses seront ouvertes sur la conjugaison de phase optique à travers des milieux diffusants par mélange à quatre ondes dans le même matériau photoréfractif.

Première partie

Modulation acoustique de la lumière diffuse

Chapitre 1

Imager avec la lumière diffuse

Table des matières

1.1	Transport de la lumière dans les tissus biologiques \hdots		5
	1.1.1	Diffusion de la lumière	5
	1.1.2	Paramètres pertinents décrivant les milieux diffusants	6
	1.1.3	Ordres de grandeur dans les tissus biologiques	9
1.2	Problé	matiques expérimentales liées à la diffusion de la lumière	10
	1.2.1	Atténuation par absorption et diffusion	10
	1.2.2	Étendue géométrique d'émission d'un milieu diffusant	11
	1.2.3	Tavelures ou <i>speckle</i>	12
	1.2.4	Synthèse sur les limitations expérimentales liées à la diffusion	
		multiple de la lumière	14
1.3	Techni	ques d'imagerie optique des milieux diffusants	15
	1.3.1	Sélection des photons balistiques ou serpentiles $\ . \ . \ . \ .$	15
	1.3.2	Imagerie purement optique en régime multi-diffusi f $\ .\ .\ .$.	19
	1.3.3	Imagerie multi-modale en régime multi-diffusif	21
1.4	Conclu	sion	22

"If one observes the light from a gas laser operating at 6328 Å as it is scattered from a piece of paper, a rather curious phenomenon is noticed. A pattern (which remains essentially constant although some flickering is noticed) of random dark and light spots is seen. Viewed from a greater distance the number of spots is reduced, and vice versa. If the paper is moved the spots move with the paper. If one places his eye very close to the light pattern on the paper in a dark room with the eye focused on infinity, the spots are seen distinctly. As one moves his head, the impression is gained that one is looking at a fixed pattern of spots through a hole. If a piece of paper with a small pin hole is placed in front of the eye, the number of spots seen is sharply reduced. All the above phenomena can be seen from light scattered from or transmitted through smooth or coarse paper, or reflected from a painted surface. The explanation of this phenomenon must surely be related to the coherence and extreme monochromaticity of the light emitted from the laser. The scattering of monochromatic coherent light from a rough surface is very similar to the problem of "clutter" in radar." Langmuir, Robert V, "Scattering of laser light." Applied Physics Letters, 1963.

L orsqu'une onde lumineuse interagit avec un tissu biologique, deux phénomènes se produisent : l'absorption et la diffusion. Cette interaction est fortement dépendante de la longueur d'onde et suivant la valeur de celle-ci, l'onde lumineuse se propagera plus ou moins profondément à l'intérieur des tissus. Les tissus biologiques sont aussi caractérisés par des fluctuations d'indice de réfraction dues à la présence de structures complexes (cellules, membranes, noyaux, fibres...) qui dévient la trajectoire des rayons lumineux et entrainent une dispersion de la lumière dans toutes les directions.

Dans ce chapitre sont présentés les concepts de base de la propagation de la lumière dans un milieu diffusant afin de déterminer les paramètres pertinents pour décrire ces milieux à une échelle macroscopique, une description plus détaillée se trouve dans la thèse de R. Pierrat [3]. Nous verrons qu'il y a différents régimes de transport de la lumière en fonction des caractéristiques du milieu. Nous présenterons aussi les difficultés expérimentales liées à l'imagerie des milieux diffusants. Nous verrons enfin quelles sont les méthodes existantes ou en voie de développement pour imager à travers ce type de milieu.

1.1 Transport de la lumière dans les tissus biologiques

1.1.1 Diffusion de la lumière

La diffusion de la lumière est un phénomène physique qui se produit lorsqu'une onde électromagnétique interagit avec une particule. Les charges de cette particule se mettent à osciller se transformant ainsi en dipôles oscillants qui émettent un rayonnement secondaire dans toutes les directions. Ce rayonnement se fait à la même fréquence que l'onde incidente dans le cas d'un processus de diffusion élastique.

La description de la propagation de la lumière dans les milieux biologiques où les particules ont des tailles de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde est basée dur la théorie de Mie [4]. C'est une théorie rigoureuse de la diffusion électromagnétique par une particule sphérique homogène. Connaissant l'indice complexe et le rayon de la particule, ainsi que la longueur d'onde, cette théorie fournit les champs diffusés (sections efficaces et fonction de phase) sous forme de développements en série qui peuvent être calculés numériquement. Dans le régime de diffusion de Mie, l'interaction de l'onde avec la particule est importante, le système est fortement diffusant et la diffusion se fait principalement vers l'avant.

Lorsque les particules sont suffisamment éloignées les unes des autres (cas d'un ensemble dilué de particules) les effets de couplage entre les particules et les effets d'interférence entre les champs diffusés sont négligés. Dans ce cas, on considère que la particule est excitée seulement par le champ incident. L'intensité diffusée totale est la somme des intensités diffusées par chacune des particules. Nous sommes dans l'approximation de la **diffusion simple**. Dès que la densité de particules augmente, cette approximation devient inadéquate car on ne peut plus négliger les interactions entre les champs diffusés par les particules. Nous nous trouvons en régime de **diffusion multiple** : le champ incident subit plus d'un phénomène de diffusion avant d'être détecté et l'expression des intensités détectées est plus complexe. Souvent dans ces milieux, la propagation d'une onde est décrite par une approche statistique. Cela est plus commode car beaucoup de mesures sont des grandeurs moyennes (temporelles ou spatiales) ou ne sont exploitables que statistiquement (comme une figure de *speckle* par exemple). Nous pouvons alors adopter une image de type transport de particules, en assimilant le rayonnement à un ensemble de photons qui peuvent être diffusés ou absorbés lors de leurs interaction avec le milieu. La figure 1.1 illustre le phénomène de diffusion de la lumière, où à chaque événement de diffusion la trajectoire des photons est modifiée.



Figure 1.1 – Représentation schématique des chemins optiques dans un milieu diffusant.

1.1.2 Paramètres pertinents décrivant les milieux diffusants

Coefficient d'absorption Lorsque l'énergie d'un photon correspond à une énergie de transition (électronique, vibrationelle...) d'une moléculre, il y a absorption. Cette énergie absorbée par la molécule est essentiellement transformée en chaleur. La fraction de flux $d\phi$ absorbée par une tranche dx le long d'un trajet pour un faisceau collimaté s'exprime sous la forme :

$$d\phi = \mu_a \phi dx \tag{1.1}$$

Le coefficien μ_a introduit dans cette expression est le *coefficient d'absorption* (souvent exprimé en cm^{-1}) et son inverse $l_a = 1/\mu_a$ est le libre parcours moyen d'absorption. De l'équation 1.1 découle la loi de Beer-Lambert qui décrit l'atténuation du flux lumineux dans un milieu absorbant :

$$\phi = \phi_0 \exp(-\mu_a x) \tag{1.2}$$

Libre parcours moyen de diffusion Dans un modèle où le transport de l'énergie lumineuse est assimilé à un transport de particules, le *libre parcours moyen de diffusion* l_s , peut s'interpréter microscopiquement comme la distance moyenne entre deux événements de diffusion, ou comme la distance moyenne qu'un photon, partant de n'importe quelle position, va parcourir avant la prochaine diffusion.

En utilisant le libre parcours moyen de diffusion, on peut définir trois régimes de transport de la lumière dans un milieu diffusant de dimension caractéristique L, et définir en particulier les régimes de diffusion simple et de diffusion multiple :

- $L \ll l_s$: régime balistique (l'onde traverse le milieu sans être diffusée).
- $L \simeq l_s$: régime de diffusion simple.
- $L \gg l_s$: régime de diffusion multiple.

Dans le régime balistique, l'intensité diffusée est négligeable et l'onde collimatée traverse le milieu sans perte d'énergie par diffusion. Dans le régime de diffusion multiple, l'onde collimatée (balistique) est totalement éteinte et le transport de l'énergie se fait par l'intensité diffuse uniquement. Dans le régime intermédiaire, il peut y avoir coexistence d'une intensité collimatée et d'une intensité diffuse.

Le coefficient de diffusion μ_s est défini comme l'inverse du libre parcours moyen de diffusion : $\mu_s = 1/l_s$. Ce coefficient traduit, d'une façon similaire à la loi de Beer-Lambert pour l'absorption, le fait qu'une fraction de l'énergie incidente est diffusée dans une direction différente, contribuant ainsi à la diminution de l'énergie dans la direction initiale.

Coefficient d'extinction Si l'on s'intéresse à l'énergie se propageant dans une direction déterminée (faisceau collimaté), alors les deux processus d'absorption et de diffusion contribuent à l'extinction de l'énergie incidente. Un milieu peut être à la fois absorbant et diffusant, on introduit alors le *coefficient d'extinction* : $\mu_e = \mu_a + \mu_s$ tel que $\phi_{bal} = \phi_0 \exp(-\mu_e x)$, où ϕ_{bal} représente le flux collimaté. Ce coefficient permet d'exprimer l'atténuation globale de la lumière balistique.

L'albédo a, qui exprime la "blancheur", est utilisé pour caractériser le pouvoir diffusant d'un milieu et est défini par :

$$a = \frac{\mu_s}{\mu_s + \mu_a} \tag{1.3}$$

Si l'*albédo* vaut 0, le milieu est purement absorbant (encre de chine dans le visible). S'il vaut 1, le milieu est purement diffusant (nuage dans le visible).



Figure 1.2 – Représentation schématique de la fonction de phase dans le cas d'une diffusion anisotrope.

Coefficient d'anisotropie Lorsque les diffuseurs possèdent une taille supérieure à la longueur d'onde, la diffusion se fait de façon anisotrope (théorie de Mie). La probabilité pour un photon, dont la direction incidente est représentée par le vecteur \vec{k} , de repartir dans une direction $\vec{k'}$, est donnée par la fonction de phase $f(\vec{k}, \vec{k'})$ (figure 1.2). Dans un milieu décrit à l'échelle macroscopique comme homogène et isotrope, la fonction de

phase ne dépend que de l'angle entre \overrightarrow{k} et $\overrightarrow{k'}^1$. On peut alors définir la fonction de phase en fonction du cosinus de l'angle θ de rediffusion tel que $cos(\theta) = \overrightarrow{k} \cdot \overrightarrow{k'}$. Le *coefficient* d'anisotropie g est alors défini comme le cosinus moyen de l'angle de rediffusion :

$$g = \langle \cos(\theta) \rangle_{\theta} = \int_{-1}^{+1} f(\cos(\theta)d(\cos\theta))$$
(1.4)

Ce paramètre caractérise l'anisotropie du diagramme de diffusion. Si la diffusion est isotrope, g = 0. Si la diffusion est très piquée vers l'avant (cas des grosses particules), alors $g \simeq 1$. Dans les tissus biologiques, la diffusion se fait préférentiellement vers l'avant et le *coefficient d'anisotropie* est compris entre 0,8 et 0,98 [5].

Libre parcours moyen de transport A partir des coefficients de diffusion μ_s et d'anisotropie g, on définit une nouvelle grandeur, le *coefficient de diffusion réduit* :

$$\mu'_{s} = \mu_{s}(1-g) \tag{1.5}$$

Son inverse $l^* = l_s/(1-g)$ est le libre parcours moyen de transport. Cette grandeur est plus adaptée à la description des milieux diffusants anisotropes. Le libre parcours moyen de transport l^* caractérise la longueur du trajet optique nécessaire à un photon pour perdre la mémoire de sa direction de propagation initiale comme l'illustre la figure 1.3.



Figure 1.3 – Représentation schématique du phénomène de diffusion multiple et du libre parcours moyen de transport dans le cas d'une diffusion anisotrope avec g = 0.9, et donc $l^* \simeq 10 l_s$.

Coefficient d'extinction effectif Pour décrire l'atténuation totale dans un milieu diffusant et absorbant, on introduit le *coefficient d'extinction effectif* :

$$\mu_{eff} = \sqrt{3\mu_a(\mu_a + \mu'_s)} \tag{1.6}$$

En effet, lorsque toute l'énergie est transportée par la composante diffuse (c'est le cas lorsque $L \gg l^*$, le transport de l'énergie obéit à une équation de diffusion, plus simple que l'équation de transfert radiatif². La solution de l'équation de diffusion en un point situé

^{1.} En 1941, Henyey et Greenstein ont développé une expression de f qui s'écrit : $f(\cos\theta) = \frac{1}{4\pi} \frac{1-g^2}{(1+g^2-2g\cos(\theta))^{3/2}}$. Elle permet de décrire la dépendance angulaire de la diffusion.

^{2.} L'équation de transfert radiatif (ETR) est l'outil fondamental pour modéliser la propagation de l'intensité moyenne du rayonnement en milieu diffusant et absorbant. Elle est établie en effectuant le

loin de la source lumineuse $(r \gg l^*)$ s'écrit alors [6] :

$$\phi_{diff} = \phi_0 \frac{\exp(-\mu_{eff}r)}{r} \tag{1.7}$$

1.1.3 Ordres de grandeur dans les tissus biologiques

Dans les milieux biologiques, la lumière se trouve rapidement dans un régime de diffusion multiple et au bout de quelques millimètres seulement. Les caractéristiques du champ incident (direction de propagation, amplitude, phase...) sont alors perdues. Le tableau 1.1 donne quelques ordres de grandeurs des différents paramètres définis précédemment pour des longueurs d'ondes autour de 800 nm. Ces valeurs sont tirées de [5].

n	Indice de réfraction	1.35 - 1.45
μ_a	Coefficient d'absorption	$10^{-2} \ cm^{-1} - 10 \ cm^{-1}$
μ_s	Coefficient de diffusion	$50 \ cm^{-1} - 200 \ cm^{-1}$
g	Coefficient d'anisotropie	$\simeq 0.9$
μ_s'	Coefficient de diffusion réduit	$5 \ cm^{-1} - 20 \ cm^{-1}$
μ_{eff}	Coefficient d'extinction effectif	$1.5 \ cm^{-1} - 60 \ cm^{-1}$
l_s	Libre parcours moyen de diffusion	$50 \ \mu m - 200 \ \mu m$
l^*	Libre parcours moyen de transport	$500 \ \mu m - 2 \ mm$
a	Albédo	$\simeq 1$

Table 1.1 – Ordres de grandeur des principaux paramètres optiques dans les tissus biologiques.

Ces valeurs donnent une idée de la difficulté d'imager optiquement les tissus biologiques. Considérons par exemple un tissu ayant pour caractéristiques : $\mu_a = 0.02 \ cm^{-1}$ (coefficient d'absorption de l'eau à 800 nm [7]), $\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$ et donc $\mu_e \simeq 100 \ cm^{-1}$ et $\mu_{eff} \simeq 0.8 \ cm^{-1}$. L'atténuation de la lumière balistique est proportionnelle à $e^{-\mu_e x}$ et celle de la lumière totale est proportionnelle à $e^{-\mu_{eff}x}$. Ainsi, pour une épaisseur $x = 50 \ mm$, la proportion de photons balistiques transmise vaut $e^{-500} \sim 7.10^{-218}$ et le facteur de transmission pour l'énergie totale vaut $e^{-4} \sim 2.10^{-2}$. Ceci traduit le fait qu'il est quasiimpossible d'imager avec la lumière balistique au delà de quelques millimètres et qu'il est nécessaire de développer des techniques d'imagerie exploitant la lumière diffuse uniquement.

bilan d'énergie radiative sur un élément de volume. C'est une équation intégro-différentielle qui décrit le transport de la luminance, grandeur dépendant de la position, d'une direction et du temps. Sauf dans des cas simples, il n'existe pas de solution analytique à l'ETR.

1.2 Problématiques expérimentales liées à la diffusion de la lumière

Imager à travers un milieu diffusant peut se faire en régime balistique, de diffusion simple ou multiple. Dans les techniques d'imagerie optique conventionnelles (Microscopie, Tomographie Optique Cohérente...), seule la partie collimatée de la lumière participe à la formation de l'image à travers une conjugaison de l'objet sur un détecteur. Mais comme nous l'avons vu précédemment, à partir de quelques millimètres, les photons balistiques sont presque complètement atténués et il faut donc tirer profit de la lumière diffuse. Cependant, plusieurs contraintes apparaissent dès qu'il s'agit d'imager en régime de diffusion multiple. L'objectif de cette thèse est de développer une méthode d'imagerie performante au delà de plusieurs dizaines de libres parcours moyens de transport l^* et donc dans un régime où la totalité des photons balistiques a été atténuée.

1.2.1 Atténuation par absorption et diffusion

L'absorption peut être un facteur limitant lorsque l'on veut imager en profondeur. Dans les tissus biologiques, l'absorption provient principalement de l'eau, de l'hémoglobine et de certaines protéines comme la mélanine [8]. L'eau absorbe dans l'ultraviolet et surtout dans l'infrarouge. Le spectre d'absorption de l'hémoglobine dépend de son état d'oxygénation. Son absorption est importante aux faibles longueurs d'ondes du visible. Enfin, la mélanine absorbe préférentiellement dans le visible. Leur spectres d'absorption permettent alors de définir une fenêtre, appelée *fenêtre thérapeutique optique* d'après Anderson et al. [9], pour laquelle l'absorption globale des tissus est relativement faible. Comme le montre la figure 1.4, celle-ci se situe entre 600 nm et 1.1 μm .



Figure 1.4 – Fenêtre thérapeutique optique : spectres d'absorption des principaux composants des tissus biologiques (eau, mélanine et oxyhémoglobine HbO_2), inspiré de [8].

Il faut noter, que l'absorption devient encore plus limitante en régime de diffusion. En

effet, les chemins optiques étant plus longs, la lumière est d'autant plus absorbée lors de la traversée du milieu. C'est pour cela que la notion d'extinction a été introduite. Le choix de la longueur d'onde est donc très important et même au sein de la *fenêtre thérapeutique optique*, les écarts d'atténuation entre deux longueurs d'ondes peuvent être importants. Par exemple, l'atténuation totale de la lumière due à la diffusion et à l'absorption de l'eau calculée précédemment à 800 nm, vaudrait $e^{-10} \sim 4.10^{-5}$ à 1064 nm (à cause d'une plus grande absorption par l'eau) [7], soit 400 fois moins de lumière qui passe!

1.2.2 Étendue géométrique d'émission d'un milieu diffusant

Pour imager avec la lumière diffuse, il faut collecter un maximum de flux en sortie d'un milieu diffusant. La diffusion multiple tend à rendre la luminance³ quasi-isotrope (nous pouvons penser à l'éclairement que nous recevons au milieu d'un brouillard épais). Ainsi, dans le cas idéal, il faudrait placer des détecteurs tout autour de l'objet diffusant pour récolter tout l'angle solide d'émission qui vaut 4π .

Dans une configuration en transmission, où on ne peut récolter que le champ en sortie du milieu comme l'illustre la figure 1.5, l'étendue géométrique d'émission vaut (en considérant que la luminance est constante sur la face de sortie) :

$$S\Delta\Omega = \pi S \tag{1.8}$$

où S est la surface émettrice et $\Delta\Omega$, l'angle solide d'émission.



Figure 1.5 – Etendue d'émission d'un milieu diffusant.

Dans l'approximation d'une source ponctuelle et de l'équation de diffusion (1.7), nous considérons que l'étendue latérale (la largeur de la *banane* de diffusion) de la lumière

^{3.} La luminance est définie comme le flux énergétique émis par une source étendue dans une direction donnée, divisé par l'aire apparente de cette source dans cette même direction, elle s'exprime en $W/(m^2.sr)$ [10].

à une profondeur L vaut approximativement L et donc $S \simeq L^2$. Ainsi, pour l'ensemble collection-détection, il faut un système de grande surface et avec une grande acceptance angulaire.

1.2.3 Tavelures ou *speckle*

Dans le domaine de l'imagerie optique, en fonction de la technique utilisée, nous pouvons souvent être amenés à utiliser une source de lumière cohérente (un laser). Dans ce cas, nous sommes confrontés à un nouveau phénomène, qui le plus souvent est très limitant. En effet, lorsqu'on éclaire un milieu diffusant (comme une feuille blanche) par une source cohérente, on observe sur un écran une répartition non uniforme d'intensité (figure 1.6). Ces grains sont plus communément appelés tavelures ou *speckle*. Cette figure de *speckle* provient des interférences entre les rayons diffusés par les différents éléments du milieu. Comme dans un milieu très diffusant, il y a une multitude de chemins optiques, les photons empruntant ces différents chemins pourront interférer de façon constructive (maximum d'intensité) ou destructive (minimum d'intensité), donnant ainsi une répartition spatiale granuleuse du champ transmis.

Chaque figure de *speckle*, correspond à une réalisation donné du désordre dans le milieu. Il est souvent impossible de faire une description exacte d'une figure de *speckle*, car il faudrait connaître parfaitement la géométrie de l'objet diffusant à l'échelle de la longueur d'onde. On a donc souvent recours à une étude des propriétés statistiques, dont certaines sont universelles et indépendantes des caractéristiques microscopiques du milieu. Une description complète des caractéristiques des figures de *speckle* est faite par Goodman [11,12].



Figure 1.6 – Figure de speckle générée par un milieu diffusant éclairé par une source cohérente

Le champ résulte de la superposition d'un grand nombre d'ondes issues du milieu et ayant suivi un grand nombre de séquences de diffusion différentes. Le long de chaque séquence, l'onde a accumulé une amplitude et une phase. Le champ E(x, y, z, t) peut alors s'exprimer en un point de cordonnées (x, y, z) et à un instant t comme :

$$E(x, y, z, t) = \sum_{k=1}^{N} a_k(x, y, z) e^{i\varphi_k(x, y, z, t)}$$
(1.9)

où N est le nombre de séquences de diffusion, $a_k(x, y, z)$ l'amplitude résultant le la séquence de diffusion k et $\varphi_k(x, y, z, t)$ la phase accumulée.

Cohérence spatiale Comme chaque séquence de diffusion est représentée par un trajet optique de longueur quelconque et grande devant la longueur d'onde, la phase est aléatoire d'un trajet à l'autre. Il en résulte qu'à la sortie du milieu diffusant, l'amplitude et la phase du champ sont aléatoires et donc différentes d'un point à l'autre de l'espace.

Chaque grain de *speckle* possède donc une étendue géométrique qui représente une aire de cohérence limitée. La taille moyenne d'un grain de *speckle* peut se calculer dans le cas d'un *speckle* pleinement développé⁴ et vaut $1.22\lambda L/D$, où D est le diamètre de la pupille de sortie et L la distance de cette pupille au plan d'observation. Cette faible cohérence spatiale peut avoir son importance dans le cas d'une détection cohérente de la lumière diffusée :

- Si le détecteur utilisé possède une taille plus grande que celle d'un grain de speckle, il va intégrer l'intensité de plusieurs grains. On aura fait un mauvais échantillonnage de la figure de speckle et la distribution d'intensité tendra à vérifier une loi gaussienne⁵. L'information sur l'amplitude et la phase du champ est alors moyennée sur plusieurs grains.
- Le contraste de la figure de *speckle* peut être diminué dans le cas d'une superposition incohérente de plusieurs figures de *speckle*, ce ne sont plus les amplitudes qui s'ajoutent en chaque point mais les intensités, et les grains brillants sont alors moyennés avec les sombres. Cela peut être le cas si la source utilisée est multimode ou non polarisée, alors chaque mode ou chaque composante de la polarisation va créer sa propre figure de *speckle*.

Le fait d'avoir un champ non uniforme en sortie impose donc plusieurs conditions sur le détecteur et la source à utiliser.

Décorrélation du *speckle* Il peut se produire une superposition incohérente de plusieurs figures de *speckle* qui soit d'origine temporelle. Ceci est le cas en présence de mouvement tant au niveau macroscopique que microscopique (particules en suspension, écoulement sanguin, imagerie *in vivo*, mouvement brownien). Le champ diffusé fluctue dans le temps parce que les déphasages induits à chaque événement de diffusion changent au cours du temps. Il s'en suit une décorrélation du signal interférentiel de *speckle*. Cette décorrélation est d'autant plus rapide que le nombre d'événement de diffusion est grand et donc que le milieu est épais. Ces fluctuations peuvent être exploitées car elles portent des informations sur la dynamique du système. Ainsi, les techniques de diffusion dynamique de la lumière permettent de détecter le mouvement de particules dans un fluide ou de mesurer des changements de vitesse dans l'écoulement sanguin (on parle de *DWS*, *Diffusing-Wave Spectroscopy* [13]). Elles ont donc plusieurs applications médicales ou en

^{4.} Un speckle est dit pleinement développé lorsqu'il vérifie une statistique poissonienne et dans ce cas là l'écart-type de l'intensité ΔI est égal à sa moyenne $\langle I \rangle$ et le contraste vaut 1. Ceci est vrai si on considère que les phases φ_k sont uniformément distribuées entre $-\pi$ et π et que l'amplitude et la phase d'une séquence de diffusion sont des variables aléatoires indépendantes entre elles et décorrélées d'une séquence à l'autre.

^{5.} Lorsqu'on additionne N variables aléatoires indépendantes de même distribution, la distribution vérifie une loi gaussienne lorsque N tends vers l'infini (théorème de la limite centrale)

matière molle. La bande-passante du détecteur doit être telle que son temps d'intégration soit inférieur à l'échelle temporelle des fluctuations. Des résultats récents ont montré qu'il était possible de réaliser de telles mesures grâce à un capteur CCD grâce à une méthode interféromètrique [14]. Une mesure du temps de décorrélation du *speckle* à travers un sein humain d'épaisseur 4 cm a été faite par Gross et al [15]. Nous pouvons mesurer sur la figure 1.7, une distribution spectrale de la lumière diffusée par le sein de largeur à mihauteur égale à 1.5 kHz. Ceci impose à toute méthode de détection interférentielle, une bande passante supérieure à 1.5 kHz.



Figure 1.7 – Mesure *in vivo* de la distribution spectrale de la lumière diffusée par le sein, extrait de [16]

1.2.4 Synthèse sur les limitations expérimentales liées à la diffusion multiple de la lumière

Nous avons montré précédemment que la lumière non atténuée en sortie d'un milieu diffusant possède un certain nombre de propriétés qui nous imposent des conditions expérimentales sur le choix des sources et de la détection. Dans le cas d'un détection incohérente (c'est à dire qui ne fait pas intervenir d'interférences), les principales limites viennent de l'absorption et de la collection de la lumière. Dans le cas d'une détection cohérente, il faudra prendre en compte la faible cohérence spatiale du *speckle* généré, ainsi que sa possible décorrélation.

Il faut dans la mesure du possible :

- Utiliser un longueur d'onde dans la fenêtre thérapeutique optique (autour de 800 nm) afin de maximiser la profondeur de pénétration de la lumière dans les tissus.
- Collecter le maximum de flux possible et donc avoir une grande étendue géométrique de détection.
- Veiller à ne pas dégrader le contraste de la figure de *speckle* pour ne pas perdre d'information (une grande bande passante de détection et un bon échantillonage des grains de *speckle*).

Une fois ces conditions réunies, n'oublions pas qu'un photon en sortie d'un milieu très diffusant, n'a aucune mémoire de sa direction de propagation initiale. Ainsi, le principal défit, reste donc de localiser l'information en profondeur, avec une bonne résolution. C'est là que plusieurs techniques très différentes interviennent.

1.3 Techniques d'imagerie optique des milieux diffusants

Nous avons vu quelles étaient les principales difficultés pour imager à travers un milieu diffusant. Ainsi la lumière diffusée est le plus souvent considérée comme une lumière parasite qu'il faut supprimer. Les solutions envisagées sont souvent classées suivant la nature des photons qu'elles utilisent, qui conditionne les épaisseurs limites qu'elles permettent d'atteindre. Comme nous l'avons vu précédemment, il y a trois régimes principaux : balistique, diffusion simple, diffusion multiple. Nous appellerons respectivement photons balistiques, serpentiles⁶ et diffusés, les photons dans chacun de ces régimes.

Avant de nous intéresser aux techniques utilisant les photons diffusés, nous allons présenter quelques solutions envisagées dans le cas de l'imagerie avec les photons balistiques/serpentiles afin de rejeter la lumière diffuse. Nous verrons que l'utilisation de ces techniques est limitée à des échantillons d'un centimètre d'épaisseur maximum en raison de la faiblesse du signal. Nous nous intéresserons ensuite aux techniques purement optiques du régime diffusif qu'elles aient un objectif d'imagerie pure ou un objectif plus en amont comme le contrôle de la propagation de la lumière à travers un milieu complexe. Nous verrons enfin qu'il y a un grand avantage à tirer de l'interaction de la lumière avec les ultrasons dans l'objectif d'imager en profondeur à travers plusieurs centimètres.

1.3.1 Sélection des photons balistiques ou serpentiles

Plusieurs techniques sont basées sur le rejet de la lumière diffusée, afin de ne détecter que les photons balistiques ou serpentiles. En effet, imager avec les photons balistiques revient à faire une imagerie "classique" dans la mesure où ils vérifient les lois de l'optique géométrique. On connait donc la trajectoire de chaque photons en sortie de l'échantillon et on peut ainsi localiser l'information voulue avec une résolution limitée par la diffraction. La principale limite est que la lumière balistique est très vite atténuée. Elle permet cependant de faire de l'imagerie de surface, jusqu'à un millimètre et le plus souvent en réflexion sur des tissus comme la peau ou l'oeil. Un compromis peut être trouvé en utilisant les photons serpentiles qui permettent d'atteindre un peu plus de profondeur au détriment de la qualité de l'image et de la résolution. Ce choix dépendra de l'application voulue. Dans ce qui suit, nous allons présenter différentes techniques qui ont pour objectif de filtrer les photons balistiques ou de rejeter les photons diffusés. Une revue de ces différentes techniques a été faite par P.M.W French [17].

^{6.} On appelle photons *serpentiles* les photons qui ont subi très peu d'événements de diffusion et dont la trajectoire n'est pas très éloignée de celle des photons balistiques.

Filtrage spatial

Avant de penser à de nouvelles techniques d'imagerie, le plus naturel est d'essayer d'améliorer les techniques d'imagerie conventionnelles en rejetant la lumière diffuse afin d'améliorer leur rapport signal à bruit. Pour cela on peut commencer par filtrer spatialement la lumière. Ce filtrage utilise le fait que les photons balistiques obéissent au principe de Fermat, ils se propagent donc en ligne droite dans un milieu homogène à l'échelle macroscopique.

Filtrage spatial plein champ Cette méthode est principalement basée sur l'idée que dans un système collimaté, les photons sont diffusés à de pus hautes fréquences spatiales. Un collimateur aligné avec la source est placé avant la détection. Seuls les photons dont la direction de propagation est parallèle à la direction initiale seront transmis. Une alternative est l'utilisation d'un diaphragme dans le plan de Fourier d'une lentille afin d'éliminer les hautes fréquences [18]. Cependant, certains photons diffusés sortent malgré tout selon l'axe du collimateur ou à travers le diaphragme, générant un fond lumineux parasite. Ces techniques restent donc limitées à quelques millimètres d'épaisseur (c'est à dire à environ 5 libres parcours moyens de diffusion l_s en réflexion et un peu plus en transmission). De plus, l'utilisation d'un filtre spatial dans un système d'imagerie plein champ va limiter la résolution.

Microcopie confocale Plus connus pour avoir une meilleure résolution longitudinale que les microscopes conventionnels, les microscopes confocaux permettent aussi de rejeter une partie de la lumière diffusée. Un trou placé devant de détecteur permet de sélectionner seulement la lumière provenant du plan conjugué du détecteur, le reste étant rejeté. Cela permet d'une part d'améliorer la résolution mais aussi de rejeter la lumière diffusée. Un balayage point par point permet ensuite de construire des images en 2 ou 3 dimensions. Des résolutions de l'ordre du micron peuvent être atteintes jusqu'à 500 μm de profondeur. Dans cette technique, la lumière est idéalement focalisée sur un voxel et la lumière qui en est rétrodiffusée est ensuite collectée. Ainsi, sa principale limitation est la diffusion du faisceau incident avant la focalisation. Aujourd'hui, des procédés non linéaires sont le plus souvent exploités pour augmenter la profondeur de pénétration en microscopie (microscopie multi-photon). Les longueurs d'ondes d'excitation sont plus élevées (donc moins atténuées dans les tissus) et la diffusion n'a d'influence dans ce cas que sur la lumière (fluorescence) détectée [19]. Ainsi la nouvelle limite pour aller plus en profondeur vient de la possibilité d'avoir des intensités élevées au point focal pour pouvoir initier ces processus non-linéaires.

Ces techniques de filtrage spatial sont souvent combinées à des techniques de filtrage temporel ou par cohérence, augmentant encore plus leur profondeur de pénétration.

Filtrage temporel

Les techniques de sélection temporelle des photons balistiques ou serpentiles se basent sur le fait que ce sont les photons qui sortent en premier du milieu diffusant car leur trajet y est plus court. En effet, les trois régimes de transport se différencient aussi par le temps de vol des photons dans le milieu. Plus le chemin est long, plus ce temps est long. Il peut être mesuré en injectant une impulsion lumineuse très brève dans le milieu (de l'ordre de quelques femtosecondes). Cette impulsion sera élargie dans le temps à cause de la diffusion, et les photons sortiront plus ou moins vite de l'échantillon en fonction de leur nature comme le montre la figure 1.8. Cet enregistrement est appelé *TPSF* (pour *Temporal Point Spread Function*).



Figure 1.8 – Représentation des temps de vol des photons balistiques, serpentiles et diffusés grâce à l'enregistrement de la *TPSF* d'une impulsion brève.

Pour ne détecter que les photons balistiques, il faut réaliser une porte temporelle pour ne collecter que les premiers photons transmis. Le temps d'obturation nécessaire est de l'ordre de 100 fs pour le balistique et 10 ps pour le serpentile. Les détecteurs électroniques usuels ne peuvent pas être aussi rapides, ainsi les portes temporelles incohérentes laissent souvent passer des photons serpentiles qui dégradent la résolution. Il faudra alors trouver un compromis entre la résolution souhaitée et la dynamique du signal. Plusieurs méthodes sont utilisées pour réaliser ce fenêtrage temporel, en voici une liste non exhaustive.

Portes temporelles électroniques On peut réaliser un fenêtrage temporel incohérent grâce à des détecteurs ultra-rapides comme les *streak* cameras⁷, les photodiodes à avalanche, les photomultiplicateurs et les caméras intensifiées⁸. Ces détecteurs peuvent avoir une grande sensibilté et pour certains une réponse linéaire très rapide, en dessous de la picoseconde. Les *streak* caméras sont par exemple utilisées pour enregistrer la *TPSF*. Mais ces dispositifs sont souvent trop chers et ne permettent pas de faire une imagerie rapide (temps d'intégration long pour les faibles signaux et balayage pixel à pixel). On peut cependant les utiliser pour former des images avec les premiers photons arrivés à travers quelques centimètres de tissu mais la résolution est médiocre [20].

Portes temporelles générées par effet non linéaire optique Pour imager en profondeur, en trois dimensions et avec une résolution de l'ordre du micron, il est nécessaire d'utiliser des portes temporelles plus courtes que 100 fs. On a alors recours à des phénomènes non linéaires optiques pour lesquelles la durée de la porte temporelle est celle

^{7.} Une *streak* camera ou caméra à balayage de fente est un détecteur à deux dimensions, l'une est la position, l'autre est le temps. Cela permet de mesurer un phénomène ultra-rapide en déviant la lumière entrant par une fente en fonction de son temps d'arrivée.

^{8.} Une caméra intensifiée est une caméra précédée d'un amplificateur de brillance ou intensificateur.
de l'impulsion laser utilisée. Un faisceau référence, qui ne passe pas par le milieu, permet d'induire l'effet non-linéaire.

L'effet Kerr a d'abord été exploité pour réaliser une porte temporelle. Une cellule à effet Kerr est placée entre deux polariseurs croisés. Un faisceau référence impulsionnel induit une biréfringence temporaire dans la cellule. Seule la composante de la lumière qui recouvre la référence (à la fois dans le temps et dans l'espace) va subir une rotation de sa polarisation et être transmise par la cellule. Il s'agira donc uniquement des photons balistiques, car en l'absence d'impulsion pompe, la cellule se désactive est devient opaque. Cette méthode peut être combinée à un filtrage dans le plan de Fourier [21], mais dans l'absolu elle ne possède pas une grande dynamique et ne permet donc pas d'étudier des tissus de plus d'un centimètre.

Des portes temporelles peuvent être fabriquées par **génération de second harmonique**. Un mélange est fait dans un cristal non-linéaire avec une référence. Il suffit ensuite de réaliser une détection synchrone à la fréquence double. Seuls les photons balistiques participent au mélange et donc sont sélectionnés. Cette technique a été utilisée pour imager à travers 28 libres parcours moyens de diffusion [22].

L'amplification par **diffusion Raman stimulée** peut aussi servir à filtrer les photons balistiques. Un bras référence impulsionnel est toujours utilisé, ici pour amplifier le balistique (l'onde incidente étant préalablement décalée à la longueur d'onde Stokes). Duncan et al ont utilisé ce système pour obtenir une résolution de 150 μm à travers 33 l_s [23].

Enfin, l'**amplification paramétrique optique** permet aussi de réaliser des portes temporelles pour le filtrage des photons balistiques à travers 4 cm de blanc de poulet mais avec une résolution de 9 mm [24].

Nous retiendrons, qu'il existe une multitude de techniques permettant de réaliser des fenêtres temporelles incohérentes grâce à un procédé non-linéaire. Elle nécessitent toutes l'utilisation de lasers femtosecondes et sont souvent limitées par l'acceptance angulaire des matériaux utilisés ou leur faible efficacité de conversion.

Filtrage par cohérence temporelle

Sélectionner les photons balistiques par cohérence temporelle est possible en utilisant des sources de faible cohérence temporelle. Ces techniques sont basées sur le fait que seuls les photons balistiques conservent leurs propriétés de cohérence à la traversée du milieu diffusant et peuvent ainsi interférer avec un faisceau référent. K.A. Stetson proposa d'utiliser le fenêtrage par cohérence temporelle pour imager à travers le brouillard en 1967 [25]. Il existe plusieurs techniques basées sur ce principe dont les plus connues sont l'*OCT* (*Optical Coherence Tomography*) ou l'holographie.

Tomographie Optique Cohérente Comme la microscopie confocale, l'OCT permet de faire l'imagerie en profondeur d'une tranche de tissu en éliminant les photons diffusés provenant d'autres couches que celle étudiée. Cette technique a été proposée par l'équipe de Fujimoto [26] suivie de beaucoup d'autres. On réalise ainsi des coupes optiques en sélectionnant la zone de cohérence. Une source de faible longueur de cohérence est le plus souvent utilisée, l'échantillon étant placé sur un bras de l'interféromètre de type Michelson.

Ainsi, l'onde signal ne va interférer avec la référence que si les chemins optiques sont égaux à la longueur de cohérence de la source près. Il en existe différentes évolutions, comme l'OCT plein champ ou la vélocimétrie Doppler [27]. Elle est sûrement la technique la plus aboutie basée sur la sélection par cohérence temporelle. Elle permet d'atteindre des résolutions de l'ordre de 1 μm sur des épaisseurs allant jusqu'au millimètre.

Holographie Il s'agit ici de faire interférer deux ondes sur une caméra ou un matériau photosensible comme un cristal photoréfractif [28]. Comme pour l'OCT, il faut que la différence de marche entre les deux ondes soit inférieure à la longueur de cohérence [29]. Ces techniques holographiques sont souvent limitées par le contraste des franges dû à l'importance du fond lumineux incohérent. Leur sensibilité peut être améliorée en réalisant une détection hétérodyne en balayant en fréquence le faisceau référence ou en réalisant un filtrage dans le domaine des fréquences spatiales [30].

Limites de l'imagerie des photons balistiques

Toutes les techniques présentées ci-dessus, quelle que soit la méthode utilisée pour le filtrage des photons balistiques, sont confrontées à la même limite : la faible quantité de photons balistiques. Elles permettent certes d'imager des milieux biologiques avec de très bonnes résolutions pour certaines mais pas au-delà de quelques millimètres d'épaisseur. En effet, le flux balistique décroit de façon exponentielle avec l'épaisseur. La profondeur peut être poussée au centimètre en exploitant les photons serpentiles mais au détriment de la résolution. Dans le but d'imager à travers plusieurs centimètres, il devient nécessaire de chercher à exploiter les photons diffusés.

1.3.2 Imagerie purement optique en régime multi-diffusif

Les photons diffusés plusieurs fois sont majoritaires dans les milieux qui nous intéressent (milieux biologiques épais comme le sein) et ils sont encore plus nombreux aux longueurs d'ondes adéquates. Ici nous nous plaçons dans la limite du régime précédent et dans le cas où aucune des techniques présentées plus haut ne peut être utilisée. Certes on ne pourra pas atteindre des résolutions micrométriques mais on pourra traverser de grandes épaisseurs. Nous avons déjà exposé les différents enjeux liés à l'imagerie en régime multidiffusif qui sont l'extinction, la collection du flux, le *speckle* et surtout le caractère aléatoire des trajets optiques qui rend la localisation de l'information d'autant plus difficile. Il est alors nécessaire de résoudre le problème inverse pour fabriquer une image.

Imager avec les photons faiblement diffusés

Si une image peut être formée avec les premiers photons arrivés, ceux qui ont été le moins diffusés, on peut espérer atteindre de meilleures résolutions. On peut pour cela utiliser des portes temporelles : Das et al. [31] arrivent à imager à travers plusieurs centimètres de blanc de poulet mais avec une résolution de 5 mm. D'ailleurs l'article de Moon et al. [32] montre bien, qu'en théorie, on ne peut pas avoir de meilleure résolution. Il montre que à

une distance de 50 l^* , on peut espérer avoir une résolution de l'ordre de 10 l^* (1 cm pour une épaisseur de 5 cm par exemple).

On peut aussi acquérir la TPSF en entier et utiliser un modèle basé sur l'approximation de la diffusion pour extrapoler la TPSF aux premiers instants et calculer quel aurait été le signal des premiers photons s'il avait été possible de le détecter [33]. Cette technique a permis d'atteindre des résolutions de ~ 5 mm à travers des échantillons de propriétés optiques similaires au sein et d'épaisseur 500 l_s . En général, ces techniques n'ont pas mené à des applications médicales d'imagerie en profondeur mais elles auront permis de comprendre plusieurs aspects de l'imagerie optique avec la lumière diffuse.

Tomographie optique diffuse

Le principe de la Tomographie Optique Diffuse (ou DOT pour Diffuse Optical Tomography) est basé sur l'utilisation d'un ensemble de sources autour de l'objet. Un ensemble de détecteurs est utilisé ensuite pour enregistrer la lumière multidiffusée. Des modèles de diffusion de la lumière permettent de reconstruire l'image par résolution du problème inverse. On peut résoudre l'équation de transfert radiatif ou pour faire plus simple se limiter à l'approximation de la diffusion mais qui est seulement valide pour calculer des distributions de photons loin des sources et des bords de l'échantillon. Cela peut être combiné à une détection résolue en temps comme pour l'acquisition de la TPSF mais le coût de l'expérience en est augmenté à cause de l'utilisation de sources ultra-brèves.

Dans tous les cas, la résolution de la DOT dépendra à la fois des algorithmes utilisés et du maillage des sources et détecteurs. En général, le temps de calcul est très élevé mais cette technique a déjà été implémentée pour l'imagerie du cerveau par exemple [34], pour faire de la spectroscopie infrarouge en profondeur ou même pour le monitoring de traitements du cancer du sein [35]. Une revue des progrès faits durant ces 10 dernières années a été faite par Gibson et al. [36]. Nous pouvons en conclure que même si la DOT ne permet pas d'atteindre les résolutions de l'imagerie de résonance magnétique (IRM) ou de l'échographie, elle permet d'apporter de nouvelles informations plus fonctionnelles. Ainsi, sans pour autant faire de l'imagerie, la tomographie optique diffuse est souvent utilisée pour faire des mesures fonctionnelles, pour l'étude de l'activité cérébrale par exemple [37]. Sa résolution spatiale est limitée à plusieurs millimètres [38] mais on en trouve plusieurs applications pour l'imagerie du petit animal [39].

Conjugaison de phase

La conjugaison de phase optique [40] ne permet pas en soi de faire l'imagerie d'objets dans des milieux diffusants, mais elle permet de corriger les aberrations dues à ce type de milieu et ainsi reconstruire l'image d'un objet se trouvant derrière un milieu diffusant [41]. L'idée est, par analogie au retournement temporel des ondes acoustiques, de générer le conjugué de phase d'un front d'onde aberrant ayant traversé un milieu diffusant. Ce conjugué de phase va re-traverser le milieu et son front d'onde en sortie sera plan, on pourra par exemple focaliser à travers un milieu diffusant. On peut aussi utiliser la conjugaison de phase pour focaliser à l'intérieur d'un milieu diffusant à condition d'y créer une source cohérente de lumière comme par génération de second harmonique par des nanoparticules [42] ou par modulation acoustique de la lumière [43]. L'onde conjuguée en phase peut être générée grâce à des matériaux non-linéaires optiques ou à un modulateur spatial de lumière (SLM).

1.3.3 Imagerie multi-modale en régime multi-diffusif

Les techniques d'imagerie purement optiques du régime diffusif sont limitées par leur résolution qui peut aller jusqu'à ~ 5 mm à travers 500 l_s [33]. Cette performance est remarquable mais elle ne peut égaler celles des autres techniques utilisées dans l'imagerie biomédicale. C'est pour cela que récemment, il est devenu très intéressant de combiner plusieurs techniques, c'est à dire superposer plusieurs images obtenues grâce à des techniques différentes. La localisation de la lumière en *DOT* peut être aidée par l'*IRM* [44]. Cela s'appelle l'imagerie multimodale.

Une autre variante de l'imagerie multimodale consiste à tirer profit de ce que peut apporter chacune des techniques combinées en faisant interagir deux ondes d'un point de vue physique. Dans le domaine de l'imagerie optique des milieux diffusants, on a depuis plusieurs années, recours à l'acoustique. En effet, les ondes ultrasonores sont beaucoup moins atténuées que les ondes optiques dans les tissus biologiques. C'est d'ailleurs pour cela que l'échographie fait partie des techniques d'imagerie du corps humain les plus utilisées avec une résolution spatiale de l'ordre du millimètre à de très grandes profondeurs. Ainsi, en couplant une onde acoustique à une onde optique nous pouvons avoir accès à l'information optique qui nous intéresse avec la résolution spatiale apportée par l'onde ultrasonore et qui fait défaut à la lumière. Les deux principales techniques utilisant ce couplage sont l'imagerie photo-acoustique et l'imagerie acousto-optique.

Imagerie photo-acoustique

L'imagerie photo-acoustique est basée sur l'effet photo-acoustique ou opto-acoustique observé par A.G Bell en 1880 [45]. Lorsque qu'une onde lumineuse est envoyée dans un milieu de telle façon à ce qu'elle y soit absorbée, il y a production de chaleur. Cela produit une dilatation du milieu qui produit à son tour des ondes acoustiques qui se propagent à partir de la source absorbante. Ces ondes acoustiques peuvent être détectées grâce à un récepteur et ainsi permettre de localiser l'objet absorbant en question. On utilise en général un laser impulsionnel de grande puissance crête pour l'illumination. Dans le domaine de l'imagerie, on peut utiliser comme source l'absorption de l'hémoglobine dans les vaisseaux sanguins, d'une tumeur, ou ajouter des marqueurs comme des nanoparticules d'or qui absorbent à des longueurs d'ondes spécifiques. Cette technique est très avancée et permet notamment d'obtenir de très bonnes résolutions à quelques millimètres de profondeur et *in vivo*, on parle de *microscopie photo-acoustique* [46]. C'est un régime intermédiaire dans la continuité de l'OCT (certains groupes ont déjà combiné ces deux techniques dans un système d'imagerie multi-modal [47]). Elle permet aussi d'atteindre plusieurs centimètres de profondeur avec la résolution des ultrasons [48].

Imagerie acousto-optique

L'imagerie aousto-optique est la technique qui fait l'objet de cette thèse. Elle est basée sur la modulation par les ultrasons des trajets optiques dans un milieu diffusant. Ainsi un faisceau ultrasonore focalisé permet de créer localement des photons modulés qui donnent une information optique localisable grâce aux ultrasons. Nous aurons l'occasion d'approfondir cette technique dans les chapitres suivants.

1.4 Conclusion

La lumière dans un milieu diffusant suit différents régimes de transport : balistique, serpentile et diffusif. Les photons balistiques sont ceux qui vérifient les lois de l'optique géométrique et permettent de faire une imagerie conventionnelle. Ce sont aussi ceux qui sont le plus vite atténués dans les tissus biologiques. Il devient alors difficile de les utiliser pour imager au delà de quelques millimètres de profondeur. Le premier axe développé par les différents groupes de recherches dans l'objectif d'imager optiquement en profondeur a été le filtrage des ces photons balistiques, et le rejet du flux diffus qui est en général le plus important. Mais quelle que soit la méthode utilisée, il est impossible d'imager au delà du centimètre.

Il a fallu donc trouver des solutions permettant d'imager avec la lumière diffuse, malgré les contraintes qui y sont liées. En effet, pour imager avec les photons multi-diffusés il faut veiller à augmenter la profondeur de pénétration de la lumière dans les milieux en utilisant une longueur d'onde dans la fenêtre thérapeutique optique. Il faut par ailleurs développer une détection de grande étendue optique qui, si elle est cohérente, doit être insensible aux problèmes de cohérence spatiale et de décorrélation du *speckle* en sortie du milieu.

Les premières techniques développées consistaient à imager avec les premiers photons arrivés, ceux qui ont été le moins diffusés, avec des résultats assez prometteurs. Cependant, imager à travers plusieurs centimètres avec les photons multi-diffusés implique de résoudre le problème inverse pour la reconstruction d'une image et la résolution reste limitée à quelques millimètres au mieux.

De nouvelles techniques sont alors apparues ces vingt dernières années, basées sur l'interaction entre une onde lumineuse et une onde acoustique. Ces techniques dites "multimodales" permettent de faire une imagerie optique des tissus à la résolution des ultrasons, qui peut être inférieure au millimètre à plusieurs centimètres de profondeur. L'imagerie acousto-optique fait partie de ces dernières techniques. Nous allons en exposer le principe dans le chapitre suivant.

Chapitre 2

Imagerie acousto-optique

Table des matières

2.1	Princip	25	
	2.1.1	Modélisation de l'interaction acousto-optique dans les milieux	
		diffusants	25
	2.1.2	Application de l'interaction acousto-optique à l'imagerie $\ . \ .$	30
2.2	Détection des photons marqués		32
	2.2.1	Détection cohérente des photons marqués $\ldots \ldots \ldots \ldots$	32
	2.2.2	Détection incohérente des photons marqués	34
	2.2.3	Résolution axiale de l'imagerie acousto-optique	35
2.3	Réalisation d'un filtre spectral hyperfin pour les photons marqués .		37
	2.3.1	Phénomènes de creusement spectral dans les cristaux dopés	
		ions terre rare	37
	2.3.2	Montage expérimental pour le <i>holeburning</i>	42
	2.3.3	Résultats préliminaires	45
	2.3.4	Discussion	48
2.4	Conclu	sion	49



www.xkcd.com

L'imagerie acousto-optique s'appuie sur l'interaction entre une onde lumineuse avec une onde ultrasonore focalisée. Cette interaction induit une modulation de l'onde lumineuse. Cette modulation est proportionnelle à la densité locale de photons. Il est donc possible d'accéder à un contraste optique local en profondeur dans la mesure où cette modulation peut être détectée. L'information optique est ainsi localisée dans un milieu diffusant grâce à l'onde ultrasonore et ce, sans recourir à la résolution du problème inverse.

Dans un premier temps, nous exposerons dans ce chapitre, les principes physiques entrant en jeu dans l'interaction acousto-optique dans un milieu diffusant. Nous verrons ensuite quel est le principe de l'imagerie acousto-optique et quelles sont les caractéristiques des photons modulés par les ultrasons et quelles conditions elles imposent sur leur détection. Nous présenterons les différentes techniques proposées pour la détection de ces photons qu'elles soient cohérentes ou incohérentes, basées sur l'utilisation d'un monodetecteur ou d'un détecteur multiplexé. Nous nous attarderons ensuite sur le filtrage des photons marqués par *holeburning* spectral, technique que j'ai commencé à implémenter durant ma thèse.

2.1 Principe de l'imagerie acousto-optique

Le principe de l'imagerie acousto-optique a été breveté en 1989 par D. Dolfi et F. Micheron [49]. Dans ce brevet est proposé un système pour l'imagerie médicale par transillumination où un transducteur émet une onde acoustique qui interfére avec un faisceau optique. La lumière traversant le milieu a sa fréquence décalée de la fréquence de l'onde acoustique. L'objectif y est donc de prendre en compte uniquement cette lumière décalée en fréquence pour la formation de l'image. Il faudra attendre 1993 pour que la première expérience d'acousto-optique dans un milieu diffusant soit réalisée par Marks et al [50]. Ils parviennent à détecter une modulation temporelle d'un signal optique engendrée par une onde ultrasonore impulsionnelle.

2.1.1 Modélisation de l'interaction acousto-optique dans les milieux diffusants

La diffraction de la lumière par les ultrasons a été mise en évidence en 1932 à la fois par P. Debye [51] et par R. Lucas à l'ESPCI [52]. L'onde de pression acoustique crée un réseau d'indice dans le milieu qui diffracte la lumière dans différents ordres, les rayons lumineux sont déviés. Cependant, dans un milieu diffusant l'interaction lumière-ultrasons est différente, et n'a été étudiée et modélisée qu'à partir des années 1990. Dans ce cas, on ne peut plus parler de déviation des faisceaux lumineux car les chemins optiques dans le milieu sont complexes.

Différents mécanismes entrent en action dans l'interaction acousto-optique dans les milieux diffusants. La modulation de la lumière est à la fois due au mouvement des diffuseurs et aux variations d'indice de réfraction induites par les ultrasons. Les théories ayant été développées prennent d'abord en compte l'un ou l'autre des mécanismes puis les deux à la fois. La première modélisation de l'effet acousto-optique est faite par W. Leutz et G. Maret en 1995 [53]. Ils démontrent la modulation acoustique de la phase de la lumière diffusée par un milieu liquide. Ils considèrent que les diffuseurs subissent à la fois un mouvement brownien et un mouvement d'ensemble induit par le champ ultrasonore. La même année, Wang et al réalisent la première image acousto-optique [54]. Un nouveau modèle est présenté en 1997 par l'équipe de A.Z. Genack [55] qui prend en compte cette fois-ci le caractère non uniforme du champ acoustique. Enfin, L.V. Wang propose, en 2001, une modélisation analytique de l'effet qui prend en compte pour la modulation de la phase de la lumière à la fois le déplacement des diffuseurs et la modulation de l'indice de réfraction [56]. Son modèle est plus réaliste et donc mieux adapté aux milieux fortement diffusants, car il suppose que les événements de diffusion sont corrélés et que le libre parcours moyen l_s est inférieur à la longueur d'onde acoustique. Ce modèle va ensuite être amélioré pour prendre en compte le caractère anisotrope et absorbant des milieux [57]. L'effet acousto-optique est jusqu'alors considéré comme cohérent car il se manifeste comme une modulation de la phase optique suite à une perturbation des chemins optiques dans le milieu diffusant.

Mahan et al. introduisent en 1998 un modèle qui prend en compte la modulation de l'amplitude de l'onde lumineuse due aux variations locales des propriétés optiques du milieu provoquées par l'onde ultrasonore [58]. Cet effet, de nature incohérente, est dû principalement aux faibles modifications du coefficient de diffusion et d'absorption que peut provoquer une variation de densité du milieu. Ce modèle montre que l'on peut théoriquement moduler la lumière incohérente, car il s'agit d'une modulation d'amplitude. Cependant, cet effet est très faible et les premières observations expérimentales n'ont été faites que très récemment sur un signal de fluorescence par Kobayashi et al. [59]. Il faudra alors trouver des solutions pour amplifier le signal acousto-optique comme l'utilisation de microbulles [60]. Nous ne prendrons pas en compte ce mécanisme dans la suite.

Modulation de phase de la lumière par déplacement des centres diffuseurs Lorsqu'une onde ultrasonore se propage dans un milieu diffusant, les diffuseurs se mettent à osciller à la fréquence acoustique. Cette oscillation est proportionnelle à l'amplitude de l'onde acoustique. Ce déplacement va moduler les chemins optiques de la lumière dans le milieu. L'onde lumineuse va alors accumuler le long de son trajet une modulation de phase. Par conséquent, l'intensité du *speckle* formé par la lumière diffuse va à son tour fluctuer à cause de l'onde acoustique. Leutz et Maret [53] ont modélisé ce mécanisme, mais leur modèle n'est valide que lorsque le libre parcours moyen de diffusion l_s est grand devant la longueur d'onde acoustique λ_{US} . Ils supposent donc que les événements de diffusion successifs sont indépendants.

Considérons un milieu d'indice de réfraction n_0 , illuminé par une onde optique de vecteur d'onde \mathbf{k}_0 , et insonifié par un champ acoustique uniforme de pulsation ω_{US} . Dans le cadre de certaines hypothèses¹, nous pouvons exprimer le déphasage induit par le $j^{\text{ème}}$ diffuseur situé à la position \mathbf{r}_i [56] :

^{1.} On considère que les centres diffuseurs sont ponctuels (la diffusion est donc isotrope) et que le libre parcours moyen l_s est grand devant la longueur d'onde otique (régime de diffusion faible).

$$\phi_{dj}(t) = -n_0 k_0 (\mathbf{k}_{j+1} - \mathbf{k}_j) \cdot \mathbf{A} \sin(\mathbf{k}_{US} \cdot \mathbf{r}_j - \omega_{US} t), \qquad (2.1)$$

où $\mathbf{k_j}$ est le vecteur d'onde unitaire pour le $j^{\grave{e}me}$ libre parcours moyen et \mathbf{A} le vecteur amplitude de l'onde acoustique. Les contributions du mouvement de deux différents diffuseurs sont indépendantes. L'équation 2.1, montre la dépendance linéaire du déphasage dû au déplacement des diffuseurs avec la pression acoustique.

Modulation de phase de la lumière par modulation de l'indice de réfraction La variation périodique de pression acoustique induit une modulation d'indice de réfraction dans le milieu. La phase de l'onde optique est alors modulée entre deux événements de diffusion. De même que précédemment, cette modulation de phase est accumulée par l'onde optique et est convertie en modulation de l'intensité de la figure de *speckle*. Dans les mêmes conditions, nous pouvons exprimer le déphasage induit par le $j^{\rm ème}$ libre parcours moyen de longueur l_j et reliant les diffuseurs se trouvant en $\mathbf{r_{j-1}}$ et $\mathbf{r_j}$:

$$\phi_{dj}(t) = \int_0^{l_j} k_0 \Delta n(\mathbf{r}_j, s_j, \theta_j, t) ds_j, \qquad (2.2)$$

où Δn est l'indice de réfraction modulé, s_j la coordonnée le long de l_j et θ_j l'angle entre $j^{e^{me}}$ libre parcours moyen et le vecteur d'onde acoustique k_{US} . La modulation d'indice Δn s'exprime [56] :

$$\Delta n = n_0 \eta k_{US} A sin(\mathbf{k}_{US} \cdot \mathbf{r}_{j-1} + k_{US} s_j cos \theta_j - \omega_{US} t), \qquad (2.3)$$

où le coefficient η est relié au coefficient piezo-optique adiabatique du milieu $\partial n/\partial p$, à la masse volumique ρ et à la vitesse de l'onde acoustique v_{US} par : $\eta = (\partial n/\partial p)\rho v_{US}^2$. A la différence de la modulation d'indice par mouvement des diffuseurs, les contributions de la modulation d'indice de réfraction sur deux libres parcours moyens différents sont couplées. Cette modulation est accumulée sur chaque libre parcours moyen de diffusion, elle va donc dépendre de la valeur du produit $k_{US}l_s$. Elle devient majoritaire devant la modulation induite par le déplacement des diffuseurs lorsque $k_{US}l_s$ est supérieur à 1 (la longueur d'onde acoustique est supérieure au libre parcours moyen de diffusion).

Modulation acousto-optique cohérente La grandeur qui nous intéresse est l'intensité des *speckles* modulés aux harmoniques $n\omega_{US}$. Nous pouvons l'exprimer grâce au théorème de Wiener-Khinchin qui fait intervenir la *fonction d'autocorrélation* temporelle du champ $G_1(\tau)$:

$$I_n = \int_0^{2\pi/\omega_{US}} \cos(n\omega_{US}\tau G_1(\tau)d\tau$$
(2.4)

La fonction d'autocorrélation temporelle du champ électrique $G_1(\tau)$ s'exprime comme l'intégrale, sur l'ensemble des chemins s possibles, de l'autocorrélation du champ E_s correspondant à un chemin donné s pondérée par la probabilité p(s) de suivre ce chemin :

$$G_1(\tau) = \int_0^\infty p(s) \langle E_s(t) E_s^*(t+\tau) \rangle ds$$
(2.5)

Nous pouvons alors inclure les expressions des déphasages induit par les deux mécanismes considérés plus haut dans l'expression du champ E_s . En considérant que ces deux effets sont indépendants, nous pouvons écrire que $\langle \Delta \phi_j^2(t,\tau) \rangle = \langle \Delta \phi_{dj}^2(t,\tau) \rangle + \langle \Delta \phi_{nj}^2(t,\tau) \rangle$, où $\Delta \phi_j(t,\tau) = \phi_j(t+\tau) - \phi_j(t)$ est la variation de phase totale après le $j^{\text{ème}}$ libre parcours moyen et le $j^{\text{ème}}$ événement de diffusion . Nous pouvons par la suite exprimer l'autocorrélation du champ en fonction des déphasages induits par l'onde acoustique dans le cas de très petites variations de phase :

$$\langle E_s(t)E_s^*(t+\tau)\rangle = exp\{-\frac{1}{2}\langle (\sum_{j=1}^{s/l_s+1}\Delta\phi_{nj}(t,\tau) + \sum_{j=1}^{s/l_s}\Delta\phi_{dj}(t,\tau))^2\rangle\}$$
(2.6)

Nous n'allons pas développer ici les calculs de la fonction d'autocorrélation. Ils sont détaillés dans les articles cités plus haut [53,55–57], où ils amènent à l'expression suivante :

$$G_1(\tau) = \int_0^\infty p(s) \exp\{-(2s/l_s)(\delta_n + \delta_d)(n_0 k_0 A)^2 [1 - \cos(\omega_{US}\tau)]\} ds, \qquad (2.7)$$

où δ_d est une constante caractéristique du déplacement des diffuseurs et δ_n une fonction caractéristique de la modulation de l'indice de réfraction qui dépend de η et $k_{US}l_s$.

Dans le cas simple d'une onde plane incidente sur une tranche infiniment étendue d'épaisseur L avec une détection ponctuelle, la fonction p(s) est donnée par la théorie de la diffusion [61]. Après intégration de l'équation 2.5, on obtient :

$$G_{1} = \frac{(L/l_{s})sinh\{[\varepsilon(1 - cos(\omega_{US}\tau))]^{1/2}\}}{sinh\{(L/l_{s})[\varepsilon(1 - cos(\omega_{US}\tau))]^{1/2}\}}$$
(2.8)

où $\varepsilon = 6(\delta_n + \delta_d)(n_0 k_0 A)^2$.

Ce modèle a permis pour la première fois de comparer l'importance relative des deux phénomènes impliqués dans la modulation de la phase de l'onde lumineuse [56]. La modulation est dominée par la modulation de l'indice de réfraction lorsque $k_{US}l_s \ge 1$. En effet, dans ce cas-là, le chemin optique entre deux événements de diffusion augmente sans pour autant que le nombre d'événements de diffusion change (la modulation induite par le déplacement des diffuseurs restant alors constante).

De nombreuses améliorations peuvent être apportées à ce modèle pour qu'il s'approche plus de la réalité. Kempe et al. prennent en compte le fait que le champ ultrasonore n'est pas uniforme [55]. Sakadzic prend d'abord en compte l'anisotropie du milieu [57] puis le caractère impulsionnel de l'onde acoustique [62]. Les simulations numériques basées sur la méthode de Monte-Carlo permettent aussi de modéliser l'interaction acousto-optique [63]. Mais tous ces modèles sont fondés sur une approche issue de la *DWS* (*Diffusing Wave Spectroscopy*) [13,64], ils sont alors limités à des géométries simples où il est possible de faire l'approximation d'une onde ultrasonore plane et où la densité de probabilité des chemins optiques entre la source et le détecteur est connue analytiquement. En conséquence seul le cas d'une tranche infinie insonifiée entièrement de façon uniforme a été modélisée analytiquement. Il a fallu donc développer un modèle qui s'appuie sur l'équation de transfert de la corrélation² qui est plus adapté à la description de milieux hétérogènes et

^{2.} L'équation de transfert de la corrélation est l'équivalent de l'équation de transfert radiatif pour la fonction d'autocorrélation. Ce formalisme est souvent employé en Tomographie Optique Diffuse (DOT).

qui prend en compte une excitation ultrasonore focalisée [65–67]. Ce modèle permet de traiter de façon locale l'interaction acousto-optique où elle apparait comme un *coefficient d'absorption de la corrélation* qui se rajoute au coefficient d'absorption. Lorsque l'amplitude acoustique augmente ce coefficient augmente, et donc la corrélation diminue. Il a été ensuite généralisé au cas d'une impulsion acoustique [68].

En résumé, nous avons montré que la modulation de la phase optique par une onde acoustique provenait principalement de deux mécanismes : le déplacement des diffuseurs et la modulation de l'indice de réfraction. Pour mieux comprendre la dépendance de cette modulation en fonction des différents paramètres, nous pouvons nous appuyer sur le modèle de Genack et al [55]. Même s'ils ne prennent en compte que les déplacements des diffuseurs, ils y expriment la fonction d'autocorrélation $G_1(\mathbf{r}', \tau)$ en un point \mathbf{r}' de la surface de sortie comme une intégrale volumique sur toute la colonne acoustique, en fonction de l'intensité lumineuse locale $I(\mathbf{r})$ en un point \mathbf{r} et de l'intensité acoustique locale $A(\mathbf{r})$:

$$G_1(\mathbf{r}',\tau) \propto \frac{-k_0^2}{3l_s^3} \int P(\mathbf{r},\mathbf{r}')I(\mathbf{r})A^2(\mathbf{r})[1-\cos(\omega_{US}\tau)]d\mathbf{r},$$
(2.9)

où $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ est la probabilité que la lumière arrive en \mathbf{r}' . L'équation 2.9 montre que la modulation acousto-optique dépend de :

- la densité des centres diffuseurs $1/l_s^3$.
- l'intensité lumineuse locale $I(\mathbf{r})$ dans le milieu.
- l'intensité acoustique locale $A(\mathbf{r})$.
- de la probabilité que la lumière arrive en **r**.

Origine du contraste optique Nous pouvons comprendre facilement que dans le cas d'un objet absorbant ayant la même densité de diffuseurs que le milieu l'entourant, le contraste optique vient de la densité locale de photons. Il y aura alors une chute du signal acousto-optique au niveau de l'objet, liée à la chute de l'intensité lumineuse locale par absorption.

Dans le cas d'un objet diffusant (plus diffusant que le milieu qui l'entoure), l'origine de ce contraste est moins évidente. On pourrait tout d'abord penser aussi à une chute de la densité locale de photons, due au fait que l'objet se comporte comme un réflecteur et que la majorité des photons rencontrant l'objet est rétrodiffusée à sa surface. Mais cela n'est pas la seule explication du contraste optique. En effet, la modulation de la phase optique dépend fortement du caractère diffusant de l'objet. La modulation par déplacement des diffuseurs est accumulée à chaque événement de diffusion. Celle due à l'indice de réfraction dépend plus du trajet optique et du nombre de libres parcours moyens. On peut comprendre que plus il y a de diffuseurs plus la modulation acoustooptique est élevée et donc l'efficacité de marquage acoustique est plus grande. Cet effet compenserait le précédent. Dans un article de 2007 [69], Wang s'intéresse à l'imagerie acousto-optique d'objets diffusants non-absorbants. L'algorithme de Monte-Carlo calcule la profondeur de modulation acousto-optique $M(\mu'_s)$ pour différentes valeurs du coefficient de diffusion réduit μ'_s . Cette profondeur de modulation correspond au ratio de la lumière modulée sur la lumière non modulée. Si nous considérons un objet de coefficient μ'_{so} enfoui dans une matrice de coefficient μ'_{sm} , nous trouvons que :

$$\frac{M(\mu'_{so})}{M(\mu'_{sm})} - 1 < 0 \text{ si } \mu'_{so} > \mu'_{sm}$$
(2.10)

Autrement dit, la profondeur de modulation serait plus faible pour un objet plus diffusant que le milieu qui l'entoure. Ceci contredit notre première supposition. Wang en donne une explication analytique. Il affirme que la profondeur de modulation M dépend des différentes contributions tel que :

$$M \approx \frac{1}{2} (C_{n,\bar{s}} + C_{d,\bar{s}} + C_{nd,\bar{s}}), \qquad (2.11)$$

où $C_{n,\bar{s}}$ est la contribution de la modulation d'indice de réfraction, $C_{d,\bar{s}}$ la contribution de la modulation du déplacement des diffuseurs et $C_{nd,\bar{s}}$ l'anticorrélation entre les deux mécanismes de modulation ($C_{nd,\bar{s}}$ est négative); \bar{s} représente le chemin optique moyen dans le champ acoustique. Si μ'_{so} augmente alors que \bar{s} est maintenu constant, alors $C_{d,\bar{s}}$ et $-C_{nd,\bar{s}}$ augmentent presque linéairement avec le nombre d'événements de diffusion. $C_{n,\bar{s}}$ va d'abord diminuer à cause de la diminution des longueurs d'interaction (libres parcours plus courts), puis augmenter à cause des fortes corrélations entre les variations de phase induites par les ultrasons le long des différents libres parcours. Comme les variations de $-C_{nd,\bar{s}}$ dominent sur celles des deux autres contributions, la profondeur de modulation diminue. Ce résultat est confirmé expérimentalement.

2.1.2 Application de l'interaction acousto-optique à l'imagerie

Le principe de l'imagerie acousto-optique consiste à éclairer un milieu diffusant par une onde lumineuse qui va être fortement diffusée dans le milieu. Un faisceau ultrasonore focalisé permettra de moduler la phase optique à travers les deux mécanismes explicités précédemment. Nous appellerons les photons modulés en phase : *photons marqués*. La détection de ces photons marqués permet d'accéder aux propriétés optiques locales du milieu.

Cartographie acousto-optique La méthode d'imagerie (ou *tomographie*) acoustooptique consiste à enregistrer le niveau de photons modulés en phase pour chaque position de l'émetteur ultrasonore. Nous réalisons ainsi une cartographie acousto-optique (figure 2.1). Lorsque la zone de focalisation acoustique de trouve sur un objet présentant un contraste optique avec le milieu, la quantité de lumière va varier. Cette variation peut être due à la densité locale de photons comme dans le cas d'une absorption, ou à l'efficacité du marquage acousto-optique comme dans le cas d'un objet diffusant.

La résolution spatiale de cette imagerie est limitée par la taille de la zone de marquage acousto-optique. La résolution transverse (perpendiculaire à l'axe de l'excitation acoustique) est donnée par : $\Delta x_{US} = \frac{\lambda_{US}F}{D}$, où F est la distance focale de l'émetteur et D son ouverture ou diamètre (voir annexe D). Selon l'axe des ultrasons, le marquage se fait le long de toute la colonne acoustique plus exactement sur la longueur de Rayleigh F_r qui vaut environ $\simeq 20 \ mm$ (son expression est détaillée dans l'annexe D). Il existe plusieurs méthodes dédiées à l'obtention d'une résolution axiale que nous exposerons plus loin car elles peuvent être fortement liées à la technique utilisée pour la détection des photons marqués.



Figure 2.1 – Illustration du principe de la cartographie acousto-optique dans le cas d'un objet absorbant. En présence d'un objet absorbant ou diffusant, l'amplitude de la modulation acousto-optique va varier, et donc le nombre de photons marqués aussi. La mesure de la quantité de photons marqués en fonction de la position du transducteur, permet de faire une cartographie du contraste optique dans le milieu diffusant.

Source virtuelle acousto-optique Le concept de *source virtuelle* de lumière modulée permet de comprendre de façon plus intuitive le principe de l'imagerie acousto-optique. Les photons marqués sont créés au niveau de la zone de focalisation acoustique. Ils sont modulés de façon cohérente à la fréquence des ultrasons. Ainsi cette zone d'interaction acousto-optique peut représenter une *source virtuelle* cohérente de photons décalés en fréquence. L'intensité optique de cette source va alors dépendre des propriétés optiques locales et de l'intensité acoustique. Cette *source virtuelle* peut être déplacée dans le milieu en translatant l'émetteur acoustique. Dans le cas où l'imagerie est pourvue de résolution axiale, cette *source virtuelle* lorsqu'elle est située prés de la face de sortie, dans le cas d'un milieu faiblement diffusant [16,70]. L'intérêt de cette représentation de la modulation acousto-optique n'est pas seulement d'en faciliter la compréhension. Cette *source virtuelle* cohérente peut par exemple permettre de focaliser à l'intérieur d'un milieu diffusant par un procédé de conjugaison de phase optique [43].

Caractéristiques des photons marqués Afin d'identifier les conditions requises pour la détection des photons marqués, nous allons en récapituler les différentes caractéristiques :

- Suite à l'interaction acousto-optique, des bandes spectrales latérales apparaissent, comme le montre la figure 2.2. Ces harmoniques peuvent être aussi d'ordre deux [71]. L'écart entre ces bandes spectrales peut être de l'ordre du millionième de nanomètre, ce qui nécessite un filtre spectral très fin.
- 2. La quantité de photons marqués dépend de la densité locale de photons, de l'intensité acoustique et de l'efficacité de marquage.
- 3. La modulation de phase de la lumière se traduit par une modulation de l'intensité de la figure de *speckle*. Ainsi, suite à l'interaction acousto-optique, nous avons, à la sortie du milieu, plusieurs figures de *speckle* modulées aux différentes harmoniques.

4. La lumière traversant la zone d'interaction acouto-optique est modulée temporellement à la pulsation acoustique ω_{US} .



Figure 2.2 – Illustration du caractère spectral de la modulation acousto-optique. Lorsqu'un milieu diffusant est éclairé par une onde lumineuse monochromatique de pulsation ω_L et insonifié par une onde ultrasonore focalisée de pulsation ω_{US} , le spectre en sortie montre l'apparition de bandes latérales décalées de plus ou moins ω_{US} .

2.2 Détection des photons marqués

Mesurer la quantité de lumière modulée (photons marqués) peut se faire de plusieurs manières. Nous pouvons remonter à la modulation de phase des photons en mesurant la modulation du *speckle* induite par les ultrasons ou en mesurant directement cette modulation dans le domaine temporel. Nous pouvons, et c'est le plus intuitif, utiliser un filtre très fin centré sur la fréquence des photons marqués et en mesurer directement l'intensité. Nous allons voir quelles sont les difficultés liées à la réalisation d'un tel filtre. Nous pouvons aussi faire une détection interférentielle de ces photons, en les faisant interférer avec une onde de référence de même fréquence. Cela peut se faire grâce à un mono-capteur ou à une caméra. Nous allons, dans les parties qui suivent, faire une revue de toutes les techniques disponibles et en discuter les avantages et/ou inconvénients. Nous allons les séparer en deux groupes : les méthodes de détection cohérentes qui vont être sensibles aux phénomènes liés au *speckle* et méthodes de détection incohérentes qui y sont insensibles.

2.2.1 Détection cohérente des photons marqués

Nous considérons qu'une détection est cohérente dans le cas où on essaye d'accéder directement à la modulation induite par les ultrasons à travers la mesure d'une modulation d'intensité. La cohérence spatiale de la lumière limitée à un grain de *speckle* jouera un rôle important dans le rapport signal à bruit.

La première validation expérimentale d'une modulation acoustique de la lumière a été faite par Marks et al. en 1993 [50] en envoyant un signal ultrasonore focalisé et impulsionnel à 1 MHz et en utilisant une photodiode rapide pour enregistrer le signal temporel. Les mêmes personnes proposent d'utiliser plusieurs détecteurs pour améliorer le rapport signal à bruit en enregistrant la modification de la figure de speckle induite par les ultrasons [72]. Nous allons voir dans la suite en quoi utiliser un détecteur multiplexé peut permettre d'atteindre un meilleur signal à bruit et comment, moyennant certains procédés, on peut faire de même en utilisant un mono-détecteur.

Utilisation d'un mono-detécteur

Cohérence spatiale limitée Les premières détections proposées étaient basées sur l'utilisation d'un mono-détecteur qui peut être une photodiode [50,55] ou un photomultiplicateur [53, 54, 73]. Le détecteur, pourvu d'une très grande bande passante, était placé directement en sortie de l'échantillon et permettait de mesurer directement la modulation acousto-optique dans le domaine temporel. Mais très vite, on s'est rendu compte que le fait d'augmenter la surface de la détection détériorait le rapport signal à buit. Wang montre, dans le cas d'une détection sur photomultiplicateur [74], que la profondeur de modulation de l'ensemble du signal détecté m est reliée à la profondeur de modulation d'un seul grain de speckle (zone de cohérence) m_q par $m = m_q/\sqrt{N}$ où N est le nombre de grains intégrés sur le détecteur. En effet, le détecteur intègre spatialement plusieurs grains de speckle dont la modulation peut être de signe contraire, donnant en moyenne une modulation qui tend vers 0 quand le nombre de grains moyennés augmente. La grande surface du détecteur n'apporte rien, car même si elle permet de mesurer un niveau continu plus élevé, la partie variable du signal est dégradée. La principale limitation de ces détections est donc leur étendue optique qui au final est limitée par l'aire de cohérence correspondant à un grain de speckle.

Adaptation de front d'onde Depuis quelques années, des techniques d'adaptation de front d'onde, basées principalement sur l'holographie photoréfractive, ont permis de relancer l'utilisation des détecteurs mono-élément pour la détection cohérente des photons marqués. Dans ce cas, un faisceau référent interfère avec le signal issu de l'objet. Pour remédier au problème de moyennage des grains de *speckle*, ce faisceau est adapté en front d'onde et est additionné de façon cohérente au front d'onde objet sur un mono-détecteur. Dans ce cas, l'augmentation de la surface du détecteur ne pourra qu'augmenter le rapport signal à bruit. Cette technique a été validée simultanément par deux équipes en 2004 [75, 76] et fera l'objet de la troisième partie de cette thèse.

Détecteur multiplexé

L'idée d'utiliser une détection multiplexée où la modulation de chaque grain de *speckle* sera mesurée en parallèle a été proposée par Marks et al en 1993 [50] puis mise en pratique par Leveque et al en 1999 [77]. L'objectif est d'augmenter l'étendue optique de détection en découplant les zones de cohérences de façon à ce que chaque grain de *speckle* soit imagé sur un ou plusieurs pixels. L'utilisation d'un détecteur multiplexé connait trois variantes principales.

Détection synchrone multipléxée Cette méthode consiste à réaliser une détection synchrone en parallèle sur la totalité des pixels d'une caméra CCD [77]. Le rapport signal à bruit varie en \sqrt{N} ; où N est le nombre de grains de *speckle* détectés. L'idée est de réaliser

un éclairage stroboscopique, la source lumineuse est alors modulée à la fréquence ultrasonore. Cela va créer un battement basse fréquence enregistrable par la caméra. Prendre par exemple quatre images à quatre états de phase en quadrature de signal acoustique, revient à figer quatre réalisations différentes de la figure de *speckle*. La combinaison des quatre images permet ensuite de remonter à la modulation acousto-optique. Cette méthode a permis de résoudre en une dimension [77] puis en deux dimensions [78], des objets de 3 mm à travers quelques centimètres de blanc de poulet ou de dinde. La principale limite qu'a connue cette technique est la cadence faible des caméras CCD, le signal devant rester cohérent sur le temps d'acquisition des 4 images. Enfin, la sensibilité n'est pas optimale car cette méthode revient à faire une détection synchrone où l'oscillateur local provient aussi de l'échantillon et est donc très faible. Elle gagnerait à être améliorée en utilisant un oscillateur local indépendant.

Holographie numérique hétérodyne hors-axe Cette méthode proposée par Gross et al en 2003 [79] est l'amélioration logique de la précédente. Une figure d'interférence entre le champ des photons marqués et une référence hétérodyne est enregistrée sur une caméra. Cela permet d'une part l'amplification du signal utile et le filtrage spatio-temporel des photons marqués. En effet, la configuration hors-axe permet de filtrer les bruits dans l'espace de Fourier et la quantité de photons marqués est directement accessible dans l'espace des fréquences. Cette technique permet d'atteindre la limite théorique de bruit équivalente à un photo-électron par pixel. Cette technique a plusieurs avantages dont le caractère sélectif et le rejet de tous les bruits expérimentaux. Cependant, elle a souvent été limitée par la fréquence des caméras et l'étendue optique peut être contrainte par le bon échantillonnage du *speckle*. Elle fera l'objet de la deuxième partie de cette thèse.

Mesure du contraste de *speckle* Une dernière méthode consiste à mesurer la variation du contraste de *speckle* induite par l'excitation ultrasonore. La modulation acoustooptique causant une faible modulation temporelle de l'intensité de chaque grain, le contraste de la figure de *speckle* est alors dégradé pour un temps d'acquisition supérieur à la période acoustique. Cette méthode a été proposée puis modélisée par l'équipe de Wang en 2002 et 2006 [80,81].

2.2.2 Détection incohérente des photons marqués

Une détection incohérente des photons marqués se fonde sur le fait que la lumière en sortie du milieu et ayant interagi avec les ultrasons est décalée spectralement. Il y a un élargissement et une nouvelle distribution énergétique dans le domaine spectral. Il s'agit donc de séparer spectralement les photons marqués des photons non marqués, en créant un filtre fréquentiel très fin centré sur une des bandes latérales pour ne conserver que son énergie. Un mono-détecteur de grande surface peut ensuite permettre de détecter le flux correspondant (avec un rapport signal à bruit qui augmente avec la surface). Il n'y a plus besoin de mesurer une modulation quelconque et la faible cohérence spatiale du *speckle* ainsi que sa décorrélation ne posent plus problème. La principale limite serait l'étendue géométrique de la détection.

Nécessité d'un filtrage spatial fin

Considérons une onde lumineuse de longueur d'onde $\lambda_L = 800 \ nm$, couplée avec une onde ultrasonore de fréquence $f_{US} = 3 \ MHz$. Le décalage spectral $\delta \nu = 3 \ MHz$ correspond à un décalage en longueur d'onde $\delta \lambda = 6.10^{-6} \ nm$. Les raies spectrales sont donc très proches. Il faut un filtre très sélectif.

Fabry-Perot Confocal L'équipe de Wang a proposé en 2004 l'utilisation d'un interféromètre de Fabry-Perot confocal pour le filtrage des photons marqués [82]. Dans cette experience, ils travaillent sur des milieux de faibles épaisseurs (quelques millimètres) et atteignent des résolutions de l'ordre de 50 μm . Pour cela, il a fallu utiliser un transducteur ultrasonore de plus haute fréquence (15 MHz). Les bandes spectrales sont donc un peu plus espacées, allégeant ainsi les conditions sur la finesse du Fabry-Perot. Rousseau et al utilisent le même procédé cette fois-ci en double passage pour imager à travers plusieurs centimètres de profondeur, avec une résolution millimétrique [83]. Ils réalisent ainsi un filtre passe-bande de largeur à mi-hauteur 2.4 MHz dans le but de filtrer des bandes latérales à \pm 5 MHz. La principale limitation, ici, est la très faible acceptance angulaire du Fabry-Perot. L'étendue géométrique est de l'ordre de 0.38 mm^2sr .

Holeburning spectral Dans le même objectif, un filtrage par holeburning spectral a été mis en place par Li et al [84,85]. En créant une zone de transparence dans un cristal dopé aux ions terres rares à la fréquence souhaitée, on peut réaliser un filtre très fin et accordable. L'inconvénient majeur de cette méthode est qu'elle nécessite de très basses températures. L'étendue géométrique est alors limitée par la fenêtre du cryostat et vaut $31 mm^2 sr$ dans l'expérience citée. Cette méthode sera détaillée à la fin de ce chapitre.

Modulation acoustique de la lumière incohérente

Nous avons considéré plus haut que la modulation acoustique de la lumière était plutôt de nature cohérente sans pour autant omettre le fait que Mahan et al ont montré, en 1998, qu'il était possible de moduler acoustiquement l'amplitude de l'onde lumineuse [58]. Ce phénomène étant très faible, il a fallu attendre plusieurs années avant que la première preuve expérimentale ne soit faite [59]. Les améliorations techniques permettent à de plus en plus de groupes de s'intéresser au sujet [60]. Depuis ces deux dernières années, l'utilisation de microbulles résonantes aux ultrasons a été proposée pour augmenter la profondeur de modulation dans le cas de la modulation de la fluorescence [86,87]. Honeysett et al [88] font une étude théorique sur l'utilisation de ces mêmes microbulles pour l'exaltation du signal acousto-optique en général, pas seulement en lumière incohérente.

2.2.3 Résolution axiale de l'imagerie acousto-optique

La résolution axiale désigne la résolution selon l'axe des ultrasons. Nous avons vu que la modulation acoustique de la phase de l'onde lumineuse était confinée dans un volume d'interaction. Quelle que soit la méthode utilisée pour mesurer cette modulation dans le but de faire une imagerie, la résolution spatiale du signal est égale à ce volume. Elle est donc mauvaise dans la direction de propagation de l'onde acoustique.

La résolution transverse est limitée par la diffraction et vaut environ 1 mm en fonction de l'émetteur utilisé, de sa fréquence, de sa focale et de son ouverture. Dans l'autre sens, la résolution est limitée par la longueur de Rayleigh F_r soit environ 2 cm. Cela correspond au "cigare" acoustique. Pour révéler des informations de petites tailles le long de l'axe des ultrasons, il faudra améliorer la résolution axiale. Pour cela, différentes méthodes existent en régime continu ou impulsionnel des ultrasons dont l'objectif est de différencier les zones de marquage. En régime continu, on cherchera à créer des zones de marquage millimétriques en modulant le champ acoustique en phase ou en amplitude (second harmonique, *chirp...*). La principale limitation est que ces techniques sont incompatibles avec les normes biomédicales qui imposent l'utilisation d'ultrasons en régime impulsionnel. C'est la méthode la plus utilisée en imagerie ultrasonore, la résolution étant directement donnée par la longueur de l'impulsion ultrasonore. Dans tous les cas, le choix de la méthode d'obtention de la résolution dépendra fortement du type de détection utilisé.

Second harmonique acousto-optique Selb et al [71] ont montré que la génération du second harmonique acousto-optique réduisait la taille de la source virtuelle (zone d'interaction). Cela vient du fait que ces harmoniques supérieurs nécessitent plus de pression acoustique pour être générés et sont alors confinés autour du point focal acoustique. Cette technique présente de nombreuses limitations : la zone d'interaction reste assez grande, sa taille est difficilement contrôlable, et le signal à $2f_{US}$ reste très faible. A cela il faut ajouter son incompatibilité avec les normes biomédicales car elle nécessite plus de pression acoustique.

Méthode du chirp Cette méthode consiste à vobuler la fréquence des ultrasons, c'està-dire à la faire varier linéairement dans le temps. Wang et al l'ont d'abord implémentée avec une détection par photomultiplicateur [89] puis avec une détection multiplexée [90]. Cela leur a permis d'atteindre des résolutions de l'ordre du millimètre dans les deux directions. Dans le premier cas, la grande bande passante du photomultiplicateur permet de faire une imagerie plein-champ en faisant correspondre le domaine fréquentiel au domaine spatial. La limite ici est celle liée à l'utilisation d'un mono-détecteur. Forget et al [91], ont proposé un multiplexage spatial du signal, où l'ensemble du spectre est enregistré et un codage en fréquence est associé à chaque position selon l'axe ultrasonore. Cette technique nécessite cependant d'avoir une figure d'interférences corrélée pendant le temps d'acquisition total du signal *chirp*, de l'ordre de la seconde. Elle est donc incompatible avec une imagerie *in vivo* par exemple.

Modulation de phase aléatoire Cette méthode que nous avons développée ici au laboratoire est basée sur la modulation avec un motif aléatoire à la fois de l'onde ultrasonore et de l'onde optique [92]. L'objectif étant de créer des zones de cohérence acousto-optique d'une façon similaire qu'en *OCT*. Cette méthode sera discutée plus loin dans le cadre d'une détection à base d'holographie photoréfractive. **Régime impulsionnel** L'idée ici est d'envoyer des trains d'impulsions ultrasonores. La résolution est directement donnée par l'étendue temporelle de l'impulsion. Les normes acoustiques sont plus facilement atteintes et la possibilité de coupler le système avec un dispositif échographique est plus facilement envisageable. Dans le cas d'une utilisation avec un mono-détecteur [73, 75, 93], c'est la grande bande-passante de ce dernier qui permet de résoudre directement et en continu le déplacement de l'onde ultrasonore. Il suffit ensuite de relier le signal temporel à la position. Cette méthode sera aussi discutée plus en détail dans la troisième partie de cette thèse. Avec une détection multiplexée [94], la bande passante ne permet pas de suivre directement la propagation de l'impulsion ultrasonore dans le milieu. Il suffit alors d'émettre une impulsion ultrasonore puis une impulsion lumineuse avec un retard donné. Ce retard correspond au temps de propagation de l'impulsion ultrasonore jusqu'à la zone que l'on souhaite imager. Dans ce cas, l'image se fait point par point comme en régime continu de l'émission ultrasonore.

2.3 Réalisation d'un filtre spectral hyperfin pour les photons marqués

Le filtrage des photons marqués peut se faire par *holeburning* spectral [84,85]. L'objectif est de créer un filtre passe-bande hyperfin à la fréquence des photons marqués. Cette technique de détection incohérente est insensible à la décorrélation du *speckle* et à sa faible cohérence spatiale. Un tel filtre peut être réalisé à très basses températures dans un cristal dopé aux ions terres rares, où une fenêtre de transparence est créée par pompage. Nous allons, dans cette partie, expliquer le principe du *holeburning* spectral dans les milieux à élargissement inhomogène avant de montrer quelques résultats préliminaires que nous avons obtenus. Nous allons ensuite expliciter les différentes limitations que nous avons rencontrées et qui nous ont empêché d'implémenter notre filtre dans un système d'imagerie.

2.3.1 Phénomènes de creusement spectral dans les cristaux dopés ions terre rare

Elargissement inhomogène

Dans certains milieux, des perturbations peuvent provoquer la dispersion des fréquences de résonance dans le domaine spectral, on dit qu'il y a élargissement inhomogène de la raie spectrale. Dans les gaz, cet élargissement résulte principalement de l'effet Doppler. Dans un solide, il provient généralement de la présence d'impuretés ou de défauts dans la structure cristalline. En effet, dans un cristal dopé, la position des niveaux d'énergie dépend de l'environnement immédiat. Si le champ cristallin n'est pas uniforme dans les sites où se trouvent les ions actifs, chaque dopant voit un environnement légèrement différent des autres, et donc chaque chaque état aura un étalement d'énergie. Les fréquences de résonance vont alors être à leur tour distribuées. La forme de raie associée est une gaussienne de largeur Γ_{inh} , alors que la raie homogène $\Gamma_h{}^3$ a un profil lorentzien (figure 2.3).

A basse température (quelques kelvins), la largeur inhomogène varie peu alors que la largeur spectrale Γ_h individuelle de chacun des centres actifs est considérablement réduite et peut atteindre la centaine de kilohertz. Les cristaux inorganiques dopés par des ions terres rares présentent des transitions à élargissement inhomogène (raies "zerophonon") [95].



Figure 2.3 – Élargissement inhomogène d'une transition d'un atome à deux niveaux inséré dans une matrice cristalline et *holeburning*.

Creusement spectral ou holeburning

Le creusement spectral d'un trou dans le profil d'absorption est plus connu sous le nom anglo-saxon de spectral holeburning. Ce phénomène apparait dans les matériaux à élargissement inhomogène. En effet, l'illumination d'un tel milieu par un rayonnement monochromatique de fréquence ν_B va exciter sélectivement les centres actifs résonnant à cette fréquence (on parle souvent de "brûlage"). Les dopants vont être transférés vers le niveau supérieur de la transition indépendamment des autres. Il apparaît alors dans le profil d'absorption du matériau un trou de largeur $2\Gamma_h$ à la fréquence d'excitation ν_B (voir figure 2.3), c'est le phénomène de holeburning spectral. En régime linéaire, la profondeur du trou, qui est liée au nombre de dopants dans l'état excité, est proportionnelle à l'énergie du rayonnement incident. Ce phénomène peut être permanent (mécanisme photochimique) ou transitoire (transfert de population).

Dans le cas d'ions dopant un cristal inorganique, il s'agit d'un phénomène transitoire par transfert de population. Dans le cas simple d'un système à deux niveaux, le trou spectral est effacé lorsque les ions retournent à leur état fondamental. Ainsi, la durée du trou correspond à la durée de vie du niveau excité. Il peut exister un niveau intermédiaire de durée de vie plus longue. Dans ce cas, les ions y sont transférés à partir du niveau supérieur par transfert non radiatif. Ce niveau intermédiaire, dit niveau réservoir, se dépeuple à son

^{3.} Un milieu est dit homogène lorsque tous les atomes possèdent le même spectre d'émission. Dans ce cas, on parle de raie homogène, dont la largeur peut être très fine à basse température ≤ 1 MHz.

tour avec une très grande constante de temps (transition interdite). La durée de vie du trou correspond alors à la durée de vie de ce niveau intermédiaire (figure 2.4).

Ce phénomène est souvent étudié pour le stockage quantique [96], l'analyse spectrale de signaux radiofréquences [97] ou le stockage d'informations temporelles ou fréquentielles. Nous allons étudier ce phénomène ici, dans l'objectif de réaliser un filtre spectral fin pour les photons marqués. Il faudra alors choisir une fréquence d'excitation ν_B égale à celle des photons marqués, donc $\nu_B = (\omega_L \pm \omega_{US})/2\pi$. Ce trou dans le profil d'absorption ne laisserait passer que les photons marqués, les autres seraient complètement absorbés par le milieu (dont le coefficient d'absorption peut être très élevé hors de la raie de transparence).

Cristaux dopés ions terres rares

Les cristaux dopés aux ions terres rares possèdent les caractéristiques idéales pour la réalisation d'un filtre hyperfin pour les photons marqués. Leur largeur inhomogène Γ_{inh} est comprise entre 1 et 100 GHz alors que leur largeur homogène peut être comprise entre 1 kHz et 1 MHz [98]. Ils peuvent ainsi servir à filtrer des composantes spectrales proches de quelques MHz.

Structure électronique La famille des terres rares désigne les 14 éléments qui suivent le lanthane dans la classification périodique et correspondent au remplissage de la couche 4f. Ils possèdent pour la plupart la structure électronique suivante :

$$(coeur)^{36}5s^24d^{10}5p^66s^24f^n5d^1$$
, avec $1 \le n \le 14$ (2.12)

Les ions triplement ionisés perdent les électrons des sous-couches 5d et 6s. Les derniers niveaux d'énergie sont occupés par les électrons de la sous-couche 4f. Les électrons des couches extérieures créent un écrantage pour les électrons 4f. Les orbitales 4f sont en effet des orbitales profondes, elles subissent très peu l'influence de l'environnement. Les transitions 4f - 4f sont interdites pour l'ion libre (règle de Laporte), mais dans une matrice cristalline, le champ cristallin lève cette interdiction et elles deviennent possibles. Les bandes d'absorption dues aux transitions f - f subissent moins l'élargissement dû aux vibrations de la maille cristalline et sont donc très étroites et bien résolues (raie zerophonon). La probabilité d'une transition électronique zero-phonon n'existe réellement qu'à basse température (en dessous de 40 K) et dépend aussi du couplage entre l'ion et la matrice hôte.

Cas du Tm^{3+} : YAG Le dopage d'une matrice YAG (grenat d'yttrium-aluminium : $Y_3Al_5O_{12}$) par des ions terres rares thulium Tm^{3+} se fait par substitution des ions d'Yttrium Y^{3+} dans des sites de basse symétrie. La figure 2.4 présente un schéma des niveaux atomiques utiles du thulium [99]. La dégénérescence des multiplets issus du couplage spinorbite est levée par le champ cristallin. La transition entre les sous-niveaux Stark les plus bas des multiplets ${}^{3}H_{6}$ et ${}^{3}H_{4}$ possède une largeur homogène d'environ 150 kHz à 5 K pour un cristal de Tm^{3+} : YAG dopé à 0.5%. Cette largeur descend à la dizaine de kHz à 1.5 K et quelques kHz si le taux de dopage est réduit à 0.1% [100]. La largeur inhomogène

de la transition est de l'ordre de la vingtaine de GHz. De plus le thulium ne possède pas de structure hyperfine dans le YAG qui pourrait conduire à l'apparition de trous et anti-trous supplémentaires au trou initialement creusé.

La transition ${}^{3}H_{6} \longleftrightarrow {}^{3}H_{4}$ se situe à 793 nm. Le niveau ${}^{3}H_{4}$ a une durée de vie de 500 μs et se désexcite de préférence vers le niveau ${}^{3}F_{4}$ en passant par le niveau ${}^{3}H_{5}$ de courte durée de vie. Le niveau ${}^{3}F_{4}$ relaxe ensuite par fluorescence vers le fondamental. Sa durée de vie est de l'ordre de 10 ms, ce sera donc la durée de vie du trou d'absorption gravé.



Figure 2.4 – Schéma des niveaux atomiques du thulium inséré dans une matrice de YAG. Les flèches en pointillés indiquent les processus de relaxation.

Modélisation simple du holeburning spectral

Considérons un système à trois niveaux dont les transitions sont de nature inhomogène. La mise en évidence d'un trou dans le spectre d'absorption (ou d'un pic dans la transmission) se fait en deux étapes :

- 1. <u>Brûlage</u> : On prend un laser spectralement très fin (idéalement un Dirac) à ω_B compris dans la largeur inhomogène. Ce laser est suffisament puissant (flux ϕ_B) pour modifier de façon significative les populations des niveaux spectralement proches de ω_B .
- 2. <u>Lecture</u> : On vient sonder la transmission du milieu avec un autre laser très fin (ω_S) colinéaire au laser de brûlage qu'on balaye autour de ω_B . Ce laser est de très faible intensité (typiquement $10^{-4}\phi_B$).

Nous pouvons exprimer l'absorption $\alpha(\omega_S)$ en fonction des différents paramètres (le détail de ce calcul se trouve dans l'annexe A) :

$$\alpha(\omega_S) = \frac{N}{\Gamma_{inh}} \sigma_h \frac{\pi \Gamma_h}{2} \{ 1 - \frac{\sqrt{1 + \phi_B/\phi_S} - 1}{\sqrt{1 + \phi_B/\phi_S}} \cdot \frac{(\Omega/2)^2}{(\omega_S - \omega B)^2 + (\Omega/2)^2} \},$$
(2.13)

où N est la concentration totale d'ions, σ_h la section efficace d'une composante homogène, ϕ_S le flux de photons à saturation pour lequel la population du niveau excité vaut N/2, Γ_{inh} la largeur de la raie inhomogène, et $\Omega = \Gamma_h (1 + \sqrt{1 + \phi_B/\phi_S})$. A partir de cette expression de l'absorption en fonction de la fréquence de lecture nous pouvons évaluer simplement l'influence des différents paramètres. Prenons le cas d'un milieu où nous brûlons un trou à ω_B à basse température, la largeur homogène à cette fréquence et à cette température étant égale à 150 kHz. Le laser de lecture possède une largeur spectrale de 180 kHz (ordre de grandeur pour un laser Ti :Saphir comme celui dont nous disposons). L'absorption à ω_B du milieu d'épaisseur L à cette température est telle que $\alpha L = 4$. Nous balayons en fréquence autour de ω_B . La figure 2.5 montre les différents résultats obtenus, ω_s y désigne l'écart en fréquence par rapport à la fréquence de brûlage ω_B .



Figure 2.5 – Simulations de l'évolution des caractéristiques du trou : $\Gamma_h = 150 \ kHz$, $\Delta \omega_B = 180 \ kHz$, $\alpha L = 4$.

(a) Transmission du milieu dans trois cas de figure pour $\phi_B = 10\phi_S$: trou intrinsèque (si le laser de brûlage est un Dirac), en prenant en compte la largeur spectrale du laser pour le brûlage, puis pour le brûlage et la lecture.

- (b) Transmission normalisée dans les trois cas de figure pour $\phi_B = 10\phi_S$.
- (c) Évolution de la largeur du trou avec le flux de brûlage.
- (d) Évolution de la profondeur du trou avec le flux de brûlage.

Les figures 2.5 (a) et (b) montrent que si nous prenons en compte la largeur spectrale du laser dans les processus de brûlage et de lecture, le trou est moins profond et plus large que dans le cas idéal où le laser aurait une densité spectrale en Dirac. De plus les figures 2.5 (c) et (d) montrent qu'une puissance qui maximiserait la profondeur du trou l'élargirait aussi. Il faut savoir que l'absorption et la largeur homogène dépendent beaucoup de la température.

La profondeur du trou creusé dans le spectre d'absorption va donc dépendre du nombre d'ions qui pourront être excités, elle dépendra donc de l'intensité excitatrice (puissance de pompe). La transition ${}^{3}H_{6} \longleftrightarrow {}^{3}H_{4}$ est plus probable à basse température. La profondeur du trou dépendra donc aussi de la température.

La largeur du trou est donnée par la convolution de la répartition spectrale de la composante homogène par celle du laser. Il y a donc intérêt à utiliser un laser très fin spectralement, de l'ordre de la largeur homogène. Encore une fois, la température peut avoir son influence, les composantes homogènes étant mieux séparées à basse température, on pourra être plus sélectif. Dans le cas contraire, on pourrait exciter une composante voisine, ce qui élargirait le trou. De même, si le trou peut être plus profond à des puissances plus élevées, il peut être aussi plus large, car il y aurait dans ce cas assez d'énergie pour exciter la queue de la lorentzienne de la composante voisine.

2.3.2 Montage expérimental pour le holeburning

Nous avons utilisé des cristaux Tm^{3+} : YAG dopés à 2% dans le but de créer une raie de transparence à la fréquence des photons marqués et assez fine pour avoir une bonne discrimination des différentes bande spectrales acousto-optiques. Avant d'implémenter cela dans un montage d'acousto-optique ou un milieu diffusant, nous avons d'abord commencé par faire du *holeburning* avec des ondes planes. L'objectif est de vérifier la faisabilité de cette expérience avec le matériel en notre possession et d'analyser les performances que nous pouvons atteindre.

Matériel expérimental Voici la liste et quelques caractéristiques importantes du matériel utilisé :

- Un laser Ti :Saphir accordable (Coherent MBR 110) pompé par un laser Nd :YAG doublé pompé par diode (Coherent Verdi 5 W). Ce laser peut émettre à 793 nm (transition qui nous intéresse) avec une largeur spectrale donnée par le constructeur de l'ordre de 75 kHz. Cette valeur est loin de la valeur réelle qui est due à l'environnement de notre laser et que nous estimons autour de 200 kHz plutôt. Il s'agit d'un laser en anneau équipé d'un étalon Fabry-Perot intracavité (intermode de la cavité égal à 350 MHz) et d'un filtre de Lyot pour l'accordabilité (largeur de mode 225 GHz). Nous pouvons donc ajuster la fréquence à 0.5 cm⁻¹ près. Au meilleur de sa forme, ce laser a une puissance de 600 mW.
- Deux modulateurs acousto-optiques AA OptoElectronics fonctionnant autour de 80 MHz avec une efficacité de diffraction de 70%, précédés de deux amplificateurs de puissance large bande, eux-mêmes alimentés par deux générateurs de fonction Agilent 33220A.
- Une photodiode Silicium à gain variable Thorlabs PDA 36A de surface active 3.6 mm x 3.6 mm et de bande passante à 0dB égale à 17 MHz.
- Un cryostat Janis (modèle STVP-100) équipé d'un contrôleur de température Lake-Shore 321 et refroidi à l'hélium liquide.
- Deux cristaux de Tm^{3+} : YAG dopés à 2% achetés chez Scientific Materials Corp. de dimensions : 10x10x2 mm et 10x10x4 mm dont nous avons mesuré l'absorption entre 680 et 820 nm (figures 2.6 et 2.7). Les cristaux sont fixés à la laque argent sur un support fabriqué par nos soins.



Figure 2.6 – Spectre d'absorption du Tm^{3+} : YAG entre 680 et 820 nm à température ambiante.



Figure 2.7 – Spectres d'absorption du Tm^{3+} : YAG entre 680 et 820 nm à température ambiante (détails). (a) multiplet ${}^{3}F_{3}$ et (b) multiplet ${}^{3}H_{4}$.

Principe de l'expérience L'expérience de *holeburning* est réalisée en deux étapes, brûlage puis lecture. La figure 2.8 montre le schéma de l'expérience. Un faisceau modulé à 76 MHz (ordre 1 du premier modulateur acouto-optique, MAO1) est focalisé dans le cristal placé dans le cryostat : c'est le faisceau de brûlage. Un second faisceau issu du second modulateur acousto-optique (MAO2) sert de faisceau de lecture. Nous appliquons un balayage de fréquence au modulateur MAO2 autour de la fréquence de brûlage (entre 72 et 80 MHz) pour reconstruire le filtre et visualiser le trou. Nous avons d'abord implémenté des séquences de brûlage longues de l'ordre de 400 ms suivies de séquences de lecture de 1 ms, avant d'opter pour un brûlage en continu. En effet, le temps de vie du niveau réservoir du Thulium à 793 nm est de l'ordre de 10 ms. Il faut donc lire le trou avant que celui-ci ne s'efface. Nous balayons en fréquence sur 8 MHz en 1 ms en transmission. Nous nous attendons alors à observer un pic de transmission centré à 76 MHz correspondant

au trou dans l'absorption. Le signal est transmis est collecté par une lentille sur une photodiode rapide. L'ensemble faces du cryostat et faces du cristal possède un coefficient de transmission de 0.72 en prenant en compte l'indice de réfraction du YAG. Cette valeur nous permettra de remonter au coefficient d'absorption du cristal.



Figure 2.8 – Schéma de l'expérience de *holeburning* (MAO = Modulateur Acousto-Optique).

Dans le but d'atteindre une bonne efficacité de brûlage, il faut utiliser un flux ϕ_B plusieurs fois supérieur au flux de saturation ϕ_S . La meilleure configuration est de pomper de façon homogène sur la totalité de la surface du cristal avec un puissance suffisante. Li et al. montrent l'augmentation du rapport signal à bruit de leur détection de photons marqués en fonction de la surface de la taille du faisceau pompe [101]. Dans notre cas, nous n'avons pas assez de puissance disponible pour pouvoir créer l'inversion de population sur la totalité de la surface du cristal. Nous avons donc décidé de focaliser les deux faisceaux dans le cristal. L'idéal est d'avoir une taille de faisceau de lecture au niveau du cristal inférieure à celle du faisceau de brûlage, afin de lire uniquement au niveau de la surface pompée. Nous estimons la taille des faisceaux dans le cristal grâce à la formule de conjugaison du "waist"⁴. Nous trouvons 400 μm et 550 μm respectivement pour les faisceaux de brûlage et de lecture. Ce n'est certes pas la configuration idéale mais pour des raisons d'encombrement, nous ne pouvions pas utiliser de lentilles de plus courtes focales.

Les expériences ont été réalisées à 5.6 K. Nous ne pouvions pas descendre en dessous de cette température avec le système à notre disposition. Nous avons pu atteindre une température de 4.7 K en remplissant le cryostat d'hélium liquide mais cela engendrait des bulles qui perturbaient notre signal optique. Pour descendre plus bas, il faudrait pomper l'hélium pour passer le point λ .

Enfin, nous cherchons à minimiser le signal au niveau de la photodiode en l'absence de pompe en tournant le filtre de Lyot. En effet, notre monochromateur n'étant pas très précis, nous cherchons à minimiser la transmission autour de 793 nm pour être le plus possible sur la raie d'absorption.

4. $w^{'2} = w^2 \frac{f^2}{(d-f)^2 + q^2}$ où f est la focale de la lentille, w le waist objet, $w^{'}$ le waist image, d la distance lentille-waist objet et $q = \pi w^2 / \lambda$ la distance de Rayleigh objet.

2.3.3 Résultats préliminaires

Nous avons réalisé plusieurs expériences de *holeburning*. Le brûlage se fait avec un faisceau de puissance maximale 350 mW, la lecture avec un faisceau d'environ 1 mW. Nous avons mesuré la profondeur du trou maximale que l'on pouvait atteindre, sa variation avec la puissance de pompe ainsi que l'épaisseur du trou. Nous avons ensuite essayé ce creuser un trou et de le lire avec un faisceau ayant traversé un milieu faiblement diffusant.

Profondeur du trou La figure 2.9 montre le signal brut mesuré à l'oscilloscope pour différentes puissances de brûlage à 5.6 K. Il s'agit du signal transmis à travers le cristal en fonction de la fréquence. Nous remarquons que plus la puissance de pompe est élevée, plus la transmission à 76 MHz est élevée. La largeur du trou augmente aussi avec la puissance de pompe. Nous pouvons calculer le coefficient d'absorption du cristal (figure 2.10 (a)) en présence de pompe et sans pompe. Dans cette expérience nous avons pu faire chuter le coefficient d'absorption de $\Delta \alpha = 1.4 \text{ cm}^{-1}$ à partir de $\alpha_0 = 7.6 \text{ cm}^{-1}$ qui est la valeur du coefficient d'absorption mesurée à cette température et à la longueur d'onde utilisée. Cette valeur est encore plus élevée à plus faible température ($\alpha_0 = 14 \text{ cm}^{-1}$ à 1.6 K [99]). Le faible écart par rapport aux valeurs données dans la littérature autour de cette température viendrait de notre incertitude sur notre longueur d'onde [84,85].



Figure 2.9 – Signal transmis en volts à travers le cristal de Tm^{3+} : YAG à 5.6 K pour différentes puissances de pompe, en fonction de la fréquence de lecture. La lecture se fait avec un faisceau de 1.5 mW.

A partir de ces données, nous pouvons ainsi extraire la profondeur du trou, définie comme $\Delta \alpha / \alpha_0$, pour chaque puissance de pompe, comme le montre la figure 2.10 (b). La profondeur maximale que nous avons pu atteindre est de 18.5%. Nous sommes donc loin d'une transparence totale. Mais l'évolution est conforme à la théorie, à savoir que la profondeur augmente avec la puissance de pompe. Cependant la courbe expérimentale (cercles bleus) sature plus vite que la courbe théorique (en noir) calculée pour une puissance maximale de 305 mW équivalente à 0.88 fois la puissance de saturation. Cela montre que nous n'avons pas atteint le flux de saturation et pourtant notre courbe expérimentale sature. Il peut y avoir plusieurs raisons à cette faible valeur. Nous ne sommes peut-être pas à la bonne longueur d'onde (il faut être sur le pic à mieux que 1 cm^{-1} près sinon il est possible d'exciter une raie voisine). De plus, le fait de ne pas pouvoir descendre à plus basses températures fait que les raies homogènes ne sont pas assez bien séparées pour une excitation très sélective. D'ailleurs, nous avons remarqué que le trou disparaissait à partir de 6.2 K, ce qui montre que l'expérience est très sensible à la température car la probabilité d'exciter la transition en dépend beaucoup.



Figure 2.10 – (a) Coefficient d'absorption mesuré en fonction de la fréquence de lecture avant et après l'étape de brûlage. (b) Profondeur du trou $\Delta \alpha / \alpha_0$ en fonction de de la puissance de pompe. En cercles bleus les données expérimentales et en noir l'estimation théorique pour un flux de saturation $\phi_B = 0.88\phi_S$.

Largeur du filtre La figure 2.11 montre que la largeur à mi-hauteur des trous augmente avec la puissance de pompe. Pour une puissance maximale correspondant à un trou de profondeur maximale, la largeur est de 850 kHz. Cette valeur dépend de plusieurs paramètres que sont la largeur homogène et la largeur spectrale du laser. Elle dépend grandement de la température car d'une part la largeur de la raie homogène en dépend et d'autre part la possibilité d'exciter une raie voisine peut être aussi la cause de l'élargissement. Nous n'avons pas pu ajuster les courbes théoriques et expérimentales pour la largeur du trou pour la raison qu'expérimentalement, l'augmentation avec la puissance de pompe est beaucoup plus rapide que ne le prévoit la théorie. Cela est aussi lié aux causes d'élargissement citées plus haut, dans la mesure où le modèle théorique suppose que l'on excite une seule et unique raie.

Amélioration Les caractéristiques du filtre de Lyot et de l'étalon Fabry-Perot font que nous ne pouvons pas changer la longueur d'onde de façon continue. Notre monochromateur n'étant pas assez précis, nous avons emprunté un "Lambda-mètre" (Burleigh WA 2000) précis au centième de nanomètre dans lequel nous avons injecté une partie d'un faisceau à travers une fibre monomode. Nous avions alors un meilleur moyen de contrôler la longueur d'onde. Nous avons mesuré les sauts de longueur d'onde suivant en tournant le filtre de



Figure 2.11 – Largeur à mi-hauteur des trous d'absorption en fonction de la puissance de brûlage.

Lyot : 792.68 nm puis 793.18 nm puis 793.66 nm. Nous ne sommes jamais à 793,00 nm. Le but ensuite a été de faire varier la longueur d'onde grâce la rotation du filtre de Lyot et à l'inclinaison de la lame étalon de façon à minimiser la transmission totale par le cristal (sans pompe) tout en restant à 793 nm. La figure 2.12 montre que, dans ce cas-là, la chute de l'absorption est beaucoup plus élevée et nous atteignons une profondeur de trou de 60%. Dans cette expérience, nous sommes donc sur la raie d'absorption, la preuve en est que le signal est très faible du fait de l'absorption très élevée.



Figure 2.12 – Coefficient d'absorption du cristal de Tm^{3+} : YAG en fonction de la fréquence de lecture. La variation correspond ici à un trou de 60%.

Holeburning en régime de diffusion Toutes les expériences présentées plus haut ont été faites avec des ondes planes. L'objectif étant de filtrer des photons marqués diffusés,

nous avons introduit une cuve remplie d'un mélange d'eau et d'Intralipide 10% ⁵ sur le trajet du faisceau sonde. En injectant 200 mW dans la cuve, nous arrivons à collecter 8 mW grâce à des lentilles qui permettent ensuite de focaliser la lumière dans le cryostat. Nous observons un trou mais le signal est extrêmement faible et instable. La limite de notre montage devient alors la puissance du laser puisque sa plus grande partie est utilisée pour la sonde. Nous n'avons plus assez de puissance de pompe pour brûler le trou. Il s'ajoute à cela qu'à force de régler la longueur d'onde de notre laser et de toucher aux différents éléments de la cavité, celui-ci a perdu de sa puissance pour ne sortir que 250 mW en tout. Nous avons ajouté un transducteur ultrasonore pour marquer des photons et observé le signal en sortie du cryostat. Nous avons utilisé une carte d'acquisition pour analyser le spectre de fréquence du signal transmis mais aucune différence marquante n'a été observée entre les signaux avant et après brûlage.

2.3.4 Discussion

Limitations techniques Nous avons réussi à fabriquer un filtre spectral fin grâce à un processus de holeburning à basse température dans un cristal de Tm^{3+} : YAG. Les résultats obtenus sont prometteurs. En effet, la profondeur de trou atteinte de 60% et la largeur de 850 kHz permettraient de filtrer les photons marqués en absorbant les photons diffusés non décalés en fréquence. Cependant, ce filtre a été réalisé avec des ondes planes. Dès que nous avons introduit un milieu diffusant, nous avons été très vite limités par la puissance de notre laser. L'équipe de Wang [84,85], disposait du même laser mais avec une puissance de 2 W en sortie soit, 8 fois la puissance dont nous disposions à la fin de notre expérience. Il aurait été aussi souhaitable de descendre à de plus faibles températures (2 K) pour espérer atteindre une transparence totale et être plus sélectif au niveau de la raie homogène.

Perspectives Malgré ces limitations techniques, il est envisageable de poursuivre ces expériences si nous disposons de plus de puissance optique. Le grand avantage du filtrage des photons marqués par *holeburning* spectral est l'immunité par rapport au *speckle*. Avec un tel filtre, nous ne serions gênés ni par la faible cohérence liée au *speckle* ni par sa décorrélation. Cependant, cette méthode reste assez complexe à mettre en place et onéreuse du fait de l'utilisation de l'hélium liquide et du travail à basse température.

En perspective, il faudra rendre le montage plus flexible en utilisant des fibres à grand coeur en entrée et en sortie du cyostat. On peut aussi augmenter la durée de vie du trou par effet Zeeman et atteindre ainsi plusieurs secondes [102]. En effet, en appliquant un champ magnétique au cristal, il est possible d'éclater le niveau fondamental en niveaux hyperfins, ce qui va augmenter le temps de relaxation et donc du trou creusé.

^{5.} L'Intralipide est une émulsion constituée d'huile de soja, souvent utilisée en perfusion comme apport calorique chez un malade qui ne peut plus se nourrir par voie entérale (grâce à son tube digestif). Nous allons utilisé cette émulsion pour préparer tout nos gels multi-diffusants.

2.4 Conclusion

L'imagerie acousto-optique est basée sur la modulation de la lumière diffusée par une onde ultrasonore. L'onde acoustique va avoir un effet cohérent sur l'onde optique en modulant sa phase. Cette modulation de phase résulte à la fois de la modulation des trajets optiques créée par le mouvement des diffuseurs, lui-même généré par l'onde acoustique et de la modulation de l'indice de réfraction du milieu engendrée par cette même onde de pression. Dernièrement, il a été démontré expérimentalement qu'il était possible de moduler de la lumière incohérente à travers une modulation d'amplitude de l'onde aussi causée par l'onde acoustique, mais cet effet reste très faible.

La modulation acoustique de la lumière se manifeste par l'apparition de bandes spectrales très proches et de faible énergie, appelées photons marqués, qu'il faut réussir à détecter. Cette modulation est proportionnelle aux flux acoustique et lumineux au niveau de la zone d'interaction.L'imagerie acousto-optique a pour objectif de détecter ces photons marqués afin de remonter à une information optique locale en profondeur, la localisation étant donnée par les ultrasons. De nombreuses méthodes ont été utilisées pour apporter une résolution axiale à l'imagerie (selon l'axe ultrasonore) dans le but d'atteindre des résolutions de l'ordre du millimètre à plusieurs centimètres de profondeur.

Plusieurs techniques ont été proposées pour la mesure de la quantité de photons marqués à une position du foyer ultrasonore. Il existe deux groupes de techniques. Les méthodes de nature *cohérente*, qui font une mesure directe de la modulation où la convertissent en modulation d'intensité. Cela peut se faire en enregistrant une figure d'interférence avec un bras de référence à la fréquence des photons marqués. Nous avons vu qu'il est possible d'utiliser soit un monodétecteur moyennant une adaptation de front d'onde à travers un cristal photoréfractif par exemple, soit un détecteur multiplexé. Le second groupe de techniques s'appuie sur une détection dite *incohérente* dans la mesure où elle est insensible aux problématiques liées au *speckle*. Il s'agit dans ce cas-là, de fabriquer un filtre de fréquences très fin centré sur les photons marqués. Nous avons montré qu'il était possible de fabriquer un tel filtre grâce au phénomène de *holeburning* spectral dans un cristal dopé ions terres rares. Cette méthode de filtrage reste assez complexe à mettre en place à cause des basses températures.

Dans la suite de cette thèse nous nous intéresserons à deux techniques interférométriques différentes pour la détection des photons marqués. La première est l'holographie hétérodyne hors-axe présentée dans la seconde partie de la thèse. La deuxième est l'holographie photoréfractive faisant l'objet de la troisième et dernière partie de cette thèse.

Deuxième partie

Imagerie acousto-optique par holographie numérique

${\rm CHAPITRE}\ 3$

Imagerie acousto-optique en régime longues impulsions

Table des matières

3.1	Principe de l'holographie numérique hétérodyne hors-axe			
	3.1.1	Évolution des techniques holographiques $\ldots \ldots \ldots \ldots$	56	
	3.1.2	Présentation du problème	57	
	3.1.3	Filtrage spatial du signal utile	59	
	3.1.4	Filtrage temporel du signal	61	
	3.1.5	Couplage "holographie hétérodyne" et "holographie hors-axe" .	63	
3.2	Principe de la détection des photons marqués par holographie numé-			
	rique h	étérodyne hors-axe	64	
3.3	Caractérisation de l'expérience			
	3.3.1	Description de l'expérience	66	
	3.3.2	Efficacité radiométrique de la détection	67	
	3.3.3	Utilisation d'un las er longues impulsions \hdots	69	
	3.3.4	Étude du contraste de <i>speckle</i>	71	
	3.3.5	Acquisition des spectres	73	
3.4	4 Application de l'holographie numérique hétérodyne hors-axe à la			
	tection	des photons marqués	75	
	3.4.1	Analyse des contributions dans l'espace des fréquences spatiales	76	
	3.4.2	Profils transverses acousto-optiques	79	
	3.4.3	Perspectives	80	
3.5	Conclu	sion	80	
Hi, Dr. Elizabeth? Yeah, Uh... I accidentally took the Fourier transform of my cat... Meow!

www.xkcd.com

Détecter de façon cohérente des photons marqués revient à effectuer une détection cohérente d'un signal optique spatialement incohérent. L'utilisation d'une détection cohérente directe qu'elle soit multiplexée ou non a très vite montré ses limites et imposé l'utilisation de méthodes interférométriques comme l'holographie photoréfractive ou numérique (figure 3.1).



Figure 3.1 – Détection interférométrique des photons marqués (détecteur multiplexé).

Cette dernière méthode a déjà montré sa grande sensibilité en permettant de faire une détection des photons marqués au bruit *shot* [79, 94]. Cependant, aucune évolution n'a été réalisée ces cinq dernières années dans l'utilisation de cette méthode de détection. La principale limite est la cadence des caméras, le temps d'acquisition en est alors très long.

Par ailleurs, Rousseau et al. ont montré que l'utilisation d'un laser à longues impulsions permettait d'augmenter la sensibilité de l'imagerie acousto-optique par holographie photoréfractive [103]. Les normes médicales imposant l'utilisation d'une excitation ultrasonore impulsionnelle, il est naturel de penser à utiliser une source lumineuse impulsionnelle. Cela permettrait, d'une part, de diminuer la puissance optique moyenne reçue par l'échantillon et, d'autre part, d'augmenter la quantité de photons marqués détectée en augmentant la puissance crête de l'illumination.

Nous avons alors décidé de combiner ces deux modalités, l'holographie numérique hétérodyne hors-axe et l'utilisation d'une illumination impulsionnelle, afin d'améliorer la sensibilité de la détection des photons marqués.

Dans ce chapitre, nous allons, dans une première partie, décrire le principe de l'holographie numérique hétérodyne hors-axe. Nous montrerons que cette méthode permet de faire une détection sélective du champ des photons marqués. Dans une seconde partie, nous décrirons le montage expérimental combinant l'utilisation d'un laser à longues impulsions et d'une caméra rapide, et nous en ferons une caractérisation sur un milieu diffusant statique. Nous présenterons enfin les premiers résultats obtenus pour la détection de photons marqués.

3.1 Principe de l'holographie numérique hétérodyne hors-axe

Depuis sa découverte par Denis Gabor en 1948 [104], l'holographie a connu de nombreuses améliorations, surtout depuis le passage à l'ère digitale. L'objectif de l'holographie est d'enregistrer sur un support en deux dimensions la phase et l'amplitude constituant le champ issu d'un objet ayant reçu une illumination cohérente. L'enregistrement des interférences entre ce champ objet et une onde de référence constitue l'hologramme. Cet hologramme en deux dimensions permet par la suite de reconstruire un objet en trois dimensions en étant éclairé à nouveau par la même référence. En holographie digitale cette étape est réalisée numériquement.

3.1.1 Evolution des techniques holographiques

Lors des premières expériences d'holographie, des faisceaux objet et référence parallèles étaient utilisés. L'enregistrement de l'hologramme était réalisé sur une plaque photographique [104]. Cette configuration fait que le faisceau de reconstruction et les images réelle et virtuelle sont superposés. Très vite, une configuration d'**holographie hors-axe** a été adoptée afin de séparer les différentes images [105]. Un angle est introduit entre le faisceau référence et le faisceau objet. La figure 3.2 montre le principe de base de l'holographie dans une configuration hors-axe. Les différents ordres sont séparés et l'observateur peut isoler l'objet reconstruit.



Figure 3.2 – Illustration du principe de l'holographie. A gauche, la phase d'enregistrement. A droite, la phase de lecture faisant apparaître en plus de l'image réelle, une image virtuelle.

Les films photographiques utilisés aux débuts ont vite laissé place à des détections numériques permettant d'accéder plus facilement aux données et de faire des analyses numériques quantitatives [106]. En 1994, Schnars et Jüptner réalisent le premier hologramme numériquement reconstitué grâce à une caméra CCD et une configuration hors-axe [107]. La configuration hors-axe présente l'inconvénient de limiter la taille de l'objet à reconstruire dans la mesure où il faut veiller à ce que les ordres ne se superposent pas [108]. La résolution spatiale est aussi altérée. En effet, l'introduction d'un angle diminue l'interfrange de la figure d'interférences. Le détecteur étant discrétisé, cet angle doit alors être limité à quelques degrés afin que l'interfrange reste supérieur à la taille d'un pixel.

Par la suite, l'holographie hétérodyne a été introduite par Yamagushi et Zhang [109], permettant ainsi de séparer les différents ordres dans une configuration *in-line* (faisceaux référence et objet parallèles). Un décalage de phase est appliqué à l'onde de référence et différentes images sont enregistrées pour différentes valeurs de la phase. La soustraction de ces images permet ensuite de supprimer l'ordre non désiré. Ce décalage de phase peut être introduit par un simple décalage de fréquence du faisceau référence [110,111]. Cette méthode permet d'introduire des déphasages de façon très précise, il est donc possible d'exploiter les différences de phase entre chaque pixel du détecteur. Cette information permet alors de reconstruire le champ à n'importe quelle position à partir du champ enregistré au niveau du plan de la caméra.L'holographie hétérodyne permet de palier aux deux principales limitations de l'holographie hors-axe, à savoir la résolution et le champ de vision.

L'holographie hétérodyne hors-axe résulte du couplage des deux méthodes. Il a été montré que cette technique permet d'atteindre une sensibilité ultime [112]. Il est alors possible de filtrer les ordres 0 et -1, ainsi que le bruit technique introduit par la référence. La limite quantique de bruit correspondant à un photo-électron par pixel reconstruit peut être atteinte [113].



3.1.2 Présentation du problème

Figure 3.3 – Configuration optique de détection par holographie numérique hors-axe. Le champ objet E_S issu du milieu diffusant est filtré par un diaphragme. Le champ référence E_R , interfère avec le champ objet sur un détecteur matriciel. L'angle θ introduit entre les deux faisceaux permet de réaliser le filtrage spatial numérique.

Notre objectif est la mesure de la quantité de photons marqués. Nous savons que la modulation acousto-optique se manifeste par l'apparition dans le spectre de la lumière de bandes latérales. Afin de filtrer une de ces deux bandes spectrales nous allons utiliser la

méthode d'holographie hétérodyne¹ hors-axe (figure 3.3).

L'objectif est donc de séparer la contribution des photons marqués au niveau du détecteur de celle des photons non marqués. Nous inscrivons alors un hologramme avec le champ des photons marqués. Le traitement numérique de cet hologramme va nous permettre de séparer les différentes contributions. Il est à noter que pour notre application il n'est pas nécessaire de reconstruire le champ objet. L'information que nous recherchons est directement accessible dans l'hologramme, il n'existe alors pas de phase de re-lecture.

Enregistrement de l'hologramme Considérons un champ objet (signal) noté E_S et un champ référence E_R . Nous allons adopter une notation complexe pour ces champs afin de pouvoir découpler formellement les parties temporelles et spatiales du signal que l'on va traiter indépendamment par la suite. Ces champs s'écrivent alors :

$$E_S(x, y, z, t) = A_S(x, y, z)e^{i\omega_S t}$$
(3.1)

$$E_R(x, y, z, t) = A_R e^{i(k_{Rx}x + k_{Ry}y)} e^{i\omega_R t}$$
(3.2)

où $k_{Rx} = \frac{2\pi}{\lambda} \sin(\theta) = 2\pi u_{Rx}$ et $k_{Ry} = \frac{2\pi}{\lambda} \sin(\zeta) = 2\pi u_{Ry}$, l'onde de référence présentant un angle θ par rapport à l'onde objet. A_R est une constante telle que $A_R^2 = I_R$.

Ces champs s'ajoutent dans le plan du détecteur qui est sensible à l'intensité $I_H(x, y, L, t)$ définie comme :

$$I_H(x, y, L, t) = |E_S(x, y, L, t) + E_R(x, y, L, t)|^2$$

$$= (E_S(x, y, L, t) + E_R(x, y, L, t)) \cdot (E_S(x, y, L, t) + E_R(x, y, L, t))^*$$
(3.3)

 I_H représente l'intensité de l'hologramme. Cet hologramme, s'il avait été enregistré sur une plaque photographique et éclairé par le faisceau référence, aurait permis de restituer l'objet.

Densité spectrale spatiale d'énergie L'expression de I_H fait apparaître différents termes :

$$I_{H}(x, y, L, t) = I_{S}(x, y, L, t) + I_{R} + E_{S}(x, y, L, t)E_{R}^{*}(x, y, L, t) + E_{S}^{*}(x, y, L, t)E_{R}(x, y, L, t)$$
(3.4)

où $I_S(x, y, L) = |E_S(x, y, L)|^2$. Les premiers termes correspondent aux intensités des champs objet et référence, ils ne contiennent pas d'information de phase. Les autres constitueront notre signal utile et sont proportionnels au champ signal ou à son conjugué.

^{1.} Le mot "hétérodyne" peut avoir deux significations. Il correspond d'abord à l'introduction d'un décalage de fréquence sur le bras référence égale à la fréquence des ultrasons pour n'inscrire que l'hologramme des photons marqués. Il correspond aussi au décalage de fréquence introduit pour la réalisation d'une holographie à décalage de phase. Nous sommes dans une configuration de double hétérodynage.

 I_H peut être décomposé dans l'espace des fréquences spatiales grâce à une transformée de Fourier à deux dimensions. Par analogie à la densité spectrale d'énergie (DSE), il est donc judicieux de s'intéresser à la densité spectrale spatiale d'énergie Γ afin d'accéder à la quantité d'énergie portée par chaque composante spatiale du spectre.

Nous définissons alors $\Gamma(u_x, u_y, z, t)$ tel que :

$$\Gamma(u_x, u_y, z, t) = |TF[I_H(x, y, z, t)]_{(x,y)}|^2$$
(3.5)

où $\mathbf{u} = (u_x, u_y, u_z)$ est le vecteur des fréquences spatiales lié au vecteur d'onde de propagation du champ $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$ par la relation $\mathbf{u} = \mathbf{k}/2\pi$. *TF* représente la transformée de Fourier spatiale selon les coordonnées (x, y).

La configuration hétérodyne hors-axe nous permettra de séparer les différentes composantes spectrales dans l'espace des fréquences spatiales. Dans un souci de clarté et afin de bien mettre en évidence les avantages du filtrage spatial et temporel, nous allons traiter ces deux parties du problème séparément.

3.1.3 Filtrage spatial du signal utile

En ne considérant que la partie spatiale des champs, l'équation 3.4 devient :

$$I_{H}(x, y, L) = I_{S}(x, y, L) + I_{R} + A_{R}e^{-i(k_{Rx}x + k_{Ry}y)}A_{S}(x, y, L) + A_{R}e^{i(k_{Rx}x + k_{Ry}y)}A_{S}^{*}(x, y, L)$$
(3.6)

Analyse des différentes contributions dans l'espace de Fourier En holographie classique, la lecture de l'hologramme se fait par illumination de celui-ci par la même onde de référence. Il est possible de restituer le champ objet en multipliant l'intensité de l'hologramme I_H par le champ de référence. En holographie digitale, une intégrale de Fresnel-Kirchhoff permet de réaliser la reconstruction dans un plan z. Pour notre application, nous allons nous limiter au calcul du spectre de l'hologramme.

En écrivant la transformée de Fourier en deux dimensions du champ E(x, y, z) comme :

$$\tilde{E}(x, y, z) = \int_{\Re^2} E(u_x, u_y, z) exp(-2i\pi(u_x x + u_y y)) du_x du_y$$
(3.7)

Le champ $E(u_x, u_y, z)$ représente alors le coefficient associé à la décomposition du champ $\tilde{E}(x, y, z)$ sur la fonction périodique $exp(-2i\pi(u_x x + u_y y))$ dans l'espace des fréquences spatiales. Cette décomposition est locale au plan z considéré.

Nous pouvons alors exprimer la transformée de Fourier spatiale de $I_H(x, y, L)$:

$$\tilde{I}_{H}(u_{x}, u_{y}, L) = \tilde{I}_{S}(u_{x}, u_{y}, L) + I_{R} \cdot \delta(u_{x}, u_{y}) \quad \text{ordre } \mathbf{0}
+ A_{R} \tilde{A}_{S}(u_{x}, u_{y}, L) * \delta(u_{x} + u_{Rx}, u_{y} + u_{Ry}) \quad \text{ordre } \mathbf{+1}
+ A_{R} \tilde{A}_{S}^{*}(u_{x}, u_{y}, L) * \delta(u_{x} - u_{Rx}, u_{y} - u_{Ry}) \quad \text{ordre } \mathbf{-1} \quad (3.8)$$

où * et δ représentent respectivement le produit de convolution et la fonction de Dirac. Les trois termes de l'expression 3.8 représentent les trois ordres dans l'espace des fréquences spatiales :

- L'ordre 0 est au centre dans l'espace des fréquences spatiales, et correspond à l'intensité non distribuée sur les ordres. Cette contribution est proportionnelle à l'intensité de la référence et à l'intensité non modulée du faisceau objet.
- L'ordre +1 est décalé de $(-u_{Rx}, -u_{Ry})$ et est proportionnel à l'amplitude du champ objet.
- L'ordre -1 est décalé de $(+u_{Rx}, +u_{Ry})$ et est proportionnel à l'amplitude conjuguée du champ objet.



Figure 3.4 – Représentation de la distribution des champs dans l'espace des fréquences spatiales $(\mathbf{u}_{\mathbf{R}} = (u_{Rx}, u_{Rx}))$. Le spectre est obtenue en effectuant la transformée de Fourier de I_H). Il est composé de l'autoconvolution du champ référence (1), l'autoconvolution du champ objet (2), le champ objet modulé (3) et son conjugué (4). Le fond (5) représente le bruit.

L'influence du facteur de phase dû à l'angle de la référence se manifeste par une translation dans l'espace des fréquences spatiales, cela est représenté sur la figure 3.4. Les ordres -1 et +1 sont distribués symétriquement par rapport à l'ordre 0. Toute information de phase contenue dans le champ objet ou référence sera donc séparée des composantes continues ou du bruit. Le choix d'un angle adéquat permet ainsi de séparer les composantes sans recouvrement.

La configuration hors-axe permet donc de réaliser un filtrage spatial de l'information utile.

La forme des contributions (3) et (4) de la figure 3.4 est le résultat de la répartition spatiale du champ objet convoluée par celle de la référence dans le plan objet z = 0. Par exemple, si le diaphragme utilisé pour filtrer le champ objet dans le plan objet (voir figure 3.3) est circulaire et que l'image virtuelle du faisceau référence dans le plan objet est ponctuelle, les contributions ont une forme circulaire.

3.1.4 Filtrage temporel du signal

L'holographie à décalage de phase possède à l'origine l'avantage de supprimer l'image conjuguée et de permettre de reconstruire l'objet dans n'importe quel plan d'imagerie [109]. Dans des cas où l'onde objet est très faible en amplitude, l'holographie à décalage de phase permet d'améliorer le contraste de la détection. L'hétérodynage permet en effet d'amplifier le champ que l'on souhaite mesurer.

Sa mise en pratique passe par la modulation de la figure d'interférences (hétérodynage). Il a été montré qu'un décalage en fréquence des deux bras permet de réaliser un décalage de phase très précis [111].

Nous considérons, comme dans la partie précédente, les champs objet et référence suivants :

$$E_S(t) = A_S e^{i\omega_S t} \tag{3.9}$$

$$E_R(t) = A_R e^{i\omega_R t} \tag{3.10}$$

Dans le même souci de simplification, nous ne prenons en compte que la partie temporelle des champs. Les amplitudes complexes A_S et A_R dépendent des cordonnées de l'espace.

Nous appliquons un décalage en fréquence à l'onde de référence tel que (ω_L étant la pulsation de la source laser) :

$$\omega_S = \omega_L \quad \text{et} \quad \omega_R = \omega_L + \omega_{mod} \tag{3.11}$$

Ce décalage provoque un battement des deux ondes : la figure d'interférences est alors modulée au cours du temps. Ce battement peut être échantillonné par un détecteur lent. Pour que ce battement soit dans la bande passante du détecteur, le décalage de fréquence de la référence doit être égal à la fréquence d'échantillonnage de la caméra ω_C divisée par le nombre de phases de modulations (n) :

$$\omega_{mod} = \frac{\omega_C}{n} \tag{3.12}$$

Ainsi, nous pouvons écrire l'intensité au niveau du détecteur :

$$I_H(t) = I_S + I_R + A_S A_R^* e^{-i\omega_{mod}t} + A_S^* A_R e^{i\omega_{mod}t}$$
(3.13)

Les deux premiers termes de l'équation 3.13 constituent la partie homodyne de l'intensité. Dans la partie hétérodyne (deux derniers termes), deux fréquences de battement apparaissent. L'équation 3.13 montre aussi que le décalage de phase permet de différencier les ordres de diffraction. La démodulation consisterait à calculer la transformée de Fourier temporelle de la partie hétérodyne échantillonnée.

Démodulation n-phases Cette démodulation peut aussi être réalisée en enregistrant un nombre n d'images pour n valeurs de la phase, c'est-à-dire à des instants différents.

L'acquisition des images est réalisée grâce à une caméra possédant une certaine cadence telle que : $\omega_C = n\omega_{mod}$. La caméra enregistre donc une séquence de n images I_k à chaque instant $t_k = k \frac{2\pi}{\omega_C}$.

Ainsi chaque image I_k est acquise pour une valeur du déphasage $\omega_{mod}t$ tel que :

$$I_k = I_H(\omega_{mod}t = \frac{2k\pi}{n}) \qquad k \in \{0, ..., n-1\}$$
(3.14)

L'intensité de chaque image s'écrit alors :

$$I_k(t) = I_S + I_R + A_S A_R^* e^{-i\frac{\omega_C t_k}{n}} + A_S^* A_R e^{i\frac{\omega_C t_k}{n}}$$
$$= I_S + I_R + A_S A_R^* e^{-i\frac{2k\pi}{n}} + A_S^* A_R e^{i\frac{2k\pi}{n}}$$
(3.15)

Une combinaison linéaire des n images permet de réaliser la démodulation du signal. L'hologramme complexe $E_H(t)$ s'exprime en fonction des différentes images grâce à l'expression suivante :

$$E_H(t) = \sum_{k=0}^{n-1} I_k exp(i\frac{2k\pi}{n})$$
(3.16)

La transformée de Fourier spatiale en deux dimensions permet ensuite d'obtenir la répartition des champs dans l'espace des fréquences spatiales.

• Interférométrie 4-phases :

Le cas n = 4 est le plus souvent employé car il permet d'éliminer les ordres -1 et 0 de l'hologramme. Toute l'énergie est alors portée par un seul ordre de diffraction. Pour n=4, nous obtenons :

$$E_{H}(t) = \sum_{k=0}^{3} (i)^{k} I_{k}$$

= $(I_{0} - I_{2}) + i(I_{1} - I_{3})$
= $\sum_{k=0}^{3} (i)^{k} (I_{S} + I_{R}) + \sum_{k=0}^{3} (+1)^{k} A_{S} A_{R}^{*} + \sum_{k=0}^{3} (-1)^{k} A_{S}^{*} A_{R}$
= $4.A_{S} A_{R}^{*}$ (3.17)

Le premier et le dernier termes de l'expression 3.17 sont nuls. Le terme central, proportionnel à A_S , est maximisé. L'hologramme ne contient donc que l'ordre +1 correspondant à l'image réelle et proportionnel à l'amplitude du champ objet.

• Interférométrie 2-phases :

Dans certaines applications, on ne peut utiliser que deux images. Pour n=2, nous obtenons :

$$E_{H}(t) = \sum_{k=0}^{k=1} I_{k} e^{ik\pi}$$

= $(I_{0} - I_{1})$
= $(I_{S} + I_{R} + A_{S}A_{R}^{*} + A_{S}^{*}A_{R}) - (I_{S} + I_{R} + A_{S}A_{R}^{*}e^{-i\pi} + A_{S}^{*}A_{R}e^{i\pi})$
= $2.A_{S}A_{R}^{*} + 2.A_{S}^{*}A_{R}$ (3.18)

L'interférométrie 2-phases permet alors de supprimer les termes non-modulés (ordre 0). Les ordres -1 et +1 restent présents mais possèdent 2 fois plus d'énergie. Cela permet donc d'améliorer le rapport signal à bruit.

• L'holographie hétérodyne permet d'augmenter la sensibilité de la mesure en amplifiant le champ que l'on souhaite mesurer. Dans le cas n = 4, elle permet de supprimer l'information inutile. Dans le cas n = 2, elle permet de supprimer la partie homodyne et amplifie dans une moindre mesure les composantes proportionnelles au champ objet ou à son conjugué. Dans le cas où l'amplitude du champ objet est très faible, un facteur 2 d'amplification est non négligeable.

3.1.5 Couplage "holographie hétérodyne" et "holographie horsaxe"

Le couplage des deux modalités (filtrage spatial et temporel) permet à l'holographie d'atteindre une très bonne sensibilité et d'être limitée par le bruit *shot* [112].

Considérons le cas où l'on réalise une interférométrie *2-phases* en configuration hors axe. L'intensité de l'hologramme s'écrit alors :

$$E_H(x, y, L, t) = 2.A_S(x, y, L)A_R e^{-i(k_{Rx}x + k_{Ry}y)} + 2.A_S^*(x, y, L)A_R e^{+i(k_{Rx}x + k_{Ry}y)}$$
(3.19)

et donc :

$$\tilde{E}_{H}(u_{x}, u_{y}, L, t) = 2A_{R}\tilde{A}_{S}(u_{x}, u_{y}, L) * \delta(u_{x} + u_{Rx}, u_{y} + u_{Ry}) \quad \text{ordre } +1
+ 2A_{R}\tilde{A}_{S}^{*}(u_{x}, u_{y}, L) * \delta(u_{x} - u_{Rx}, u_{y} - u_{Ry}) \quad \text{ordre } -1 \quad (3.20)$$

L'hologramme dans l'espace des fréquences spatiales ne contient que deux ordres séparés et amplifiés par hétérodynage. Filtrage du bruit L'amplification hétérodyne permet de rendre négligeables les bruits techniques de la détection (bruit thermique, courant d'obscurité...) devant le bruit ultime de la photodétection (bruit shot ou de grenaille). Le bruit shot est uniformément réparti dans l'espace des fréquences spatiales (bruit blanc) et varie comme la racine de la puissance du signal. Dans un régime de fort gain ($|E_R|^2 \gg |E_S|^2$), l'amplitude du bruit shot de la référence est supérieure à celle du bruit shot de l'onde objet. Cette amplitude peut être évaluée dans la zone (5) de l'hologramme dans l'espace des fréquences spatiales (figure 3.4). Les fluctuations d'intensité de l'onde de référence non supprimées par interférométrie 2-phases seront filtrées spatialement grâce à la configuration hors axe.

3.2 Principe de la détection des photons marqués par holographie numérique hétérodyne hors-axe

Nous avons montré dans la partie précédente que l'holographie numérique hétérodyne hors-axe permettait de réaliser un filtrage efficace d'un champ optique en échantillonnant spatialement la figure d'interférences . La sensibilité de cette technique réside en sa capacité à discriminer spatialement les bruits (des contributions homodynes des ondes objet et référence), des contributions hétérodynes portant le signal utile.

Double hétérodynage La configuration présentée est particulièrement adaptée à la détection des photons marqués où, d'une part, le signal utile est faible et où d'autre part un bras référence décalé de la fréquence des ultrasons est utilisé. En imagerie acousto-optique, l'onde objet associée aux photons marqués est décalée de la fréquence ultrasonore :

$$E_S(x, y, z, t) = A_S(x, y, z)e^{i\omega_S t} \quad \text{avec} \quad \omega_S = \omega_L + \omega_{US} \tag{3.21}$$

Il suffit donc de choisir une onde référence telle que :

$$E_R(x, y, z, t) = A_R e^{i(k_{Rx}x + k_{Ry}y)} e^{i\omega_R t} \quad \text{avec} \quad \omega_R = \omega_L + \omega_{US} + \omega_{mod} \tag{3.22}$$

Le champ objet est donc celui des photons marqués. Les ordres de diffraction dans l'espace des fréquences sont directement proportionnels à l'amplitude du champ des photons marqués. Le champ des photons non marqués (plus important) constitue un terme homodyne et est donc supprimé par démodulation 2-phases.

Distribution d'énergie de l'onde objet Le calcul de la densité spectrale spatiale d'énergie, comme définie par l'équation 3.5, nous donne directement une grandeur proportionnelle à l'intensité des photons marqués.

En effet, l'intensité de l'hologramme dans l'espace des fréquences spatiales peut se réécrire de la façon suivante :

$$\tilde{E}_{H}(u_{x}, u_{y}, L, t) = 2A_{R}\tilde{A}_{S}(u_{x} + u_{Rx}, u_{y} + u_{Ry}, L) + 2A_{R}\tilde{A}_{S}^{*}(u_{x} - u_{Rx}, u_{y} - u_{Ry}, L)$$

= $2A_{R}[\tilde{A}_{S}(\mathbf{u} + \mathbf{u}_{R}) + \tilde{A}_{S}^{*}(\mathbf{u} - \mathbf{u}_{R})]$ (3.23)

La densité spectrale vaut :

$$\Gamma(u_x, u_y) = |\tilde{E}_H(u_x, u_y)|^2
= \tilde{E}_H(u_x, u_y).\tilde{E}^*{}_H(u_x, u_y)
= 4I_R \Big[\Big(\tilde{A}_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) + \tilde{A}^*_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \Big). \Big(\tilde{A}^*_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) + \tilde{A}_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \Big) \Big]
= 4I_R \Big[\tilde{A}_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) \tilde{A}^*_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) + \tilde{A}_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) \tilde{A}_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R)
+ \tilde{A}^*_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \tilde{A}^*_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) + \tilde{A}^*_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \tilde{A}_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \Big]$$
(3.24)

Si on s'arrange pour qu'il n'y ait aucun recouvrement, les deuxième et troisième termes de l'expression 3.24 sont nuls. En pratique, nous serons toujours dans ces conditions, en veillant à choisir un couple (taille du diaphragme objet + angle θ de la référence) correct afin de séparer les ordres dans l'espace des fréquences sans recouvrement. En réalité, ce choix doit prendre en compte d'autres paramètres, car si l'angle n'a une incidence que sur l'écart des ordres dans l'espace des fréquences, le diaphragme possède une influence sur la taille des grains de *speckle* et donc sur le contraste des franges d'interférences. Nous verrons plus loin comment optimiser ce paramètre.

La densité spectrale spatiale s'écrit alors en absence de recouvrement comme la somme de deux termes :

$$\Gamma(u_x, u_y) = 4I_R \Big[\tilde{A}_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) \tilde{A}_S^*(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) + \tilde{A}_S^*(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \tilde{A}_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \Big]
= 4I_R \Big[\Big| \tilde{A}_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) \Big|^2 + \Big| \tilde{A}_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \Big|^2 \Big]
= 4I_R \Big[\tilde{I}_S(\mathbf{u} + \mathbf{u}_R) + \tilde{I}_S(\mathbf{u} - \mathbf{u}_R) \Big]
= 4I_R \Big[\tilde{I}_S(u_x, u_y) * \delta(u_x + u_{Rx}, u_y + u_{Ry}) + \tilde{I}_S(u_x, u_y) * \delta(u_x - u_{Rx}, u_y - u_{Ry}) \Big]
(3.25)$$

L'expression obtenue en 3.25 montre que l'énergie est distribuée selon deux composantes spectrales centrées aux ordres -1 et +1 de diffraction. Chaque contribution est proportionnelle à l'intensité du champ objet. Cette intensité est distribuée de façon égale sur les deux ordres et nous permet de remonter directement à l'intensité du champ des photons marqués par les ultrasons à un facteur d'amplification près ($4I_R$). Une détection 4-phases aurait permis de concentrer toute l'énergie sur un seul ordre (avec un facteur d'amplification égal à $16I_R$), le rapport signal sur bruit en serait encore plus élevé.

3.3 Caractérisation de l'expérience

Après avoir explicité le principe théorique de la détection des photons marqués par holographie numérique hétérodyne hors-axe, nous allons, dans cette partie, expliquer la réalisation pratique de ce filtrage spatio-temporel des photons marqués. Nous allons ensuite chercher à évaluer l'efficacité de la détection en présence de *speckle* et voir quelles contraintes cela ajoute à la détection.

3.3.1 Description de l'expérience

Montage expérimental Le montage expérimental (figure 3.5) est un montage interférométrique de type *Mach-Zehnder*.



Figure 3.5 – Montage expérimental pour l'imagerie acousto-optique par holographie numérique hétérodyne hors-axe. PZT : transducteur ultrasonore, PBS : cube séparateur de polarisation, $\lambda/2$: lame demi-onde, MAO : modulateur acousto-optque.

Un faisceau laser impulsionnel à 750 nm est séparé en deux bras grâce à un cube séparateur de polarisation (PBS) : un bras référence et un bras signal. La répartition de puissance entre les deux bras est ajustée par une lame demi-onde.

L'échantillon diffusant à imager est plongé dans une cuve en PMMA remplie d'eau. La description des échantillons, et de leur fabrication est donnée dans l'annexe E. Ils sont constitués d'eau, d'Agar et d'Intralipide. Cet échantillon est parcouru par une onde ul-trasonore émise par un transducteur piézoélectrique (PZT). Pour des raisons de visibilité, l'ensemble cuve et transducteur est représenté dans un plan perpendiculaire à celui du schéma. L'onde ultrasonore est émise selon l'axe y, la lumière se propageant selon z.

La lumière diffusée par l'échantillon (photons marqués et non marqués) est filtrée spatialement par un diaphragme circulaire représentant le plan objet. Cette lumière constitue l'onde objet E_S et est collectée directement par la caméra.

Sur le bras référence, nous plaçons deux modulateurs acousto-optiques afin de réaliser le décalage en fréquence nécessaire à la fois pour l'hétérodynage et la sélection des photons marqués. Les modulateurs acousto-optiques fonctionnant autour de $\omega_{AO} = 80 \ MHz$, il est nécessaire d'en utiliser deux pour réaliser un décalage basse fréquence. Ainsi en sélectionnant l'ordre +1 du premier modulateur (MAO1) tel que $\omega_{MAO1} = \omega_{AO}$ puis l'ordre -1 du second modulateur (MAO2) tel que $\omega_{MAO2} = \omega_{AO} - \omega_{US} - \omega_{mod}$, nous

obtenons $\omega_R = \omega_L + \omega_{US} + \omega_{mod}$. Nous avons crée une onde de référence doublement décalée en fréquence.

Ce faisceau référence interfère ensuite avec le champ objet sur la caméra, sur laquelle il arrive avec un angle θ . Il est par ailleurs élargi avec une lentille afin de recouvrir tout le détecteur. Dans le but de supprimer l'influence de la répartition spatiale du faisceau référence et d'obtenir des ordres de diffraction dépendant uniquement de la répartition spatiale du champ objet, il faut que le faisceau référence soit ponctuel au niveau du plan objet. Pour cela, il suffit de choisir la position de la lentille telle que le point de focalisation du faisceau référence ait son image virtuelle sur le diaphragme objet, par réflexion sur le miroir.

Matériel expérimental Voici la liste et les caractéristiques du matériel utilisé :

- Un laser Alexandrite (Light Age) accordable entre 750 et 800 nm. Ce laser émet de longues impulsions de 1 ms avec une cadence comprise entre 5 et 13 Hz en fonction de la longueur d'onde choisie.
- Deux modulateurs acousto-optiques (AA OptoElectronics) fonctionnant autour de 80 MHz avec une efficacité de diffraction de 70%, précédés de deux amplificateurs de puissance large bande, eux-mêmes alimentés par deux générateurs de fonction (Agilent 33220A). Ces modulateurs sont alimentés à la même fréquence (80 MHz) pour l'imagerie en configuration homodyne.
- Un transducteur piézo-électrique ultrasonore (Panametrics A395S) d'ouverture 38 mm, de focale $f_{US} = 75mm$, et de fréquence nominale $\omega_{US} = 2.3 \ MHz$. Ces caractéristiques donnent une largeur de la zone focale égale à 1.2 mm. Ce transducteur est alimenté par un générateur de fonction (Agilent 33220A) dont le signal est amplifié par un amplificateur de puissance large bande (SCO ALP6080 10 W). La caractérisation de ce transducteur est donnée dans l'annexe D.
- Une platine de translation linéaire motorisée pas à pas (Newport M-ILS150PP) contrôlée par un contrôleur (Newport ESP300) relié par un câble GPIB à un ordinateur.
- Une caméra CMOS rapide (Fastcam Ultima APX, Photron), 10 bits. Cette caméra possède une résolution maximale de 1024x1024 pixels à une cadence de 2 kHz. Cette résolution passe à 1024x512 pixels à 4 kHz. Son rendement quantique est de 24% à 633 nm. Ses pixels font 17 μm de côté. Cette caméra est déclenchée grâce à un générateur de retard synchronisé au laser.

3.3.2 Efficacité radiométrique de la détection

Pour collecter un maximum de lumière, le détecteur doit présenter une grande surface et avoir une grande acceptance angulaire. Cette capacité à collecter la lumière est caractérisée par l'étendue optique.

L'étendue géométrique d'un faisceau EO est généralement définie comme le produit de la surface de l'émetteur S par l'angle solide d'émission $\Omega : EO = S \times \Omega$. Cette grandeur est souvent utilisée pour décrire des sources lumineuses étendues dont le rayonnement est incohérent. Elle peut aussi être utilisée pour décrire des faisceaux lumineux incohérents spatialement (mais qui peuvent être cohérents temporellement) afin d'en quantifier le caractère multimode. A la traversée d'un milieu diffusant, un faisceau monomode voit son désordre augmenter, il devient multimode et voit donc son étendue optique augmenter aussi.

Étendues géométriques d'émission et de détection En comparant l'étendue géométrique de la source à celle de la détection, on peut calculer avec quelle efficacité la détection pourra être faite, c'est à dire quel pourcentage des photons émis pourra être effectivement détecté.

L'étendue géométrique est ici liée au *speckle* dans la mesure où chaque grain de *speckle* correspond à un quantum d'étendue optique. Les calculs d'efficacité de détection peuvent donc être faits en comptant les grains de *speckle*.

• Étendue géométrique de la source :

Notons EO_s cette grandeur et S la surface d'émission. Dans le cas d'un échantillon diffusant d'épaisseur L, la dimension latérale de la zone émettrice est de l'ordre de L (voir chapitre 1) et nous avons donc : $S \sim L^2$. Le flux optique de la source est le produit de son étendue géométrique et de sa luminance $(W/m^2/sr)$ et s'exprime alors en Watts. La lumière diffusée vers l'avant obéit à la loi de Lambert et donc :

$$\Omega_S = \int_0^{\pi/2} \cos\theta d\theta = \pi \tag{3.26}$$

d'où :

$$EO_S \sim \pi L^2 \tag{3.27}$$

• Étendue géométrique de détection :

Considérons un capteur mono-élément (1 pixel) dans une configuration hétérodyne horsaxe, et de dimension d_{pixel} . Le faisceau référence est décalé d'un angle θ . Du fait de ce décalage angulaire, la phase du terme d'interférence entre l'onde objet et de référence varie avec la position x au niveau du détecteur.

Il en résulte que l'efficacité de détection du champ par le détecteur est pondérée par un facteur $\eta(\theta) \leq 1$ qui s'exprime comme :

$$\eta(\theta) = \frac{1}{d_{pixel}} \int_{-d_{pixel}/2}^{d_{pixel}/2} exp(i2\pi \frac{x}{\lambda/sin\theta}) dx$$
(3.28)

On trouve, dans l'approximation des petits angles :

$$\eta(\theta) \simeq \operatorname{sinc}\left(\frac{\pi d_{pixel}\theta}{\lambda}\right) \simeq \operatorname{sinc}\left(\frac{\pi}{\theta_0}\right)$$
(3.29)

L'angle solide associé à la détection d'un pixel se déduit de l'expression de $|\eta|^2$ (le module au carré vient du fait que l'on détecte l'intensité du champ) :

$$\Omega_{1mode} = \left[\int_{-\pi/2}^{+\pi/2} |\eta(\theta_x)|^2 d\theta_x \right] \times \left[\int_{-\pi/2}^{+\pi/2} |\eta(\theta_y)|^2 d\theta_y \right]$$
(3.30)

Cette expression donne pour des petit angles (c'est-à-dire $\theta_0 = \lambda/d_{pixel}$ petit) :

$$\Omega_{1mode} = \left[\int_{-\inf}^{+\inf} |\eta(\theta)|^2 d\theta \right]^2 = \frac{1}{4} \frac{\lambda^2}{d_{pixel}^2}$$
(3.31)

On obtient ainsi l'étendue géométrique associée à la détection par un mono-détecteur :

$$EO_{1mode} = \Omega_{1mode} \times S_{1pixel} = \left[\frac{1}{4}\frac{\lambda^2}{d_{pixel}^2}\right] \times \left[d_{pixel}^2\right] = \frac{\lambda^2}{4}$$
(3.32)

Ce résultat correspond à l'étendue associée à la détection par un pixel. Il correspond aussi à l'étendue optique d'un mode du champ.

L'étendue optique de détection d'un capteur multi-pixel peut être obtenue en généralisant le résultat précédent.

L'angle solide correspond toujours à celui d'un pixel, mais la surface est multipliée par le nombre de pixels (N^2) :

$$EO_{N^{2}mode} = \Omega_{N^{2}mode} \times S_{N^{2}pixels} = \left[\frac{1}{4}\frac{\lambda^{2}}{d_{pixel}^{2}}\right] \times \left[N^{2} \times d_{pixel}^{2}\right] = N^{2}\frac{\lambda^{2}}{4}$$
(3.33)

Efficacité géométrique de détection Nous pouvons à présent estimer l'efficacité géométrique de notre détection en calculant le rapport R des étendues géométrique d'émission et de détection. Considérons un cas où le milieu fait une épaisseur de 4 cm et $\lambda = 750 nm$.

On trouve, pour $N = 512 \times 1024 \sim 5.10^5 \ pixels$:

$$R = \frac{EO_{N^2 mode}}{EO_S} = \frac{N^2 \lambda^2}{4\pi L^2} \simeq 5.10^{-5}$$
(3.34)

Comme nous pouvons le remarquer, la détection est très inefficace et seule une petite partie des photons est détectée. Cela est dû à la fois au fait que les photons sont diffusés dans toutes les directions (Ω_S grand) et au fait que la surface d'émission est plus grande que la surface visible par le détecteur dans l'angle solide de détection. Parmi les photons atteignant le détecteur, certains sont en dehors du cône de détection. Cela correspond aux grains de *speckle* plus petits que la taille des pixels. Seuls les grains supérieurs aux pixels sont détectés. Le détecteur agit donc comme un filtre spatial passe-bas. L'efficacité peut être encore plus faible si, pour améliorer l'échantillonnage du *speckle*, nous utilisons plusieurs pixels pour un grain de *speckle*.

3.3.3 Utilisation d'un laser longues impulsions

Le principal objectif de cette expérience est de mettre en place un système d'holographie numérique pour l'imagerie acousto-optique en longues impulsions. En effet, une façon simple d'augmenter le nombre de photons marqués, est d'augmenter la puissance optique incidente sur l'échantillon diffusant [103]. Cependant, il faut respecter les normes optiques médicales en termes de puissance moyenne. Il est donc intéressant d'augmenter la puissance crête et d'utiliser une source impulsionnelle avec un rapport cyclique approprié. Dans ces conditions, le nombre de photons est élevé uniquement sur une période utile, celle où l'onde ultrasonore traverse le milieu.

Dans l'objectif d'augmenter la sensibilité de la mesure tout en respectant les normes, nous avons choisi d'utiliser un laser à longues impulsions (1 ms). La longueur de l'impulsion correspond au temps de décorrélation du *speckle* dans les milieux biologiques.

Description du laser Le laser utilisé est un laser Alexandrite (modèle hors série de la marque LightAge). Le milieu amplificateur est donc du chrysoberyl dopé chrome $(BeAl_2O_4 : Cr)$. La très bonne conductivité thermique de ce matériau fait qu'il est très résistant au pompage par flash et permet d'atteindre des puissances crêtes élevées. Ce laser est accordable entre 750 nm et 800 nm. Son accordabilité vient du fait que, lors de l'absorption ou de l'émission d'un photon, des transitions vibroniques ont lieu et une partie des photons génère des phonons pendant l'effet laser. Cela donne accès à différents niveaux d'énergie offrant ainsi la possibilité de changer de longueur d'onde. En plus du pompage optique, un pompage thermique permet d'augmenter la population du niveau excité. Par ailleurs, deux étalons Fabry-Perot intra-cavité permettent de réduire sa largeur spectrale à 1 GHz. Le fonctionnement impulsionnel est spontané et provient des oscillations de relaxation. Une énergie de 150 mJ par impulsion peut être atteinte .



Figure 3.6 – Forme de l'impulsion du laser Alexandrite de largeur égale à 1 ms.

Caractéristiques du laser Ce laser possède des points de fonctionnement (longueur d'onde, fréquence de répétition, tension appliquée aux lampes flash). Ainsi pour un fonctionnement à 750 nm, le laser sera stable à une fréquence de répétition de 13.6 Hz, mais fonctionnera à 7 Hz si la longueur d'onde est de 790 nm. Le fonctionnement décrit plus haut est accompagné de nombreuses instabilités. La figure 3.6 montre la forme que possède l'impulsion du laser à 750 nm. Cette impulsion a une durée d'1 ms et est constituée d'un nombre d'impulsions micro-secondes. Nous remarquons que l'énergie n'est pas uniformément distribuée sur l'ensemble de ces impulsions. Cela peut être contraignant et source

de bruit surtout dans le cas d'une imagerie ultra-rapide.

La mesure de la puissance du laser montre aussi des instabilités comme le montre la figure 3.7. Nous avons également observé des sauts de modes. Ces sauts sont à l'origine des variations de puissance.



Figure 3.7 – Mesure de la puissance moyenne du laser Alexandrite en fonction du temps.

La longueur de cohérence du laser a été mesurée par le constructeur grâce à interféromètre Fabry-Perot. Des franges d'interférences sont observées avec un espacement des miroirs égal à 15 cm.

3.3.4 Étude du contraste de *speckle*

L'efficacité de la détection dépend de l'échantillonnage du *speckle*. En effet, si la taille d'un pixel du détecteur est supérieure à la taille d'un grain de *speckle*, il pourra intégrer spatialement l'intensité de plusieurs grains. Dans ce cas, la distribution d'intensité de la figure de *speckle* tend vers une gaussienne et ne vérifie plus une loi exponentielle. Cela peut être compris en faisant l'analogie avec le théoréme de la limite centrale qui dit que la somme de N variables aléatoires de même distribution est une gaussienne lorsque N tend vers l'infini. Ce mauvais échantillonnage conduit à une perte du contraste de *speckle* et donc à une perte d'information. La taille d'un grain de *speckle d_s*, dépend de la longueur d'onde, de la distance d'observation L et du diamètre du diaphragme de sélection en sortie du milieu diffusant D:

$$d_s = 1.22 \frac{\lambda L}{D} \tag{3.35}$$

Nous pouvons estimer, pour une taille du diaphragme donnée, la distance minimale à laquelle il faut placer la caméra afin de réaliser un bon échantillonnage du *speckle*. Cela impose de faire plusieurs compromis, car pour réaliser un bon échantillonnage, on aura tendance soit à fermer le diaphragme soit à éloigner la caméra. Dans les deux cas, cela se traduit aussi par une perte de flux collecté.

Mesure du contraste de *speckle* Afin d'optimiser la distance de la caméra, nous avons décidé de mesurer le contraste en fonction de la distance. Le contraste d'un *speckle* s'exprime comme le rapport de l'écart-type de l'intensité divisé par sa valeur moyenne $(C = \sigma_I/\bar{I})$. Ce contraste vaut 1 pour un *speckle* dit pleinement développé. Mais sa valeur peut être diminuée par plusieurs facteurs. C'est le cas où plusieurs figures de *speckle* se superposent (spatialement ou temporellement) de façon incohérente. C'est le cas notamment si la source utilisée est multimode ou si on utilise une lumière non polarisée. C'est justement à cela qu'il faut s'attendre dans le cas des milieux diffusants où la lumière est décomposée en deux polarisations incohérentes. On peut exprimer le contraste de la superposition de N figures de *speckle C_N* à partir de celui d'une figure de *speckle C* :

$$C_N = \frac{\sqrt{N}\sigma_I}{N\bar{I}} = \frac{1}{\sqrt{N}}C \tag{3.36}$$

Ainsi, nous devons nous attendre à un contraste maximal C = 0.7.

Nous avons mesuré ce contraste en utilisant un diffuseur fixe (DG20-220 Thorlabs) et un diamètre du diaphragme $D = 1.5 \ cm$. Pour chaque position de la caméra, nous avons pris une série de 25 images (une image par impulsion laser à une cadence de 4000 images par seconde). Les résultats obtenus sont reportés sur la figure 3.8.



Figure 3.8 – Mesure du contraste en fonction de la position de la caméra. La courbe en trait continu est un lissage.

La figure 3.8 montre bien que le contraste augmente avec la distance de la caméra au diaphragme. Le contraste sature à 0.58. Cette valeur est proche de la valeur ultime attendue (0.7). Il existe d'autres facteurs (autres que la polarisation) qui peuvent donc être responsable de la chute du contraste. Cela peut provenir par exemple de la superposition de différents modes incohérents du laser, sa longueur de cohérence ne faisant que 15 cm. La chute ne peut pas provenir d'une superposition temporelle incohérente de deux motifs de *speckle* car nous utilisons un diffuseur fixe et pour que cela soit le cas, il faut que les variations temporelles soient plus rapides que le temps d'intégration de la caméra $(\leq 250 \ \mu s \text{ à une cadence de 4 kHz}).$

La mesure est plus précise pour les petites distances car l'intensité reçue par le détecteur est plus élevée. Nous pouvons estimer grâce à la formule 3.36 qu'il faut une distance de 28 cm pour atteindre des aires de cohérence de 17 μm c'est à dire la taille d'un pixel de la caméra (un grain par pixel). Cependant, la mesure montre que le contraste sature à partir de 40 cm. Il faut donc placer la caméra à une distance supérieure à cette valeur afin de bien échantillonner le *speckle*. Au-delà de cette distance, le contraste ne varie plus, la figure est sur-échantillonée et le flux de lumière est plus faible.

3.3.5 Acquisition des spectres

Nous allons présenter dans cette section le protocole expérimental de traitement des données et l'appliquer à un cas simple où nous réalisons l'hologramme d'un diffuseur faible.

Pour réaliser une cartographie acousto-optique, il faut connaitre la quantité de photons marqués pour chaque position de la source-virtuelle acousto-optique. Il faut donc enregistrer un hologramme et en extraire la densité spectrale d'énergie pour chacune de ces positions. Plaçons-nous d'abord dans un cas à une dimension (c'est-à-dire sans apport de résolution axiale). Pour chaque position du transducteur acoustique (PZT) émettant en continu, il faut faire une acquisition de spectre.

Holographie numérique ultrarapide Pour réaliser une interférométrie 2-phases, nous avons besoin d'acquérir deux images par impulsion laser. L'impulsion laser n'étant pas homogène, nous avons décidé d'acquérir deux images dans les 500 premières micro-secondes afin d'avoir deux images d'intensité correcte. L'utilisation d'une caméra rapide impose des temps d'exposition très courts. De plus, la caméra doit être placée à une grande distance du plan objet, le flux lumineux est donc très faible.

Remarque : Pour réaliser une interférométrie 4-phases, il aurait fallu acquérir à une cadence de 8000 images par seconde, le champ de la caméra est alors réduit à (1024x256 pixels). C'est une hypothèse à envisager néanmoins pour la suite, l'amélioration du rapport signal à bruit apportée par le 4-phases compense peut être la perte de la résolution de la caméra. En effet, d'après l'équation 3.17, il y aurait un facteur 16 au lieu de 4 pour Γ , le bruit restant le même.

La figure 3.9 montre le protocole adopté pour la réalisation d'un profil acousto-optique. Pour chaque position X du transducteur, il est nécessaire de moyenner le signal sur un nombre N d'impulsions lasers. Deux images sont enregistrées pour chaque impulsion, chaque image correspondant à un interférogramme. Nous réalisons la différence de ces deux images après les avoir normalisées, comme nous l'avons décrit plus haut 3.18. Le calcul du module au carré de la transformée de Fourier en deux dimensions de la différence des deux images, nous permet d'obtenir la densité spectrale d'énergie. L'intensité des deux ordres de diffraction est proportionnelle à l'intensité du champ des photons marqués.

Pour mesurer quantitativement la contribution des photons marqués, nous moyennons la quantité s_N (un des ordres de diffraction) (figure 3.9). Nous évaluons ensuite le bruit s_{0N} ,



Figure 3.9 – Protocole de traitement des données : calcul de l'énergie des photons marqués S_N pour chaque position X_N du transducteur acoustique.

qui est principalement le bruit *shot* de l'onde de référence en régime de fort gain hétérodyne (la référence porte les pixels presque à saturation) et qui est réparti uniformément sur tout le spectre. Le signal acousto-optique vaut pour chaque impulsion :

$$S_N = \frac{s_N - s_{0N}}{s_{0N}} \tag{3.37}$$

Cette grandeur représente le contraste du signal hétérodyne par rapport au fond. Elle est donc équivalente à un rapport signal à bruit.

Le temps de mesure est donné par n/f_c , il vaut 500 μs dans notre cas (2 images et $f_c = 4 \ kHz$). Il est donc inférieur au temps de décorrélation du *speckle*. Nous ne serons à priori pas sensible au bruit de décorrélation du *speckle*.

Hologramme d'un diffuseur fixe et rapport signal à bruit Avant d'appliquer l'holographie numérique à la détection de photons marqués, nous avons calculé le spectre d'un diffuseur simple. Cette mesure a été réalisée dans les mêmes conditions que la mesure du contraste de *speckle*. Elle a pour objectif de déterminer le rapport signal à bruit de l'expérience et d'identifier les différentes contributions au signal mesuré.

Le diffuseur (DG20-220) est éclairé par un faisceau de 3 mW de puissance et la puissance de la référence vaut 1 mW. Dans ce cas, $\omega_{MAO1}/2\pi = 80 \ MHz$ et $\omega_{MAO1}/2\pi =$ 79.998 MHz. La figure 3.10 montre les densités spectrales $\Gamma(u_x, u_y)$ obtenues dans 3 cas : référence seule (3.10(a)), objet seul (3.10(b)), et en configuration holographique (3.10(c)). Ces spectres sont représentés avec la même échelle de couleur. Nous remarquons que le fait d'ajouter une référence modulée et inclinée à un faisceau objet, permet d'en prélever de l'énergie et de la distribuer de façon égale sur deux ordres dans l'espace des fréquences. Nous ne sommes pas ici dans une configuration de fort gain hétérodyne dans la mesure où les puissances des deux faisceaux sont du même ordre de grandeur. C'est pour cette raison que l'hétérodynage ne permet pas de déplacer toute l'énergie sur les ordres de diffraction et que l'ordre 0 reste important. Nous désignons par ordre 0, l'ordre central. Mais comme nous l'avons montré (3.18), l'ordre 0 de diffraction est théoriquement supprimé par hétérodynage. Il reste au centre les bruits dus aux fluctuations d'intensité.



Figure 3.10 – Densité spectrale d'un diffuseur simple en configuration hétérodyne hors-axe (N=1) :
 (a) Faisceau référence seul, (b) Faisceau objet seul, (c) Configuration holographique.

Du spectre 3.10(c) nous pouvons mesurer le contraste :

$$S = \frac{s - s_0}{s_0} = \frac{9.8 \ 10^{10} - 1.9 \ 10^6}{1.9 \ 10^6} = 5.2 \ 10^4 \text{ avec } \sigma_{s0} = 1.9 \ 10^6 \tag{3.38}$$

où σ_{s0} représente l'écart-type du bruit. Nous définissons alors le rapport signal à bruit :

$$RSB = \frac{s}{\sigma_{s0}} = 5.2 \ 10^4 \tag{3.39}$$

Cette définition du rapport signal à bruit se justifie par le fait que si nous nous trouvions dans un cas où l'objet présente un éclairement homogène, le bruit que l'on aurait sur la mesure de s serait égal à l'écart-type de s_0 . Ici, l'"objet" est un speckle, son écart-type σ_s , est de l'ordre de s. σ_s tient compte à la fois du contraste de speckle C et du bruit de la mesure.

Nous remarquons que le rapport signal à bruit est égal au contraste et est très élevé. Cela vient du fait que, d'une part, le signal est très élevé pour un diffuseur faible et que, d'autre part, l'écart-type du bruit est égal à sa moyenne. Ce dernier point montre par ailleurs que le bruit en question n'est pas un bruit de grenaille (*shot*). En effet, il ne vérifie pas une loi de Poisson qui impose que la moyenne du bruit soit égale à sa variance. Les bruits techniques du détecteur et les bruits dus aux instabilités du laser prédominent sur le bruit *shot*.

3.4 Application de l'holographie numérique hétérodyne hors-axe à la détection des photons marqués

Après avoir montré que l'holographie numérique hétérodyne hors-axe permettait de faire une détection efficace et avec un fort rapport signal à bruit dans le cas d'un diffuseur

simple, nous l'appliquons maintenant à l'imagerie acousto-optique.

3.4.1 Analyse des contributions dans l'espace des fréquences spatiales

Nous considérons un gel diffusant fabriqué à base d'Agar et d'Intralipide (Annexe E). Son coefficient de diffusion réduit est $\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$ et son épaisseur est de 4 cm. L'épaisseur optique est donc de 400 (400 l_s). L'échantillon est éclairé par un faisceau laser de puissance 600 mW.

Spectre des photons non marqués Dans un premier temps nous nous intéressons au spectre des photons non marqués, afin de comparer les résultats à ceux d'un diffuseur simple. Dans le cas des photons non marqués, nous choisissons $\omega_{MAO1}/2\pi = 80 \ MHz$ et $\omega_{MAO1}/2\pi = 79.998 \ MHz$. La figure 3.11(a) montre la densité spectrale mesurée et la figure3.11(b) montre une coupe selon u_y (ligne rouge). Les valeurs extraites de ces mesures sont données dans le tableau 3.2.



Figure 3.11 – Densité spectrale des photons non marqués à travers un gel d'épaisseur optique $\mu_s L = 400$. (a) Densité spectrale $\Gamma(u_x, u_y)$, (b) Coupe selon u_y .

Le rapport signal à bruit, quoique très inférieur à celui mesuré pour le diffuseur simple, reste élevé (environ 200). Il est égal au contraste car dans le cas où l'on acquiert le signal sur une seule impulsion laser (N=1), l'écart-type du bruit est égal à sa moyenne. Comme le montre le profil représenté sur la figure 3.11(b), l'onde objet est un *speckle*, sa moyenne s est du même ordre de grandeur que son écart-type σ_s . Ici, il s'ajoute au contraste de *speckle* intrinsèque les bruits de mesure.

Spectre des photons marqués Nous réalisons la même mesure en envoyant une onde ultrasonore continue focalisée sur le milieu. Nous choisissons $\omega_{MAO1}/2\pi = 80 \ MHz$ et $\omega_{MAO1}/2\pi = 77.702 \ MHz$. Nous réalisons la mesure sur une impulsion lumineuse (N=1 correspondant à l'acquisition de 2 images) et sur 20 impulsions lumineuses (N=20 correspondant à l'acquisition de 40 images). Les résultats sont présentés sur la figure 3.12. Les spectres ont été représentés avec la même échelle de couleur que ceux des photons non-marqués. Les données qui en sont extraites sont données dans le tableau 3.2.



Figure 3.12 – Densité spectrale des photons marqués à travers un gel d'épaisseur optique $\mu_s L = 400$ pour deux valeurs de N (1 et 20). (a) Densité spectrale $\Gamma(u_x, u_y)$ pour N=1, (b) Densité spectrale $\Gamma(u_x, u_y)$ pour N=20, (c) Coupe selon u_y pour N=1, (d) Coupe selon u_y pour N=20.

Dans le cas où N=1, nous pouvons tirer les mêmes remarques que pour les photons non marqués. La différence est ici que le signal est à peu près 15 fois plus faible (pour le même éclairement et le même échantillon). Le rapport signal à bruit reste correct (de l'ordre de 20). Cela nous permet d'envisager l'utilisation d'échantillons plus épais. Il ne faut cependant pas oublier qu'ici le marquage se fait le long de toute la colonne acoustique et que l'introduction d'une méthode de résolution axiale (impulsions ou phases aléatoires) réduit de façon considérable cette zone de marquage. Le rapport signal à bruit en est réduit de façon drastique.

Le fait de moyenner sur plusieurs impulsions nous permet d'améliorer ce rapport qui passe à environ 70 pour 20 impulsions. Nous remarquons par ailleurs que cela réduit l'écart-type σ_s et permet ainsi de mieux définir la valeur du signal s.

Mesure du contraste et du rapport signal à bruit Afin de mieux comparer les mesures issues des figures 3.11 et 3.12, nous les avons regroupées dans le tableau 3.2 :

Grandeur mesurée	Photons non marqués	Photons marqués	Photons marqués
		(N=1)	(N=20)
S	$3.89 \ 10^4$	$2.60 \ 10^3$	$2.77 \ 10^3$
s_0	202.18	110.50	123.03
σ_s	$3.93 \ 10^4$	$2.62 \ 10^3$	$1.54 \ 10^3$
σ_{s0}	205.98	111.17	38.29
S	191.59	22.56	21.50
RSB	189.04	23.40	72.30

Table 3.2 – Valeurs du contraste et du rapport signal à bruit extraites des figures 3.11 et 3.12.

Evolution du rapport signal à bruit Les courbes représentées sur la figure 3.13(a) montre l'évolution du contraste (en vert) et du rapport signal à bruit (en bleu) en fonction du nombre d'impulsions considéré. La valeur du contraste est constante, ce qui est normal et montre que la valeur mesurée sur une seule impulsion est correcte. Le rapport signal à bruit augmente avec le nombre d'impulsions mais ne suit pas une évolution en racine carrée (représentée en rouge). Cela montre encore une fois que nous ne sommes pas limités par le bruit *shot*.

La figure 3.13(b) montre cette fois l'évolution des mêmes grandeurs en fonction de la taille de la zone considérée pour le moyennage de *s*. Nous remarquons qu'entre 100 pixels et 25 000, cela n'a aucune incidence sur les valeurs mesurées et qu'elles restent plus ou moins constantes (les variations restent inférieures à 5%). En dessous de 100 pixels, les valeurs obtenues sont complètement aléatoires et la mesure n'a plus aucun sens (le nombre de valeurs n'est pas assez grand pour que la description statistique du *speckle* soit significative).



Figure 3.13 – Évolution du rapport signal à bruit et du contraste, en fonction du nombre d'impulsions N (a) et en fonction du nombre de pixels (b).

3.4.2 Profils transverses acousto-optiques

Afin de réaliser un profil acousto-optique, il suffit de mesurer le contraste S pour chaque position du transducteur. Le profil obtenu à partir des mêmes données pour N=20 est représenté sur la figure 3.14. Le transducteur est déplacé le long de l'axe x avec un pas de 0.5 mm. Ce profil montre une répartition lumineuse non uniforme dans l'échantillon. Cette répartition en "cône de diffusion" est bien ajustée par une gaussienne.



Figure 3.14 – Profil transverse acousto-optique à travers un gel d'épaisseur optique 400 ($\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$ et L = 4).

Nous réalisons la même expérience avec un échantillon possédant une inclusion absorbante. Ne disposant pas de résolution axiale pour le moment, nous avons choisi un objet à une dimension (c'est à dire une inclusion sur tout l'axe y). L'échantillon fait 4 cm d'épaisseur avec $\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$. L'inclusion fait 10 mm de diamètre. Le profil a été réalisé avec 10 impulsions laser pour chaque position, le pas étant égal à 0.5 mm. Le profil obtenu est présenté sur la figure 3.15(b). L'objet est bien mis en évidence mais son contraste est de 60%, ce qui est assez faible compte tenu de la forme et de la taille de l'objet. Cela peut provenir d'un mauvais alignement de l'émetteur acoustique selon l'axe z. Dans ce cas, une partie des photons marqués peut provenir d'une zone externe à l'objet absorbant. Par ailleurs, cela peut aussi être dû à des instabilités du laser. La figure 3.15(c) montre un profil obtenu avec une inclusion de 7 mm et prouve le caractère aléatoire des mesures dû aux dysfonctionnements du laser.

L'acquisition de ces profils (figure 3.15), a été réalisée par Emilie Benoit qui prend la suite de ces travaux dans le but d'améliorer l'expérience et d'essayer de comprendre les origines des problèmes rencontrés.



Figure 3.15 – Profil transverse acousto-optique à travers un gel d'épaisseur optique 400 ($\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$ et L = 4). (b) inclusion selon l'axe y, de 10 mm de diamètre (N=10). (c) inclusion selon l'axe y, de 7 mm de diamètre (N=10).

3.4.3 Perspectives

Dans la configuration utilisée, la résolution transverse (x) est donnée par l'extension spatiale de la zone de focalisation acoustique ($\sim 2 mm$). Afin d'obtenir une résolution selon l'axe y, il faut pouvoir discriminer le signal acousto-optique le long de la colonne ultrasonore.

Dans ce but, nous avons tenté d'utiliser des impulsions ultrasonores brèves mais cette tentative s'est avérée infructueuse. En effet, ces impulsions font une largeur de quelques micro-secondes du même ordre de grandeur que les micro-impulsions constituant l'impulsion déclenchée du laser (figure 3.6). Il existe donc un taux d'échec assez élevé dans la mesure où malgré la synchronisation, l'impulsion ultrasonore peut aléatoirement tomber sur des micro-impulsions lumineuses d'intensités très différentes.

L'objectif est, pour la suite, d'appliquer des modulations de phases aléatoires (voir la section résolution axiale du chapitre 2) afin d'apporter une résolution le long de l'axe y. Cela a déjà été couplé à l'holographie numérique hors-axe avec un laser continu (expériences en cours).

En parallèle à cela, il faut pouvoir identifier les raisons à l'origine des instabilités du laser Alexandrite afin de pouvoir y remédier.

Enfin, afin d'améliorer le rapport signal à bruit, il est envisageable de travailler à une cadence plus élevée pour pouvoir réaliser une interférométrie 4-phases. L'acquisition d'une caméra plus rapide nous permet d'augmenter la cadence sans réduire la surface active.

3.5 Conclusion

L'holographie numérique hétérodyne hors-axe permet de discriminer de façon efficace le signal utile des bruits expérimentaux. Cela est possible grâce à un filtrage spatial des composantes hétérodynes du signal utile.

Grâce à la possibilité d'accorder facilement la fréquence du faisceau référence grâce aux modulateurs acousto-optiques, cette technique se trouve particulièrement adaptée à l'imagerie acousto-optique. En décalant l'onde de référence de la fréquence ultrasonore, nous ne sélectionnons que la contribution des photons marqués. Le filtrage temporel par hétérodynage permet par ailleurs de supprimer la contribution homodyne des photons non-marqués. Cela permet donc de détecter des signaux de puissance très faible avec un très bon rapport signal à bruit.

L'application de cette méthode, couplée à l'utilisation d'un laser à longues impulsions, permet d'augmenter la sensibilité de l'imagerie acousto-optique et nous a permis de détecter des photons marqués avec un bon rapport signal à bruit à travers un gel de plusieurs centimètres. Le temps de mesure est par ailleurs inférieur au temps de décorrélation du champ objet dans un milieu biologique. Cependant, les instabilités dues au fonctionnement déclenché du laser ajoutent de façon aléatoire du bruit aux mesures.

Une première perspective est d'implémenter une méthode de résolution axiale afin de pouvoir réaliser des cartographies acousto-optiques en deux dimensions. Il serait intéressant de comparer ensuite cette méthode de détection à l'holographie photoréfractive présentée dans la troisième et dernière partie de cette thèse.

Troisième partie

Imagerie acousto-optique par holographie photoréfractive

Chapitre 4

Transmission de signaux par mélange à deux ondes optique

Table des matières

4.1	Mécani	canismes de l'effet photoréfractif		
	4.1.1	Principe et caractéristiques	87	
	4.1.2	Modèle de transport de bandes $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	89	
	4.1.3	Réseau d'indice de réfraction	89	
4.2	Hologr	Holographie photoréfractive		
	4.2.1	Le mélange à deux ondes optique	92	
	4.2.2	Transmission d'une modulation de phase par un cristal photo-		
		réfractif	95	
	4.2.3	Bruit dans les amplificateurs photoré fractifs $\ . \ . \ . \ .$	96	
4.3	Caract	Caractérisation de cristaux à 800 nm		
	4.3.1	Matériaux photoréfractifs pour l'imagerie acousto-optique	98	
	4.3.2	Germanate de bismuth dopé cuivre (BGO :Cu)	100	
	4.3.3	Tellurure de zinc dopé vanadium et manganèse (ZnTe :V,Mn)	102	
	4.3.4	Hypothiodiphosphate d'étain dopé tellure (SPS :Te)	103	
4.4	Conclu	sion	108	

a détection des photons marqués dans les milieux diffusants requiert une technique à la fois sélective et insensible au *speckle*. Dans le groupe des détections cohérentes, nous avons présenté dans le chapitre précédent une détection s'appuyant sur l'holographie hétérodyne hors-axe, où les faisceaux référence et objet étaient combinés à la surface d'une caméra. Parallèlement à cette technique, il est possible de faire une détection avec un mono-détecteur de type photodiode. L'objectif est de créer un interféromètre, avec un faisceau référence à la fréquence des photons marqués et dont le front d'onde serait adapté au front d'onde tavelé du faisceau objet provenant du milieu diffusant. Il faut donc combiner les deux faisceaux dans un milieu actif permettant d'avoir au niveau de la détection le même front d'onde pour la référence et l'objet afin d'en faire une addition cohérente. Ce milieu contiendrait un hologramme inscrit par les deux faisceaux; et en le relisant, la référence verrait la structure de son front d'onde s'adapter à celle du faisceau objet comme le montre la figure 4.1. Les faisceaux pourraient alors interférer de façon constructive sur le détecteur. Dans ce cas, l'utilisation d'un mono-détecteur ne serait plus limitée par la cohérence spatiale d'un grain de *speckle* et regagnerait de son intérêt. Ce milieu holographique doit répondre à différentes conditions : il doit être auto-développant et l'hologramme doit y être réversible. Les cristaux phototréfractifs constituent de tels milieux holographiques dynamiques.



Figure 4.1 – Détection interféromètrique des photons marqués (détecteur unique).

Nous allons, dans ce chapitre, décrire l'holographie photoréfractive dans sa généralité avant de voir, dans le chapitre suivant, comment elle peut s'appliquer à l'imagerie acoustooptique. Nous mettrons d'abord en évidence les mécanismes qui entrent en jeu dans l'effet photoréfractif avant de nous intéresser au mélange à deux ondes optique. En effet, le mélange à deux ondes permet d'amplifier de faibles signaux, d'adapter dynamiquement un front d'onde et de transmettre des signaux modulés dans le temps. Ces fonctions justifient l'utilisation de ce procédé pour la détection des photons marqués. Nous mettrons ainsi en évidence les différents paramètres qui interviennent dans la diffraction par un réseau d'indice gravé dans un matériau photoréfractif. Dans une dernière partie, nous allons décrire les propriétés requises pour le matériau dans le cadre de notre application qui impose notamment une longueur d'onde autour de 800 nm. Nous allons ensuite caractériser quelques cristaux à cette longueur d'onde afin de trouver le matériau adéquat.

4.1 Mécanismes de l'effet photoréfractif

L'effet photoréfractif a été découvert expérimentalement par des chercheurs des laboratoires Bell en 1966 [114]. Ils observent qu'un faisceau laser visible ou ultraviolet focalisé dans un cristal de Niobate de Lithium $(LiNbO_3)$ en modifiait l'indice de réfraction. Il remarquent alors une distorsion du front d'onde en sortie et le phénomène est d'abord vu comme un défaut appelé "dommage optique". Par la suite, des études ont montré que cet effet pouvait être mis à profit pour l'holographie ou la réalisation de mémoires optiques. En effet, une variation d'indice peut être vue comme une variation de chemin optique et ouvre donc la possibilité d'inscrire des modifications de phase comme celles qui définissent un hologramme. La réversibilité du phénomène a d'abord limité son utilisation comme mémoire optique avant de permettre de développer des fonctions pour le traitement en temps réel de l'information (amplification de signaux, d'images, conjugaison de phase). Pour pouvoir présenter un effet photoréfractif, un matériau doit combiner deux propriétés : être photoconducteur et électro-optique. Tous les mécanismes entrant en jeu dans cet effet sont décrits dans différents ouvrages comme celui de P. Yeh [115]. P. Günter et J.P. Huignard ont réalisé une revue en trois tomes des différents matériaux photoréfractifs et leurs applications [116].

4.1.1 Principe et caractéristiques

Un matériau photoréfractif est à la fois photo-conducteur et électro-optique. Cet effet a été observé dans une multitude de matériaux (férroélectriques, sillénites, semi-conducteurs massifs ou à puits quantiques, polymères, cristaux liquides...). La figure 4.2 permet de décrire les différentes étapes qui conduisent à la formation d'un réseau d'indice de réfraction à partir d'une illumination sinusoïdale.

Phénomène de photoconduction La figure d'interférence entre deux faisceaux lasers (onde signal et onde de référence) se traduit par une illumination non uniforme (sinusoïdale) du matériau. L'absorption d'un photon libère une charge électrique (électron ou trou). Sous l'effet de l'agitation thermique ou d'un champ électrique appliqué, cette charge se déplace dans le matériau avant de se recombiner dans un piège. Ainsi, la redistribution des charges engendrée par l'illumination non uniforme crée un champ électrique dit de charge d'espace (équation de Poisson).

Effet électro-optique Le champ de charge d'espace créé précédemment va à son tour engendrer une modulation spatiale de l'indice de réfraction Δn par effet électro-optique



Figure 4.2 – Mécanismes de l'effet photoréfractif (L'axe x représente la coordonnée d'espace perpendiculaire aux franges). (a) Figure d'illumination non uniforme issue de l'interférence de deux ondes, (b) Distribution des porteurs de charges par photoconduction, (c) Modulation du champ de charge d'espace par migration et recombinaison des charges, (d) Création d'un réseau d'indice de réfraction par effet électro-optique.

(effet Pockels). L'information portée par l'onde signal sous forme d'une variation de phase ou d'amplitude est alors encodée en variation de phase ou d'amplitude du réseau d'indice.

Quelques caractéristiques L'effet photoréfractif est sensible à l'énergie et non à la puissance, on pourra donc induire des modulations d'indice avec des faisceaux impulsionnels puissants mais aussi avec des faisceaux continus de faible puissance. Il n'y a pas de blanchiment de l'effet photoréfractif dans la mesure où l'équilibre est atteint lorsque le champ de charge d'espace créé s'oppose à tout autre déplacement de charges.

L'effet photoréfractif présente une certaine **inertie** qui dépend du matériau. Le temps nécessaire pour construire le champ de charge d'espace va dépendre de l'efficacité du mécanisme de transfert de charge et de la rapidité avec laquelle est délivrée l'énergie optique. La création de la variation d'indice dépend du temps nécessaire aux charges libérées pour se déplacer.

Ce phénomène est **réversible**. Toute variation locale d'indice est effacée par un éclairement uniforme du cristal. Il possède aussi un effet mémoire car la variation peut être figée dans le noir. L'effet peut ainsi persister plusieurs mois selon la conductivité du matériau [117].

L'effet photoréfractif est **non résonnant** dans la mesure où les matériaux sont sensibles sur une large plage de longueurs d'onde (visible pour les isolants à grande largeur de bande interdite, proche infrarouge pour les semi-conducteurs). La sensibilité décroît aux grandes longueurs d'onde.

Il s'agit d'un effet **non local**. Comme le montre la figure 4.2, la distribution du champ de charge d'espace ne coïncide pas spatialement avec l'illumination initiale et est déphasée de $\pi/2$. Cela conduira à un transfert cohérent d'énergie entre les ondes qui se propagent dans le cristal. Dans certains cas, l'effet peut être re-localisé en appliquant un champ électrique externe. La migration des charges est alors due à l'entraînement sous champ. Le déphasage spatial entre le réseau d'indice et l'illumination non-uniforme peut alors être contrôlé.

La lecture des informations stockées par le matériau à travers la modulation d'indice doit se faire avant l'effacement du réseau avec la même longueur d'onde ou à une longueur d'onde différente. Cette lecture est non destructive, c'est-à-dire sans effacement, si la longueur d'onde utilisée est supérieure à celle utilisée pour l'enregistrement.

4.1.2 Modèle de transport de bandes

Deux modèles ont été développés pour rendre compte de la variation d'indice optiquement induite dans les matériaux électro-optiques. Ils diffèrent par le mécanisme responsable du transport de charge mais ils considèrent tous les deux que les charges électriques sont piégées dans des sites ou niveaux d'énergie. La présence de ces niveaux peut provenir d'un dopage du matériau par des impuretés ou des défauts de la maille cristalline. Le premier modèle est celui du transport par saut de la charge d'un site à l'autre, la probabilité de saut dépendant de la différence de potentiel entre les sites. Ce modèle a été développé par Hellwarth et al. en 1980 [118]. Bien qu'il décrive parfaitement l'effet photoréfractif, il a été délaissé pour un modèle plus simple, le modèle de *transport par bande* initié par Kukhtarev et al. [119].

Ce modèle s'inspire de la physique des semi-conducteurs et considère que le transport de charge dans des matériaux cristallins s'effectue par l'intermédiaire de porteurs libres se déplaçant dans les bandes de conduction et de valence. Sous illumination, des centres issus des impuretés et situés dans la bande interdite du matériau (niveau profond) sont excités (voir figure 4.3). Ces centres ou pièges existent sous au moins deux degrés de valence, l'un est neutre par rapport au réseau cristallin et l'autre ionisé (positivement ou négativement). Ces états de valence sont susceptibles de donner des niveaux d'énergie localisés dans la bande interdite du matériau.

Lors de l'absorption d'un photon, ces centres libèrent des électrons ou des trous qui diffusent respectivement dans la bande de conduction ou de valence par agitation thermique. Cette diffusion peut éventuellement se faire sous champ si une tension électrique est appliquée au cristal. Les porteurs de charges se recombinent ensuite sur les pièges. Il convient de garder à l'esprit que la figure 4.3 est une représentation schématique qui ne rend que partiellement compte de la complexité des processus de transfert de charge.

4.1.3 Réseau d'indice de réfraction

En négligeant l'absorption, nous pouvons exprimer l'intensité de la figure d'interférence entre deux ondes de même polarisation et de vecteurs d'onde $\mathbf{k_s}$ et $\mathbf{k_r}$ qui constitue la


Figure 4.3 – Schéma de bandes utilisé pour décrire l'effet photoréfractif.

figure d'illumination du cristal photoréfractif :

$$I(\mathbf{r}) = I_0(1 + \Re(me^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}})), \tag{4.1}$$

où I_0 est l'intensité moyenne de l'illumination, m la modulation de la figure d'interférence, et $\mathbf{k} = \mathbf{k_s} - \mathbf{k_r}$ le vecteur d'onde du réseau, lié à son pas par $\Lambda = 2\pi/k = \lambda/(2sin\theta)$ (θ étant le demi-angle entre les deux faisceaux). Cette illumination crée un champ de charge d'espace E^{SC} modulé. Dans le cas d'un grand rapport d'intensité entre les faisceaux incidents (situation la plus courante), la modulation est faible ($m \ll 1$) et le modèle de transport de bande peut être linéarisé. Dans ces conditions, le champ de charge d'espace E^{SC} d'amplitude E_1 est également sinusoïdal et s'écrit, dans le cas où E_0 est un champ électrique externe éventuellement appliqué, comme :

$$E^{SC}(\mathbf{r}) = E_0 + \Re(E_1 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}})) \tag{4.2}$$

En l'absence de champ extérieur appliqué $(E_0 = 0)$ (régime de diffusion), l'amplitude du champ de charge d'espace peut s'écrire en fonction des différents paramètres :

$$E_1 = m \frac{ik \frac{k_b T}{q}}{1 + \frac{k^2}{k_D^2}},$$
(4.3)

où k_bT est le produit constante de Boltzmann x température, q la charge de l'électron et k_D est le nombre d'onde de Debye¹.

^{1.} k_D est le vecteur d'onde associé à la longueur d'écran de Debye $\Lambda_D = 2\pi/k_D$. En électrodynamique des plasmas, cette longueur fait référence à la longueur sur laquelle les électrons écrantent le champ

Le champ de charge d'espace E^{SC} va conduire par effet électro-optique à la création d'un réseau d'indice de réfraction tel que :

$$\eta_{ij}(E) = \eta_{ij}(0) + r_{ijk}E_k^{SC} + s_{ijk}E_k^{SC}E_l^{SC}$$
(4.4)

où $\eta_{ij}(E)$ et $\eta_{ij}(0)$ sont les composantes du tenseur imperméabilité diélectrique $[\eta]$ après et avant perturbation par le champ. $[\eta]$ est directement relié à l'ellipsoïde des indices et est le tenseur inverse du tenseur de permittivité diélectrique relative $[\epsilon_r]$. E_k^{SC} et E_l^{SC} sont la $k^{i \grave{e}me}$ et $l^{i \grave{e}me}$ composantes du champ de charge d'espace. r_{ijk} et s_{ijk} sont les coefficients caractérisant respectivement l'effet électro-optique linéaire (effet Pockels) et quadratique (effet Kerr). Dans les cristaux photoréfractifs non centro-symétriques, l'effet Kerr est négligeable et la modulation d'indice vient de l'effet linéaire.

De manière générale nous pouvons exprimer la modification de l'indice de réfraction par effet Pockels comme :

$$\Delta(\frac{1}{n^2}) = r_{ijk} E_k^{SC} \tag{4.5}$$

Temps caractéristiques L'effet photoréfractif est défini par le temps de réponse du matériau τ_{PR} . Ce temps dépend de plusieurs constantes de temps caractéristiques :

- la constante de temps de relaxation diélectrique τ_{di} (proportionnelle à $1/I_0$),
- la constante de temps de diffusion τ_d (temps mis par un électron pour migrer de $\Lambda/2\pi$ sous l'effet de l'agitation thermique et en l'absence de tout champ électrique),
- la constante de temps d'entraı̂nement dans le champ τ_e si celui-ci est appliqué,
- la constante de temps de recombinaison des électrons τ_r .

Le temps caractéristique général τ_{PR} dépend alors du matériau et est inversement proportionnel à l'intensité moyenne I_0 . Pour un même matériau, il variera aussi avec la longueur d'onde et le pas du réseau Λ .

Cinétique du champ de charge d'espace En se plaçant en régime quasi-continu [120] qui correspond à une illumination faible (temps de réponse τ_{PR} long devant le temps de recombinaison des charges), E_1 obéit à l'équation différentielle suivante :

$$\frac{\partial E_1}{\partial t} + \frac{E_1}{\tau_{PR}} = m \frac{E_{sc}}{\tau_{PR}} \tag{4.6}$$

où E_{sc} est une constante complexe caractérisant la champ de charge d'espace à l'état stationnaire tel que : $E_1 = \langle m \rangle_{\tau_{PR}} E_{sc}$.

4.2 Holographie photoréfractive

Nous avons vu que l'effet photoréfractif permettait d'inscrire un réseau d'indice de réfraction dans un matériau à partir de l'interférence de deux ondes optiques. Nous allons électrostatique. Autrement dit, c'est la longueur au-delà de laquelle une séparation significative des charges peut avoir lieu. $k_D^2 = \frac{q^2 N_A}{\epsilon k_b T}$, où N_A est la densité d'accepteur ou d'impuretés positivement chargées capables de capturer un électron et ϵ est la permittivité diélectrique.

voir qu'il est possible de diffracter en temps réel une onde sur ce réseau d'indice. Cela permet de faire de l'holographie dynamique grâce au mélange à deux ondes. L'objectif sera alors d'appliquer ce procédé à la détection des photons marqués.

4.2.1 Le mélange à deux ondes optique

Considérons deux faisceaux d'intensité I_S et I_R , appelés respectivement faisceau sonde et faisceau pompe tels que $\mathbf{k} = \mathbf{k_s} - \mathbf{k_r}$. Ces deux faisceaux inscrivent un réseau d'indice de vecteur d'onde \mathbf{k} dans le volume du cristal. Dans l'approximation du régime quasicontinu, la modulation inscrite est faible et donc I_S est très inférieur à I_R . Nous souhaitons maintenant étudier la diffraction d'un troisième faisceau par ce réseau.



Figure 4.4 – Mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif : un réseau d'indice (hologramme de phase) est gravé dans le cristal suite aux interférences entre la pompe et la sonde. Dans le cas où le faisceau objet (sonde) contient des informations, celles-ci vont être enregistrées dans l'hologramme. La référence diffractée par ce réseau copie le front d'onde objet. Il y a à la fois adaptation de front d'onde et transfert d'énergie de la pompe vers la sonde ($\psi = +\pi/2$ en régime diffusif).

Accord de Bragg Le réseau d'indice inscrit dans le cristal est un réseau épais. Pour avoir un maximum de diffraction, le faisceau de lecture $(\mathbf{k_i})$ doit satisfaire à la condition d'accord de Bragg. Seul le premier ordre de diffraction existe. La conservation des vecteurs d'onde donne : $\mathbf{k_d} = \mathbf{k_i} + \mathbf{pk}$ où $\mathbf{k_d}$ est le vecteur d'onde diffracté et p l'ordre de diffraction. Dans notre cas, les faisceaux pompe et sonde lisent le réseau en même temps qu'ils l'inscrivent. La pompe est diffractée dans l'ordre 1 (dans le sens du vecteur réseau), la sonde dans l'ordre -1 (sans le sens opposé au vecteur réseau). La condition de Bragg permet alors d'exprimer les vecteurs d'onde diffractés pour la pompe et la sonde ($\mathbf{k_d^R}$ et $\mathbf{k_d^S}$) :

$$\mathbf{k_d^R} = \mathbf{k_r} + \mathbf{k} \tag{4.7}$$

$$\mathbf{k_d^S} = \mathbf{k_s} - \mathbf{k} \tag{4.8}$$

Diffraction par un réseau d'indice La pompe est diffractée dans la direction de la onde $\mathbf{k}_{\mathbf{d}}^{\mathbf{R}} = \mathbf{k}_{\mathbf{s}}$ et vice-versa comme le montre la figure 4.4. Les ondes diffractées par un

réseau d'indice prennent toutes les deux une avance de phase de $\pi/2$ par rapport aux ondes transmises². Il s'ajoute un autre déphasage $\psi = \pm \pi/2$ (si aucun champ n'est appliqué) dû à l'effet photoréfractif. La phase du faisceau objet diffracté vaut alors $-\psi - \pi/2$, celle du faisceau pompe diffracté vaut $+\psi - \pi/2$. Suivant le type de porteurs de charge et de la configuration géométrique du cristal, ce déphasage peut être positif ou négatif. Si $\psi = +\pi/2$, le déphasage du faisceau pompe diffracté est égal à 0, il y a interférences constructives avec le faisceau sonde transmis (figure 4.4). Le faisceau sonde transmis est amplifié. A l'inverse, si le déphasage entre le faisceau pompe transmis et sonde diffracté est de $-\pi$, il y a interférences destructives.

Ce processus permet de transférer de façon cohérente l'énergie d'une onde dans la direction de l'autre. Le sens du transfert (amplification) ne dépend que du sens du décalage du réseau d'indice par rapport à la figure d'illumination (signe de ψ). Il ne dépend pas des intensités relatives des faisceaux.

Un réseau d'indice photoréfractif peut avoir une structure très complexe. La modulation d'indice est non uniforme et peut dépendre non seulement de la coordonnée suivant le vecteur d'onde du réseau mais peut aussi varier suivant les directions orthogonales. Plusieurs approches ont été développées pour calculer l'efficacité de diffraction d'un tel réseau : l'approche modale (calcul direct du couplage entre ondes optiques extérieures et modes propres du milieu perturbé, approche exacte mais complexe), la méthode de propagation (résolution numérique de l'équation d'onde scalaire) et l'approche des ondes couplées.

Approche des ondes couplées Cette méthode permet de mieux visualiser les phénomènes de diffraction. C'est une approche par perturbation dans laquelle on suppose que les ondes se propageant dans le milieu sont, en première approximation, égales aux ondes propres du milieu en l'absence de réseau. Le réseau est traité comme une perturbation qui couple les ondes entre elles. Nous allons utiliser ce formalisme pour calculer l'efficacité de diffraction d'un réseau d'indice de Bragg en transmission.

Considérons un cristal de coefficient d'absorption α et d'épaisseur L selon l'axe z. Les amplitudes des champs correspondant aux ondes pompe et sonde sont notées E_R et E_S . Dans le cas d'une incidence symétrique des deux faisceaux et en négligeant la biréfringence, les équations couplées relatives à ces faisceaux s'écrivent en régime stationnaire [115] :

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} = \frac{\pi n_0^3 r_{eff}}{2i\lambda \cos\theta} E_{sc} \langle m \rangle_{\tau_{PR}} E_R - \frac{\alpha}{2} E_S \tag{4.9}$$

$$\frac{\partial E_R}{\partial z} = \frac{\pi n_0^3 r_{eff}}{2i\lambda \cos\theta} E_{sc}^* \langle m \rangle_{\tau_{PR}} E_S - \frac{\alpha}{2} E_R \tag{4.10}$$

où n_0 est l'indice de réfraction non modulé du cristal, m est la modulation de la figure d'interférence, E_{sc} est une constante complexe caractérisant la champ de charge d'espace à l'état stationnaire, et r_{eff} le coefficient électro-optique effectif qui traduit la variation de permittivité vue par les ondes. Il dépend de l'orientation du cristal et de la polarisation des faisceaux comme le montre l'expression 4.11, où $\hat{\mathbf{k}}$ est le vecteur réseau unitaire, $\mathbf{u_R}$

^{2.} LA transmission d'un réseau de phase peut s'écrire $t(x, y) = e^{i\Phi(x,y)} \simeq 1 + i\Phi(x, y)$, pour une faible modulation. Le faisceau diffracté est alors déphasé de $\pi/2$.

et $\mathbf{u}_{\mathbf{S}}$ les polarisations des faisceaux pompe et sonde, et $[\epsilon_r]$ le tenseur de permittivité diélectrique relative :

$$r_{eff} = \mathbf{u}_{\mathbf{R}}[\epsilon_r][[r]\mathbf{\hat{k}}][\epsilon_r]\mathbf{u}_{\mathbf{S}}$$
(4.11)

Gain photoréfractif A partir des équations 4.9 et 4.10, nous pouvons définir un coefficient de couplage γ tel que :

$$\gamma = \frac{\pi n_0^3 r_{eff}}{2i\lambda \cos\theta} E_{sc} \tag{4.12}$$

Ce coefficient complexe peut s'écrire sous la forme $\gamma = \gamma' + i\gamma''$. Les équations couplées 4.9 et 4.10 peuvent être écrites pour l'intensité et la phase et dans ce cas γ' représenterait le coefficient de couplage pour l'intensité (diffraction sur la partie du réseau d'indice déphasée de $\pi/2$ par rapport au réseau d'illumination) et γ'' celui pour la phase (diffraction sur la partie en phase avec le réseau d'illumination). C'est le réseau en quadrature de phase qui est à l'origine du transfert d'énergie entre les deux ondes. En régime purement diffusif (aucun champ n'est appliqué), E_{sc} est imaginaire pur (4.3) et donc γ est réel. On définit alors le paramètre $\Gamma = 2\gamma'$. Γ est le gain photoréfractif et s'exprime fréquemment en cm^{-1} :

$$\Gamma = 2\Re \left(\frac{\pi n_0^3 r_{eff}}{2i\lambda cos\theta} E_{sc} \right) \tag{4.13}$$

Intensité transmise Si nous appelons $q = I_S(0)/I_R(0)$ le rapport des intensités de sonde et pompe à l'entrée du cristal. Nous pouvons alors exprimer les intensités en fonction de z, d'après P. Yeh [115] :

$$I_S(z) = I_S(0) \frac{1 + q^{-1}}{1 + q^{-1} e^{-\Gamma z}} e^{-\alpha z}$$
(4.14)

$$I_R(z) = I_R(0) \frac{1+q}{1+q e^{\Gamma z}} e^{-\alpha z}$$
(4.15)

Le paramètre important devient alors le facteur d'amplification, égal au rapport entre l'intensité sonde transmise et incidente. Dans le cadre de l'approximation de non-déplétion de la pompe, q est très petit devant 1 et les équations 4.14 et 4.15 deviennent en z = L:

$$I_R(L) = I_R(0)e^{-\alpha L}$$
 et $I_S(L) = I_S(0)e^{\Gamma L}e^{-\alpha L}$ (4.16)

Nous remarquons que le faisceau pompe est seulement affecté par l'absorption du cristal alors que le faisceau sonde est amplifié si $\alpha < \Gamma$, il y a alors transfert d'énergie. Il existe pour chaque cristal, une longueur d'interaction optimale pour laquelle on atteint un maximum d'amplification, au-delà l'absorption prend le dessus. Lors de nos expériences, nous essayerons d'optimiser le facteur $e^{\Gamma L}$ car il dépend à la fois des propriétés intrinsèques du cristal (son coefficient électro-optique...) mais aussi de la configuration du mélange à deux ondes : angle entre les faisceaux, rapport des puissances pompe et sonde, longueur d'onde, polarisation, symétrie des faisceaux par rapport à la face d'entrée... Il faut donc trouver une configuration optimale compatible avec l'application voulue.

Dans la suite, nous allons voir comment il est possible de mettre à profit le mélange à deux ondes pour la transmission de signaux modulés et l'adaptation de front d'onde.

4.2.2 Transmission d'une modulation de phase par un cristal photoréfractif

Dans le cas d'une détection interférométrique de photons marqués (figure 4.1), le faisceau objet est tavelé et de faible intensité. L'intensité de la figure de *speckle* est par ailleurs modulée par les ultrasons. C'est ce faisceau qui porte la modulation de phase $\varphi(t)$ à détecter. Ce faisceau interfère dans le cristal avec un faisceau pompe de puissance plus élevée (nous sommes donc dans l'approximation de non-déplétion de la pompe). Ce dernier faisceau possède un front d'onde plan, les deux faisceaux sont incohérents spatialement (figure 4.4). Les deux faisceaux inscrivent un hologramme, sur lequel ils vont diffracter comme nous l'avons vu précédemment.

Le cristal possède un temps de réponse τ_{PR} qui est grand devant les variations de phase induites par les ultrasons (fréquences de l'ordre du MHz). La figure d'illumination vibre rapidement, le réseau inscrit ne peut donc pas suivre les fluctuations de la phase $\varphi(t)$ et en enregistre une valeur moyenne dans le temps. Le faisceau référence est alors diffracté sur un réseau d'indice fixe.

Adaptation de front d'onde Considérons un champ signal incident modulé en phase tel que : $E_S(x, y, 0, t) = E_S(x, y, 0)e^{i\varphi(t)}$. L'évolution du faisceau signal est régie par l'équation 4.9 qui peut se réécrire :

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} = \frac{\gamma}{E_{sc}} E_1 E_R - \frac{\alpha}{2} E_S \tag{4.17}$$

La résolution de cette équation différentielle (voir Annexe B et [121]) dans le cas d'une modulation de phase faible et en considérant que le gain a atteint sa valeur de saturation, donne l'expression suivante pour le champ signal transmis :

$$E_S(x, y, L, t) = e^{-\alpha L/2} \Big[E_S(x, y, 0) e^{i\varphi(t)} + (e^{\gamma L} - 1) E_S(x, y, 0) \Big]$$
(4.18)

Le premier terme de l'expression 4.18 correspond au signal transmis après absorption. Le second terme correspond à la référence diffractée. Ce terme ne porte pas la modulation de phase $\varphi(t)$ mais il fait apparaître $E_S(x, y, 0)$. Il a donc la même structure spatiale que le faisceau objet incident sur le cristal. Ceci traduit donc l'adaptation du front d'onde de la référence diffractée au front d'onde objet. On appelle $\eta_d = e^{\gamma L} - 1$, l'efficacité de diffraction. A la sortie du cristal, il y a alors des interférences en teinte plate entre les deux ondes (addition cohérente).

Démodulation du signal En pratique, nous intégrons l'intensité sur une photodiode. Cette intensité s'exprime, si on considère que $\gamma = \gamma'$ (aucun champ appliqué), comme :

$$I_S(x, y, L, t) = e^{-\alpha L} I_S(x, y, 0) \Big[1 + (e^{\gamma' L} - 1)^2 + 2(e^{\gamma' L} - 1) \cos(\varphi(t)) \Big]$$
(4.19)

Dans le cas d'une faible modulation de phase $\varphi(t) \ll 1$, elle s'exprime comme :

$$I_S(x, y, L, t) \simeq e^{-\alpha L} I_S(x, y, 0) \Big[e^{2\gamma' L} + (e^{\gamma' L} - 1)\varphi^2(t) \Big]$$
(4.20)

L'intensité détectée dépend donc directement de la phase de l'onde objet. Cependant, la détection est ici non-linéaire. Une façon de faire une détection linéaire de la phase est d'appliquer un champ externe tel que γ'' est non-nul (le champ de charge d'espace n'est pas imaginaire pur). Les phases de l'onde objet transmise et de la référence diffractée sont alors mises en quadrature.

4.2.3 Bruit dans les amplificateurs photoréfractifs

Le mélange à deux ondes apporte de nombreuses solutions dans différents domaines mais cela peut s'accompagner de certaines difficultés de mise en œuvre qui dépendent de l'application visée. Dans notre cas, l'objectif est de détecter des signaux très faibles modulés dans le temps. Nous serons alors très sensibles au bruit. La principale origine du bruit, en mélange à deux ondes, est la pompe qui a une intensité beaucoup plus élevée que la sonde. Cela peut non seulement saturer notre détecteur mais aussi être à l'origine de certains phénomènes qui peuvent être aussi limitants. Nous allons voir dans le chapitre suivant que nous ne serons pas insensibles à ces sources de bruit.

Coma photoréfractive Lorsqu'un faisceau laser passe à travers un cristal photoréfractif, il est souvent diffusé. Dans un cristal où le facteur d'amplification est élevé (fort gain ou grande épaisseur), cette lumière diffusée (provenant en général du faisceau pompe, plus intense) est amplifiée par transfert d'énergie. Ce phénomène s'appelle coma photoréfractive ou beam fanning [122, 123]. La figure 4.5 montre ce que nous avons observé sur un écran placé derrière un cristal de SPS : Te non traité anti-reflet dopé à 1.5% et de 4.4 mm d'épaisseur. En général, l'intensité du faisceau transmis est atténuée au profit du beam fanning. De plus, si le cristal n'est pas traité anti-reflet, il y a augmentation du bruit, à cause des possibles oscillations qui peuvent se former entre les faces d'entrée et de sortie du cristal. En mélange à deux ondes, cette coma est décalée par rapport au faisceau pompe et se trouve superposée au faisceau sonde transmis, ce qui est assez problématique car il est alors impossible de la supprimer du signal détecté. Elle peut être à l'origine de la saturation du détecteur. Cette coma peut cependant être utile dans certains cas, comme pour déterminer l'orientation inconnue d'un cristal ou être mise à profit pour réaliser des cavités à gain photoréfractif et des miroirs à conjugaison de phase autopompés (où c'est la diffusion de la pompe qui est à l'origine du conjugué de phase par mélange à quatre ondes [124]).

Réflexions parasites Les réflexions parasites peuvent être extrêmement génantes et créer des interférences parasites. Cela va dégrader la qualité de l'image si le cristal est utilisé pour l'amplification d'images. Pour éliminer ces réflexions, il faut traiter l'échan-



Figure 4.5 – Observation du phénomène de beam fanning (coma photoréfractive) et de bruits dus à la pompe à travers un cristal de SPS :Te dopé. Les trois photographies se suivent dans le temps et montrent bien la mise en place de l'effet ainsi que la diminution de l'intensité du faisceau principal.

tillon anti-reflet ou le tailler en prisme pour que ses faces d'entrée et de sortie ne soient pas parallèles. Dans certains cas, des oscillations peuvent apparaître à l'intérieur d'une cavité en anneau formée par les quatre faces de l'échantillon perpendiculaires au plan d'incidence. Il suffit que le produit *gain* x *pertes* (transmission des faces, absorption) soit supérieur à 1 pour que les oscillations démarrent. Pour minimiser cet effet, il faut couper le matériau de sorte qu'il n'existe pas de cavité avec des réflexions totales.

Suppression du bruit A ces deux principales source de buit, il peut s'en ajouter d'autres comme des non-linéarités de l'effet photoréfractif. En effet, il peut exister des réseaux harmoniques qui peuvent re-diffracter la lumière incidente et être sources de faisceaux parasites à leur tour amplifiés par mélange à deux ondes surtout si le gain photoréfractif est élevé.

De nombreuses techniques ont été proposées pour éliminer le *beam fanning*, comme l'utilisation d'une pompe ayant deux états de polarisation pour un effacement incohérent de l'hologramme [125], l'utilisation de plusieurs longueurs d'onde pour créer un réseau achromatique [126] ou la rotation du cristal [127]. Les oscillations peuvent être éliminées grâce au traitement anti-reflet ou à la géométrie du cristal. Dans les deux cas, on peut diminuer le bruit en tournant le cristal. Une configuration de diffraction anisotrope, où la référence est diffractée dans une polarisation orthogonale à celle des ondes qui ont inscrit l'hologramme, permet aussi de s'affranchir du bruit de la pompe [128].

Enfin, il est possible de diminuer le bruit en tournant le cristal de 180 degrés par rapport à un axe perpendiculaire au plan d'incidence. Nous sommes alors en configuration de gain négatif, le transfert d'énergie se fait de la sonde vers la pompe.

4.3 Caractérisation de cristaux à 800 nm

Nous avons montré qu'il est possible d'utiliser le mélange à deux ondes pour l'amplification et la transmission d'une modulation. L'adaptation de front d'onde permettrait de faire une détection des photons marqués sur un mono-détecteur et ce, sans perte de contraste due à la faible cohérence spatiale des grains de *speckle*. Les deux paramètres importants, dans notre situation, sont le facteur d'amplification $e^{\Gamma L}$ et le temps de réponse τ_{PR} . Nous allons voir dans la suite quelles sont les propriétés requises pour un matériau photoréfractif dans le but de faire de l'imagerie acousto-optique. L'holographie photoréfractive a d'ailleurs déjà été employée à la détection des photons marqués, nous allons en faire l'état de l'art afin de voir quels sont les différents matériaux proposés. Nous allons ensuite caractériser trois matériaux photoréfractifs à 800 nm dans le but de les utiliser pour l'imagerie acousto-optique dans la fenêtre thérapeutique optique.

4.3.1 Matériaux photoréfractifs pour l'imagerie acousto-optique

Il existe différentes familles de matériaux photoréfractifs massifs : les ferroélectriques, les sillénites, les semi-conducteurs. L'effet photoréfractif a aussi été mis en évidence dans des polymères [129, 130], et des cristaux liquides [131, 132]. Chaque matériau possède ses propres caractéristiques (efficacité de diffraction, temps de réponse, sensibilité spectrale...). Aucun des cristaux n'est optimal pour toutes les applications liées à l'effet photoréfractif. Le dopage de la matrice hôte permet dans certains cas d'améliorer certaines propriétés. Dans "Photorefractive materials and their applications" [116], on pourra trouver un récapitulatif des propriétés des différents matériaux.

Parmi les cristaux inorganiques **ferroélectriques**, nous pouvons citer : $BaTiO_3$, $LiNbO_3$, $KNbO_3$ et $Sn_2P_2S_6$. Ces cristaux présentent de forts coefficients électro-optiques et donc des variations d'indice importantes. Ils sont sensibles essentiellement dans le visible et parfois dans l'infrarouge comme le $Sn_2P_2S_6$. Le *titanate de baryum BaTiO*₃ possède une efficacité de diffraction proche de 1 (gain photoréfractif allant jusqu'à 100 cm⁻¹) mais des temps de réponse de plusieurs secondes, rendant son utilisation pour l'holographie en temps réel impossible.

Les sillénites comme le BSO ($Bi_{12}SiO_{20}$), BTO et BGO sont assez rapides, sensibles dans le visible et parfois dans le proche infrarouge. En revanche, leur coefficient électrooptique est relativement faible (~ 1 cm¹).

Les **semi-conducteurs** de type III-V (GaP, GaAs, InP) ou II-VI (CdS, ZnTe, CdTe) possèdent une largeur de bande plus petite que les matériaux précédents. Ils possèdent donc de meilleures propriétés dans le proche infrarouge. Ils présentent aussi l'avantage d'avoir des temps de réponse extrêmement courts car ils possèdent des mobilités de porteurs 100 à 1000 fois plus élevées que les matériaux précédents. Leur coefficient électro-optique va plutôt être de l'ordre de celui des sillénites.

Les **polymères** organiques sont très prometteurs [129, 130]. Des gains de couplage à deux ondes atteignant 200 cm^{-1} y ont été observés avec des temps de réponse de quelques millisecondes. De plus, ces matériaux ont l'avantage d'être plus faciles à fabriquer. Ils permettent ainsi d'atteindre des grandes surfaces (de la taille d'un écran d'ordinateur), ouvrant de nouveaux champs d'application comme la télé-présence en trois dimensions [133].

Les valves optiques constituées de couches très fines de BSO et de cristaux liquides

montrent des facteurs d'amplification intéressants dans le vert [132].

Propriétés requises

Nous cherchons un matériau photoréfractif pour l'imagerie acousto-optique. L'objectif est de détecter des photons marqués en sortie d'un milieu diffusant qui peut être un milieu vivant. Ces conditions expérimentales imposent les caractéristiques du matériau à utiliser. Nous avons exposé dans la partie 1.2 de cette thèse les problématiques expérimentales liées à la diffusion de la lumière. Nous allons voir ce qu'elles nous imposent dans le choix du matériau photoréfractif.

Fenêtre thérapeutique optique Il va sans dire qu'il faut un matériau le plus efficace possible (gain en mélange à deux ondes élevé), l'objectif étant d'amplifier de très faibles signaux. Le problème n'est pas de trouver un matériau à fort coefficient électro-optique mais d'en trouver un qui présente cette propriété autour de 800 nm. L'effet photoréfractif n'étant pas un effet résonant, sa sensibilité spectrale dépend de la position des niveaux photoexcitables par rapport aux bandes de valence et de conduction. La largeur du gap détermine la plage spectrale utilisable. Ainsi, pour une application dans la fenêtre thérapeutique (proche infrarouge), on penchera plutôt pour l'utilisation des semi-conducteurs même s'ils ne présentent pas les gains les plus élevés.

Décorrélation du *speckle* La décorrélation du *speckle* ainsi que l'objectif de faire de l'imagerie en temps réel nous imposent des temps caractéristiques très courts, de l'ordre de la milliseconde. Il s'agit ici à la fois du temps de réponse et d'effacement du réseau. Le temps de réponse dépend de l'éclairement incident et est gouverné par l'efficacité de la photoexcitation et du processus de transfert des charges.

On parle souvent de sensibilité photoréfractive du matériau qui peut être définie comme la variation d'indice de réfraction du cristal par unité d'énergie incidente et par unité de surface dans les premiers instants du processus. Cette sensibilité peut s'exprimer en fonction des différents paramètres [116] et touche à la fois à la fois aux notions d'efficacité de diffraction et de temps de réponse. Elle dépend entre autres du coefficient électrooptique, de l'absorption et de la longueur d'onde.

Etendue géométrique de détection Ici, la condition est uniquement que la face d'entrée du matériau soit la plus grande possible. Nous n'en ferons pas une condition nécessaire pour le moment. Les polymères photoréfractifs constituent une solution grâce à leur facilité de fabrication et permettraient de collecter plus de lumière. Notre application ne nous permet pas de faire l'impasse ni sur le temps de réponse, ni sur l'efficacité de diffraction avec des conditions supplémentaires sur la longueur d'onde et la taille.

Etat de l'art

L'imagerie acousto-optique par holographie photoréfractive a été développée par quatre groupes de recherche dans le monde. Elle a été proposée en même temps par Murray et al. [75] et Ramaz et al. [76] en 2004. Les premiers ont utilisé un cristal de silicate de bismuth (BSO, $Bi_{12}SiO_{20}$) (5 mm x 5 mm x 7 mm) sous champ à 532 nm; les seconds un cristal d'arséniure de gallium (GaAs) sans champ (1 cm x 1 cm x 1 cm) à 1064 nm.

Les équipes de L.V. Wang [134] en 2007 et J.P. Monchalin [103] en 2008 ont ensuite suivi avec respectivement un cristal de BSO sous champ à 532 nm et un cristal de GaAs sans champ à 1064. La difficulté de trouver le matériau adéquat a obligé certaines de ces équipes à abandonner la détection photoréfractive des photons marqués au profit de techniques incohérentes (Fabry-Perot confocal [83] ou *holeburning* [84]).

La première expérience d'imagerie acousto-optque par holographie photoréfractive montée à l'Institut Langevin et caractérisée par Max Lesaffre dans sa thèse [128] a montré l'efficacité du GaAs, tant par son temps de réponse que par les possibilités qu'il offre en termes pratiques. La possibilité d'utiliser un angle de 90 degrés entre les faisceaux référence et signal offre un avantage considérable en terme d'encombrement et de collection du flux. La diffusion de la pompe sur le détecteur en est aussi diminuée. Sa configuration en diffraction anisotrope permettait aussi de réduire considérablement le bruit de la pompe. Mais la longueur d'onde utilisée (1064 nm) restait la limite. Rappelons qu'il est possible de gagner un facteur 400 sur le flux transmis en passant à 800 nm (section 1.2.1 du chapitre 1).

Un des objectifs de cette thèse a donc été de monter une expérience similaire à 800 nm. Pour cela, nous avons caractérisé quelques matériaux à cette longueur d'onde afin de faire un choix : le BGO :Cu, le ZnTe et le SPS :Te. Cette caractérisation ne se veut pas exhaustive. Nous nous attacherons à mesurer le gain en mélange à deux ondes et le temps de réponse pour chacun des matériaux. De plus, il n'est pas exclu d'étudier d'autres matériaux photoréfractifs (polymères ou cristaux liquides) pour l'acousto-optique.

4.3.2 Germanate de bismuth dopé cuivre (BGO :Cu)

Le germanate de bismuth $Bi_{12}GeO_{20}$ (BGO) fait partie de la famille des sillénites comme le $Bi_{12}SiO_{20}$ (BSO) et le $Bi_{12}TiO_{20}$ (BTO). Ces matériaux possèdent des propriétés "intermédiaires" entre les ferroélectriques et semi-conducteurs (coefficient électro-optique et leur temps de réponse).

Le BGO possède une symétrie cubique (classe 43m. Son tenseur électro-optique se présente sous la forme [135] :

$$(r_{ij}) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{52} & 0 \\ 0 & 0 & r_{63} \end{pmatrix}$$
(4.21)

avec $r_{41} = r_{52} = r_{63} = 3.5 \ pm/V$ à 514 nm [136].

Le cristal que nous possédons nous a été fourni par Jean-Claude Launay de l'Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux. Il possède une taille de 15.2 mm x 14.7 mm x 12.2 mm (figure 4.7(b)) et est dopé cuivre (BGO :Cu). Le dopage cuivre permet d'une part d'augmenter la photoréfractivité car l'introduction de dopants augmente le nombre de niveaux d'énergie dans la bande interdite. Il permet d'autre part d'augmenter l'absorption optique vers les grandes longueurs d'onde par la présence d'une bande d'absorption à $12500 \ cm^{-1}$. C'est cette dernière caractéristique qui nous intéresse.

La figure 4.6 montre le spectre d'absorption de notre cristal. Nous remarquons qu'à 800 nm nous sommes à la limite de son absorption, $\alpha = 0.1 \ cm^{-1}$ à 815 nm.



Figure 4.6 – Spectre d'absorption du BGO :Cu.

Gain photoréfractif en mélange à deux ondes Nous avons mesuré le gain en mélange à deux ondes en configuration dite de couplage (figure 4.7(b)). Une diode laser à cavité auto-organisable³ à 815 nm et délivrant 700 mW a été utilisée. Les faisceaux sont polarisés selon $\langle 001 \rangle$ (figure 4.7(b)). Le gain photoréfractif est défini dans l'approximation de non déplétion de la pompe (q = 0.05 pour $I_{R,max}$) comme :

$$\Gamma = \frac{1}{L} ln \left\{ \frac{I_S(L, avec \ pompe)}{I_S(L, sans \ pompe)} \right\}$$
(4.22)

Le gain à saturation mesuré reste faible puisqu'il atteint la valeur de 0.09 cm^{-1} comme le montre la figure 4.7(a) qui représente ce gain en fonction de la puissance par unité de surface du faisceau de référence I_R .

Temps de réponse τ_{PR} Le temps de réponse du cristal a été mesuré par une technique fréquentielle explicitée dans l'article de Lesaffre et al. [138] usuellement plus adaptée à la mesure de temps de réponse très rapides *in situ* dans un montage d'acousto-optique. La

^{3.} Cette diode laser à cavité auto-organisable a été développée au laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique [137]. Il s'agit d'une cavité laser dans laquelle un cristal photoréfractif a été inséré pour réduire le nombre de modes. Cela présente l'avantage d'avoir une diode laser monomode et puissante mais le faisceau n'est pas gaussien. En effet, elle émet un mode planaire, qui fait que l'illumination n'est pas uniforme. Une purification du faisceau n'est pas possible car on perdrait beaucoup de flux. Nous avons alors utilisé un ensemble de lentilles cylindriques pour collimater le faisceau.



Figure 4.7 – Mesure du gain en mélange à deux ondes du cristal de BGO :Cu. (a) Évolution du gain en fonction de la puissance de pompe.(b) Configuration et taille du cristal.

réponse fréquentielle du cristal à une perturbation, comme par exemple une excitation ultrasonore, est mesurée. En pratique, il suffit de moduler le faisceau signal par une onde acoustique à laquelle est appliquée une modulation de phase ou d'amplitude additionnelle de fréquence f_{mod} . Le signal acousto-optique des photons marqués est ensuite enregistré grâce à une détection synchrone à f_{mod} en balayant la fréquence du faisceau pompe. Cette technique n'impose pas de condition sur la bande passante de la détection puisque la mesure est faite à une fréquence unique f_{mod} .

Nous pouvons réaliser la même mesure en modulant à f_{mod} un des deux faisceaux du mélange à deux ondes. Le signal enregistré en fonction de la fréquence montre alors trois résonances à $f = 0, \pm f_{mod}$. Ces résonances sont des lorentziennes de largeur à mi hauteur égale à $1/(\pi \tau_{PR})$ pour le pic principal et égale à $\sqrt{3}/(\pi \tau_{PR})$ pour les bandes latérales. La fréquence de modulation f_{mod} doit être supérieure à $1/\tau_{PR}$ pour bien séparer les résonances. Si ce n'est pas le cas, le déphasage induit est petit et le contraste temporel de la figure d'interférence sur le détecteur est faible.

Pour le cristal BGO :Cu, nous avons appliqué une modulation de phase avec un rapport cyclique de 50% au faisceau pompe, tel que $f_{mod} = 5 Hz$. Un balayage en fréquence est appliqué à la pompe. La figure 4.8(a) montre uniquement le pic central pour différentes puissances de pompe. La figure 4.8(b) donne l'évolution du temps de réponse en fonction de la puissance de pompe. Nous remarquons que τ_{PR} évolue en $1/I_R$. Cependant ces valeurs sont extrêmement élevées pour notre application. Nous mesurons des temps entre 650 ms et 1 s. Ce cristal ne pourra pas être appliqué à l'holographie en temps réel pour l'imagerie acouto-optique.

4.3.3 Tellurure de zinc dopé vanadium et manganèse (ZnTe :V,Mn)

Le tellurure de zinc (ZnTe) est un semi-conducteur de la famille II-VI qui cristallise dans la structure zinc-blende. Sa largeur de bande est de l'odre de 2.26 ev à 300 K le



Figure 4.8 – Mesure du temps de réponse du cristal de BGO :Cu par décalage fréquentiel. (a) Signal à $f_{mod} = 5 Hz$ en fonction de la fréquence du faisceau référence pour différentes puissances surfaciques. (b) Temps de réponse τ_{PR} extrait de (a) en fonction de la puissance surfacique de pompe.

rendant adéquat pour des utilisations entre 800 et 900 nm. Le matériau étant naturellement de type p, il est nécessaire de le doper, par exemple au vanadium, pour le rendre photoréfractif [139]. L'échantillon en notre possession (Cradley Crystals Corporation) est codopé vanadium/manganèse (ZnTe :V,Mn) et il y a été mesuré des temps de réponse très rapides (ce qui est généralement le cas pour les semi-conducteurs) [140]. Nous avons mesuré un coefficient d'absoption à 815 nm de $\alpha = 0.9 \ cm^{-1}$. Son tenseur électro-optique est le même que celui du BGO :Cu (4.21) avec $r_{41} = 4 \ pm/V$.

Gain photoréfractif en mélange à deux ondes La mesure du gain photoréfractif a été réalisée de la même façon que pour le BGO :Cu. Les faisceaux sont polarisés selon $\langle 001 \rangle$ (figure 4.9(b)). La figure 4.9(a) montre que nous avons atteint un gain de 0.28 cm^{-1} . Ce sont des propriétés similaires à celles du GaAs à 1064 nm (utilisé pour l'imagerie acousto-optique) mais à la bonne longueur d'onde. De ce point de vue ce matériau est très prometteur.

Temps de réponse du ZnTe :V,Mn De la même façon, le temps de réponse a été mesuré suite à une modulation $f_{mod} = 10 \ kHz$. La figure 4.10(a) montre les trois pics correspondant au trois résonances à -10 kHz, 0 kHz et 10 kHz. Une mesure à plus haute fréquence f_{mod} aurait permis de mieux séparer les résonances. Nous pouvons extraire de ces courbes le temps de réponse en fonction l'intensité de la pompe par unité de surface (figure 4.10(b)). Nous mesurons un temps atteignant presque 200 μs . Il ne fait aucun doute que ce matériau est parfaitement adapté à l'holographie en temps réel grâce à son temps de réponse.

4.3.4 Hypothiodiphosphate d'étain dopé tellure (SPS :Te)

Le SnP_2S_6 (SPS) est un matériau photoréfractif très prometteur. Les premières études [141, 142] ont montré qu'il présente un gain important en mélange à deux ondes dans le



Figure 4.9 – Mesure du gain en mélange à deux ondes du cristal de ZnTe :V,Mn. (a) Évolution du gain en fonction de la puissance de pompe. (b) Configuration et taille du cristal.

domaine du visible et de l'infrarouge avec des temps photoréfractifs très courts. Son dopage au tellure [143] permet d'améliorer ces propriétés dans le proche infrarouge. Nous avons alors décidé de tester ses propriétés pour une application à l'imagerie acousto-optique. L'utilisation de ce cristal dans nos expériences est issue d'une collaboration avec Alexander A. Grabar de l'Institut de Physique du Solide et de Chimie de l'Université d'Uzhgorod en Ukraine. Nous avons en notre possession cinq cristaux avec des propriétés ou tailles différentes. L'objectif est de trouver le dopage et l'épaisseur de cristal adéquats pour notre application. Il faut, en effet, qu'il y ait une forte amplification sans que l'absorption du cristal prenne le dessus.

Description du cristal Les cristaux de SPS sont obtenus par une technique de transport en phase gazeuse qui permet d'obtenir des cristaux de qualité optique [116]. Tous les composants du matériau (dopants compris) sont mélangés dans un tube de quartz avec l'agent de transport. Le tout est placé dans un four à gradient de température. Un cristal massif d'environ 2 cm^3 est alors obtenu au bout de 2-3 semaines. Le cristal est ensuite polarisé en étant amené à une température supérieure à sa température de transition de phase (337 K) puis en appliquant un champ électrique pendant le refroidissement. La figure 4.11 montre un échantillon de SPS après croissance et non taillé.

A température ambiante, le SPS est monoclinique avec une symétrie de groupe de type m. Sa bande interdite vaut 2.3 ev. C'est un matériau bi-axe caractérisé par trois indices de réfraction $(n_1 = 2.9, n_2 = 2.85 \text{ et } n_3 = 2.98 \text{ à } 780 \text{ nm})(4.11(a))$. L'équation 4.23 donne l'expression de son tenseur électro-optique. Les coefficients de ce tenseur n'ont pas tous été mesurés : $r_{11} = 174 \text{ } pm/V$, $r_{21} = 92 \text{ } pm/V$, $r_{31} = 140 \text{ } pm/V$ et $r_{51} = 25 \text{ } pm/V$ à 633 nm et à température ambiante [144]. Ces valeurs augmentent avec la température.



Figure 4.10 – Mesure du temps de réponse du cristal de ZnTe :V :Mn par décalage fréquentiel. (a) Signal à $f_{mod} = 10 \ kHz$ en fonction de la fréquence du faisceau référence pour différentes puissances surfaciques. (b) temps de réponse τ_{PR} extrait de (a) en fonction de la puissance surfacique de pompe.



Figure 4.11 – (a) Indicatrice des indices et axe de polarisation spontané P_S du SPS à température ambiante. (b) Cristal de SPS après croissance (photo prise à l'Université d'Uzhgorod).

$$(r_{ij}) = \begin{pmatrix} r_{11} & 0 & r_{13} \\ r_{21} & 0 & r_{23} \\ r_{31} & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{42} & 0 \\ r_{51} & 0 & r_{53} \\ 0 & r_{62} & 0 \end{pmatrix}$$
(4.23)

Amélioration des propriétés par dopage Il existe différents types de cristaux ("jaune" ou "marron") qui peuvent être dopés au tellure (Te), au bismuth (Bi) ou à l'antimoine (Sb). Le SPS "marron" possède un gain photoréfractif très élevé atteignant 40 cm^{-1} à 633 nm, mais il est aussi très absorbant et donc inutilisable pour notre application. Le dopage au tellure améliore la sensibilité dans l'infrarouge comme le montre les spectres d'absorption (figure 4.12(a)) [143]. Le SPS :Te est par ailleurs plus rapide. Le tableau 4.17 issu de [143] donne un comparatif des propriétés des différents types de cristaux et le chapitre 10 de [116] est consacré au SPS.



Figure 4.12 – (a) Coefficient d'absorption des différents types de SPS en fonction de la longueur d'onde. (b) Gain en mélange en deux ondes SPS :Te en fonction du pas Λ du réseau d'indice à 780 nm. (Données issues de l'Université d'Uzhgorod)



Figure 4.13 – Absorption des différents cristaux de SPS :Te en notre possession en fonction de la puissance de pompe.

Nos cristaux Le tableau de la figure 4.14 donne les caractéristiques des différents cristaux en notre possession. Leur absorption à 780 nm a été mesurée en fonction de l'éclairement (figure 4.13) en polarisation orthogonale à l'axe x (figure 4.11(a)) pour éviter l'apparition de la coma photoréfractive. Nous observons que le dopage augmente l'absorption à 780 nm. Il faudra trouver un compromis entre le dopage et l'épaisseur qui donne la meilleure amplification. Le phénomène de "fanning" a été observé avec les cristaux très épais ou très dopés (3, 4, 5). Il est à noter qu'aucun traitement anti-reflet n'est déposé sur les faces. Cela va être particulièrement gênant à cause des réflexions parasites de la pompe.

SPS:Te	1	2	3	4	5
Dopage	1%	1%	1.5%	1%	5%
Face (mm x mm)	6.1 x 4.2	4.4 x 5.3	4.4	6.5 x 9	5 x 5
Epaisseur (mm)	2.2	4.9	4.4	6.8	3
$\frac{\Gamma (\text{cm}^{-1})}{\Lambda = 1.1 \mu \text{m}}$	5.1	2.1	7.9	4.7	5.9
$\tau_{_{PR}}(ms) \begin{array}{c} 10 \ ms \\ 4 \ W/ \ cm^2 \end{array}$		30 ms 2.5 W/ cm ²	7 ms 3 W/ cm ²	-	-

Figure 4.14 – Synthèse des propriétés des cristaux de SPS : Te

Gain photoréfractif en mélange à deux ondes Nous avons mesuré le gain des différents cristaux en appliquant une modulation d'amplitude basse fréquence à la pompe. Les mesures ont été faites à 780 nm avec un faisceau sonde de 2 mW de puissance. Nous nous sommes mis dans une configuration qui ne maximise pas le gain en mélange à deux ondes. La figure 4.12(b) montre que le gain est maximal pour un pas de $\Lambda = 1.5 \ \mu m$. Cependant, pour diminuer l'influence de la diffusion de la pompe sur notre détection, nous sommes contraints d'agrandir l'angle entre les faisceaux. L'angle choisi vaut 41 degrés et correspond à un pas $\Lambda = 1.1 \ \mu m$.



Figure 4.15 – Gain en mélange à deux onde des différents cristaux de SPS :Te en fonction de la puissance surfacique de pompe.

Nous mesurons le gain en fonction de la puissance de pompe pour les cinq cristaux (figure 4.15). Le gain à saturation vaut environ 5 cm^{-1} pour les cristaux dopés à 1%. Une valeur plus basse a été mesurée pour le cristal numéro 2. On se serait attendu à une valeur plus élevée pour le cristal 5 mais peut-être que, dans ce cas, la pompe est absorbée durant sa propagation (coefficient d'absorption plus élevé), résultant en un gain plus faible. Malgré le fort gain du cristal 3, le facteur d'amplification du cristal 4 (≈ 30) est plus élevé en raison de sa plus grande épaisseur. Notre choix s'est porté sur le cristal

4, surtout que le numéro 3 a été endommagé.

Temps de réponse La mesure du temps de réponse donne des résultats assez encourageants. Nous arrivons à 7 ms pour $3 W/cm^2$ (figure 4.16). D'après [143], il est possible d'atteindre 1.3 ms à $10 W/cm^2$. Ces valeurs du temps de réponse associées au gain élevé font du SPS :Te un cristal aux propriétés très remarquables.

Il va sans dire que nous avons choisi ce cristal de SPS : Te pour nos expériences. Les images acousto-optiques du chapitre suivant ont d'abord été obtenues avec le cristal numéro 1 (c'est le premier que nous avons reçu). Nous allons constater une nette amélioration et de meilleures performances suite à l'utilisation du cristal numéro 4. Ce cristal est le plus grand qui nous a été fourni. En effet, la méthode de croissance de ce cristal ne permet pas d'en faire des échantillons de qualité sur de grandes surfaces.



Figure 4.16 – Temps de réponse photoréfractif d'un cristal de SPS : Te dopé 1% en fonction de la puissance surfacique de pompe.

4.4 Conclusion

L'effet photoréfractif existe dans des matériaux à la fois photoconducteurs et électrooptiques (effet Pockels). A partir d'une illumination non uniforme, un hologramme de phase peut être enregistré à travers la création d'un réseau d'indice de réfraction. Cet effet permet, par mélange à deux ondes, de faire de l'holographie dynamique.

Dans le cadre de la détection de photons marqués par une méthode interférométrique, nous pouvons alors réaliser une adaptation du front d'onde de la référence à celui tavelé de l'onde objet. Cela permet d'utiliser efficacement un mono-détecteur : la mesure de la modulation de phase de la lumière par l'onde acoustique devient une mesure d'intensité. Il est possible par ailleurs de transmettre toute sorte de signal modulé dans le temps ou en phase à travers un matériau photoréfractif. Les avantages de ce type de détection sont sa bonne étendue optique et sa bande passante compatible avec la possible décorrélation du *speckle* dans des milieux biologiques épais.

Les matériaux photoréfractifs ne sont pas tous adaptés à notre application. Leurs performances dépendent de deux principaux paramètres qui sont le gain en mélange à deux ondes et le temps de réponse photoréfractif, auxquels il faut ajouter l'absorption du matériau. La sensibilité d'un matériau (c'est à dire sa capacité à transformer rapidement le réseau d'illumination en réseau d'indice) dépend de la longueur d'onde. Notre application nécessite un matériau d'assez grande surface pour une meilleure collection du flux diffusé et qui possède une bonne sensibilité autour de 800 nm. Cette dernière condition était la principale limite de l'utilisation de l'holographie photoréfractive pour l'imagerie acousto-optique.

Nous avons testé les performances de trois matériaux à 800 nm. Les cristaux de SPS :Te ont montré des performances assez remarquables à 780 nm. Ils présentent un gain élevé permettant d'atteindre des facteurs d'amplification de 30 associé à un temps de réponse inférieur à la dizaine de millisecondes à $3 W/cm^2$ et atteignant 1 ms selon la littérature. Les échantillons que nous avons choisis pour la suite des expériences sont des cristaux dopés à 1%, car il présentent un bon compromis entre l'absorption et l'amplification.

Le chapitre qui suit est consacré à l'application du mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif pour la détection des photons marqués. Nous allons y présenter les deux types de méthode généralement utilisés qui peuvent être soit une détection directe des photons marqués (imagerie sur fond noir) soit une détection indirecte des photons marqués (imagerie sur fond blanc). L'hologramme gravé dans le matériau est alors respectivement dynamique ou statique.

$Sn_2P_2S_6$ Sample	$\lambda \ (nm)$	$\stackrel{\alpha_x}{(\mathrm{cm}^{-1})}$	$\begin{array}{c} \Gamma_{max} \\ (cm^{-1}) \\ (\pm 10\%) \end{array}$	$L_D \ (\mu{ m m}) \ (\pm 50\%)$	$\begin{array}{c} r_{\rm eff} \\ (\rm pm/V) \\ (\pm 15\%) \end{array}$	$ au_{ m die} \ { m at} \ 10 \ { m W/cm^2} \ { m (ms)} \ { m (\pm 20\%)}$	$\begin{array}{c} \tau(\Gamma_{\rm max}) \mbox{ at 10 W/cm}^2 \\ ({\rm ms}) \\ (\pm 20\%) \end{array}$	$\begin{array}{c} N_{\rm eff} \\ (10^{16}~{\rm cm^{-3}}) \\ (\pm 15\%) \end{array}$
Nominally pure	633	0.5	4-7	0.2			1–5	0.7
(type II) yellow	780	0.20	2.5		41		10	0.2
	860	0.16	1.8	0.9	48	9	12	0.08
	980	0.12	1.6	1.4	40	15	44	0.11
	1064	0.10	0.9		38			0.044
Brown	633	5.7	38	0.1		0.2	0.4	2.5
	780	0.9	18		180	0.4	1	0.7
	860	0.3	14		190			0.48
	980	0.14	11	0.5	190	29	33	0.39
	1064	0.09	8.6		160			0.04
SPS:Te 1.0%	633	1.0	10	0.5	60	0.1	0.3	0.9
	780	0.34	6	2.3	50	0.2	1.3	1.0
	860	0.19	6.5	0.5	89	6	10	0.44
	980	0.11	6	0.3	75	8	13	0.62
	1064	0.09	4.5					
SPS:Te 1.5%	860	0.8	8	0.5	89	7	15	0.44
	980	0.42	6	0.5	83	10	13	0.57
	1064	0.36	4.5	0.6	73	11	25	0.53
SPS:Te 2.0%	633	1.8	10	1.1	57	0.2	0.5	1.0
	780	0.6	6	0.8	47	0.5	1.6	0.8
	1064	0.10	2.2	0.9	54	17	32	0.22
SPS:Te 3.0%	633	2.7	12	2.6	81	0.1	0.4	0.8
	780	0.9	7	0.7	56	0.6	1.3	0.8
	1064	0.20	2.5	0.8	49	14	20	0.34

Figure 4.17 – Propriétés photoréfractives du SPS (issu de (REFERENCES)).

CHAPITRE 5

Imagerie acousto-optique résolue en temps

Table des matières

5.1	Détection photoréfractive des photons marqués						
	5.1.1	État de l'art $\ldots \ldots 112$					
	5.1.2	Tomographie acousto-optique cohérente					
5.2	Princip	tipe de l'imagerie acousto-optique résolue en temps 116					
5.3	Modéli	Modélisation de l'imagerie acousto-optique résolue en temps 118					
	5.3.1	Hologramme statique des photons non marqués $\dots \dots \dots$					
	5.3.2	Transmission d'une modulation temporelle par un cristal pho-					
		toréfractif $\ldots \ldots 121$					
	5.3.3	Détection du signal acousto-optique					
5.4	Descri	ption de l'expérience $\ldots \ldots 123$					
	5.4.1	Montage expérimental $\dots \dots \dots$					
	5.4.2	Acquisition des données 127					
5.5	Résult	ésultats expérimentaux $\ldots \ldots 129$					
	5.5.1	Imager un contraste d'absorption					
	5.5.2	Dépendance du signal acousto-optique 137					
	5.5.3	Imager un objet diffusant					
	5.5.4	Imagerie acousto-optique en trois dimensions 143					
5.6	Conclu	sion $\ldots \ldots 144$					

L'imagerie acousto-optique par holographie photoréfractive tente de remédier aux limitations des différentes techniques de détection cohérente des photons marqués présentées au chapitre 2 : l'étendue optique et la bande-passante. En effet, les techniques utilisant un mono-détecteur possèdent une très bonne bande passante mais sont limitées par leur étendue optique dans la mesure où la cohérence spatiale est limitée à un grain de *speckle*. Les techniques multiplexées sont dans une moindre mesure limitées par leur étendue optique mais peuvent être aussi limitées par leur bande passante.

Le principe de l'holographie photoréfractive a été exposé dans le chapitre précedent, l'objectif étant d'inscrire un hologramme du champ objet dans un cristal. La diffraction d'une référence sur cet hologramme en réalise l'adaptation de front d'onde permettant une détection d'une modulation d'intensité sur une photodiode, directement liée à la modulation acousto-optique. Cet hologramme peut être gravé avec les photons marqués ou non marqués par les ultrasons. Dans ce dernier cas, on parle de détection sur fond blanc.

Dans ce chapitre, nous allons appliquer l'holographie photoréfractive à l'imagerie acoustooptique. Nous allons voir d'abord quel est l'état de l'art de ce type d'imagerie avant de présenter les premières expériences que j'ai réalisées sur un montage de Tomographie Acousto-Optique Cohérente (TAOC) qui a fait l'objet de la thèse M. Lesaffre [128]. La suite sera consacrée à l'imagerie aousto-optique résolue en temps, une méthode basée sur l'utilisation d'impulsions ultrasonores très brèves et l'holographie du front d'onde des photons **non marqués**. Nous en présenterons d'abord le principe puis les différents résultats expérimentaux obtenus dans la fenêtre thérapeutique grâce un cristal de SPS : Te.

5.1 Détection photoréfractive des photons marqués

5.1.1 État de l'art

Dans le chapitre précédent, nous avons fait l'état de l'art de l'imagerie acousto-optique photoréfractive du point de vue matériau. Les deux seuls matériaux utilisés sont le BSO à 532 nm ou l'AsGa à 1064 nm. Du point de vue imagerie, les premières expériences en 2004 [75, 76] ne permettaient pas de différencier l'information selon l'axe ultrasonore. Il s'agissait d'une preuve de principe où un profil en une dimension selon un axe transverse aux ultrasons était enregistré.

L'équipe de Murray [145,146] réalise en 2005 les premières images acousto-optiques en deux dimensions par holographie photoréfractive. Ils emploient des impulsions ultrasonores ultra-brèves, la résolution est alors directement donnée par l'étendue temporelle de l'impulsion. Ils arrivent ainsi à imager des objets absorbants de 3 mm de diamètre enfouis dans une épaisseur de 2.7 cm de gel diffusant ($\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$). Le grand avantage de leur

expérience est qu'elle permet de réaliser une image échographique dans le même temps puisqu'ils utilisent un échographe conventionnel. L'équipe de Wang réalise en 2008 [134] un montage similaire (même longueur d'onde, même cristal et impulsions ultrasonores). Ils parviennent à imager des objets absorbants de $6 \times 6 \times 6 \ mm^3$ à travers 2.5 cm de blanc de poulet.

En 2008, des résultats en une dimension (axe des ultrasons) sont obtenus par l'équipe de Monchalin [103] à 1064 nm (AsGa). De même, des impulsions brèves leur permettent d'imager en une dimension selon l'axe des ultrasons des objets de 5.3 mm à travers 3 cm de gel diffusant ($\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$). L'utilisation d'un laser à longues impulsions leur permet d'améliorer la sensibilité de l'imagerie en augmentant la puissance crête injectée dans le milieu diffusant.

Photons marqués ou non marqués? Les méthodes d'imagerie présentées ci-dessus font, pour la plupart, une détection indirecte des photons marqués. En effet, il est possible de remonter à la modulation acousto-optique en détectant les uns ou les autres [147]. Dans le cas des photons marqués, il faut décaler le bras référence de la fréquence des ultrasons ω_{US} . L'hologramme gravé doit alors être dynamique, c'est à dire qu'un nouvel hologramme doit être gravé pour chaque nouvelle position de la source virtuelle acousto-optique. Ramaz et al. [76] font ainsi une détection directe des photons marqués (sur fond noir), un nouvel hologramme est gravé pour chaque position transverse du transducteur acoustique.

L'utilisation d'impulsions ultrasonores brèves pour la résolution axiale impose la détection des photons non marqués. En effet, le déplacement de l'impulsion dans le milieu se fait à une échelle de temps inférieure aux temps d'inscription et d'effacement d'un hologramme dans un cristal (il faut 26 μs en moyenne aux ultrasons pour traverser 4 cm dans un milieu biologique). Il est donc impossible de graver un nouvel hologramme pour chaque position de l'impulsion, le cristal se comportant comme un filtre passe-bas. La détection des photons marqués se fait alors de façon indirecte en réalisant, grâce au cristal, l'adaptation du front d'onde des photons non marqués. Cette méthode sera détaillée dans la suite.

Cependant, il est possible de faire une imagerie acousto-optique photoréfractive résolue en deux dimensions sur fond noir, grâce à la Tomographie Acousto-Optique Cohérente (TAOC) [92,148].

5.1.2 Tomographie acousto-optique cohérente

La TAOC a été développée par Max Lesaffre pendant sa thèse [92, 128]. Le principe de cette méthode repose sur la combinaison d'une modulation aléatoire de la phase, à la fois de l'excitation ultrasonore et d'un des bras optiques (objet ou référence). En effet, l'utilisation d'une onde ultrasonore continue ne permet pas de discriminer l'information axiale. Il est possible de procéder de façon similaire à l'OCT en créant une zone de cohérence acousto-optique [92]. Les photons marqués provenant de cette zone de cohérence pourront établir un hologramme dans le cristal. Les variations de phase à l'extérieur de cette zone de cohérence le long de la colonne acoustique seront trop rapides pour le cristal qui en enregistre une valeur moyenne nulle.



Figure 5.1 – Montage expérimental de la tomographie acousto-optique cohérente (TAOC) : en plus de modulations aléatoires de phase, une modulation asymétrique de phase à 3 kHz est appliquée pour la détection synchrone.

Le schéma de la figure 5.1 montre le montage expérimental utilisant un cristal d'AsGa. Le bras référence est décalé de la fréquence acoustique. Le signal acousto-optique intégré sur un temps τ sur la photodiode correspond au terme d'interférences entre le champ diffusé transmis à travers le cristal et le champ diffracté par holographie photoréfractive. Ici, les faisceaux interfèrent avec un angle de 90° et le cristal est en configuration de diffraction anisotrope. Cela permet de supprimer la contribution de la diffusion de la pompe sur la photodiode. Ce dernier point est souvent un paramètre limitant de l'holographie photoréfractive pour l'imagerie acousto-optique, surtout en détection sur fond noir (détection directe des photons marqués).

Supposons que le motif aléatoire possède un temps de bascule T_{Φ} (figure 5.1) et que les deux motifs sont retardés d'un temps t_d . Les deux séquences de modulation de phase doivent être identiques à un retard temporel près tel que $\psi_O(t) = -\psi_{US}(t-t_d)$, où ψ_O est la séquence appliquée au bras optique de référence et ψ_{US} celle appliquée aux ultrasons.

Le signal optique dépend alors de $|g_1|^2$, où $g_1(t_d)$ est la fonction d'autocorrélation des modulations aléatoires [148] :

$$g_1(t_d) = \langle exp[i\psi_{US}(t)]exp[-i\psi_{US}(t+t_d)] \rangle_{\tau}$$
(5.1)

La zone de cohérence temporelle possè de ainsi une position y_c et une étendue Δy contrô-lées :

$$y_c = v_{US} t_d \quad \text{et} \quad \Delta y = v_{US} T_\Phi$$

$$(5.2)$$

La résolution axiale de l'imagerie est proportionnelle à T_{Φ} qu'on appelle temps de cohérence acousto-optique. Le signal acousto-optique détecté y est aussi proportionnel. Le photons marqués détectés ne provenant que de la zone de cohérence, plus cette dernière sera petite (meilleure résolution) plus le signal sera faible. Il faut alors trouver un compromis entre la résolution axiale souhaitée et la dynamique du signal.

La figure 5.2 montre les résultats que j'ai obtenus grâce à la TAOC pour l'imagerie de deux inclusions absorbantes de 3 mm de diamètre séparées de 2 mm enfouies dans un gel diffusant de 2 cm ($\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$). Nous remarquons que plus la résolution est améliorée, plus le signal est faible. Les deux objets sont séparés pour une résolution $\Delta y = 1.4 \ mm$ inférieure à la distance qui les sépare. La TAOC permet ainsi d'avoir une résolution axiale arbitraire, la résolution transverse dépendra des caractéristiques du transducteur.



Figure 5.2 – Images par tomographie acousto-optique cohérente (TAOC) de deux inclusions absorbantes de diamètre 3 mm et séparées de 2 mm. Le plan représenté est une coupe selon (xy) au milieu d'un échantillon diffusant d'épaisseur 2 cm et où le libre parcours moyen de transport est de 1 mm ($\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$). Les images (a), (b), (c) et (d) sont réalisées avec des résolutions respectives Δy de 11.4 mm, 5.7 mm, 2.9 mm et 1.4 mm. Le niveau de signal maximal vaut respectivement pour chaque image 115 pW, 80 pW, 37 pW et 22 pW. (e) Photographie du plan de coupe à mi-épaisseur de l'échantillon diffusant.

La TAOC permet de réaliser une imagerie acousto-optique en deux dimensions avec une technique originale. Cependant, l'expérience reste limitée par la longueur d'onde de sensibilité du cristal d'AsGa. Il est plus judicieux de travailler à 800 nm. De plus, l'utilisation d'ultrasons continus ne permet pas de respecter les normes acoustiques de l'imagerie biomédicale (Annexe C). Une perspective serait de coupler la TAOC à l'holographie numérique en régime longues impulsions présentée dans la partie 2 de cette thèse. Enfin, l'imagerie par TAOC est une imagerie point par point, il faut acquérir un signal et donc graver un hologramme pour chaque point de l'échantillon, elle peut donc être très coûteuse en temps. A titre d'exemple, l'image 5.2(d) a nécessité 4 heures d'acquisition!!

5.2 Principe de l'imagerie acousto-optique résolue en temps

L'expérience d'Imagerie Acouto-Optique Résolue en Temps (IAORT) s'appuie sur une détection par holographie photoréfractive des photons non marqués (sur fond blanc) à 780 nm. Le cristal utilisé est le SPS :Te étudié dans le chapitre précédent. Il s'agit de la première expérience d'imagerie acousto-optique photoréfractive autour de 800 nm (fenêtre thérapeutique optique). Les autres expériences à cette longueur d'onde, dont nous avons déjà donné les avantages dans le chapitre 1, sont la détection par *holeburning* spectral [85] ou par holographie numérique [94].



Figure 5.3 – Principe de l'imagerie acousto-optique résolue en temps (IAORT).

Ultrasons brefs pour la résolution axiale La façon la plus intuitive de résoudre l'information selon l'axe des ultrasons est l'utilisation d'impulsions brèves comme cela est le cas pour l'échographie. La résolution axiale est alors directement liée à l'étendue spatiale de l'impulsion que l'on peut calculer en connaissant la vitesse moyenne des ultrasons. Ainsi la résolution Δy s'exprime comme $\Delta y = v_{US}t_b$ où v_{US} est la vitesse des ultrasons (elle vaut en moyenne 1540 $m.s^{-1}$ dans les milieux biologiques) et t_b la largeur de l'impulsion ultrasonore. Utiliser des impulsions ultrasonores possède deux avantages. Cela permet, d'une part, de respecter plus facilement les normes biomédicales et facilite, d'autre par, le couplage de l'imagerie acousto-optique avec un dispositif d'échographie conventionnel. Hologramme statique des photons non marqués Considérons un milieu diffusant éclairé par un laser. La lumière, par diffusion multiple, s'étend dans le milieu. Dans une configuration source/détecteur ponctuels en réflexion, on parle de "banane de diffusion". Dans une configuration en transmission, il s'agit plutôt d'une ellipsoïde de révolution dont la section est la répartition gaussienne de la lumière dans le milieu. La lumière ainsi collectée et focalisée dans le cristal photoréfractif, interfère avec une référence de même fréquence pour y inscrire un hologramme de phase (montage homodyne). Cet hologramme des photons "diffusés" (non marqués) est statique car leur phase n'est pas modifiée. Le régime stationnaire est atteint.

Détection de la quantité de photons non marqués transmise Le signal détecté sur la photodiode comprend deux contributions : le signal transmis (photons diffusés) et la référence diffractée par le cristal qui lui est spatialement adaptée. Ce signal est visualisé dans le temps grâce à un mono-détecteur à grande bande passante. En l'absence de toute modulation temporelle, ce signal optique est continu et représente la quantité de photons diffusés, non marqués, transmise à travers le cristal et amplifiée.

Détection indirecte de la quantité de photons marqués par conservation d'énergie Appliquons maintenant une modulation temporelle au signal. Cette modulation est transmise par le cristal comme le montre l'équation 4.18. Ainsi, si nous envoyons une impulsion ultrasonore dans le milieu, il y aura création de photons marqués. Cette création de photons marqués se fait le long du trajet de l'impulsion dans le milieu. Par conservation d'énergie, la création de photons marqués résulte en la chute de la quantité de photons non marqués. L'hologramme ayant été inscrit par les photons non marqués reste invariant car $t_b \ll \tau_{PR}$. Le niveau continu détecté préalablement chute. Cette chute est proportionnelle à la quantité de photons marqués acoustiquement.

Si la détection permet de résoudre temporellement le trajet de l'impulsion dans le milieu, alors nous pouvons résoudre temporellement la chute de la quantité de photons non marqués le long de l'axe ultrasonore comme le montre la figure 5.3(a). La partie variable du signal temporel enregistré correspond alors par soustraction à la quantité de photons marqués le long de l'axe acoustique et donc à la solution de l'équation de diffusion 1.7 à cette profondeur (la quantité de photons marqués étant proportionnelle à la densité locale de photons). En d'autres termes, il s'agit d'une coupe à la résolution acoustique de l'étendue de lumière à cette profondeur.

Détection d'un contraste optique L'impulsion ultrasonore lit en quelque sorte la distribution de lumière durant sa propagation. Avant l'envoi de l'onde acoustique, le niveau continu sur la photodiode prend en compte l'absorption de la lumière incidente par d'éventuels objets absorbants.

Un objet absorbant présent le long de la colonne acoustique va alors créer une variation temporelle du signal. En effet, la densité de photons est plus faible au niveau de l'objet. Ainsi, lorsque l'impulsion est située au niveau de l'objet, la quantité totale de photons marqués y est plus faible, celle des photons non marqués est alors plus élevée, le signal remonte (figure 5.3(b)). On déduit de ces variations temporelles, la distribution spatiale le long de l'axe en multipliant par la vitesse des ultrasons.

Avantages L'IAORT permet de réaliser une imagerie par "ligne" comme l'échographie et non point par point. Cela présente un gain de temps considérable et peut permettre son couplage avec cette dernière modalité. Elle permet d'être aussi plus sensible aux photons marqués car la chute du signal est créé par les deux bandes spectrales à $\pm \omega_{US}$. La détection directe en configuration hétérodyne n'est sensible qu'à une seule des deux contributions.

L'IAORT sur fond blanc est en soi spécifique à la détection par holographie photoréfractive. L'utilisation d'impulsions ultrasonores brèves ne permet pas d'imager par "ligne" par holographie numérique, car la bande passante des caméras ne le permet pas. Une détection incohérente par *holeburning* permet de faire une imagerie résolue en temps sur fond noir en détectant directement les photons marqués.

5.3 Modélisation de l'imagerie acousto-optique résolue en temps

Après en avoir explicité le principe, nous allons à présent modéliser l'IAORT par holographie photoréfractive. Il s'agit d'une application de la modélisation faite par P. Delaye pour la transmission de signaux modulés dans le temps par un cristal photoréfractif [121] à notre cas particulier. L'objectif est d'étudier les conditions dans lesquelles une telle modulation est transmise et d'identifier les différentes contributions au niveau du détecteur ainsi que les dépendances du signal acousto-optique.

Nous noterons $E_S(x, y, z, t)$ le champ objet sortant de l'échantillon diffusant et transmis par le cristal. Ce champ dépend des trois coordonnées de l'espace en raison de la distribution aléatoire de la figure de *speckle* et l'absorption par le cristal. Il dépend aussi du temps. $E_R(z)$ est le champ référence qui est seulement affecté par l'absorption dans le cas de l'approximation de non-déplétion de la pompe (Annexe B).

5.3.1 Hologramme statique des photons non marqués

Le champ diffusé L'échantillon diffusant est éclairé par une onde plane monochromatique de pulsation ω . Le champ en sortie, du fait de la diffusion, résulte de la superposition des champs diffusés par différents chemins optiques. Le long de chaque trajet, l'onde a accumulé une amplitude et une phase et le champ scalaire peut s'exprimer à un instant tcomme :

$$E_{S}(x, y, z, t) = \sum_{k=1}^{N} a_{k}(x, y, z) e^{i\varphi_{k}(x, y, z, t)} e^{i\omega t}$$
(5.3)

où N est le nombre de séquences de diffusion, $a_k(x, y, z)$ l'amplitude résultant le la séquence de diffusion k et $\varphi_k(x, y, z, t)$ la phase accumulée.

Comme chaque séquence de diffusion est représentée par un trajet optique de longueur quelconque et grande devant la longueur d'onde, la phase est aléatoire d'un trajet à l'autre. Il en résulte qu'à la sortie du milieu diffusant, l'amplitude et la phase du champ sont aléatoires et donc différentes d'un point à l'autre de l'espace. Dans un souci de simplification, nous considérons que l'amplitude du champ s'exprime en sortie du milieu comme $\alpha(x, y)\sqrt{I_S}$, où $\alpha(x, y)$ est une variable aléatoire de l'espace et I_S l'intensité incidente sur l'échantillon. De même la phase accumulée en un point (x, y) peut s'exprimer grâce à une variable aléatoire globale.

Il est alors possible d'exprimer le champ E_S en fonction de deux variables aléatoires, $\alpha(x, y)$ et $\varphi(x, y, z, t)$ qui intègrent le fait que ce champ est la sommation complexe des différents chemins optiques dans le milieu :

$$E_S(x, y, z, t) = \sqrt{I_S} \alpha(x, y) e^{i\omega t} e^{i\varphi(x, y, z, t)}$$
(5.4)

Terme de phase acousto-optique Nous appliquons à présent une onde ultrasonore en régime d'émission impulsionnel. Le transducteur ultrasonore est alimenté par une tension sinusoidale modulée en amplitude par la fonction f(t) avec un faible rapport cyclique. Nous considérons que nous sommes dans un régime linéaire où la pression acoustique p_{US} varie linéairement à la tension. Ainsi, en tout point de l'échantillon, nous pouvons exprimer cette pression :

$$p_{US}(x, y, z, t) = P_{US}f(t - \frac{y}{v_{US}})sin(\omega_{US}(t - \frac{y}{v_{US}}))$$
(5.5)

où ω_{US} est la pulsation acoustique et P_{US} la pression maximale au point focal du transducteur. v_{US} est la vitesse du son dans le milieu et $\frac{y}{v_{US}}$ représente le retard temporel entre le point d'émission et la position y suivant la colonne acoustique.

Cette perturbation acoustique module la phase de la lumière ayant traversé la zone insonifiée. Nous allons ici aussi exprimer cette phase de façon globale. Il n'est pas dans notre objectif de définir la sommation exacte à travers chaque chemin optique car le résultat final est identique. La phase acousto-optique peut s'exprimer alors comme :

$$\phi_{AO}(x, y, z, t) = \beta(x, y, t) P_{US} f(t - \frac{y}{v_{US}}) sin(\omega_{US}(t - \frac{y}{v_{US}}) + \delta(x, y))$$
(5.6)

 β est une variable qui représente l'amplitude de modulation de la phase optique suite à la modulation des chemins optiques à la fréquence ultrasonore ω_{US} . Nous considérons que β varie lentement dans le temps par rapport à f(t). Elle dépend du milieu, et peut être exprimée comme la somme sur tous les trajets optiques de la somme des modulations induites sur chaque trajet au niveau local à la fois par la vibration des diffuseurs et par la modulation de l'indice de réfraction. Elle dépend donc aussi de la densité locale de photons. δ représente un terme de phase acoustique dû à la propagation de l'onde ultrasonore selon y.

Modulation acoustique du champ diffusé Le champ diffusé en sortie E_S se trouve alors modulé par l'onde ultrasonore. En combinant les équations 5.4 et 5.6, nous obtenons :

$$E_S(x, y, z, t) = \sqrt{I_S}\alpha(x, y)e^{i\omega t}e^{i\varphi(x, y, z, t)}e^{i\beta(x, y)P_{US}f(t - \frac{y}{v_{US}})sin(\omega_{US}(t - \frac{y}{v_{US}}) + \delta(x, y))}$$
(5.7)

Le développement en séries de Bessel du terme de phase acousto-optique nous permet d'aboutir à cette expression du champ modulé :

$$E_S(x, y, z, t) = \sum_{n = -\infty}^{\infty} E_{S,\omega_n}(x, y, z, t) e^{i\omega_n t}$$
(5.8)

tel que :

$$E_{S,\omega_n}(x,y,z,t) = \sqrt{I_S}\alpha(x,y)e^{i\varphi(x,y,z,t)}J_n\Big(\beta(x,y)P_{US}f(t-\frac{y}{v_{US}})\Big)e^{in(\delta(x,y)-\frac{y}{v_{US}})}$$
(5.9)

 et

$$\omega_n = \omega + n\omega_{US} \tag{5.10}$$

La composante n = 0, tel que $\omega_0 = \omega$, correspond au champ diffusé non modulé (photons non marqués) :

$$E_{S,\omega_0}(x,y,z,t) = \sqrt{I_S}\alpha(x,y)e^{i\varphi(x,y,z,t)}J_0(\beta(x,y)P_{US}f(t-\frac{y}{v_{US}}))$$
(5.11)

Pour $n = \pm 1$, $\omega_{\pm 1} = \omega \pm \omega_{US}$, il s'agit des deux bandes latérales correspondant au champ des photons marqués :

$$E_{S,\omega_{\pm 1}}(x,y,z,t) = \sqrt{I_S}\alpha(x,y)e^{i\varphi(x,y,z,t)}J_1\Big(\beta(x,y)P_{US}f(t-\frac{y}{v_{US}})\Big)e^{\pm i(\delta(x,y)-\frac{y}{v_{US}})}$$
(5.12)

Dans une hypothèse de faible taux de modulation acousto-optique nous considérons qu'il n'existe réellement que ces premiers ordres (-1, 1). Ces deux champs diffèrent d'un terme de phase aléatoire car ils résultent de deux marches aléatoires indépendantes. Ils ne sont pas corrélés (incohérents spatialement). Nous remarquons que, même si E_{S,ω_0} ne comporte pas de modulation de phase liée au champ acoustique, son amplitude en dépend. C'est justement cette modulation d'amplitude qui va nous permettre de détecter les photons marqués.

Holographie photoréfractive Ce faisceau signal interfère ensuite dans le cristal photoréfractif avec une onde plane de référence : $E_R(z,t) = \sqrt{I_R}e^{i\omega t}$. Cette onde de référence est non modulée en amplitude. Une modulation de phase de la référence ne changerait en rien le problème puisque le paramètre important est la différence de phase entre les deux ondes.

Seule la composante statique de l'interférogramme, i.e. avec un temps d'évolution supérieur au temps de réponse du cristal τ_{PR} , participe à l'inscription de l'hologramme. Nous ne considérerons pour la suite que le champ des photons non marqués E_{S,ω_0} car c'est le seul qui participe à l'établissement de l'hologramme.

5.3.2 Transmission d'une modulation temporelle par un cristal photoréfractif

Nous reprenons pour la suite le formalisme développé dans l'annexe B qui donne l'expression d'un signal modulé dans le temps transmis par un cristal photoréfractif. Les hypothèses nécessaires correspondent bien aux conditions de notre imagerie :

- 1. Le faisceau référence n'est pas modulé temporellement.
- 2. Nous négligeons la déplétion par couplage en mélange à deux ondes. Il s'agit d'un régime où la puissance de la pompe est très élevée devant la puissance de l'onde objet. C'est une condition facile à réaliser puisque l'onde objet est déjà extrêmement atténuée par le milieu diffusant.
- 3. L'absorption par le cristal est prise en compte.
- 4. Au temps t = 0 (avant la modulation de l'onde objet, c'est à dire avant l'application du champ ultrasonore), un hologramme est déjà gravé dans le cristal et l'état permanent est atteint. Les deux faisceaux sont déjà présents dans le cristal et ont gravé un réseau d'indice, avec un gain à saturation, sur lequel ils diffractent.

Dans le cadre de ces hypothèses et en prenant comme origine des z la face d'entrée du cristal, le signal transmis à travers le cristal d'épaisseur L peut s'écrire de la façon suivante :

$$E_{S,\omega_0}(x,y,L,t) = e^{-\alpha L/2} E_{S,\omega_0}(x,y,0,0) [(e^{\gamma L} - 1) + \Delta(x,y,t)]$$
(5.13)

 $E_{S,\omega_0}(x, y, 0, 0)$ est le champ diffusé des photons non marqués à l'entrée du cristal et à l'instant t = 0 avant l'application du champ acoustique. $\Delta(x, y, t)$ est la partie temporelle de ce champ suite à la modulation d'amplitude des ultrasons telle que $E_{S,\omega_0}(x, y, 0, t) = E_{S,\omega_0}(x, y, 0, 0) \times \Delta(x, y, t)$, avec $\Delta(x, y, 0) = 1$.

Nous considérons que les variations temporelles du champ diffusé non modulé sont lentes devant le temps de réponse τ_{PR} en particulier celles de $\varphi(x, y, z, t)$. La modulation acoustique f(t) est, par contre, très rapide par rapport au temps de réponse du cristal. D'après l'équation 5.11, nous pouvons alors écrire que :

$$E_{S,\omega_0}(x,y,0,0) = \sqrt{I_S}\alpha(x,y)e^{i\varphi(x,y)}$$
(5.14)

et

$$\Delta E_{S,\omega_0}(x, y, 0, t) = J_0 \Big(\beta(x, y) P_{US} f(t - \frac{y}{v_{US}})\Big)$$
(5.15)

f(t) est une fonction rectangle, $f(t) = rect(\frac{t+y/v_{US}}{t_b})$, telle que $f(-\frac{y}{v_{US}}) = 0$. Elle est centrée en y et nous avons bien $\Delta(x, y, 0) = 1$.

Pour simplifier l'écriture, nous allons supprimer la dépendance en z du champ après le cristal dans la mesure où la détection est placée juste après le cristal. Le champ total après le cristal contient les composantes (0,+1 et-1). $E_{S,\omega_{\pm 1}}$ ne participent pas à l'inscription de l'hologramme. Ils sont uniquement transmis à travers le cristal et leur champ transmis s'écrit $E_{S,\omega_{\pm 1}}(x, y, L, t) = e^{-\alpha L/2} E_{S,\omega_{\pm 1}}(x, y, 0, t)$. Ces deux contributions des photons

marqués peuvent être négligées de façon très légitime car leur amplitude avant absorption par le cristal est déjà très faible par rapport à celle de E_{S,ω_0} .

Nous pouvons, par ailleurs, écrire que $\gamma = \gamma' = \Gamma/2$ car nous sommes dans un régime de diffusion des charges (aucun champ n'est appliqué).

Le champ total après le cristal s'écrit alors :

$$E_{S}(x, y, t) = e^{-\alpha L/2} \sqrt{I_{S}} \alpha(x, y) e^{i\varphi(x, y)} e^{i\omega t} \left[\left(e^{\Gamma L/2} - 1 \right) + J_{0} \left(\beta(x, y) P_{US} f(t - \frac{y}{v_{US}}) \right) \right] \\ + e^{-\alpha L/2} \sum_{n \neq 0} E_{S, \omega_{n}}(x, y, z, t) e^{i\omega_{n} t}$$
(5.16)

Le premier terme du champ correspond aux photons non marqués qui participent à l'hologramme. Il faut ensuite ajouter les autres composantes aux fréquences supérieures qui sont seulement affectée par l'absorption du cristal.

5.3.3 Détection du signal acousto-optique

Sommation sur une photodiode de grande surface Le signal est détecté sur une photodiode de grande surface et de grande bande passante placée après le cristal. Le signal S_{PD} délivré par le détecteur est égal à l'intégration de $|E_S|^2$ sur la surface de collection.

Nous pouvons alors exprimer S_{PD} à partir de l'équation 5.16 :

$$S_{PD}(t) = \int dx \int dy \ |E_S(x, y, t)|^2$$
(5.17)

Dans un cas plus général, cette équation comprendrait des sommations sur les trajets optiques et des sommations sur les événements de diffusion. Pour calculer $|E_S(x, y, t)|^2$, nous remplaçons d'abord, $e^{\Gamma L/2} - 1$ par η_d , l'efficacité de diffraction :

$$|E_{S}(x, y, t)|^{2} = \alpha^{2} e^{-\alpha L} I_{S} \Big| \eta_{d} + \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_{n} \Big(\beta P_{US} f(t - \frac{y}{v_{US}}) \Big) e^{in(\delta(x,y) - \frac{y}{v_{US}})} e^{in\omega_{US}t} \Big|^{2} \\ = \alpha^{2} e^{-\alpha L} I_{S} \Big[\eta_{d}^{2} + 1 + 2\eta_{d} J_{0} \Big(\beta P_{US} f(t - \frac{y}{v_{US}}) \Big) \\ + \sum_{n \neq 0} J_{n} \Big(\beta P_{US} f(t - \frac{y}{v_{US}}) \Big) cos \Big(n(\delta(x, y) - \frac{y}{v_{US}} + \omega_{US}t) \Big) \Big]$$
(5.18)

Remarque : Le passage de la première ligne à la deuxième ligne de l'expression 5.18 se fait en utilisant le fait que : $\sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} J_n(z)e^{in\phi} \times \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} J_n(z)e^{-in\phi} = e^{zsin(\phi)}e^{-zsin(\phi)} = 1.$

Le dernier terme de l'expression 5.18 ne contient que les termes pairs (les termes impairs s'annulent). Ces termes sont de fréquences élevées (pour n = 2, $n\omega_{US} > 5$ MHz), ils sont donc filtrés par la bande passante de la photodiode.

Analyse des différentes contributions Nous obtenons enfin, une expression contenant trois termes :

$$S_{PD}(t) = e^{-\alpha L} I_S \int dx \int dy \ \alpha^2(x, y) \left[1 + \eta_d^2 + 2\eta_d J_0 \left(\beta P_{US} f(t - \frac{y}{v_{US}}) \right) \right]$$
(5.19)

Cette expression possède deux termes continus qui correspondent au faisceau objet transmis par le cristal et à la diffraction de la pompe sur le réseau (terme en η_d^2), et un terme croisé. Le dernier terme est modulé dans le temps par f(t) et constitue notre signal utile. En effet ce terme variable exprime la modulation acousto-optique par l'impulsion ultrasonore, et donc la création des photons marqués en fonction de la position de l'impulsion ultrasonore sur l'axe y. Ce terme variable dépend aussi de la densité locale de photons par la variable $\beta(x, y)$ qui exprime l'efficacité de marquage.

Deux cas de figure se présentent :

- Si $\Gamma > 0$ alors η_d est une constante positive et le terme variable représente une chute du signal (par création de photons marqués) à partir d'un niveau non nul correspondant au signal amplifié par mélange à deux ondes.
- Si Γ < 0 alors η_d tend vers -1 et le terme variable représente une augmentation du signal (par création de photons marqués) à partir d'un niveau non nul correspondant au signal non amplifié par mélange à deux ondes. Ce deuxième cas correspond à une configuration en gain négatif et montre que l'on peut transmettre un signal à travers un cristal par adaptation de front d'onde sans en amplifier la composante continue.

Nous verrons, dans la partie expérimentale, que nous pouvons être dans l'un ou l'autre des cas et qu'il existe des avantages à la configuration dite en gain négatif.

Enfin, il ne faut pas négliger la contribution de la diffusion de la pompe et du *fanning* sur le signal détecté. En effet, cette contribution ajoute une composante continue très élevée à notre signal qui est souvent à l'origine de la saturation du détecteur.

5.4 Description de l'expérience

Dans cette section nous allons présenter le montage expérimental de l'imagerie acoustooptique résolue en temps dans la fenêtre thérapeutique optique.

5.4.1 Montage expérimental

Schéma de l'expérience La figure 5.4 présente le schéma expérimental de l'imagerie acousto-optique résolue en temps. Ce schéma est simplifié dans la mesure où les faisceaux empruntent des chemins différents en réalité pour des raisons d'encombrement. Nous avons choisi un cristal de SPS :Te (hypothiodiphosphate d'étain dopé tellure) pour réaliser une holographie photoréfractive dans la fenêtre thérapeutique optique. Il présente des propriétés assez remarquables à cette longueur d'onde comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent.

Description du montage Un faisceau laser continu à 780 nm est séparé en deux bras grâce à une cube séparateur de polarisation (PBS) : un bras référence et un bras signal.

La répartition de puissance entre les deux bras est ajustée par une lame demi-onde. Ces deux bras interfèrent au niveau du cristal photoréfractif. Le faisceau référence d'environ 100 mW est polarisé horizontalement et est directement envoyé sur le cristal. Le faisceau signal est d'abord amplifié par un MOPA (Master Oscillator Power Amplifier) fonctionnant à 780 nm avant d'être envoyé sur un échantillon diffusant. Le faisceau peut être éventuellement élargi grâce à la lentille L1. Deux modulateurs acousto-optiques (MAO1 et MAO2) sont utilisés de façon accessoire sur chaque bras. En effet, ils ne sont pas nécessaires pour l'imagerie mais peuvent s'avérer utiles dans le cas où nous souhaitons ajouter une modulation à l'un des faisceaux. Cela peut être le cas pour l'optimisation du mélange à deux ondes où une modulation d'amplitude est appliquée au bras signal ou référence pour la visualisation de l'effet photoréfractif.

L'échantillon diffusant à imager est plongé dans une cuve en PMMA remplie d'eau. La description des échantillons, ainsi que leur fabrication est donnée dans l'annexe E. Ils sont constitués d'eau, d'agar et d'Intralipide. Cet échantillon est parcouru par une onde ultrasonore émise par un transducteur piézoélectrique (PZT). Ce transducteur focalisé est alimenté par une tension sinusoïdale modulée en amplitude avec un très faible rapport cyclique afin de générer des impulsions brèves. Pour des raisons de visibilité, l'ensemble cuve et transducteur est représenté dans un plan perpendiculaire à celui du schéma. L'onde ultrasonore est émise selon l'axe y, la lumière se propageant selon z.

La lumière diffusée par l'échantillon (photons marqués et non marqués) est ensuite collectée par un ensemble de lentilles asphériques de grande ouverture afin d'être focalisée dans le cristal. La première lentille est disposée directement à la sortie de l'échantillon afin de collecter le maximum de flux possible. D'autres lentilles permettent de collecter la lumière transmise par le cristal et de la focaliser sur la photodiode (PD).

Le signal issu de la photodiode est ensuite amplifié par un pré-amplificateur bas bruit (PA) qui supprime le continu. Le signal amplifié est ensuite visualisé sur un oscilloscope. L'oscilloscope étant synchronisé sur le signal ultrasonore, nous pouvons directement observé l'évolution temporelle de la quantité de photons non marqués lors du passage de l'impulsion ultrasonore dans le milieu.

Matériel expérimental Voici la liste et les caractéristiques du matériel utilisé :

- Un laser Ti :Saphir accordable(Coherent MBR 110) pompé par un laser Nd : YVO₄ doublé pompé par diode (Coherent Verdi 5 W). Nous utilisons ce laser à 780 nm, longueur d'onde de fonctionnement de l'amplificateur. Au meilleur de sa forme, ce laser a une puissance de 600 mW, mais lors des expériences d'imagerie acousto-optique sa puissance oscillait autour de 280 mW. En effet, la puissance de ce laser n'est pas stable car sa cavité n'est pas mise sous pression, les optiques se salissent alors très vite. De plus, il fonctionne non loin de son seuil, il a donc été très souvent nécessaire de régler l'injection afin de retrouver l'effet laser. Dans tous les cas il a été nécessaire d'améliorer l'injection à chaque mise en marche afin d'optimiser la puissance en sortie.
- Un amplificateur optique à semi-conducteur (MOPA) TEC-400 de Sacher Lasertechnik. Cet amplificateur est alimenté par un faisceau provenant du laser Ti :Saphir d'une puissance maximale de 20 mW et peut émettre jusqu'à 2 W. Le faisceau de sortie à 780 nm garde ses propriétés spectrales et sa cohérence temporelle. Du point



Figure 5.4 – Montage expérimental de l'imagerie acousto-optique résolue en temps. PBS : cube séparateur de polarisation, $\lambda/2$: lame demi-onde, MAO : modulateur acousto-optique, FI : isolateur de Faraday, MOPA : amplificateur à semiconducteur, L1, L2, L3, L4, L5 : lentilles, PD : photodiode, PA : pré-amplificateur.

de vue spatial, le faisceau présente un mode lié à la cavité planaire. L'éclairement n'est donc pas uniforme mais cela n'est pas limitant dans la mesure où il sert à illuminer un échantillon diffusant. Cet amplificateur est assez difficile à aligner et il a fallu le refaire assez souvent notamment lorsque le laser Ti :Saphir est désaligné. Son bon fonctionnement nécessite de prendre quelques précautions. L'amplificateur est, en effet, très sensible aux retours de lumière. Nous avons alors utilisé des isolateurs optiques de Faraday (FI) pour éviter les réflexions parasites.

- Deux modulateurs acousto-optiques AA OptoElectronics fonctionnant autour de 80 MHz avec une efficacité de diffraction de 70%, précédés de deux amplificateurs de puissance large bande, eux-mêmes alimentés par deux générateurs de fonction Agilent 33220A. Ces modulateurs sont alimentés à la même fréquence (80 MHz) pour l'imagerie en configuration homodyne.
- Un transducteur piézoélectrique ultrasonore Panametrics A395S (PZT) de focale $f_{US} = 75mm$, d'ouverture 38 mm, et de fréquence nominale $\omega_{US} = 2.3 \ MHz$. Ces caractéristiques donnent une largeur de la zone de focalisation égale à 1.2 mm. Ce transducteur est alimenté par un générateur de fonction Tektronix AFG3252 dont le signal est amplifié par un amplificateur de puissance large bande EI 325LA (25 W). En fonction de la résolution souhaitée, nous appliquons quelques cycles à 2.3 MHz avec une cadence de 1 ms. La caractérisation de ce transducteur est donnée dans l'annexe D.
- Une platine de translation linéaire motorisée pas à pas (Newport M-ILS150PP) contrôlée par un contrôleur Newport ESP300 relié par un cable GPIB à un ordinateur.
- Un cristal de SPS : Te. Il s'agit de l'échantillon numéro 1 caractérisé dans le chapitre précédent, ayant une face d'entrée de dimensions 6.1 mm x 4.2 mm et une épaisseur 2.2 mm.
- Une photodiode Silicium à gain variable Thorlabs PDA 36A de surface active 3.6 mm x 3.6 mm et de bande passante à 0 dB égale à 17 MHz. Elle possède une sensibilité de 0.48 A/W à 800 nm.
- Un pré-amplificteur bas bruit large bande HMS/ITHACO Model 571. Cet amplificateur possède un gain de 20 ou 40 dB et une bande passante comprise entre 10 kHz et 50 MHz. Il va être particulièrement efficace pour les variations rapides du signal (objets de petite taille par exemple), la limite est alors la bande passante de la photodiode surtout en fort gain. En revanche, pour les faibles variations, il va avoir tendance à déformer le signal.
- Un oscilloscope Tektronix TDS 2024B de bande passante 200 MHz et qui échantillone à 2 GS/s. Il est relié par câbles USB à un ordinateur pour l'acquisition des signaux.

Alignement et réglage de l'expérience L'expérience a du être réalignée à plusieurs reprises dans le but de tester soit des cristaux différents, soit d'autres configurations. La principale difficulté réside dans l'alignement des lentilles de collection et dans la réalisation d'un mélange à deux ondes efficace avec de la lumière diffusée.

La première étape consiste à mettre en place le mélange à deux ondes dans le cristal photoréfractif en l'absence de milieu diffusant et de lentilles. La référence est alors modulée en amplitude pour pouvoir observer à l'oscillocope une amplification du faisceau signal. Il faut ensuite optimiser le gain photoréfractif en ajustant l'angle entre les faisceaux ainsi que leur superposition dans le cristal. Une fois le mélange à deux ondes optimisé, nous commençons par placer un objet faiblement diffusant (une feuille de papier blanc ou un verre dépoli) sur le bras signal de telle façon à maintenir une amplification du faisceau par mélange à deux ondes.

Nous pouvons alors mettre en place les lentilles de collection de façon à ne pas perdre le signal puis mettre enfin un milieu très diffusant. Il est en général difficile d'observer le mélange à deux ondes avec un milieu très diffusant car le signal est très faible (quelques dizaines de μW arrivent au détecteur en moyenne). Nous pouvons alors optimiser la collection du flux et la transmission à travers le cristal en maximisant le niveau de signal continu sur la photodiode en l'absence de pompe. La pompe diffusée par le cristal constitue environ 80% du signal continu. Pour cette raison, nous devons nous mettre dans une configuration non optimale pour le gain phototréfractif en agrandissant l'angle entre les faisceaux pour éloigner le faisceau pompe transmis du détecteur. De plus il est impossible d'utiliser le cristal avec des faisceaux symétriques par rapport à la face d'entrée. La raison est que le cristal n'est pas traité anti-reflet et la réflexion de la pompe sur la face d'entrée est diffusée vers le détecteur par les lentilles de grand diamètre placées devant le cristal. Il faut alors tourner le cristal face au faisceau sonde comme le montre le schéma expérimental (figure 5.4) afin d'agrandir l'angle de la pompe par rapport à la normale de la face et ainsi éloigner sa réflexion des lentilles. Toutes ces limites, qui apparaissent uniquement lorsqu'on ajoute un milieu diffusant, ont fait qu'il a fallu recommencer l'alignement à plusieurs reprises afin de trouver un compromis entre le gain photoréfractif et la saturation de la détection, l'objectif étant de minimiser la contribution de la pompe au signal continu.

5.4.2 Acquisition des données

Images acousto-optiques Pour la réalisation d'une cartographie acousto-optique, le transducteur PZT est déplacé grâce à la platine motorisée le long de l'axe x (figure 5.4). Pour chaque position du transducteur, le signal temporel est enregistré. Ce signal représente la variation de la quantité de photons marqués le long de la colonne acoustique lors du passage de l'impulsion ultrasonore, il s'agit d'un profil acousto-optique.

Ce profil est par ailleurs visualisé en temps réel sur l'écran de l'oscilloscope. Cela permet de régler en temps réel la position du transducteur afin d'optimiser le signal acoustooptique. Il faut d'abord optimiser le signal en l'absence d'objet au niveau de la colonne acoustique. Pour cela, il faut optimiser la position du transducteur dans les trois dimensions afin de maximiser la chute du signal due à la création de photons marqués. Il suffit ensuite de déplacer l'échantillon dans les trois dimensions pour centrer l'objet à imager.

Pour réaliser une image en deux dimensions, il faut enregistrer le profil acousto-optique pour chaque position du transducteur et assembler ensuite les signaux obtenus. Pour remonter à la position, il suffit de convertir le temps en distance grâce à la vitesse des ultrasons. La résolution de l'imagerie est choisie grâce au nombre de cycles appliqués au transducteur (4 cycles à 2.3 MHz donnent une impulsion de 1.7 μs et donc une résolution de 2.7 mm).

Dans un souci de clarté, je rappelle que la lumière se propage selon l'axe z, les ultrasons selon l'axe y et la platine réalise une translation selon l'axe x. Ainsi, une image en deux dimensions (x,y) correspond à une coupe à un z fixé. Elle représente donc un plan perpendiculaire à la direction de propagation moyenne de la lumière.

Traitement du signal Le signal acousto-optique est moyenné à l'oscilloscope. Ce moyennage sera choisi en fonction de l'échantillon et de son épaisseur optique. La figure 5.5 montre l'effet du moyennage sur le signal en l'absence et en présence d'une excitation ultrasonore. La chute du signal représente la création de photons marqués. Nous remarquons que le moyennage permet seulement de lisser le signal. Ce traitement pourrait donc être appliqué numériquement sur les données pour réduire le temps d'acquisition. Nous remarquons par ailleurs que le signal n'est pas symétrique, ceci est dû à la bande passante du pré-amplificateur qui n'est pas appropriée.

Les images présentées dans la suite sont issues des données moyennées auxquelles nous avons appliqué un filtre gaussien passe-bas en deux dimensions. Ce filtre gaussien permet de lisser l'image, réduire le bruit en la convoluant en chaque point avec une gaussienne. Toutefois, il faut faire attention à ne pas appliquer un filtre trop fort, dans la mesure où un filtre gaussien a tendance à gommer les contours et les fortes transitions. Un *binning* est aussi appliqué selon la direction des ultrasons y. En effet, selon cette direction l'échantillonnage est donné par l'oscilloscope, alors que selon la direction transverse x,



Figure 5.5 – Moyennage du signal acousto-optique à travers un échantillon de 3.8 cm d'épaisseur ($\mu'_s = 10 \ cm^{-1}$). En haut : signal en l'absence d'ultrasons décalé pour des raisons de visibilité. En bas : signal en présence d'ultrasons (4 cycles à 2.3 MHz) avec différents moyennages à l'oscilloscope.

il est donné par le pas de la platine de translation. Le *binning* permet de regrouper un certain nombre de pixels selon l'axe y, afin d'équilibrer l'échantillonnage de l'image selon les deux directions.

Ordre de grandeur des signaux détectés Le signal de la figure 5.5 est obtenu à travers un échantillon d'épaisseur optique égale à 380 (épaisseur/libre parcours moyen l_s) éclairé par un faisceau de 1.8 W. Le niveau continu sur le détecteur, correspondant à la quantité de photons transmise par l'échantillon et le cristal, est de 712 mV équivalent à $P_{DC} = 9.8 \ \mu W$. La chute du signal par création de photons marqués vaut 160 mV, ce qui équivaut à $P_{AC} = 85 \ nW$, en prenant en compte les facteurs d'amplification de la photodiode et de l'amplificateur. Cette mesure peut nous donner un ordre de grandeur du ratio des photons marqués en tenant compte du gain photoréfractif :

$$\frac{N_{photons}}{N_{photons}^{marqués}} = e^{\Gamma L} \cdot \frac{P_{DC}}{P_{AC}} \simeq 3 \cdot \frac{9.6 \ 10^{-6}}{85 \ 10^{-9}} \simeq 340$$
(5.20)

L'équation 5.20 prend en compte le gain photoréfractif ($\Gamma = 5 \ cm^{-1}$) et l'épaisseur ($L = 0.22 \ cm$) du cristal numéro 1. Sur le détecteur le signal associé aux photons marqués est plus de 100 fois plus faible que celui des photons non marqués. Cela donne un ratio d'environ 300, c'est à dire qu'avec 4 cycles d'ultrasons, un photon sur 300 est modulé. Cette valeur est assez raisonnable et nous renseigne sur l'efficacité du marquage acoustique.

5.5 Résultats expérimentaux

Dans cette partie, nous allons présenter les différents résultats obtenus avec le montage expérimental précédemment décrit. Nous allons d'abord imager des objets absorbants, puis étudier l'évolution du signal acousto-optique avec la pression acoustique et la durée de l'impulsion ultrasonore. Nous allons ensuite montrer qu'il est possible d'observer un contraste acousto-optique de diffusion avant de montrer nos premières images acoustooptiques en trois dimensions.

5.5.1 Imager un contraste d'absorption

L'observation d'un contraste acouto-optique en présence d'un objet absorbant est assez facile à comprendre dans la mesure où le signal acousto-optique est proportionnel à la densité locale de photons. Les objets absorbants sont constitués du même gel que la matrice auquel nous avons ajouté de l'encre de chine (Annexe E).

Imagerie d'une seule inclusion absorbante

La figure 5.6 présente les premiers résultats obtenus avec les cristal de SPS : Te numéro 1. Les conditions expérimentales sont données ci-dessous. L'objet absorbant est un cylindre de diamètre 3 mm et de hauteur 8 mm selon l'axe z et l'échantillon possède une épaisseur optique d'environ 140. Nous réalisons une image dans le plan (x,y), nous nous attendons donc à observer un disque au niveau duquel le signal chute. Pour une meilleure compréhension, nous avons inversé le signal issu de l'oscilloscope. Ainsi, une chute du signal correspond à une chute de la quantité de photons marqués.

L'injection lumineuse a été étendue grâce à une lentille à $2 \ cm^2$ et la puissance incidente est de 240 mW. Cette expérience a été réalisée avant l'acquisition du MOPA, le faisceau provient donc directement du laser Ti :Saphir. La conséquence est que nous ne sommes pas dans les meilleures conditions du mélange à deux ondes (puissance de la référence faible). Cela n'est pas critique pour le gain photoréfractif puisque avec un éclairement de $0.5 \ W/cm^2$, nous sommes presque à saturation. Le temps de réponse par contre est plus élevé($\simeq 20 \ ms$). Ces conditions imposent un temps d'acquisition plus long.

Conditions expérimentales 5.6:

- Echantillon : Agar/Intralipide, $L = 2.3 \ cm, \ \mu'_s = 6 \ cm^{-1}, \ l^* = 1.6 \ mm, \ 1 \ inclusion \ d = 3 \ mm.$
- $P_{echantillon} = 240 \ mW$, lentille d'injection.
- Ultrasons : 3 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 2 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}1$, $P_{pompe} = 24 \ mW$ équivalent à $0.5 \ W/cm^2$.
- Pas du scan : 0.5 mm, Moyennage : 1x128 moyennes, Gain PD : 30 dB.

La figure 5.6(a) montre une image en deux dimensions d'une coupe au milieu de l'échantillon. Les figures 5.6(b) et (c) montrent respectivement les profils transverse et axial extraits de l'image précédente. Nous remarquons que le contraste de l'objet absorbant est très élevé. Nous pouvons en donner une valeur en ajustant avec la répartition théorique du flux lumineux.



Figure 5.6 – Imagerie d'une inclusion absorbante de diamètre 3 mm à travers une épaisseur optique éagle à 140 : (a) Image acousto-optique en deux dimensions et photographie d'une coupe de l'échantillon, (b) Profil transverse, (c) Profil axial.

La figure 5.7(a) présente le profil axial expérimental obtenu en points noirs. La courbe rouge correspond à la répartition théorique du flux lumineux dans l'échantillon selon :

$$\phi_{diff} = \phi_0 \frac{\exp(-\mu_{eff}r)}{r} \tag{5.21}$$

Elle tient compte aussi de répartition spatiale gaussienne de la lumière incidente. Cela permet d'exprimer simplement la répartition lumineuse à un point de l'échantillon, mais en toute rigueur, il aurait fallu aussi prendre en compte l'atténuation entre le plan d'imagerie (qui se trouve au milieu de l'échantillon) et la face de sortie.

La soustraction des deux profils permet d'extraire l'objet absorbant comme le montre la figure 5.7(b). Le contraste obtenu est supérieur à 0.9. Théoriquement, cette valeur devrait être égale à 1 car d'une part l'objet est totalement absorbant et d'autre part la résolution Δy choisie est plus petite que le diamètre de l'objet. Mais il faut garder en mémoire le fait que la faisceau ultrasonore n'est pas uniforme mais focalisé. Cet écart peut donc provenir du fait que le foyer ne se trouve pas exactement au niveau de l'inclusion. Des photons pourraient alors être marqués selon l'axe x de part et d'autre de l'inclusion, ce qui compenserait l'absorption. La largeur à mi-hauteur mesurée vaut $\Delta y_{1/2} = 4 \ mm$. Cette valeur est très proche de la valeur réelle et nous donne une très bonne estimation de la taille de l'objet. L'écart peut provenir d'un effet mémoire du milieu causé par la diffusion. On pourrait imaginer que l'inclusion absorbante crée une ombre tout autour d'elle.

Imagerie de deux inclusions absorbantes

Nous considérons maintenant un échantillon contenant deux inclusions absorbantes de diamètre 3 mm séparées de 2.5 mm. L'échantillon possède une épaisseur optique de 360. La figure 5.8(a) montre l'image obtenue en deux dimensions en appliquant une impulsion ultrasonore de taille 1.3 mm. Nous remarquons que les inclusions sont résolues. Une photographie d'une coupe de l'échantillon selon le plan (x,z) est présentée sur la figure 5.8(b). Les centres des deux cylindres sont séparés de 5.5 mm et nous remarquons que les objets font presque 2 cm de long. Ce dernier point est important car le signal est d'autant plus atténué que le volume des inclusions est grand. La figure 5.8(c) montre le profil axial et donne un écart mesuré entre les objets égal à 6 mm, ce qui est très cohérent. Le contraste



Figure 5.7 – Extraction de l'objet absorbant : (a) Profil axial issu de l'image et ajustement théorique de l'enveloppe, (b) Mise en évidence de l'objet absorbant par la différence de l'enveloppe théorique et du profil expérimental.

des inclusions vaut 0.8. Le signal par contre ne remonte pas jusqu'au maximum entre les deux objets, ce qui devrait être le cas (l'origine pourrait être la bande passante du détecteur).



Figure 5.8 – Imagerie de deux inclusions absorbantes de diamètre 3 mm séparées de 2.5 mm à travers une épaisseur optique égale à 360 : (a) Image acousto-optique en deux dimensions, (b) Photographie d'une coupe de l'échantillon selon le plan (x,z), (c) Profil axial et enveloppe théorique.

Conditions expérimentales 5.8:

- Echantillon : Agar/Intralipide, $L = 3.6 \ cm, \ \mu'_s = 10 \ cm^{-1}, \ l^* = 1 \ mm, \ 2$ inclusions $d = 3 \ mm,$ séparées de 2.5 mm.
- $P_{echantillon} = 1.3 W.$
- Ultrasons : 2 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 1.3 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}1$, $P_{pompe} = 100 \ mW$.
- Pas du scan : 0.5mm, Moyennage : 2x128 moyennes, Gain PD : 40 dB.
- Niveau DC : 312 mV équivalent à 4.3 μW .
- Chute AC : 9.5 mV équivalent à 5 nW.

La résolution axiale apportée par l'IAORT permet de résoudre deux objets à travers un milieu très épais et très diffusant. Il est intéressant de savoir maintenant si il est possible de discriminer deux objets d'absorptions différentes.

La figure 5.9(a) représente l'image en deux dimensions de deux inclusions d'absorptions différentes placées selon l'axe y. Le contraste est différent pour les deux objets. Le contraste de l'objet du bas vaut deux fois celui de l'objet du haut (figure 5.9(b)). Si nous estimons les coefficients d'extinction des deux objets à partir des valeurs des coefficients d'absorption utilisés (voir les conditions expérimentales ci-dessous) nous trouvons : $\mu_{eff1} = 13 \ cm^{-1}$ et $\mu_{eff2} = 28 \ cm^{-1}$. Le rapport μ_{eff2}/μ_{eff1} vaut 2.15, ce qui est cohérent avec les valeurs de contraste mesurées.



Figure 5.9 – Imagerie de deux inclusions d'absorptions différentes de diamètre 3 mm séparée de 2.5 mm à travers une épaisseur optique égale à 300 : (a) Image acousto-optique en deux dimensions et photo d'une coupe de l'échantillon selon le plan (x,y), (b) Profil axial et enveloppe théorique.

Conditions expérimentales 5.9 :

- Echantillon : Agar/Intralipide, $L = 3 \ cm, \ \mu'_s = 10 \ cm^{-1}, \ l^* = 1 \ mm, \ 2$ inclusions $d = 3 \ mm,$ séparées de 2.5 mm et d'absorptions différentes ($\mu_{a1} = 4 \ cm^{-1}$ et $\mu_{a2} = 12 \ cm^{-1}$).
- $P_{echantillon} = 1 W$, lentille d'injection.
- Ultrasons : 3 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 2 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}1$, $P_{pompe} = 100 \ mW$.
- Pas du scan : 0.5 mm, Moyennage : 4x128 moyennes, Gain PD : 60 dB.
- Niveau DC : 832 mV équivalent à 1.14 $\mu W.$

Le même échantillon a été imagé dans l'autre sens (tourné de 90 degrés autour de l'axe z). Cette fois-ci la séparation des deux inclusions est due à la résolution transverse. La figure 5.10 montre les résultats obtenus. Les inclusions sont mieux séparées et la distance entre les deux objets vaut 6 mm comme le montre la figure 5.10(c).

Conditions expérimentales 5.10 :

- Echantillon : Agar/Intralipide, $L = 3 \ cm, \ \mu'_s = 10 \ cm^{-1}, \ l^* = 1 \ mm, \ 2$ inclusions $d = 3 \ mm,$ séparées de 2.5 mm et d'absorptions différentes ($\mu_a = 4 \ cm^{-1}$ et $\mu_a = 12 \ cm^{-1}$).
- $P_{echantillon} = 1 W$, lentille d'injection.
- Ultrasons : 4 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 2.7 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}1$, $P_{pompe} = 100 \ mW$.
- Pas du scan : 0.5 mm, Moyennage : 2x128 moyennes, Gain PD : 60 dB.



Figure 5.10 – Imagerie de deux inclusions transverses d'absorptions différentes de diamètre 3 mm séparées de 2.5 mm à travers une épaisseur optique égale à 300 : (a) Image acousto-optique en deux dimensions et photographie d'une coupe de l'échantillon selon le plan (x,y), (b) Profil axial et enveloppe théorique, (c) Contraste des inclusions.

• Niveau DC : 832 mV équivalent à 1.14 $\mu W.$

Imagerie dans un tissu biologique

Pour passer à un milieu plus réaliste qu'un échantillon d'Agar/Intralipide, nous avons imagé des objets absorbants enfouis dans du blanc de poulet. La figure 5.11 montre les résultats obtenus à travers un échantillon de 2.6 cm d'épaisseur dans lequel un seul objet de forme un peu quelconque a été enfoui. Le contraste obtenu est de 0.9.

Nous pouvons aussi remarquer que le diamètre de la tache de diffusion est inférieur à celui observé avec les gels d'Agar. Cela s'explique par le fait que le poulet est beaucoup plus absorbant que les gels, la taille de la banane de diffusion en est réduite. Il devient alors difficile d'imager plusieurs objets sans agrandir le faisceau incident et la puissance du laser non amplifié ne permettrait pas de traverser une telle épaisseur en élargissant le faisceau.



Figure 5.11 – Imagerie d'une inclusion absorbante à travers un échantillon de poulet d'épaisseur 2.6 cm : (a) Image acousto-optique en deux dimensions et photographie d'une coupe de l'échantillon, (b) Profil axial.

Conditions expérimentales 5.11:

- Echantillon : Blanc de poulet, $L = 2.6 \ cm, 1$ inclusion $d = 3 \ mm.$
- $P_{echantillon} = 220 \ mW.$
- Ultrasons : 4 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 2.7 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}1$, $P_{pompe} = 40 \ mW$.
- Pas du scan : 0.5 mm, Moyennage : 1x128 moyennes, Gain PD : 40 dB.

Après l'acquisition du MOPA, nous avons renouvelé l'expérience à travers une épaisseur de poulet de 4 cm dans laquelle deux objets ont été enfouis. Le faisceau incident est élargi grâce à une lentille. Les deux objets sont séparés d'environ 5 mm selon la direction x mais cette distance n'est pas constante comme le montre la figure 5.12(b) en raison de la difficulté d'enfouir des objets dans un tissu mou. Les inclusions sont bien séparées par l'imagerie comme le montre la figure 5.12(c). L'aspect de l'image en deux dimensions (figure 5.12(a)) provient de l'éclairement non uniforme provenant du MOPA puis élargi grâce à la lentille.





Conditions expérimentales 5.12 :

- Echantillon : Blanc de poulet, $L = 4 \ cm$, 2 inclusions $d = 3.5 \ mm$, séparées de 5 mm.
- $P_{echantillon} = 1 W$, lentille d'injection.
- Ultrasons : 5 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 3.3 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}1$, $P_{pompe} = 120 \ mW$.
- Pas du scan : 1 mm, Moyennage : 10x128 moyennes, Gain PD :60dB.
- Niveau DC : 1.16 V équivalent à 1.6 μW .
- Niveau DC hors inclusion : 5 V équivalent à 6.9 μW .

Amélioration

Les résultats présentés ci-dessus montrent les bonnes performances que permet d'atteindre l'utilisation du cristal de SPS : Te pour l'imagerie acousto-optique. Elles sont liées à la fois à l'importance du gain photoréfractif et à la longueur d'onde de travail beaucoup moins absorbée par les tissus biologiques. Un nouveau cristal Le cristal numéro 1 reste de petite taille malgré ses très bonnes performances, ce qui réduit l'étendue optique de notre détection des photons marqués. Nous avons pu obtenir un cristal de plus grande taille (le cristal numéro 4), sachant que la méthode de croissance du SPS en limite la taille maximale. Ce cristal, grâce à sa grande épaisseur (6.8 mm), permet d'atteindre des facteurs d'amplification de l'ordre de 30. Sa face d'entrée (6.5 mm x 9 mm) est plus grande permettant ainsi d'améliorer l'étendue optique de la détection. Cependant, cette forte amplification fait apparaître du *fanning*. Il devient alors difficile de l'utiliser dans la même configuration que le cristal numéro 1, car ce bruit de *fanning* sature très vite le détecteur.

Passage en gain négatif Pour remédier à cela et profiter des avantages de ce cristal, nous avons décidé de le tourner et de nous mettre en configuration de gain négatif. L'équation 5.17 montre qu'il est possible de transmettre une modulation d'amplitude brève en gain négatif. Dans ce cas-là, le bruit de *fanning* ne se trouve plus superposé au faisceau signal transmis.

La figure 5.13 montre que l'on peut imager à travers une épaisseur optique de 520. Le signal continu détecté est de seulement $3.5 \ \mu W$ mais cela n'empêche pas de réaliser une image avec un bon rapport signal à bruit avec 1x128 moyennes et 2 cycles d'ultrasons. Nous allons voir dans la suite que, plus l'impulsion ultrasonore est courte, meilleure en est la résolution au détriment du niveau de signal.



Figure 5.13 – Imagerie d'une inclusion absorbante de diamètre 3 mm à travers une épaisseur optique égale à 520 : (a) Image acousto-optique en deux dimensions, (b) Profil axial, (c) Contraste de l'objet.

Conditions expérimentales 5.13 :

- Echantillon : Agar/Intralipide, $L = 5.2 \text{ cm}, \mu'_s = 10 \text{ cm}^{-1}, l^* = 1 \text{ mm}, 1 \text{ inclusion } d = 3 \text{ mm},$
- $P_{echantillon} = 1.3 W.$
- Ultrasons : 2 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 1.3 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}4$, $P_{pompe} = 100 \ mW$.
- Pas du scan : 0.5 mm, Moyennage : 1x128 moyennes, Gain PD : 50 dB.
- Niveau DC : 900 mV équivalent à 3.9 μW .
- Chute AC : 128 mV équivalent à 22 nW.

Les figures 5.13(b) et (c) montre respectivement le profil axial et l'inclusion extraite. Le contraste est de 0.8 mais la largeur à mi hauteur $\Delta y_{1/2}$ vaut 8 mm ce qui est bien supérieur à la taille réelle de l'objet. En effet le gain de la photodiode est ici très élevé (50 dB), ce qui diminue sa bande passante et déforme le signal (surtout les variations rapides).

L'utilisation d'une photodiode de plus grande surface (Thorlabs PDA100A) de diamètre 9.8 mm nous a permis de multiplier par un facteur 6 le niveau de signal détecté avec le même échantillon ($P_{DC} = 22 \ \mu W$). C'est le rapport des surfaces des deux détecteurs (75 $mm^2/13 \ mm^2$). Néanmoins, cette amélioration reste discutable dans la mesure où la bande passante de ce détecteur est limitée à 1.5 MHz à 0 dB.

Enfin, il a été possible d'acquérir dans cette configuration un profil acousto-optique à travers un gel de 7 cm d'épaisseur soit 700 l_s (figure 5.14).



Figure 5.14 – Profil acousto-optique à travers un échantillon d'épaisseur 700 l_s .

Quantification de l'amélioration Pour quantifier l'amélioration obtenue avec le cristal numéro 4, nous pouvons comparer l'expérience de la figure 5.13 avec celle de la figure 5.8, réalisée avec le cristal numéro 1. Le choix de ces deux expériences est justifié par le fait qu'elles ont été réalisées avec la même pression acoustique et le même nombre de cycles pour l'onde ultrasonore, à savoir 2. Les différences entre les deux expériences viennent du fait que les échantillons n'ont pas la même taille et ne contiennent pas le même nombre d'inclusions. Mais cette dernière différence peut être estimée.

Nous allons donc commencer par estimer l'atténuation de chaque échantillon. Nous désignerons par l'indice 1 l'expérience 5.8 et 2 l'expérience 5.13. La transmission d'un échantillon est égale à $e^{-\mu_{eff}L}$. Les coefficients d'absorption à 780 nm de la matrice et des inclusions valent respectivement 0.05 cm^{-1} et 10 cm^{-1} . Si l'on estime que les inclusions de l'échantillon 1 occupent 1% du volume occupé par la lumière et que l'inclusion de l'échantillon 2 en occupe 0.3%, nous pouvons estimer leurs coefficients d'absorption moyens respectifs : $\mu_{a1} = 0.15 \ cm^{-1}$ et $\mu_{a2} = 0.08 \ cm^{-1}$. A partir de ces valeurs nous pouvons calculer les coefficients de diffusion effectifs ($\mu_{eff} = \sqrt{3\mu_a(\mu_a + \mu'_s)}$) :

$$\mu_{eff1} = 2.14 \ cm^{-1} \ \text{et} \ \mu_{eff2} = 1.56 \ cm^{-1}$$
 (5.22)

En tenant compte des épaisseurs des gels (respectivement 3.6 cm et 5.2 cm), nous trouvons les facteurs d'atténuation suivant :

$$A_1 = e^{-\mu_{eff1}L_1} = 4.5 \ 10^{-4} \text{ et } A_2 = e^{-\mu_{eff2}L_2} = 3.0 \ 10^{-4}$$
 (5.23)

Il est important de remarquer que l'atténuation par extinction du premier échantillon, quoique moins épais est supérieure à celle du deuxième en raisons de la présence de deux inclusions absorbantes.

Nous allons maintenant estimer la transmission de notre détection dans les deux cas. Cette transmission prend en compte l'efficacité de la collection et le facteur d'amplification du cristal photoréfractif. Ainsi nous pouvons exprimer la transmission totale, c'est-à-dire le rapport entre la puissance détectée sur la puissance incidente sur l'échantillon, comme le produit de l'atténuation de l'échantillon par la transmission de la détection : $T = A \times T_{det}$.

Intéressons nous à l'amplification du signal des photons marqués, $T = P_{AC}/P_{echantillon}$:

$$T_{det1}^{p} = \frac{T_{1}}{A_{1}} = \frac{5\ 10^{-9}/1.3}{4.5\ 10^{-4}} = 8.5\ 10^{-6} \text{ et } T_{det2}^{p} = \frac{T_{2}}{A_{2}} = \frac{22\ 10^{-9}/1.3}{3.0\ 10^{-4}} = 5.6\ 10^{-5}$$
(5.24)

Le rapport T_{det2}^p/T_{det1}^p vaut 6.6. Nous détectons presque 7 fois mieux les photons marqués avec le cristal 4. Cette valeur est correcte si l'on considère que le cristal 4 possède un facteur d'amplification 10 fois plus élevé que le cristal 1. La collection du flux dans la deuxième configuration n'est sûrement pas optimale.

Si nous effectuons le même calcul pour les photons non marqués, dont le signal correspond à respectivement 4.3 μW et 3.9 μW sur le détecteur :

$$T_{det1} = \frac{T_1}{A_1} = \frac{4.3 \ 10^{-6}/1.3}{4.5 \ 10^{-4}} = 0.007 \quad \text{et} \quad T_{det2} = \frac{T_2}{A_2} = \frac{3.9 \ 10^{-6}/1.3}{3.0 \ 10^{-4}} = 0.01 \tag{5.25}$$

Ces valeurs nous renseignent sur l'efficacité géométrique de la détection. Nous remarquons qu'un gain a été apporté par le cristal numéro 4 de plus grande taille (facteur de 1.4). Ces photons "non-marqués" ne sont, en effet, pas amplifiées par mélange à deux ondes, seul leur collection par l'ensemble du système optique compte.

Ces données sont, par ailleurs, à comparer à la valeur obtenue pour l'holographie numérique ($R = 5.10^{-5}$). La configuration photoréfractive permet de collecter 200 fois plus de flux.

5.5.2 Dépendance du signal acousto-optique

Dans cette section, nous allons étudier la dépendance du signal acousto-optique par IAORT ainsi que la résolution axiale de l'imagerie.

Dépendance à la pression acoustique

La figure 5.15(a) montre des profils acousto-optiques pour différentes valeurs de la tension appliquée au transducteur ultrasonore et donc différentes valeurs de la pression acoustique (la calibration du transducteur est présentée en Annexe D). L'échantillon utilisé présente une inclusion absorbante en son centre. Nous remarquons une augmentation du signal avec la pression acoustique, c'est ce qui est attendu dans la mesure où la modulation acousto-optique est proportionnelle à l'intensité acoustique locale.



Figure 5.15 – Évolution du signal acousto-optique avec la pression acoustique : (a) Profils acousto-optiques pour différentes valeurs de la pression acoustique. (b) Évolution du signal en fonction de la valeur de la pression pour deux zones différentes de l'échantillon.

La figure 5.15(b) évolue en $1 - J_0(P_{US})$ comme le prévoit la théorie. Au petites pressions cette fonction tend vers P_{US}^2 , le signal acousto-optique est alors linéaire à l'intensité acoustique locale.

Étude de la résolution axiale

La résolution transverse de notre imagerie (axe x) est intrinsèque au transducteur et dépend de sa focale, de son ouverture et de la longueur d'onde acoustique. La résolution axiale Δy est directement liée à la largeur de l'impulsion ultrasonore. Nous allons maintenant vérifier que le signal acousto-optique évolue comme attendu en fonction de la résolution axiale choisie. En effet, nous pouvons simplement comprendre que plus la durée de l'impulsion ultrasonore est courte, meilleure est la résolution. La zone de marquage étant donc plus petite, le signal acousto-optique est plus faible.

Quelques considérations théoriques La résolution axiale attendue pour notre imagerie varie avec la durée de l'impulsion ultrasonore : $\Delta y = v_{US}t_b$. Le signal acousto-optique doit varier linéairement en Δy dans l'hypothèse où le flux est localement homogène.

Nous nous intéressons maintenant à la fonction d'appareil $G(t) = G(y/v_{US})$ de notre imagerie. Nous considérons pour cela la répartition de la lumière dans le milieu. Elle s'exprime comme suit :

$$\phi_{diff}(y) = \phi_0(y) \frac{\exp(-\mu_{eff}r)}{r}$$
(5.26)

où $\phi_0(y)$ tient compte de la répartition spatiale gaussienne de la lumière incidente sur l'échantillon et la coordonnée r peut s'exprimer en fonction de y et de l'épaisseur L du milieu : $r = \sqrt{x^2 + y^2 + L^2}$.

La figure 5.16(a) montre un profil de diffusion pour $\mu_{eff} = 1.7 \ cm^{-1}$ dans lequel nous avons simulé la présence d'une inclusion absorbante de 3 mm.

Les profils axiaux obtenus s'expriment comme le produit de convolution de cette répartition de flux par la fonction d'appareil de notre imagerie. Cette fonction d'appareil est donnée par l'enveloppe de l'impulsion ultrasonore convoluée par la réponse percussionnelle de notre transducteur.

Soit $f(t) = rect(\frac{t}{t_b})$, l'enveloppe de l'excitation ultrasonore. La réponse spectrale du transducteur $H(\nu)$ s'exprime comme une gaussienne centrée en $\nu_{US} = 2.3 MHz$ et d'écart-type $\sigma_{US} = 1.8 MHz$:

$$H(\nu) = e^{-\frac{(\nu - \nu_{US})^2}{2\sigma_{US}^2}}$$
(5.27)

La fonction d'appareil s'exprime alors comme le produit de convolution de f(t) par la transformée de Fourier inverse de $H(\nu)$:

$$G(t) = f(t) * h(t)$$
 (5.28)

$$G(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} rect(\frac{t'}{t_b}) e^{-\frac{(t-t')^2}{2\sigma_t^2}} dt'$$
(5.29)

où $\sigma_t = \frac{1}{2\pi\sigma_{US}}$.

En développant l'équation 5.29 nous pouvons donner une expression de G(t):

$$G(t) = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left[erf(\frac{t+t_b/2}{\sqrt{2}\sigma_t}) - erf(\frac{t-t_b/2}{\sqrt{2}\sigma_t}) \right]$$
(5.30)

où erf(t) est la fonction d'erreur $:erf(t) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^t e^{-t'^2} dt'.$

La fonction d'appareil G(t) est représentée dans la figure 5.16(b) pour différentes valeurs de t_b données en nombre de cycles.

Pour représenter les profils attendus pour chaque résolution, et donc chaque valeur de t_b , nous traçons le produit de convolution de la fonction de répartition du flux $\phi_{diff}(y)$ par G(t) pour les différentes résolutions. Nous remarquons que, comme attendu, plus le nombre de cycles est élevé, plus le signal acousto-optique est fort. Cependant, la résolution en est dégradée. L'inclusion est résolue à 100% jusqu'à 3 cycles qui correspondent à $\Delta y = 2 mm$. Au delà, le contraste commence à chuter.

Images expérimentales Nous allons maintenant analyser l'évolution du signal acoustooptique en fonction de la résolution Δy sur les résultats expérimentaux. Nous avons donc fait varier uniquement le nombre de cycles de l'excitation acoustique. Nous pouvons observer sur la figure 5.17, les images en deux dimensions d'une inclusion absorbante de 3 mm de diamètre obtenues pour différentes résolutions. A un faible nombre de cycles, le





contraste est maximal mais l'image paraît plus bruitée car le signal est plus faible.



Figure 5.17 – Influence de la résolution axiale sur les images acousto-optiques : images obtenues pour des nombres de cycles différents (2 à 6) à travers un échantillon diffusant contenant une inclusion absorbante de 3 mm de diamètre.

Nous pouvons extraire des images précédentes le signal acousto-optique maximal ainsi que le contraste de l'inclusion. De la même façon, nous pouvons extraire ces deux grandeurs des courbes théoriques de la figure 5.16. La figure 5.18(a) montre les données expérimentales en points bleus et les valeurs théoriques attendues en rouge.

L'évolution du signal acousto-optique avec le nombre de cycles est bien linéaire et les résultats expérimentaux sont conformes à la théorie (figure 5.18(a)). Le seul paramètre ajustable est un facteur multiplicatif puisque les courbes théoriques ont été tracées à partir de fonctions normalisées.

En ce qui concerne le contraste, la théorie prévoit un contraste de 1 tant que la résolution



Figure 5.18 – (a) Évolution du signal acousto-optique avec la résolution axiale de l'imagerie. (b) Évolution du contraste de l'inclusion avec la résolution axiale (en rouge les valeurs théoriques et en points bleus les données expérimentales).

choisie Δy est inférieure ou égale à la taille de l'objet (figure 5.18(b)), le contraste chute ensuite. Cependant expérimentalement nous avons toujours un contraste inférieur à celui attendu. Il y a donc un facteur qui dégrade notre résolution expérimentale, sûrement le même qui justifie l'écart observé quelquefois entre les tailles réelles des objets imagés précédemment et les tailles mesurées.

Le caractère focalisé du faisceau ultrasonore peut expliquer, dans certains cas, le fait que la résolution transverse dégrade la résolution axiale. Cependant, pour une résolution de l'ordre de 5 ou 6 mm, cela supposerait que nous avons une erreur sur la position focale de presque 1 cm. Cette hypothèse n'est donc pas suffisante.

La chute du contraste peut être due à un effet de moyennage du signal suite à des instabilités causées par le cristal photoréfractif. Enfin, il peut exister un phénomène d'"ombrage" autour de l'inclusion, absorbante. On pourrait comprendre que tout autour de l'inclusion jusqu'à une distance équivalente au libre parcours moyen de transport, le milieu garde la "mémoire" de l'absorption. Cet effet mémoire serait, bien entendu, plus important lorsque le milieu est plus diffusant.

5.5.3 Imager un objet diffusant

Dans le chapitre 2, nous avons donné les raisons théoriques pour lesquelles il serait possible d'observer un contraste acouto-optique de diffusion. Pour le vérifier, nous avons essayé d'imager un objet fortement diffusant.

Imagerie d'une inclusion diffusante Nous avons enfoui un objet de 5.5 mm de diamètre possédant un libre parcours moyen de transport égal à 0.5 mm dans une matrice où le libre parcours moyen est estimé à 1.6 mm. La figure 5.19 montre qu'il est possible d'observer l'objet avec un contraste de 40%.

Conditions expérimentales 5.19 :



Figure 5.19 – Imagerie d'une inclusion diffusante de diamètre 5 mm à travers une épaisseur optique égale à 180 : (a) Image acousto-optique en deux dimensions, (b) Profil axial.

- Echantillon : Echantillon : Agar/Intralipide, $L = 3 \ cm$, $\mu'_s = 6 \ cm^{-1}$, $l^* = 1.6 \ mm$, 1 inclusion diffusante $d = 5.5 \ mm$, $\mu'_s = 20 \ cm^{-1}$, $l^* = 0.5 \ mm$.
- $P_{echantillon} = 1 W.$
- Ultrasons : 4 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y = 2.7 mm$.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}1$, $P_{pompe} = 100 \ mW$.
- Pas du scan : 0.5 mm, Moyennage : 10x128 moyennes, Gain PD : 40 dB.

Imagerie d'une lésion HIFU Les résultats précédents nous ont pousser à essayer d'imager une lésion créée par des ultrasons focalisés de haute intensité (HIFU pour *High Intensity Focused Ultrasound*). Murray et al. ont montré dernièrement qu'il était possible de contrôler en temps réel la création de lésions HIFU par imagerie acousto-optique [149].

L'échantillon en notre possession a été brûlé en 9 points (3x3) distants de 1 mm. L'expérience de HIFU a été réalisée au laboratoire par Eliott Joseph en stage avec Emmanuel Bossy. La figure 5.20(a) montre l'image en deux dimensions obtenue. Nous observons que la forme de la lésion n'est pas circulaire mais bien carrée et qu'elle fait environ 6 mm x 5mm, ce qui est totalement cohérent si l'on considère que chaque point de brûlage fait entre 1 et 2 mm. La photo montre une lésion de 5 mm x 5 mm. Le contraste ici est de 60 % (figure 5.20(c)). Il est à noter que cette expérience a été réalisée avec un amplificateur de puissance (pour les ultrasons) endommagé et donc avec des pressions acoustiques 10 fois inférieures à celle utilisée précédemment. L'épaisseur de poulet était destinée à l'origine à une imagerie à 532 nm, ce qui explique que le signal détecté à 780 nm est très élevé et qu'il n'y a pas eu besoin de l'amplifier au niveau de la photodiode.

Conditions expérimentales 5.20 :

- Echantillon : Blanc de poulet, $L = 1 \ cm$, 1 inclusion HIFU, 9 (3x3) points brûlés séparés de 1mm.
- $P_{echantillon} = 1.5 W.$
- Ultrasons : 3 cycles à 2.3 MHz, $\Delta y=2~mm,$ Amplificateur endommagé.
- Cristal SPS : Te $n^{\circ}4$, $P_{pompe} = 120 \ mW$.
- Pas du scan : 0.5 mm, Moyennage : 3x128 moyennes, Gain PD : 0 dB.
- Niveau DC : 114 mV équivalent à 157 μW .



Figure 5.20 – Imagerie d'une lésion HIFU dans du blanc de poulet (épaisseur 1 cm) : (a) Image acousto-optique en deux dimensions et photo, (b) Profil axial, (c) Contraste de l'objet.

Origine des contrastes Dans le cas d'un objet diffusant, le contraste acousto-optique peut avoir deux origines : l'efficacité de marquage ou la densité locale de photons. Une lésion HIFU dans du poulet est une cuisson du poulet. Cela entraîne un changement de couleur (il devient plus blanc donc plus diffusant) et un changement des propriétés mécaniques. Ce dernier paramètre peut influer sur le marquage acousto-optique dans la mesure où l'influence du mouvement des diffuseurs serait moindre. Une autre explication peut venir du changement d'indice optique du milieu, augmentant les chemins optiques dans la lésion.

Des images par Tomographie de Cohérence Optique (OCT) ont montré qu'il n'existait aucune différence structurale entre la lésion et le tissu non brûlé.

5.5.4 Imagerie acousto-optique en trois dimensions

Un des avantages de l'imagerie acousto-optique résolue en temps est le couplage facile avec un échographe conventionnel. Nous avons, dans ce but, essayé d'utiliser un échographe fabriqué par la société Supersonic Imagine. Nous avons pu obtenir un signalacousto-optique mais, devant le manque de flexibilité du logiciel, nous n'avons pas pu réaliser d'acquisitions en deux dimensions. Nous avons alors décidé d'utiliser une baie de chez Lecoeur Electronique équipée d'une barrette multi-éléments (128 éléments, 4.3 MHz, $pitch^1=0.33$ mm). La programmation de la baie a été réalisée par Emilie Benoit. Cette baie est limitée par les normes acoustiques biomédicales.

L'utilisation d'une barrette permet de scanner une direction par simples décalages de phase entre les différents éléments. Étant donné qu'une dimension de l'imagerie est assurée par la propagation de l'impulsion ultrasonore dans le milieu. L'obtention d'une image en 3 dimensions ne nécessite qu'une seule translation de la barrette.

La figure 5.21 montre le résultat obtenu pour l'imagerie d'une croix absorbante enfouie dans un gel d'épaisseur optique égale à 300 ($L = 3 \ cm, \ \mu'_s = 10 \ cm^{-1}$). La baie émet des impulsions de 1 μs avec une période de 1 ms. Pour des raisons d'encombrement, la barrette est positionnée selon l'axe z puis déplacée selon l'axe x avec un pas de 0.5 mm. L'échantillon est illuminé par un faisceau de diamètre 1.3 cm et de puissance 2 W.

Une coupe dans le plan (x,y) est présentée sur la figure 5.21(a). La représentation en trois dimensions est montrée sur la figure 5.21(b). Grâce à l'utilisation de la barrette multi-

^{1.} Le pitch correspond à la distance entre les centres de deux éléments distincts.



Figure 5.21 – Imagerie acousto-optique d'un objet absorbant en trois dimensions. (a) Image acousto-optique en deux dimensions et photographie de l'objet absorbant, plan de coupe (x,y).
 (b) Image acousto-optique en trois dimensions.

éléments, l'acquisition d'une image en deux dimensions requiert 3 min avec un moyennage de 128 à l'oscilloscope. L'utilisation d'une carte d'acquisition plus rapide pourrait rendre cette mesure encore plus brève. En effet, si nous considérons qu'une impulsion ultrasonore traverse le milieu en moins de 100 μs avec une période de 1 ms, il faut alors 100 ms pour acquérir une dimension en moyennant 100 fois. Si nous répétons cette opération 100 fois (pour 100 positions), cela ne nécessiterait que 10 s. On aura imagé une surface d'environ 3 $cm \times 15$ cm en 10 s!

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons appliqué le mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif à l'imagerie acousto-optique. Nous avons montré, dans la première partie, comment il était possible de mettre à profit l'utilisation d'impulsions ultrasonores brèves dans le but d'obtenir une résolution axiale de façon très rapide et en temps réel. En effet, l'utilisation d'impulsions nous impose la détection indirecte (sur fond blanc) des photons marqués. Cela nous permet donc de profiter de la grande bande passante d'un détecteur unique afin de résoudre temporellement le déplacement de l'impulsion ultrasonore. Les dépendances du signal acousto-optique avec les caractéristiques de l'impulsion acoustique est simple. Plus l'impulsion est courte, meilleure est la résolution mais plus le signal est faible.

Le montage expérimental présenté nous a ainsi permis d'imager un grand nombre d'échantillons avec des caractéristiques différentes. Nous avons ainsi montré que l'imagerie acousto-optique était à la fois sensible à un contraste d'absorption et de diffusion. La configuration choisie facilite le couplage avec un système d'imagerie ultrasonore. Nous avons ainsi pu réaliser la première reconstruction en trois dimensions d'un objet dans un milieu diffusant par imagerie acousto-optique. Ces résultats ouvrent des perspectives intéressantes pour l'imagerie du petit animal. de réponse à 800 nm, ouvre de nouvelles perspectives à cette application de l'holographie phototréfractive. Il s'agit donc de la première expérience d'imagerie acousto-optique par détection photoréfractive à cette longueur d'onde dont nous avons déjà présenté les avantages.

Plusieurs améliorations techniques restent cependant à faire afin de rendre le système plus robuste et plus rapide. Il est aussi possible de réaliser une imagerie quantitative en couplant deux ondes acoustiques de pressions différentes [150].

Plusieurs perspectives sont envisageables. Il a été montré très récemment, que des microbulles d'air résonantes pouvaient permettre d'exalter le signal acouto-optique en augmentant la profondeur de modulation [88]. Cette piste, quoique ajoutant une contrainte à l'imagerie (injection de micro-bulles en mouvement), a déjà commencé à être envisagée.

Enfin, il est possible de mettre à profit l'imagerie acousto-optique pour créer une source cohérente dans un milieu pour la focalisation par conjugaison de phase. Cette perspective est détaillée dans le chapitre suivant.

Chapitre 6

Mélange a quatre ondes pour la conjugaison de phase

Table des matières

6.1	Mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence	
	6.1.1	Principe du mélange à quatre ondes
	6.1.2	Mélange à quatre ondes dans le SPS : Te 153
	6.1.3	Mesure de la réfléctivité du miroir à conjugaison de phase $\ . \ . \ 155$
6.2	2 Conjugaison de phase à travers un milieu diffusant	
	6.2.1	État de l'art
	6.2.2	Résultat préliminaire
6.3	Conclusion et perspectives 161	



L a conjugaison de phase est le nom donné au processus permettant d'inverser la phase d'une onde, et équivalant à inverser le développement spatio-temporel de l'onde. Ce processus peut être utile lorsqu'une onde est déformée à la traversée d'un milieu. Une onde conjuguée en phase verrait son déphasage accumulé durant le trajet aller compensé lors du trajet retour (dans la mesure où le milieu reste figé pendant le processus). Le principe de la conjugaison de phase est schématisé dans la figure 6.1. Une onde plane incidente sur un milieu aberrateur voit son front d'onde déformé en sortie du milieu. L'onde générée par un système de conjugaison de phase traverse à nouveau le milieu et son front d'onde en ressort identique à celui de l'onde incidente.



Figure 6.1 – Représentation schématique du processus de conjugaison de phase optique.

La conjugaison de phase possède plusieurs applications différentes comme l'imagerie haute résolution [151], la correction intra-cavité d'aberrations dans les oscillateurs laser [152,153] ou la compression d'impulsions [154]. Cependant, son application à la correction du front d'onde issu d'un milieu diffusant n'a pas été beaucoup explorée et a regagné de son intérêt ces cinq dernières années [155].

Une onde conjuguée en phase peut être créée par des processus multiples dans différents milieux. Nous pouvons citer à cet égard le mélange à quatre ondes dans ses différentes configurations, le mélange à trois ondes dans un matériau présentant une non-linéarité du deuxième ordre, la diffusion stimulée (Raman, Brillouin, Kerr) et l'émission stimulée dans un milieu à gain [156]. Il est possible, depuis peu, de générer un conjugué de phase de manière holographique par diffraction sur un modulateur spatial de lumière. La première application en a été la re-combinaison des modes en sortie de plusieurs fibres optiques [157].

La conjugaison de phase s'inscrit comme une suite logique à cette thèse et une perspective d'évolution de notre technique d'imagerie. En effet, il est possible de créer une onde conjuguée en phase dans un cristal photororéfractif par mélange à quatre ondes optique [158]. De plus, il a été montré récemment [43] qu'il était possible de focaliser **dans** un milieu diffusant en guidant acoustiquement l'onde conjuguée en phase. Une source virtuelle acousto-optique peut ainsi servir de source cohérente ou "cible" pour focaliser la lumière dans un milieu diffusant par conjugaison de phase. La démonstration de ce procédé a été réalisée à 532 nm, une longueur d'onde inappropriée pour l'imagerie des milieux biologiques et avec un matériau possédant des coefficients électro-optiques plus faibles que le SPS. Notre montage pourrait donc permettre de réaliser la même expérience dans la fenêtre thérapeutique. Notre objectif est alors d'utiliser la même configuration pour le mélange à deux ondes et quatre ondes afin de passer simplement du montage d'imagerie acousto-optique à celui de conjugaison de phase.

Nous allons donc consacrer ce chapitre à une étude préliminaire de la conjugaison de phase dans une configuration d'imagerie acousto-optique par mélange à quatre ondes dans un cristal de SPS :Te. Nous allons y expliciter rapidement les principes du mélange à quatre ondes avant de présenter quelques premiers résultats expérimentaux en ondes planes et en présence d'un faible diffuseur. Ces travaux ayant été réalisés à la fin de ma thèse, je n'ai malheureusement pas pu les mener à terme. J'espère que cela constituera une perspective pour la suite de l'expérience d'imagerie acousto-optique résolue en temps.

6.1 Mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence

Il est possible de coupler des ondes dans un matériau photoréfractif. L'intérêt de ces matériaux est de pouvoir présenter des effets non-linéaires non résonnants et non localisés permettant ainsi de travailler avec différentes longueurs d'ondes et des faisceaux de faible puissance. Nous nous sommes déjà intéressés au mélange à deux ondes dans le chapitre 4. Nous allons maintenant nous intéresser au mélange à quatre ondes dans les mêmes matériaux. Le mélange à quatre ondes est généralement un processus non-linéaire de troisième ordre. Lorsque deux des fréquences des ondes incidentes sont identiques, on parle de mélange à quatre ondes dégénéré en fréquence. Dans les cristaux photoréfractifs, le processus est différent de celui qui a lieu dans d'autres matériaux non-linéaires et nous ne pouvons pas caractériser la réponse du milieu avec une susceptibilité électrique d'ordre trois $\chi^{(3)}$. La diffraction de deux ondes par le réseau qu'elles inscrivent implique cependant des interactions de troisième ordre dans la mesure où les coefficients électrooptiques effectifs dépendent entre autres des paramètres non-linéaires du matériau.

6.1.1 Principe du mélange à quatre ondes

Il existe deux façons (avec des variantes) de réaliser la conjugaison de phase par mélange à quatre ondes :

- La conjugaison de phase dite "pompée" (miroirs pompés) : en plus du faisceau signal, deux faisceaux pompes sont envoyés dans le matériau. Le conjugué de phase constitue la quatrième onde.
- La conjugaison de phase dite "autopompée" (miroirs autopompés) où les faisceaux de pompes sont crées à partir du faisceau signal par diffusion de la lumière.

Nous allons suivre une démarche similaire à celle prise pour le mélange à deux ondes. Nous nous plaçons dans le cas où les deux pompes sont externes car nous verrons plus tard que c'est la configuration la plus adaptée à l'imagerie acousto-optique. Il faut savoir que le formalisme est général et est exactement le même pour les miroirs à conjugaison de phase autopompés.

Considérons quatre ondes de même fréquence et de même polarisation se propageant dans le milieu. Le schéma de la figure 6.2 montre la configuration considérée. Les quatre ondes sont les faisceaux signal I_S et I_{S^*} , les deux faisceaux référence externes I_{R1} et I_{R2} . Les quatre ondes convergent vers le cristal. Nous appellerons E_S , E_{R1} , E_{R2} et E_{S^*} les amplitudes respectives des champs. $\mathbf{k_S}$, $\mathbf{k_{R1}}$, $\mathbf{k_{R2}}$ et $\mathbf{k_{S^*}}$ sont les vecteurs d'onde.



Figure 6.2 – Conjugaison de phase par mélange à 4 ondes dans un cristal photoréfractif, I_T est le faisceau signal amplifié par mélange à 2 ondes.

Ce système est relativement complexe puisqu'il peut exister 6 réseaux de vecteurs d'onde tel que cela est schématisé sur la figure 6.3. Parmi tous ces réseaux possibles, nous considérons que seuls les réseaux par transmission, de vecteurs réseaux $\mathbf{k_{R1,S}}$ et $\mathbf{k_{S^*,R2}}$ (6.1), importent et font l'objet d'une interaction importante ("one grating approximation" [115]). Pour réaliser un mélange à 4 ondes, il faut que les faisceaux I_{R1} et I_S , respectivement I_{R2} et I_S^* se diffractent sur les réseaux inscrits par I_{R2} et I_S^* , respectivement I_{R1} et I_S . Les deux réseaux doivent donc être confondus car la condition de Bragg impose alors que :

$$\mathbf{k} = \mathbf{k_{R1,S}} = \mathbf{k_{S^*,R2}} = \mathbf{k_{R1}} - \mathbf{k_S} = \mathbf{k_{S^*}} - \mathbf{k_{R2}}$$
 (6.1)

Dans le cas des miroirs pompés, l'expérimentateur ajuste les angles d'incidence des faisceaux aux angles de Bragg, alors que dans les miroirs autopompés, les ondes vérifiant cette condition sont spontanément créées, ce processus est d'ailleurs plus efficace.



Figure 6.3 – Vecteurs réseaux induits par mélange à 4 ondes tels que $\mathbf{k}_{i,j} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}j$

Nous pouvons établir comme dans le chapitre 4 (4.9) les équations couplées du mélange à quatre ondes [115] dans le cas d'une incidence symétrique des faisceaux, en négligeant la biréfringence et en supposant le milieu non absorbant :

$$\frac{\partial E_{R1}}{\partial z} = \frac{\pi n_0^3}{2i\lambda cos\theta} r_{eff}^{R1,S} E_{sc} \langle m \rangle_{\tau_{PR}} E_S \tag{6.2}$$

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} = \frac{\pi n_0^3}{2i\lambda \cos\theta} r_{eff}^{R1,S} E_{sc}^* \langle m \rangle_{\tau_{PR}} E_{R1}$$
(6.3)

$$\frac{\partial E_{R2}}{\partial z} = \frac{\pi n_0^3}{2i\lambda \cos\theta} r_{eff}^{R2,S^*} E_{sc} \langle m \rangle_{\tau_{PR}} E_{S^*}$$
(6.4)

$$\frac{\partial E_{S^*}}{\partial z} = \frac{\pi n_0^3}{2i\lambda\cos\theta} r_{eff}^{R2,S^*} E_{sc}^* \langle m \rangle_{\tau_{PR}} E_{R2}$$
(6.5)

Il existe deux systèmes de diffraction séparés et les coefficients électro-optiques $r_{eff}^{R1,S}$ et r_{eff}^{R2,S^*} ne sont pas égaux puisqu'ils dépendent non seulement des paramètres du milieu non-linéaire photoréfractif mais aussi des polarisations et des orientations des ondes.

Pour résoudre le système nous nous plaçons dans le cas où les polarisations des deux ondes de pompe sont parallèles. Nous pouvons écrire que $r_{eff}^{R1,S} = r_{eff}^{R2,S^*} = r_{eff}$ et introduire le gain photoréfractif $\Gamma = 2\Re \left(\frac{\pi n_0^3 r_{eff}}{2i\lambda cos\theta} E_{sc} \right)$ en régime purement diffusif.

De plus, on suppose que $E_{S^*}(L) = 0$ et que $E_S(0)$ est connu (z=0 représente la face d'entrée du cristal); les intensités des faisceaux sonde sont par ailleurs très faibles devant celles des faisceaux référence (approximation de non-deplétion de la pompe). Le rapport des intensités des deux pompes est noté q tel que $q = \frac{|E_{R2}|^2}{|E_{R1}|^2} = \frac{I_{R2}}{I_{R1}}$. Les solutions sont alors :

$$E_S(z) = \frac{exp(-\frac{1}{2}\Gamma z) + q \ exp(-\frac{1}{2}\Gamma L)}{1 + q \ exp(-\frac{1}{2}\Gamma L)} E_S(0)$$
(6.6)

$$E_{S^*}(z) = \left(\frac{E_{R2}}{E_{R1}^*}\right) \frac{exp(-\frac{1}{2}\Gamma z) - q \ exp(-\frac{1}{2}\Gamma L)}{1 + q \ exp(-\frac{1}{2}\Gamma L)} E_S(0)^*$$
(6.7)

Pour une configuration en gain positif, $E_S(z)$ et $E_{S^*}(z)$ possèdent une décroissance exponentielle dans le milieu. En z = L, $E_{S^*}(L) = 0$. Cette onde est donc engendrée par le mélange à quatre ondes. Son amplitude vaut 0 en z = L et augmente exponentiellement avec -z. Son amplitude complexe en z = 0 est proportionnelle à $E_S(0)^*$. Il s'agit de l'**onde conjuguée en phase de** E_S . Nous pouvons remarquer que l'information de phase des ondes de référence apparaît dans l'onde conjuguée à travers le rapport de leurs amplitudes complexes.

Nous pouvons alors introduire la notion de réflectivité du miroir à conjugaison de phase :

$$R = \left|\frac{E_{S^*}(0)}{E_S(0)^*}\right|^2 = \left|\frac{\sinh(\frac{1}{4}\Gamma L)}{\cosh(\frac{1}{4}\Gamma L) - \frac{1}{2}\ln(q)}\right|^2$$
(6.8)

Nous n'avons pas pris en compte l'absorption dans cette analyse. L'expression obtenue en présence d'absorption est plus compliquée et nécessite une résolution numérique [159]. Son effet principal est de diminuer la réflectivité.

6.1.2 Mélange à quatre ondes dans le SPS :Te

Nous allons, dans cette partie, expliciter le montage expérimental utilisé pour le mélange à quatre ondes. Le cristal choisi est l'échantillon 4 utilisé pour l'imagerie acousto-optique dans le chapitre précédent.



Figure 6.4 – Schéma expérimental du miroir à conjugaison de phase auto-pompé à cavité en anneau dans le SPS. Le réseau en transmission est gravé par les faisceaux incidents 3 et 4, ainsi que par les faisceaux 1 et 2 (issu de [116]).

Conjugaison de phase dans le SPS La conjugaison de phase dans le proche infrarouge a été démontrée dans le SPS en 2003 [124]. La configuration était celle du miroir autopompé avec une cavité en anneau (figure 6.4). La réflectivité mesurée atteint 25% à 780 nm avec des temps de réponse en dessous de 50 ms à 1 W/cm^2 . Ce temps est très inférieur à ce qui peut être observé dans les autres cristaux (quelques secondes dans $BaTiO_3$ et $LiNbO_3$). Des réflectivités de l'ordre de 60% ont par la suite été observées dans le SPS [116] et il a été montré que la réflectivité y est limitée par la transmission de la cavité en anneau et non par le coefficient de couplage ΓL .

Dans le SPS dopé Tellure (SPS :Te) plus particulièrement, il a été mesuré une réflectivité de 40% à 1.06 μm avec des temps d'établissement de l'ordre de 100 ms à 20 W/cm^2 [160].

Montage expérimental Nous avons utilisé le même montage et matériel expérimental que pour l'imagerie acousto-optique en enlevant toutes les lentilles de collection et la partie acoustique. Nous avons, par ailleurs, tourné le cristal de façon à avoir une incidence symétrique pour les faisceaux signal et référence. Le montage est représenté sur la figure 6.5.

Nous sommes dans une configuration de miroir pompé par des faisceaux externes. Le faisceau pompe est séparé en deux afin d'obtenir deux pompes contra-propageantes dont on peut régler le rapport d'intensité à la fois grâce au cube séparateur de polarisation et à la densité neutre. Ces deux faisceaux possèdent par ailleurs la même polarisation selon l'axe x du cristal. Les deux faisceaux référence doivent être parfaitement alignés et avoir un bon recouvrement avec le faisceau signal dans le cristal.



Figure 6.5 – Montage expérimental pour la conjugaison de phase par mélange à quatre ondes. PBS : cube séparateur de polarisation, BS : Lame semi-réfléchissante, $\lambda/2$: lame demi-onde, MAO : modulateur acousto-optqiue, FI : isolateur de Faraday, MOPA : amplificateur à semi-conducteur, PD1,PD2 : photodiodes, ND : densité neutre.

Une lame semi-réfléchissante(BS) permet de prélever une partie de l'onde conjuguée afin d'en mesurer l'intensité grâce à une seconde photodiode (PD2).

Résultat préliminaire Nous avons appliqué une modulation d'amplitude au faisceau pompe de fréquence 10 Hz. La figure 6.6(a) montre le signal issu de la première photodiode (PD1). Il s'agit du faisceau signal amplifié par mélange à deux ondes dans le cristal. En bleu est représenté le signal en l'absence du faisceau I_{R2} . A t=0 la pompe est allumée et nous observons le transfert d'énergie de I_{R1} vers I_S .

Lorsque le faisceau référence contra-propageant I_{R2} est ajouté, il y a chute du signal de mélange à deux ondes. Il y a donc création d'un autre réseau qui brouille le premier réseau gravé par I_S et I_{R1} . Cet effet peut sûrement être évité en jouant sur la polarisation de la seconde pompe I_{R2} de sorte que les deux pompes aient des polarisations orthogonales.

La seconde photodiode (PD2) a été alignée par auto-collimation du faisceau signal I_S dont une partie est prélevée par une lame séparatrice. S'il y a création d'une onde conjuguée en phase, elle parcourt alors le trajet inverse du faisceau signal et son intensité peut être mesurée par cette photodiode. La figure 6.6(b) montre le signal mesuré. Lorsque la pompe I_{R2} est envoyée sur le cristal, un signal apparait sur cette photodiode. Ce signal n'existe qu'en présence des trois faisceaux I_S , I_{R1} et I_{R2} , il est donc bien issu du mélange à quatre ondes et il s'agit bien du conjugué en phase dans la mesure où il est confondu avec le faisceau signal en se propageant dans le sens inverse.

Nous pouvons remarquer la présence d'oscillations à une fréquence de 100 Hz. Ces



Figure 6.6 – Signal de mélange à quatre ondes. (a) Signal I_S (mélange à deux ondes) mesuré sur la photodiode PD1 avec une modulation d'amplitude de 10 Hz appliquée à la pompe I_{R1} en présence et en l'absence de la pompe contra-propageante I_{R2} . (b) Signal I_{S^*} mesuré sur la photodiode PD2 avec une modulation d'amplitude de 10 Hz appliquée à la pompe I_{R1} .

oscillations ont été identifiées comme dues à des vibrations environnantes.

6.1.3 Mesure de la réfléctivité du miroir à conjugaison de phase

Nous avons par la suite mesuré la réfléctivité du conjugué de phase comme elle est définie par l'expression 6.8 et ce en fonction du rapport q de puissance de I_{R2} sur I_{R1} . Nous avons fait évoluer q jusqu'à atteindre un pompage symétrique.

Comme nous l'avons remarqué plus haut, l'ajout d'une seconde pompe diminue le gain en mélange à deux ondes (figure 6.6(a)). Nous avons alors mesuré ce gain pour chaque valeur du rapport q. La courbe est tracée sur la figure 6.7(a). Nous remarquons une décroissance du gain avec l'augmentation de la puissance de I_{R2} . De ces données expérimentales, nous avons extrait l'évolution du gain Γ_{exp} en fonction de q (courbe rouge de 6.7(a)), afin de l'intégrer dans le calcul de la réflectivité théorique.

Sur la figure 6.7(b) sont représentées les mesures de réflectivité, en points les données expérimentales et en trait continu le calcul théorique. Le seul paramètre d'ajustement est ici la valeur du gain photoréfractif (un coefficient multiplicateur a été appliquée à la valeur du gain mesurée expérimentalement pour chaque q). Sur cette courbe, nous pouvons remarquer que le maximum de réflectivité est atteint pour q = 0.25 à la fois théoriquement et expérimentalement. Cependant, nous pouvons remarquer que ces valeurs sont très faibles, nous mesurons une réflectivité maximale de 1.7%. En effet, l'ajustement théorique a été obtenu pour $\Gamma = 0.25 \Gamma_{exp}$, donc pour un gain photoréfractif 4 fois plus faible que celui mesuré tel que $\Gamma_{max} = 1.2 \ cm^{-1}$. La réflectivité mesurée est donc presque 20 fois plus faible que ce que prévoit la théorie. En effet, si nous traçons R en prenant en compte les valeurs expérimentales du gain sans ajustement, nous obtenons une réflectivité maximale de 40%. Cette valeur est plus comparable aux données de la littérature pour le SPS :Te. Cependant, il ne faut pas oublier que nous ne sommes pas dans la même



Figure 6.7 – Réflectivité du miroir à conjugaison de phase en fonction du rapport q des puissances de pompe. (a) Gain photoréfractif en mélange à deux ondes Γ_{exp} effectif en fonction de q. (b) Réflectivité du miroir à conjugaison de phase en fonction de q, en rouge la courbe théorique donnée par l'équation 6.8 avec $\Gamma = 0.25 \Gamma_{exp}$.

configuration du mélange à 4 ondes. Les seules expériences de conjugaison de phase dans le SPS ont été réalisées dans une configuration de miroir autopompé.

On pourrait alors penser qu'il est possible d'améliorer la réflectivité en choisissant une polarisation orthogonale de la seconde pompe I_{R2} . En effet, dans une configuration où toutes les ondes ont la même polarisation, les transferts d'énergie par mélange à deux ondes entre I_{R1} et I_S d'une part, et les ondes I_{S^*} et I_{R2} sont identiques en sens et en amplitude. Ainsi, si nous sommes dans une configuration qui amplifie la sonde I_S , du fait du transfert d'énergie de I_{S^*} vers I_{R2} , le faisceau conjugué I_{S^*} reste faible. En changeant la polarisation, les tenseurs électro-optiques mis en jeu sont différents pour les polarisations extraordinaires et ordinaires (les coefficients sont plus élevés pour les polarisations extraordinaires dans le cas des cristaux de symétrie 4mm par exemple [161]). Ainsi en choisissant une polarisation extraordinaire pour I_{R2} , on devrait pouvoir dissymétriser le transfert d'énergie en l'augmentant au profit du conjugué de phase. Cependant, les mesures ont été réalisées en optimisant l'intensité du conjugué de phase avec la polarisation du faisceau référence I_{R2} , il existe donc une autre raison à l'origine de la faible valeur de la réflectivité (qui peut par exemple être un mauvais recouvrement des faisceaux dans le cristal ou la présence de réseaux parasites).

Une autre façon d'inverser le transfert d'énergie de façon à ce qu'il se fasse vers le faisceau conjugué est de se mettre en configuration de gain négatif. Cette dernière solution est intéressante dans la mesure où cette même configuration a été retenue au chapitre précédent pour diminuer le bruit de la pompe en imagerie acousto-optique. La réflectivité peut être aussi augmentée en appliquant un champ électrique au cristal.

6.2 Conjugaison de phase à travers un milieu diffusant

Une des applications de la conjugaison de phase est de re-propager en sens inverse une onde conjuguée en phase en sortie d'un milieu diffusant afin d'en corriger le front d'onde. L'onde est alors capable de refaire le chemin inverse dans le milieu et en sortir avec son front d'onde initial. Ceci est efficace dans la mesure où le processus de conjugaison de phase est plus rapide que les variations du milieux. En effet, dans le cas d'un milieu diffusant, la conjugaison de phase doit être plus rapide que le temps de décorrélation du *speckle* ($\sim 1 ms$).

Dans cette partie, nous allons d'abord donner l'état de l'art de l'application assez récente de la conjugaison aux milieux diffusants. Nous allons par la suite tester l'efficacité du processus à travers un milieu faiblement diffusant, même si la réflectivité mesurée précédemment est faible.

6.2.1 État de l'art

Nous nous intéressons dans cette partie à l'application de la conjugaison de phase, quel que soit le processus utilisé, à l'imagerie à travers des milieux diffusants.

Il y a déjà plus de 40 ans, Leith et Upatnieks proposent d'utiliser le processus de conjugaison de phase pour imager à travers un milieu diffusant [162]. Ils utilisent pour cela un hologramme sur un film photographique dans lequel ils gravent une image du diffuseur (un verre dépoli), l'objet étant placé avant le diffuseur. Ensuite en ré-éclairant l'hologramme et avec un alignement minutieux de façon à superposer le diffuseur avec son image réelle produite par l'hologramme, ils parviennent à reconstruire une image de l'objet. En effet, en superposant le diffuseur et son image réelle, les déphasages induits se compensent et le diffuseur disparait en quelque sorte, laissant place à l'objet original. Plus de 20 ans plus tard, ils appliquent leur système à l'imagerie à travers un milieu biologique (blanc de poulet) [163]. Dans le même article, ils améliorent leur expérience en enregistrant numériquement leurs hologrammes sur une caméra et en appliquant un filtrage spatio-temporel pour ne détecter que les photons arrivés en premier et les moins déviés.

Il faudra attendre l'année 2008 pour la prochaine expérience de conjugaison de phase à travers un milieu diffusant par l'équipe de C. Yang [155]. Entre temps, de nombreux progrès ont été accomplis dans le domaine des micro-ondes et des ultrasons grâce au miroir à retournement temporel [164]. L'équipe de E. Wolf s'est par ailleurs attachée à évaluer théoriquement l'efficacité de correction de la distorsion du front d'onde par conjugaison de phase et a montré qu'une correction complète peut être accomplie dans le cas où le conjugué de phase est généré sans perte, que la polarisation est inversée et que le milieu est non absorbant [165].

L'équipe de C. Yang a, pour la première fois utilisé le mélange à quatre ondes dans un cristal photoréfractif pour l'imagerie à travers un milieu diffusant. Ils ont utilisé un cristal de $LiNbO_3$ réputé pour avoir des temps de réponse de plusieurs secondes. Dans leur article

de 2008 [155], ils imagent une mire USAF à travers moins d'un millimètre de blanc de poulet. Ce résultat reste donc critiquable mais ils l'améliorent par la suite en atteignant des épaisseurs de 7 mm de blanc de poulet et des épaisseurs optiques égales à 31 dans le cas de *phantoms* [166]. Une première expérience *in vivo* a été réalisée sur l'oreille d'un lapin [167]. Elle montre que le signal de conjugaison de phase est dégradé lorsque le lapin est vivant et que l'utilisation d'un milieu non linéaire plus rapide est nécessaire.

Par la suite se sont développés des procédés de conjugaison de phase digitale [42, 168, 169]. Le faisceau sonde traversant le milieu diffusant interfère avec un faisceau référence sur une caméra. L'hologramme ainsi enregistré est projeté sur un modulateur spatial de lumière (SLM). Il s'ensuit une phase de lecture où la diffraction du faisceau référence sur le SLM génère trois ordres de diffraction. L'ordre -1, correspondant au conjugué de phase, passe par le milieu diffusant et en ressort avec le front d'onde initial. Expérimentalement cette méthode a été utilisée jusqu'à une dizaine d'épaisseurs optiques. Sa principale difficulté est l'alignement pixel à pixel du SLM et de la caméra CCD (3 translations et 3 rotations), elle rappelle ainsi la première expérience de Leith [162].

Parallèlement à la conjugaison de phase, de nombreuses équipes s'intéressent de plus en plus au contrôle spatio-temporel du front d'onde dans les milieux complexes [170,171]. Les deux approches utilisent des SLM. La première se base sur une méthode itérative par laquelle le front d'onde incident est modifié de telle façon à anticiper les distorsions créées par le milieu [170]. La seconde repose sur la mesure de la matrice de transmission du milieu [171]. Cette mesure peut par ailleurs être mise à profit pour la transmission d'une image générique à travers un milieu diffusant [41].

Focalisation sur une source cohérente dans un milieu diffusant Les expériences présentées ci-dessus ont pour but de focaliser à travers un milieu diffusant. Focaliser dans un milieu diffusant est plus délicat et requiert l'utilisation d'une source dans le milieu pour guider la lumière sur le point de focalisation. Si la focalisation doit se faire par conjugaison de phase, cette source de lumière doit être cohérente. La génération de second harmonique par des nanocristaux de borate de baryum peut constituer une telle source [42].

Dernièrement, l'équipe de Wang a montré que la source virtuelle acousto-optique pouvait servir de source cohérente pour la conjugaison de phase [43]. L'idée est de réaliser le mélange à 4 ondes avec les photons marqués. L'onde conjuguée en phase revient alors par propagation inverse à sa source qui est le foyer acoustique. Ils montrent par la suite que le signal de conjugaison de phase est plus intense que le signal acousto-optique direct obtenu par mélange à deux ondes. Ils en déduisent une focalisation de la lumière sur le foyer acoustique. Cette focalisation reste modeste, de l'ordre du millimètre dans la direction transverse et du centimètre axialement (ultrasons continus). Pour imager cela, il faudrait superposer un autre système d'imagerie optique au précédent, permettant de faire un balayage. Cette méthode a permis, pour l'instant, de focaliser dans un échantillon d'épaisseur optique égale à 70 [172], ce qui reste assez faible devant devant les épaisseurs optiques que nous imageons par imagerie acousto-optique pure.

6.2.2 Résultat préliminaire

L'objectif ici est de mettre un objet faiblement diffusant, un verre dépoli, sur le trajet du faisceau sonde. Le montage expérimental est similaire au précédent (figure 6.8). Il faut ajouter des lentilles pour collecter la lumière diffusée par le dépoli et la focaliser sur le cristal. La lentille précédant le verre dépoli permet de jouer sur la taille des grains de *speckle* en sortie. Ce dernier paramètre n'est pas important dans le cas de la conjugaison de phase par mélange à 4 ondes dans la mesure où le faisceau conjugué a son vecteur d'onde fixé par accord de Bragg. Dans le cas de la conjugaison de phase digitale, l'efficacité de conjugaison dépend de l'alignement du SLM et de la caméra qui peut ne pas être parfait. Plus les grains de *speckle* seront gros, moins cet alignement sera critique.



Figure 6.8 – Montage expérimental pour la conjugaison de phase à travers un milieu faiblement diffusant. PBS : cube séparateur de polarisation, BS : Lame semi-réfléchissante, $\lambda/2$: lame demi-onde, MAO : modulateur acousto-optqiue, FI : isolateur de Faraday, MOPA : amplificateur à semi-conducteur, PD1 : photodiode, CCD : caméra d'observation, ND : densité neutre.

Une caméra munie d'un objectif mis au point à l'infini remplace la seconde photodiode et permet d'imager le faisceau conjugué en phase.

Nous observons sur la figure 6.9 les images obtenues en présence des différents faisceaux. Sur la figure 6.9(a), nous remarquons la présence d'un point correspondant au faisceau collimaté avant la première lentille et le dépoli. Ce point disparaît à chaque fois qu'un des faisceaux du mélange à quatre ondes est bloqué (figure 6.9(b), (c) et (d)). Nous remarquons aussi la présence de différentes contributions sur les images. Elles correspondent aux diffusions issues de la pompe et de la sonde. Ces diffusions proviennent des réflexions sur le cristal non traité anti-reflet et sur la lame séparatrice.



Figure 6.9 – Conjugaison de phase à travers un milieu faiblement diffusant (verre dépoli) :(a) en présence des 3 faisceaux sonde, référence 1 et 2. (b), (c) et (d), en l'absence de respectivement la référence 2, la référence 1 et la sonde. Dans ces trois derniers cas le point correspondant au faisceau conjugué en phase est absent. Les contributions directes des différents faisceaux restent présentes.

Le résultat présenté ci-dessus est préliminaire dans la mesure où le mélange à 4 ondes n'est pas optimal. Il permet ainsi d'ouvrir des perspectives à notre montage d'imagerie acousto-optique à 800 nm. En effet, il s'agit de la seule expérience de conjugaison de phase à travers un milieu diffusant à 800 nm et ouvre des perspectives d'application aux milieux biologiques. Les temps observés dans le SPS sont par ailleurs très courts comparés aux autres matériaux photoréfractifs utilisés principalement à 532 nm.

Couplage imagerie acousto-optique et conjugaison de phase Le montage utilisé permet de réaliser en parallèle un mélange à deux ondes et un mélange à quatre ondes. Mais cette configuration n'est pas optimale pour l'imagerie acousto-optique. En effet, les signaux étant plus faibles, il est nécessaire d'augmenter le gain du détecteur, sauf que celui-ci est vite saturé par la diffusion de la pompe ("fanning").

Le passage en gain négatif offre à la fois un avantage pour l'imagerie acousto-optique mais aussi pour la conjugaison de phase, dans la mesure où l'onde conjuguée est moins atténuée. Nous avons donc tourné le cristal. Un conjugué de phase a alors été observé, sauf que le "fanning" se retrouve maintenant du côté incident et s'ajoute à la réflexion de la pompe sur la face d'entrée du cristal. Ces réflexions deviennent très gênantes lorsqu'un milieu diffusant est ajouté sur le trajet du faisceau sonde imposant l'utilisation de lentilles de collection. Ces lentilles diffusent à leur tour ces réflexions parasites vers le détecteur (PD1).

Comme dans le chapitre précédent nous avons opté pour une configuration non-symétrique des faisceaux incidents (cristal perpendiculaire au faisceau sonde), mais dans ce cas nous n'avons pas pu observer de conjugaison de phase par mélange à quatre ondes. Cela peut être dû à la difficulté de superposer les deux faisceaux pompe à l'intérieur du cristal du fait de la réfraction. En effet, dans cette configuration, le faisceau de référence possède un angle élevé avec la normale à la face d'entrée du cristal et le cristal possède un fort indice.

Une solution est d'abord de traiter le cristal anti-reflet afin de pouvoir être en configuration symétrique et faciliter l'alignement des pompes mais le traitement anti-reflet de ce cristal n'est pas encore maîtrisé pour le moment.

Enfin, une étude dans le niobate de lithium $(LiNbO_3)$ a montré que le processus de conjugaison est plus efficace si la polarisation du faisceau signal est perpendiculaire à celle de la référence, le milieu rendant la polarisation aléatoire [173]. Cette piste quoique contre-intuitive, est aussi à envisager.

6.3 Conclusion et perspectives

Nous avons vu, dans ce chapitre, qu'il était possible de générer une onde conjuguée en phase par mélange à quatre ondes dans un cristal photoréfractif. Cet effet a déjà été observé dans le SPS :Te en configuration de miroir auto-pompé. Dans l'objectif de combiner les montages de conjugaison de phase et d'imagerie acousto-optique, nous avons utilisé une configuration utilisant des pompes externes. La réflectivité évolue en fonction du rapport des pompes comme le prévoit la théorie. Cependant, sa valeur reste très faible. Il reste donc à trouver l'origine de cet écart.

La conjugaison de phase permet entre autres de corriger une onde ayant traversé un milieu diffusant. Nous avons, malgré la faible réflectivité observée, imagé une onde conjuguée en phase à travers un milieu faiblement diffusant. Ce résultat ouvre des perspectives pour l'utilisation du SPS :Te pour la conjugaison de phase à 800 nm.

Ce chapitre constitue une perspective à l'imagerie acousto-optique résolue en temps. L'objectif par la suite est de réaliser le montage de la figure 6.10 qui permettrait de focaliser dans un milieu diffusant grâce à une source cohérente acousto-optique. Les avantages de cette expérience par rapport à l'expérience de l'équipe de L. Wang [43] seraient nombreux. La conjugaison de phase dans le SPS :Te permet d'utiliser une longueur d'onde plus appropriée à l'imagerie des milieux biologiques. Ce cristal présente aussi des constantes de couplage plus élevées que celles du BSO. Il sera ensuite nécessaire d'ajouter une modalité pour la résolution axiale pour rendre plus adéquate l'utilisation de l'expression "étoile guidante", car la source virtuelle acousto-optique serait plus symétrique et se déplacerait dans les deux dimensions.

D'autres matériaux et d'autres processus pourraient être par ailleurs intéressants pour cette application. Le mélange à quatre ondes par émission stimulée dans un cristal laser $(Nd : YVO_4)$ à 1064 nm semble prometteur. La réflectivité y est élevée et les temps de


 $\label{eq:Figure 6.10} \begin{array}{l} - \mbox{ Montage expérimental pour la focalisation dans un milieu diffusant guidée par ultrasons. PZT : transducteur ultrasonore focalisé, PBS : cube séparateur de polarisation, BS : Lame semi-réfléchissante, <math display="inline">\lambda/2$: lame demi-onde, MAO : modulateur acousto-optque, FI : isolateur de Faraday, MOPA : amplificateur à semi-conducteur, PD1, PD2 : photodiode, ND : densité neutre.

réponse y sont surtout très courts (de l'ordre de la centaine de μs). Cette approche sera l'objet de la thèse de Baptiste Jayet.

Synthèse

Plusieurs techniques différentes permettent de détecter les « photons marqués » par les ultrasons. Elles peuvent utiliser un détecteur unique ou une caméra et tentent de répondre aux différentes problématiques qu'impose l'imagerie à travers un milieu diffusant (speckle, étendue optique, décorrélation, extinction). Dans cette thèse nous avons exploré différentes détections autour de 800 nm, longueur d'onde se trouvant dans la «fenêtre thérapeutique optique», qui correspond à une région du spectre où l'absorption est minimale dans les tissus biologiques; la profondeur de pénétration de la lumière y est donc maximale.



Détection incohérente des photons marqués

La détection incohérente des photons marqués consiste à réaliser un filtre fin centré en leur fréquence. Deux méthodes existent actuellement : le *holeburning* spectral et le **Fabry-Perot confocal**. Ces méthodes sont insensibles aux problématiques liées au *speckle*.

Détection cohérente des photons marqués

Elle consiste à détecter de façon cohérente un signal incohérent spatialement. Deux approches sont utilisées. Grâce à un **détecteur multiplexé**, il est possible de réaliser un bon échantillonnage du *speckle* (holographie numérique). L'utilisation d'un **mono-détecteur** offre des avantages en termes de bande passante mais requiert un adapatation de front d'onde préalable (holographie photoréfractive).

Comparaison holographie numérique/photoréfractive

Nous avons appliqués deux méthodes holographiques à l'imagerie acousto-optique. Il est intéressant de comparer quantitativement ces deux modalités. Pour cela, il faudrait utiliser la même configuration expérimentale (même laser, même échantillon...). Ces travaux sont en cours de réalisation. Nous pouvons,malgré tout, en faire une première comparaison qualitative.

Étendue géométrique

L'étendue géométrique d'une détection multiplexée est $N^2\lambda^2$ où N^2 est le nombre de pixels. Si nous avons 10^8 grains de *speckle* en sortie de l'échantillon. Un capteur de 1 million de pixels permettrait d'avoir une efficacité de moins d'1% dans le cas idéal où on détecterait 1 grain par pixel (sachant que cela ne suffit souvent pas pour un bon échantillonnage du *speckle*). Cette valeur est à pondérer par l'acceptance angulaire des pixels et nous avons vu dans le chapitre 2 qu'elle était bien inférieure (plutôt de l'ordre de 0.01%). Une détection photoréfractive peut permettre de collecter un très grand nombre de grains de *speckle* en sortie d'un milieu grâce à une lentille de collection qui focalise tout le flux dans le cristal.

Sensibilité

L'holographie numérique hétérodyne hors-axe est réputée pour être une technique très sensible. En ce qui concerne la détection photoréfractive, cela est plus difficile à évaluer, dans la mesure où l'efficacité de la détection dépend d'un grand nombre de paramètres.

Robustesse

Le fait que justement l'efficacité de la détection photoréfractive dépende de plusieurs paramètres (taille du cristal, gain, angle, puissance, longueur d'onde...) la rend moins robuste. Il est donc difficile d'obtenir exactement les mêmes performances en fonction de la configuration du montage. L'holographie numérique est par contre une méthode très robuste. Nous pouvons nous attendre aux même performances pour deux montages expérimentaux différents.

Traitement des données

Il s'agit de la différence la plus importante entre les deux méthodes. Le traitement est lourd pour l'holographie numérique. Les avancées actuelles dans le domaine de l'électronique et de l'informatique permettent d'envisager un traitement plus rapide et une transmission en temps réel des images à une cadence élevée. L'holographie photoréfractive ne nécessite pas de traitement particulier.

Imagerie

La détection phototrefractive permet de tirer profit de la grande bande passante des détecteurs uniques. Il est ainsi possible d'utiliser des impulsions ultrasonores brèves qui permettent de faire une imagerie en "ligne" (imagerie résolue en temps). Le gain de temps est considérable. L'holographie numérique impose une imagerie point par point. Si nous considérons qu'il faut 1 ms pour l'acquisition d'un point, au meilleur des cas (une seule impulsion laser), il faut alors 10 s pour réaliser une image de 100 x 100 points. L'holographie photoréfractive permet de réaliser une image de 2000 x 100 points moyennée 1 fois en 100 ms. Par ailleurs, l'holographie photoréfractive, en permettant de faire une imagerie en temps réel, autorise un réglage plus facile de l'expérience. Le signal acousto-optique est observé en temps réel.

Conclusion et Perspectives

Conclusion générale

Cette thèse présente différentes méthodes holographiques ou spectrosopiques appliquées à l'imagerie acousto-optique.

L'imagerie acousto-optique est une alternative originale aux méthodes d'imagerie purement optique des milieux diffusants. Les techniques d'imagerie conventionnelles ne permettent pas de surmonter les difficultés qu'impose la diffusion multiple de la lumière (résolution, atténuation). Le couplage de la lumière et des ultrasons permet de réaliser une imagerie directe sans résolution de problème inverse.

Une onde ultrasonore focalisée peut générer localement une modulation de la phase du champ optique. Cette modulation se traduit par l'apparition de bandes latérales sur le spectre de la lumière. Ces bandes latérales constituent ce que nous appelons les "photons marqués" et leur intensité dépend de la densité locale de photons. La mesure de la quantité de photons marqués permet de réaliser une cartographie de l'information optique à la résolution acoustique. Toutes les méthodes présentées dans cette thèse ont pour but de détecter ces photons marqués. Ces photons ont la particularité d'être très faibles en quantité et d'être très proches spectralement des photons non modulés ($\simeq 10^{-6} nm$).

Dans la première partie de cette thèse, j'ai exposé le problème et présenté les contraintes qu'impose la détection des photons marqués. J'ai montré, sans l'appliquer, qu'il est possible de réaliser un filtre suffisamment fin pour faire une sélection spectrale directe des photons marqués. Le *holeburning* spectral, dans un cristal dopé ion terre rare de Tm^{3+} : YAG(grenat d'yttrium-aluminium dopé thulium), fait partie des méthodes incohérentes utilisées en imagerie acousto-optique. Cette méthode difficile à mettre en œuvre possède l'avantage d'être insensible aux contraintes liées au *speckle*.

Dans la suite de la thèse, j'ai présenté deux méthodes cohérentes que j'ai appliquées à la détection des photons marqués.

L'holographie numérique hétérodyne hors-axe est présentée dans la deuxième partie de cette thèse. Cette méthode très robuste et sensible a été couplée à l'utilisation d'un lasers à longues impulsions afin d'en augmenter la sensibilité en augmentant la puissance crête d'illumination. Les premiers résultats obtenus ont permis de caractériser l'expérience qui nécessite encore différentes améliorations. Il faut par exemple ajouter une modalité pour l'obtention d'une résolution axiale.

La dernière partie de cette thèse traite de l'holographie photoréfractive. Cette méthode nous a permis de réaliser une imagerie acousto-optique résolue en temps dans la fenêtre thérapeutique grâce au cristal de SPS :Te (Hypothiodiphosphate d'étain dopé tellure). Cette expérience est la première détection par holographie photoréfractive à 800 nm. Elle nous a permis de réaliser des images à travers des milieux atteignant des épaisseurs de plusieurs centaines d'événements de diffusion (7 cm) et de localiser ainsi des objets (absorbant et diffusants) avec une résolution millimétrique. Les résultats obtenus ouvrent des perspectives intéressantes pour l'utilisation de cette technique pour des applications biomédicales, d'autant plus qu'un grand avantage de l'holographie photoréfractive est la faible quantité de donnés à traiter. L'utilisation d'une baie ultrasonore de plusieurs éléments nous a par la suite permis de réaliser des images en trois dimensions.

Enfin, une des perspectives de l'imagerie acousto-optique étant la focalisation guidée par ultrasons dans un milieu diffusant, j'ai exploré le processus de conjugaison de phase par mélange à quatre ondes.

Perspectives

Les résultats obtenus ouvrent de nombreuses perspectives à l'imagerie acousto-optique des milieux diffusants liées à chaque méthode utilisée.

Holeburning spectral Le *holeburning* est idéalement la technique appropriée et la plus intuitive pour la détection des photons marqués, car elle permet de réaliser un filtre spectral. Malgré les contraintes liées à sa mise en place, les améliorations techniques présentées au premier chapitre sont nécessaires. Quant au fonctionnement à basse température, le développement des techniques cryogéniques permet d'en envisager une utilisation plus courante.

Holographie numérique Pour obtenir une résolution axiale en holographie numérique, il est intéressant d'implémenter des modulations de phase aléatoires. Les premiers résultats déjà obtenus par Emilie Benoit, avec un laser continu, sont prometteurs. Par ailleurs, il est nécessaire de comparer de façon rigoureuse cette méthode à l'holographie photoréfractive. Il est enfin nécessaire de pouvoir réaliser un traitement des images caméra en temps réel (logiciel embarqué).

Holographie photoréfractive

- L'holographie photoréfractive nous permet d'envisager dans un futur très proche l'imagerie du petit animal.
- D'un point de vue technique, de nombreuses améliorations peuvent encore être apportées : un détecteur plus sensible et de plus grande bande-passante en régime amplifié, un amplificateur approprié, une carte d'acquisition, un cristal de plus grande surface traité anti-reflet... Ces améliorations permettront de rendre le système d'imagerie plus efficace et plus rapide.
- Il faut rendre l'expérience plus quantitative, en la calibrant ou en ajoutant de nouvelles modalités (différence de pression acoustique).
- L'utilisation de fibres optiques en entrée et en sortie du milieu diffusant rendrait le système plus flexible pour une utilisation ultérieure en imagerie de sujets vivants. La partie détection photoréfractive pourrait être indépendante de la partie imagerie.
- L'injection de micro-bulles peut permettre d'exalter le signal-acousto-optique. Cependant l'application reste limitée à l'imagerie de milieux liquides (vaisseaux sanguins).
- De nouveaux matériaux restent à tester comme les valves optiques à base de cristaux liquides. Des résultats récents (obtenus au laboratoire) ont montré qu'il était possible de détecter des photons marqués par auto-modulation dans un cristal photoréfractif, sans faisceau référence. Enfin, le cristal de tellurure de zinc (ZnTe) présenté n'est pas à écarter en raison de son temps de réponse remarquablement court.
- L'utilisation d'un cristal photoréfractif nous permet de nous intéresser au processus de conjugaison de phase optique. Ainsi, il est possible de guider la focalisation par conjugaison de phase dans un milieu diffusant grâce à une source de photons marqués. Cette expérience est à envisager en perspective. Les milieux amplificateurs à gain comme le Nd : YVO₄ peuvent aussi être utilisés à cet effet.

ANNEXE A

Holeburning spectral : expression de l'absorption

Cette annexe a pour but d'exposer le principe de base du *holeburning* spectral, afin d'aboutir à l'expression de l'absorption utilisée au chapitre 2.

L'effet *holeburning* est présent dans les milieux lasers lorsque les transitions optiques sont de nature inhomogène. C'est une méthode de choix en spectroscopie à très haute résolution (MHz).



 $\begin{aligned} & \sigma: \text{ section efficace de la transition (en cm²)} \\ & w: \text{taux d'émission spontanée (en s⁻¹)} \\ & \beta: \text{taux de transfert de 1 vers 2} \\ & \gamma: \text{taux de transfert de 2 vers 0} \\ & \beta >> w >> \gamma \end{aligned}$

Figure A.1 – Système à trois niveaux.

Description du système

Soit un système à trois niveaux, notés $\{0,1,2\}$. Un laser monochromatique permet d'effectuer la transition optique entre les niveaux 0 et 1. Le niveau 2 se peuple par transfert non radiatif de la population du niveau 1. Nous considérons que ce transfert est très efficace. Le niveau 2 se dépeuple à son tour vers 0, sa constante de temps étant très grande (transition radiative interdite de spin très peu probable). Le niveau 2 est généralement appelé l'état réservoir du système.

Équations des populations Soient N_0 , N_1 et N_2 , les densités de populations des trois niveaux (en cm^{-3}) et $N = N_0 + N_1 + N_2$ la concentration totale de l'espèce. Les équations d'évolution des populations s'écrivent, en prenant en compte le flux de photons ϕ (nombre de photon par unité de temps et de surface) :

$$\begin{cases} \dot{N}_1 = \sigma \phi N_0 - \sigma \phi N_1 - w N_1 - \beta N_1 \\ \dot{N}_0 = -\sigma \phi N_0 + \sigma \phi N_1 + w N_1 + \gamma N_2 \\ \dot{N}_2 = \beta N_1 - \gamma N_2 \end{cases}$$

Ce système se réécrit :

$$\begin{cases} \dot{N}_1 = \sigma \phi N_0 - (\sigma \phi + w + \beta) N_1 \\ \dot{N}_0 = -\sigma \phi N_0 + (\sigma \phi + w) N_1 + \gamma N_2 \\ \dot{N}_2 = \beta N_1 - \gamma N_2 \end{cases}$$

Régime stationnaire On se place dans un régime stationnaire, nous pouvons alors exprimer les densités de populations N_0 , N_1 et N_2 en fonction des différents paramètres.

$$N_{0} = \frac{\gamma(\sigma\phi + w + \beta)}{(2\gamma + \beta)\sigma\phi + \gamma(w + \beta)}N$$
$$N_{1} = \frac{\gamma\sigma\phi}{(2\gamma + \beta)\sigma\phi + \gamma(w + \beta)}N$$
$$N_{2} = \frac{\beta\sigma\phi}{(2\gamma + \beta)\sigma\phi + \gamma(w + \beta)}N$$

A partir de ces expressions, nous pouvons voir que si le flux ϕ est infini, deux cas apparaissent :

- $\underline{\gamma \to \infty}$: le niveau réservoir n'existerait pas. On aurait en effet $N_0 = N_1 = N/2$ et $N_2 = 0$. Le transfert se ferait directement de **2** vers **0**.
- $\underline{\gamma \to 0}$: on aurait un état réservoir permanent avec $N_0 = N_1 = \frac{\gamma}{\beta}N$ et $N_2 = N$.

Dans un cas où $\beta \gg w \gg \gamma$, nous définissons le flux de photons à saturation $\phi_S = \gamma/\sigma$, tel que $N_0 = N/2$.

Expression du coefficient d'absorption Nous nous intéressons à l'absorption de la transition $0 \rightarrow 1$. En présence d'un flux ϕ , la loi de Beer-Lambert s'écrit :

$$d\phi = -\sigma (N_0 - N_1)\phi dz \tag{A.1}$$

Dans l'équation A.1, le produit $\sigma(N_0 - N_1)$ correspond au coefficient d'absorption α . Il faut maintenant exprimer à partir des densités de population, la quantité $N_0 - N_1$. Nous trouvons :

$$N_0 - N_1 = \frac{1}{1 + \frac{2\gamma + \beta}{\gamma(w+\beta)}\sigma\phi}N \tag{A.2}$$

On pose : $A = \frac{2\gamma + \beta}{\gamma(w + \beta)} \sim \frac{1}{\gamma}$. L'équation A.2 peut alors se réécrire :

$$N_0 - N_1 = \frac{1}{1 + A\sigma\phi} N = \frac{1}{1 + \phi/\phi_S} N$$
(A.3)

Si le flux ϕ est faible, $N_0 - N_1 = N$, nous retrouvons la loi classique : $\phi(z) = \phi(0)e^{-\sigma N z}$.

Largeur de raie inhomogène La transition $\mathbf{0} \to \mathbf{1}$ possède en réalité une largeur de raie inhomogène. Nous allons considérer une seule composante homogène à l'intérieur de la distribution (figure A.2). Nous considérons aussi que la raie inhomogène est très large $(\Gamma_{inh} \gg \Gamma_h)$. Soit $N_{\omega'} d\omega'$ la population qui lui est associée. $N_{\omega'}$ représente le nombre d'atome dans une bande $d\omega'$. Nous pouvons alors écrire que :

$$N_{\omega'}d\omega' = \frac{N}{\Gamma_{inh}}d\omega' \tag{A.4}$$

Nous pouvons aussi exprimer sa section efficace en fonction d'une Lorentzienne :

$$\sigma(\omega) = \sigma_h \Gamma_h \frac{\pi}{2} \frac{\frac{\Gamma_h}{2\pi}}{(\omega - \omega')^2 + (\frac{\Gamma_h}{2})^2} = \sigma_h \Gamma_h \frac{\pi}{2} L_{\Gamma_h}(\omega - \omega')$$
(A.5)

où L_{Γ_h} est une Lorentzienne normalisée centrée sur ω' et de largeur à mi-hauteur Γ_h (largeur homogène de la transition) et σ_h la section efficace homogène.



Figure A.2 – Raie spectrale inhomogène et largeur homogène. σ_h est la section efficace homogène.

Nous pouvons alors introduire cette expression de la section efficace dans l'expression A.3 :

$$d(N_0 - N_1)_{\omega'} = \frac{1}{1 + A\sigma_h \frac{\pi}{2} \Gamma_h \phi L_{\Gamma_h} (\omega - \omega')} N_{\omega'} d\omega'$$
(A.6)

Expérience de holeburning

L'expérience de holeburning se fait en deux étapes :

- 1. <u>Brûlage</u> : On prend un laser spectralement très fin (idéalement un Dirac) à ω_B compris dans la largeur inhomogène. Ce laser est suffisament puissant (flux ϕ_B) pour modifier de façon significative les populations des niveaux autour des raies homogènes spectralement proches de ω_B . On attend suffisamment longtemps pour atteindre le régime stationnaire.
- 2. <u>Lecture</u> : On vient sonder la transmission du milieu avec un autre laser très fin (ω_S) qu'on balaye autour de ω_B et colinéaire au laser de brûlage. Ce laser est de très faible intensité (typiquement $10^{-4}\phi_B$) pour qu'il ne perturbe pas le système. La grandeur $(N_0 - N_1)$ reste alors stable dans le temps pour γ petit.

Brûlage à ω_B Le brûlage induit une variation des densités de population des niveaux tel que :

$$d(N_0 - N_1)_{\omega'} = \frac{1}{1 + A\sigma_h \frac{\pi}{2} \Gamma_h \phi_B L_{\Gamma_h} (\omega_B - \omega')} N_{\omega'} d\omega'$$
(A.7)

Lecture à ω_S Nous sondons à faible flux et nous enregistrons l'absorption α en fonction de ω_S variable. Il faut alors exprimer le coefficient d'absorption en tenant compte de toutes les composantes homogènes à ω' de la raie.

D'après la loi de Beer-Lambert (A.1), le coefficient d'absorption intégré sur toutes les composantes homogènes s'exprime comme l'intégrale sur tous les ω' du produit $\sigma(\omega)(N_0 - N_1)_{\omega'}$ après brûlage :

$$\alpha(\omega) = \int_{\omega'} \sigma(\omega) d(N_0 - N_1)(\omega')$$

=
$$\int_{\omega'} \sigma_h \frac{\pi}{2} \Gamma_h L_{\Gamma_h}(\omega - \omega') d(N_0 - N_1)(\omega')$$

Comme nous venons sonder avec un laser centré en ω_S de répartition spectrale $\delta(\omega - \omega_S)$, le coefficient d'absorption en fonction de ω_S se calcule à partir du produit de convolution ci-dessous :

$$\begin{aligned} \alpha(\omega_S) &= \alpha(\omega) * \delta(\omega - \omega_S) \\ &= \int_{\omega'} \sigma_h \frac{\pi}{2} \Gamma_h L_{\Gamma_h}(\omega_S - \omega') d(N_0 - N_1)(\omega') \\ &= \frac{N}{\Gamma_{inh}} \int_{\omega'} \frac{\sigma_h}{1 + A \sigma_h \phi_B \frac{(\frac{\Gamma_h}{2})^2}{(\omega_B - \omega')^2 + (\frac{\Gamma_h}{2})^2}} \cdot \frac{(\frac{\Gamma_h}{2})^2}{(\omega_S - \omega')^2 + (\frac{\Gamma_h}{2})^2} d\omega' \end{aligned}$$

En mettant au même dénominateur et en posant $(B/2)^2 = (\frac{\Gamma_h}{2})^2 (1 + A\sigma_h\phi_B)$, nous pouvons réécrire l'intégrale c-dessus comme la différence de deux intégrales :

$$\alpha(\omega_S) = \frac{N}{\Gamma_{inh}} \sigma_h \left(\frac{\Gamma_h}{2}\right)^2 \left[\int_{\omega'} \frac{d\omega'}{(\omega_S - \omega')^2 + (\frac{\Gamma_h}{2})^2} - \int_{\omega'} \frac{A\sigma_h \phi_B(\frac{\Gamma_h}{2})^2 d\omega'}{[(\omega_B - \omega')^2 + (\frac{B}{2})^2] \cdot [(\omega_S - \omega')^2 + (\frac{\Gamma_h}{2})^2]} \right] = \frac{N}{\Gamma_{inh}} \sigma_h \left(\frac{\Gamma_h}{2}\right)^2 \left[\frac{2\pi}{\Gamma_h} - A\sigma_h \phi_B(\frac{\Gamma_h}{2})^2 \cdot \frac{2\pi}{B} \cdot \frac{2\pi}{\Gamma_h} \int_{\omega'} L_B(\omega' - \omega_B) \cdot L_{\Gamma_h}(\omega_S - \omega') d\omega' \right]$$

En utilisant le fait que $L_a(\omega) * L_b(\omega) = L_c(\omega)$ avec c = a + b, nous trouvons en posant $\Omega = B + \Gamma_h$:

$$\alpha(\omega_S) = \frac{N}{\Gamma_{inh}} \sigma_h \Gamma_h \frac{\pi}{2} \left[1 - A \sigma_h \phi_B \left(\frac{\Gamma_h^2}{B\Omega} \right) \frac{\left(\frac{\Omega}{2}\right)^2}{(\omega_S - \omega_B)^2 + \left(\frac{\Omega}{2}\right)^2} \right]$$
(A.8)

En remplaçant $A\sigma_h$ par $1/\phi_S$ nous pouvons exprimer B et Ω :

$$B = \Gamma_h \sqrt{1 + \phi_B/\phi_S}$$
 et $\Omega = \Gamma_h (1 + \sqrt{1 + \phi_B/\phi_S})$

Nous obtenons alors l'expression finale du coefficient d'absorption :

$$\alpha(\omega_S) = \frac{N}{\Gamma_{inh}} \sigma_h \Gamma_h \frac{\pi}{2} \left[1 - \frac{\sqrt{1 + \phi_B/\phi_S} - 1}{\sqrt{1 + \phi_B/\phi_S}} \cdot \frac{\left(\frac{\Omega}{2}\right)^2}{(\omega_S - \omega_B)^2 + \left(\frac{\Omega}{2}\right)^2} \right]$$
(A.9)

Si $\phi_B = 0$, nous retrouvons un coefficient d'absorption constant sur la largeur inhomogène. Par contre si $\phi_B/\phi_S \gg 1$, nous trouvons l'expression suivante pour l'absorption :

$$\alpha(\omega_S) = \frac{N}{\Gamma_{inh}} \sigma_h \Gamma_h \frac{\pi}{2} \left[1 - \frac{\left(\frac{\Omega}{2}\right)^2}{(\omega_S - \omega_B)^2 + \left(\frac{\Omega}{2}\right)^2} \right]$$
(A.10)

Cette expression montre la chute à 0 de l'absorption en $\omega_S = \omega_B$. Ce trou est une Lorentzienne de largeur à mi-hauteur Ω .

Application numérique Considérons comme milieu un cristal de Tm^{3+} : YAG tel que $\gamma = 100 \ s^{-1}$ et $\sigma_h = 1.4 \ 10^{-19} \ cm^2$. La longueur d'onde de brûlage est 793 nm.

Nous pouvons alors calculer la puissance de saturation à partir de ϕ_S :

$$\phi_S = \frac{\gamma}{\sigma_h} = \frac{100}{1.4 \ 10^{-19}} \simeq 7 \ 10^{20} \ cm^{-2} s^{-1}$$

Ce qui nous donne un éclairement de saturation égal à 175 W/cm^2 à 793 nm. Pour un "waist" du faisceau de 500 μm , nous obtenons comme puissance laser de saturation : $P_S = 1.4 W$.

Si $\phi_B = \phi_S$, alors :

• La largeur du trou est : $\Omega = \Gamma_h (1 + \sqrt{1 + \phi_B/\phi_S}) = 2.4 \Gamma_h.$

• La profondeur du trou est :
$$\frac{\sqrt{1+\phi_B/\phi_S-1}}{\sqrt{1+\phi_B/\phi_S}} = \frac{\sqrt{2}-1}{\sqrt{2}} = 0.29$$
, soit une chute de 30%.

Ainsi si on souhaite une profondeur de trou de 80%, il nous faut une puissance de brûlage telle que $\phi_B = 24\phi_S$ et donc $P_S = 33 W$!

ANNEXE B

Adaptation de front d'onde par un cristal photoréfractif

Dans cette annexe, nous allons développer le modèle théorique décrivant la transmission d'un signal rapidement modulé par un cristal photoréfractif [121]. L'expression analytique est obtenue en l'absence de dépletion de la pompe due au couplage d'ondes.

Situation su problème

Nous reprenons le formalisme employé au chapitre 4 de cette thèse. Nous pouvons ainsi réécrire l'équation qui régit l'évolution du champ de charge d'espace :

$$\frac{\partial E_1}{\partial t} + \frac{E_1}{\tau_{PR}} = m \frac{E_{sc}}{\tau_{PR}} \tag{B.1}$$

En introduisant γ dans les equation couplées, nous pouvons les réécrire :

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} = \frac{\gamma}{E_{sc}} E_1 E_R - \frac{\alpha}{2} E_S \tag{B.2}$$

$$\frac{\partial E_R}{\partial z} = \frac{\gamma}{E_{sc}} E_1^* E_S - \frac{\alpha}{2} E_R \tag{B.3}$$

Mise en équation

L'objectif de cette section est d'écrire l'équation différentielle qui régit la propagation du champ signal E_S à travers le cristal photoréfractif. Nous nous plaçons dans le cadre des hypothèses suivantes :

- 1. Le faisceau référence n'est pas modulé temporellement.
- 2. Nous négligeons la déplétion par couplage en mélange à deux ondes. Il s'agit d'un régime où la puissance de la pompe est très élevée devant la puissance de l'onde objet.
- 3. L'absorption par le cristal est prise en compte.

4. Au temps t = 0 (avant que la modulation ne soit appliquée à l'onde objet), un hologramme est déjà gravé dans le cristal et l'état permanent est atteint. C'est à dire qu'avant t = 0, les deux faisceaux sont déjà présents dans le cristal et ont gravé un réseau d'indice, avec un gain à saturation, sur lequel ils diffractent.

Les points (2) et (3) permettent de simplifier l'équation B.3 :

$$\frac{\partial E_R}{\partial z} = -\frac{\alpha}{2} E_R \tag{B.4}$$

qui se résout immédiatement en :

$$E_R(z) = E_R(0)e^{-\alpha z/2}$$
 (B.5)

où $E_R(0)$ est l'amplitude du champ de référence à l'entrée du cristal. L'illumination totale (en négligeant l'intensité de l'onde signal (2)) varie donc en $e^{-\alpha z}$.

Cette première équation montre que l'illumination décroit pendant la propagation dans le cristal. Il en découle que le temps de réponse τ_{PR} décroit durant cette même propagation (l'effet photoréfractif est plus lent en sortie du cristal). Comme $1/\tau_{PR}$ est proportionnel à l'illumination totale, nous pouvons écrire : $1/\tau_{PR} = e^{-\alpha z}/\tau_0$ avec τ_0 le temps de vie photoréfractif à l'entrée du cristal en z = 0.

En dérivant B.2 par rapport au temps et en remplaçant $\partial E_1/\partial z$ par son expression donnée par B.1, nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 E_S}{\partial t \partial z} = \frac{\gamma}{\tau_{PR}} m E_S - \frac{\gamma}{E_{sc} \tau_{PR}} E_1 E_R - \frac{\alpha}{2} \frac{\partial E_S}{\partial t}$$
(B.6)

Nous remplaçons ensuite E_1 par son expression donnée par l'équation B.2 :

$$\frac{\partial^2 E_S}{\partial t \partial z} = \frac{e^{-\alpha z}}{\tau_0} (\gamma - \frac{\alpha}{2}) E_S - \frac{e^{-\alpha z}}{\tau_0} \frac{\partial E_S}{\partial z} - \frac{\alpha}{2} \frac{\partial E_S}{\partial t}$$
(B.7)

L'équation différentielle B.7 régit la propagation de $E_S(z, t)$ dans le cristal.

Le point (4) nous donne les conditions initiales. A t = 0, un réseau est déjà gravé dans le cristal, le régime permanent étant atteint. Nous pouvons donc écrire que :

$$E_S(z,0) = E_{S0}e^{-\alpha z/2}e^{\gamma z}$$
 (B.8)

Au temps $t = 0^+$, nous appliquons une modulation (en amplitude ou en phase) au champ signal $E_S(0,t)$ à l'entrée du cristal et nous recherchons l'expression de $E_S(z,t)$ après une propagation selon z dans le cristal.

Résolution de l'équation de transfert

L'équation B.7 est résolue en utilisant la transformée de Laplace. Cette résolution est bien détaillée dans la référence citée plus haut [121].

La solution obtenue est la suivante :

$$E_{S}(z,t) = e^{-\alpha z/2} e^{\gamma z} \Big[E_{S}(0,0) + \int_{0}^{t} \Big(\tau_{0} \frac{\partial E_{S}}{\partial t}(0,T) + E_{S}(0,T) - E_{S}(0,0) \Big) G(z,t-T) dT \Big]$$
(B.9)

avec :

$$G(z,t) = \frac{e^{-\gamma z}}{\tau_0} e^{-t/\tau_0} {}_1F_1\Big(\frac{\gamma}{\alpha}, 1, (\frac{e^{\alpha z} - 1}{e^{\alpha z}})\frac{t}{\tau_0}\Big)$$
(B.10)

où ${}_{1}F_{1}(a, b, c)$ est la fonction hypergéométrique confluente.

Cette équation reste assez complexe même si il est facile de la résoudre numériquement. Dans certains cas particuliers, elle peut être simplifiée. Elle permet par exemple de déterminer la cinétique du couplage de deux ondes en présence d'absorption. Elle peut aussi être utilisée pour exprimer la transmission de signaux rapidement modulé dans le temps, ce qui est le cas de notre application.

Détection de signaux rapidement modulés en phase

Nous souhaitons mesurer un signal $E_S(0, t)$ qui est modulé en phase, la modulation étant très rapide devant le temps de réponse du cristal. Nous réalisons donc un détection à un temps $t \ll \tau_0$.

Dans ce cas, nous avons : $\lim_{c\to 0} {}_1F_1(a, b, c) = 1$.

L'équation B.9 devient alors :

$$E_{S}(z,t) = e^{-\alpha z/2} e^{\gamma z} \bigg[E_{S}(0,0) + \int_{0}^{t} \left(\tau_{0} \frac{\partial E_{S}}{\partial t}(0,T) + E_{S}(0,T) - E_{S}(0,0) \right) \frac{e^{-\gamma z}}{\tau_{0}} e^{-(t-T)/\tau_{0}} dT \bigg]$$
(B.11)

qui se réécrit :

$$E_{S}(z,t) = e^{-\alpha z/2} \left\{ E_{S}(0,0)e^{\gamma z} + e^{-t/\tau_{0}} \int_{0}^{t} \frac{\partial}{\partial T} \left(e^{T/\tau_{0}} \left[E_{S}(0,T) - E_{S}(0,0) \right] \right) dT \right\}$$
(B.12)

Nous obtenons finalement :

$$E_S(z,t) = e^{-\alpha z/2} \left\{ E_S(0,0) e^{\gamma z} + \left[E_S(0,t) - E_S(0,0) \right] \right\}$$
(B.13)

Si le champ incident modulé $E_S(0,t)$ se met sous la forme d'un produit d'une partie moyenne et d'une partie modulée dans le temps tel que :

$$E_S(0,t) = E_S(0,0) \times \Delta(t) \tag{B.14}$$

avec $\Delta(0) = 1$.

Nous pouvons obtenir la relation générale suivante :

$$E_S(z,t) = e^{-\alpha z/2} E_S(0,0) \Big[(e^{\gamma z} - 1) + \Delta(t) \Big]$$
(B.15)

En considérant par exemple un signal incident modulé en phase tel que : $E_S(0,t) = E_S(0)e^{i\varphi(t)}$. On peut poser : $\Delta(t) = e^{i\varphi(t)}$, tel que $\varphi(0) = 0$ (hypothèse (4)). Le signal transmis s'écrit alors sous la forme suivante :

$$E_S(z,t) = e^{-\alpha z/2} \Big[E_S(0) e^{i\varphi(t)} + (e^{\gamma L} - 1) E_S(0) \Big]$$
(B.16)

ANNEXE C

Normes biomédicales

Cette annexe a pour but de récapituler très brièvement les normes imposées à l'optique et à l'acoustique dans le but d'une application biomédicale. Ces normes nécessitent une actualisation car les effets indésirables de la lumière et des ultrasons sont de mieux en mieux connus.

Normes acoustiques

Il faut les deux conditions suivantes pour être dans les normes ultrasonores, selon les recommandations du "Track 3" du FDA (*Food and Drug Administration*) de 1997 :

Puissance moyenne maximale : $I_{SPTA} = 720 \ mW/cm^2$ ET { Puissance crête maximale : $I_{SPPA} = 190 \ W/cm^2$ OU Index mécanique : $MI < 1.9, \ (MI = \frac{P^-(MPa)}{\sqrt{f(MHz)}})$ }

Dans l'eau, la puissance en régime linéaire pour une onde plane est donnée approximativement par :

$$I \sim 30 \ W/cm^2/MPa^2$$

Normes optiques

Ces conditions, à respecter pour la peau, sont tirées du document NF EN 60825-1 de l'AFNOR (1994) :

On définit un coefficient C_4 tel que $C_4 = min(10^{0.002(\lambda - 700 \ nm)}, 5).$

Régime continu :

Entre 400 et 700 nm : $P < 200 \ mW/cm^2$

Entre 700 et 1400 nm : $P < C_4 \times 200 \ mW/cm^2$

Exemples :

à 800 nm : $P < 317 \ mW/cm^2$, à 900 nm : $P < 500 \ mW/cm^2$, à 1100 nm : $P < 1000 \ mW/cm^2$.

Régime impulsionnel :

Durée de l'impulsion Δt exprimé en secondes et compris entre 0.1 μs et 10 s.

Entre 400 et 700 nm : $E < 1.1 \times \Delta t^{0.25} J/cm^2$

Entre 700 et 1400 nm : $E < 1.1 \times C_4 \times \Delta t^{0.25} ~J/cm^2$

Exemples :

à 800 nm : $E(100 \ \mu s) < 174 \ mJ/cm^2$, correspondant à une puissance crête $P < 1740 \ W/cm^2$ à 800 nm : $E(1 \ ms) < 317 \ mJ/cm^2$, correspondant à une puissance crête $P < 317 \ W/cm^2$

ANNEXE D

Acoustique

Caractéristiques d'un faisceau acoustique

Nous utilisons des transducteurs focalisés. Ce sont les caractéristiques de ces transducteurs qui imposent la résolution de notre imagerie.

<u>Notons</u> :

 f_{US} : la fréquence acoustique, v_{US} : la vitesse de l'onde ultrasonore dans le milieu (1500 $m.s^{-1}$ dans l'eau), F: la focale acoustique, D: l'ouverture ou diamètre de l'émetteur, $\lambda_{US} = \frac{v_{US}}{f_{US}}$: la longueur d'onde.

Largeur focale

La largeur du faisceau au point focal Δx_{US} détermine la résolution transverse de l'imagerie. Elle est définie par :

$$\Delta x_{US} = \frac{\lambda_{US}F}{D}$$

Pour $f_{US} = 2.3 \ MHz$, $v_{US} = 1500 \ m.s^{-1}$, $F = 75 \ mm$ et $D = 38 \ mm$, nous trouvons $\Delta x_{US} = 1.3 \ mm$. Ces valeurs numériques sont celles du transducteur A395S/711580 caractérisé plus loin dans cette annexe et utilisé pour l'expérience d'imagerie acousto-optique résolue en temps.

Longueur de Rayleigh

La longueur de Rayleigh F_r est la distance sur laquelle le faisceau acoustique est "focalisé" (cigare acoustique). Elle varie avec la fréquence du transducteur utilisé.

Cette longueur s'exprime comme :

$$F_r = \frac{2NS_F^2}{1 + \frac{1}{2}S_F}$$

où N est l'étendue du champ proche et $S_F = \frac{F}{N}$ est la focale normalisée. L'étendue du champ proche s'écrit :

$$N = \frac{D^2 f_{US}}{4v_{US}} = \frac{D^2}{4\lambda_{US}}$$

Nous pouvons alors exprimer la longueur de Rayleigh en fonction des différents paramètres connus :

$$F_r = \frac{4F}{1 + \frac{D^2 f_{US}}{2v_{US}F}}$$

Pour les même valeurs numériques utilisées plus haut, nous trouvons : $F_r = 19 mm$. Cette valeur justifie la nécessité d'ajouter une modalité pour obtenir une résolution axiale. Pour un transducteur de fréquence 5 MHz et possédant les même caractéristiques géométriques, nous obtenons $F_r = 9 mm$.

Pour plus de détails, on peut se référer à la note technique de Panametrics [174].

Caractérisation des transducteurs

Nous allons reporter ici certaines des mesures réalisées sur les transducteurs utilisés. Pour mesurer la pression acoustique au foyer de chaque transducteur, nous avons utilisé un hydrophone calibré. Les mesures ont été réalisée par couples transducteur/amplificateur de puissance.

Nous avons à notre disposition :

- Plusieurs transducteurs Panametrics A395S différenciés par leurs numéros de série et fonctionnant autour de 2.3 MHz. Leurs focales valent en moyenne 65 mm, et 75 mm pour le numéro 711580. Leur ouverture est de 38 mm.
- $\bullet\,$ Un transducteur large bande Panametrics V395 fonctionnant autour de 2.3 MHz
- Deux amplificateurs de puissance (SCO ALP6080 10 W et EI 325LA 25 W).



Figure D.1 – Pression acoustique au foyer du transducteur A395S (numéro de série : 711580), à 2.3 MHz et avec deux amplificateurs différents (10 W et 25 W) alimentés à 1 Vpp, 8 cycles.



Figure D.2 – Pression acoustique au foyer des transducteurs **A395S** à 2.3 MHz, avec un amplificateur 10 W, alimenté à 1 Vpp, 8 cycles.



Figure D.3 – Pression acoustique au foyer du transducteur V395 à 2.3 MHz, avec deux amplificateurs différents (10 W et 25 W) alimentés à 1 Vpp, 8 cycles.



Figure D.4 – Pression acoustique au foyer du transducteur A395S (numéro de série : 711580), en fonction de la tension appliquée.



Figure D.5 – Pression acoustique au foyer du transducteur V395 en fonction de la tension appliquée.

ANNEXE E

Préparations des gels

Cette annexe explique le protocole expérimental de préparation des gels diffusants.

Trois ingrédients principaux entrent dans la composition d'un gel diffusant utilisé pour notre imagerie : de l'eau, de l'Intralipide 10% et de l'Agar. L'Agar et l'eau permettent de réaliser un gel avec les propriétés mécaniques voulues qui dépendent de la concentration d'Agar. L'intralipide donne au gel son caractère diffusant.

La première étape consiste à déterminer les quantités à utiliser en fonction des propriétés optiques et mécaniques voulues. Pour cela nous utilisons un programme originellement écrit par Arik Funke, modifié par la suite (voir code ci-dessous). Les propriétés élastiques des gels sont étudiées dans l'article de Hall et al. [175]. Les propriétés optiques de l'Intralipide sont issues de l'article de van Staveren et al. [176].

Nous choisissons, en entrée, la longueur d'onde, le coefficient de diffusion réduit μ'_s et le module de Young (E au moins égal à 20 kPa pour avoir un gel de bonne consistance et assez solide). en sortie, nous obtenons les quantités des différents ingrédients.

Une fois les quantités calculées, la fabrication se fait en plusieurs étapes :

- Chauffer l'eau à 98° (plaque chauffante asservie en température + agitateur magnétique).
- Ajouter l'Agar, laisser agiter jusqu'à ce que les particules d'Agar disparaissent, en veillant à ne pas perdre d'eau par évaporation. Pour cela on peut couvrir, ou mesurer la quantité d'eau perdue et la rajouter. Ces deux première étapes peuvent être regroupée en chauffant le mélange eau+Agar au micro-onde.
- Laisser refroidir, jusqu'à atteindre une de 50°.
- Ajouter l'Intralipide et laisser mijoter. Il est important d'ajouter l'Intralipide en dessous de 50°, autrement il peut cuire et le gel est alors inhomogène.
- Verser le mélange dans un moule et laisser refroidir. Des cylindres peuvent être utilisés

pour créer des inclusions.

• Après solidification, remplir les inclusions de gel en fonction des propriétés souhaitées pour l'objet. Recouvrir enfin du même gel que la matrice, pour que les objets soient invisibles de l'extérieur.



Figure E.1 – Photos d'échantillon diffusants : (a) Gel contenant du blanc de poulet, (b) Coupe d'un gel diffusant contenant une inclusion absorbante.

Code Gel

Programme principal

```
%% Parametres à changer
%units convention
%lambda
                  en nm
                        (valid for 400 nm < lambda < 1100 nm)
%concAgar
                  en pourcentage massique
%concIntralipid
                  en pourcentage massique intralipid 10%
%Youngmodulus en kPa
%mu_sprime
                  en cm<sup>-1</sup> reduced scattering coeficient
%mu_a
                  en cm^-1
%masse de gel
                  en g%
lambda=780;
concAgar=0; %Agar mass (g)
concIntralipid=15; % Intralipid mass (g)
concInkSolution=0; %Ink mass, encre calibrée par arik
Youngmodulus=30;
mu_sprime=10;
```

```
mu_a=0;
massGel=250 %gel mass (total=water+agar+intralipid)%g
%% programme principal (pas besoin de toucher normalement)
rep=input('physical properties (1) strike any key\n');
if rep==1
%
    lambda=input('lambda? (nm)\n');
%
    concAgar=input('concentration en agar? (pourcentage massique)\n');
%
    concIntralipid=input('concentration en intralipides? (pourcentage massique)\n');
%
    concInkSolution=input('concentration en encre? (pourcentage massique)\n');
    [Youngmodulus,mu_sprime,mu_a] =
    gelind(lambda,concAgar,concIntralipid,concInkSolution);
    Youngmodulus
    mu_sprime
    mu_a
else
%
    lambda=input('lambda? (nm)\n');
%
    Youngmodulus=input('module dYoung? (en kPa)\n');
%
    mu sprime=input('coefficient de diffusion? (en cm^-1)\n');
%
    mu_a=input('coefficient dabsorption? (en cm^-1)\n');
%
    massGel=input('masse de gel voulue? (en mg)\n');
    [massAgar,massIntralipid,massInkSolution,massWater]=
    geldir(lambda,Youngmodulus,mu sprime,mu a,massGel);
    massAgar
    massIntralipid
    massInkSolution
    massWater
end
return
```

191

Fonction geldir

```
function [massAgar,massIntralipid,massInkSolution,massWater]
=geldir(lambda,Youngmodulus,mu_sprime,mu_a,massGel)
```

%units convention

```
%lambda
                  en nm (valid for 400 nm < lambda < 1100 nm)
%concAgar
                  en pourcentage massique
%concIntralipid
                  en pourcentage massique
%Youngmodulus en kPa
%mu sprime
                  en cm^-1
%mu a
                  en cm^-1
%masse de gel
                  en mg
% Système d'équations
%équation d'élasticité Hall, et al., Phantom Materials for Elastography,
%IEEE UFFC, 1997:
concAgar=(Youngmodulus/142176)^(1/1.87);
%équation de diffusion van Staveren, et al., Light scattering in
%Intralipid-10% in the wavelength range of 400-1100 nm, AO, 1991:
g = 1.1-0.00058*lambda;
mu_agarfactor=1-2.6038*concAgar^(0.4948);
mu_sprimeuncorrected=mu_sprime/mu_agarfactor;
mu s=mu sprimeuncorrected/(1-g);
concIntralipid=mu s/(2.536*10^(9)*lambda^(-2.4));
```

%équation d'absorption Linear absorption. Stock solution equation obtained %by curve-fitting on absorption spectrum of the stock solution: %mu_astocksolution=log(10)*(1.97*10^(7)*lambda^(-1.889)+45); %fit arik mu_astocksolution=622.9*exp(-.00654*lambda)+76.85*exp(-.0009121*lambda); %fit salma spectre du 5/01/11

concInkSolution=mu_a/mu_astocksolution;

%équation aux masses

```
massAgar=massGel*concAgar;
massIntralipid=massGel*concIntralipid;
massInkSolution=massGel*concInkSolution;
massWater=massGel*(1-concIntralipid-concAgar-concInkSolution);
```

ANNEXE F

Photos du montage expérimental

 $V^{\rm oici}$ quelques photographies du montage expérimental d'imagerie acousto-optique résolue en temps par holographie photoréfractive :



Figure F.1 – Photo du montage expérimental : vue globale.



Figure F.2 – Photo du montage expérimental : collection et détection.

Références

- P. Vaupel, F. Kallinowski, and P. Okunieff. Blood flow, oxygen and nutrient supply, and metabolic microenvironment of human tumors : a review. *Cancer research*, 49(23) :6449–6465, December 1989.
- [2] B.J. Tromberg, N. Shah, R. Lanning, A. Cerussi, J. Espinoza, T. Pham, L. Svaasand, and J. Butler. Non-invasive in vivo characterization of breast tumors using photon migration spectroscopy. *Neoplasia*, 2(1-2) :26–40, 2000.
- [3] R. Pierrat. Propagation et émission du rayonnement en milieu diffusant. Application à l'imagerie des milieux complexes. PhD thesis, Ecole Centrale Paris, 2007.
- [4] C.F. Bohren and D.R. Huffman. Absorption and scattering of light by small particles. Wiley-Interscience, New York, 1983.
- [5] W.F. Cheong, S.A. Prahl, and A.J. Welch. A review of the optical properties of biological tissues. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 26(12) :2166–2185, 1990.
- [6] A. Ishimaru. Wave Propagation and Scattering in Random Media. IEE Press/Oxford University Press, 1997.
- [7] G.M. Hale and M.R. Querry. Optical-constants of water in the 200 nm to 200 m wavelength region. Applied Optics, 12(3):555–563, 1973.
- [8] L.V. Wang and H.I. Wu. Biomedical Optics Principles and Imaging. Wiley Inter-Science, 2007.
- R.R Anderson, B.S John, and M.D Parrish. The optics of human skin. The Journal of Investigate Dermatology, 77(1) :13–19, 1981.
- [10] J.L. Meyzonnette. Radiométrie et détection optique. Collection edition, 2002.
- [11] J.W. Goodman. Some fundamental properties of speckle. Journal of the Optical Society of America, 66(11) :1145–1150, November 1976.
- [12] J.W. Goodman. Statistical properties of laser speckle patterns. In Laser Speckle and Related Phenomena, pages 9–75. Springer Berlin / Heidelberg, 1975.
- [13] D.J. Pine, D.A. Weitz, P.M. Chaikin, and E. Herbolzheimer. Diffusing wave spectroscopy. *Physical Review Letters*, 60(12) :1134–1137, 1988.

- [14] K. Zarychta, E. Tinet, L. Azizi, S. Avrillier, D. Ettori, and J.M. Tualle. Timeresolved diffusing wave spectroscopy with a CCD camera. *Optics express*, 18(16) :16289–16301, August 2010.
- [15] M. Gross, P. Goy, B.C. Forget, M. Atlan, F. Ramaz, A.C. Boccara, and A.K. Dunn. Heterodyne detection of multiply scattered monochromatic light with a multipixel detector. *Optics Letters*, 30(11) :1357–1359, June 2005.
- [16] M. Atlan. Imagerie optique cohérente de milieux diffusants. PhD thesis, Université Paris VI, 2005.
- [17] C. Dunsby and P.M.W. French. Techniques for depth-resolved imaging through turbid media including coherence-gated imaging. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 36 :R207–R227, July 2003.
- [18] G.E. Anderson, F. Liu, and R.R. Alfano. Microscope imaging through highly scattering media. Optics Letters, 19(13) :981–983, July 1994.
- [19] E. Beaurepaire, M. Oheim, and J. Mertz. Ultra-deep two-photon fluorescence excitation in turbid media. Optics Communications, 188(1-4):25–29, February 2001.
- [20] W. Cai, S.K. Gayen, M. Xu, M. Zevallos, M. Alrubaiee, M. Lax, and R. R. Alfano. Optical tomographic image reconstruction from ultrafast time-sliced transmission measurements. *Applied Optics*, 38(19) :4237–4246, July 1999.
- [21] L. Wang, P. P. Ho, X. Liang, H. Dai, and R. R. Alfano. Kerr Fourier imaging of hidden objects in thick turbid media. *Optics Letters*, 18(3) :241–243, February 1993.
- [22] K.M. Yoo, Q. Xing, and R.R. Alfano. Imaging objects hidden in highly scattering media using femtosecond second-harmonic-generation cross-correlation time gating. *Optics Letters*, 16(13) :1019–1021, July 1991.
- [23] M.D. Duncan, R. Mahon, L.L. Tankersley, and J. Reintjes. Time-gated imaging through scattering media using stimulated Raman amplification. Optics Letters, 16(23) :1868–1870, April 1992.
- [24] G. Le Tolguenec, F. Devaux, and E. Lantz. Two-dimensional time-resolved direct imaging through thick biological tissues : a new step toward noninvasive medical imaging. *Optics Letters*, 24(15) :1047–1049, August 1999.
- [25] K.A. STETSON. Holographic fog penetration. Journal of the Optical Society of America, 57(8) :1060–1061, August 1967.
- [26] 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, and J.G. FUJIMOTO. Optical coherence tomography. *Science*, 254 :1178–1181, 1991.
- [27] Z. Chen, T.E. Milner, S. Srinivas, X. Wang, A. Malekafzali, M.J. van Gemert, and J.S. Nelson. Noninvasive imaging of in vivo blood flow velocity using optical Doppler tomography. *Optics Letters*, 22(14) :1119–1121, July 1997.
- [28] S.C. Hyde, N.P. Barry, R. Jones, J.C. Dainty, P.M. French, M.B. Klein, and B.A. Wechsler. Depth-resolved holographic imaging through scattering media by photorefraction. *Optics Letters*, 20(11) :1331–1333, June 1995.
- [29] N. Abramson. Light-in-flight recording by holography. Optics Letters, 3(4):121–123, October 1978.

- [30] E. Cuche, P. Marquet, and C. Depeursinge. Simultaneous amplitude-contrast and quantitative phase-contrast microscopy by numerical reconstruction of Fresnel off-axis holograms. *Applied Optics*, 38(34) :6994–7001, December 1999.
- [31] B.B. Das, K.M. Yoo, and R.R. Alfano. Ultrafast time-gated imaging in thick tissues : a step toward optical mammography. *Optics Letters*, 18(13) :1092–1094, July 1993.
- [32] J.A. Moon, P.R. Battle, M. Bashkansky, R. Mahon, M.D. Duncan, and J. Reintjes. Achievable spatial resolution of time-resolved transillumination imaging systems which utilize multiply scattered light. *Physical Review E*, 53(1):1142–1158, 1996.
- [33] J.C. Hebden and D.T. Delpy. Enhanced time-resolved imaging with a diffusion model of photon transport. Optics Letters, 19(5) :311–313, March 1994.
- [34] D.A. Boas, T. Gaudette, G. Strangman, X. Cheng, J.J. Marota, and J.B. Mandeville. The accuracy of near infrared spectroscopy and imaging during focal changes in cerebral hemodynamics. *NeuroImage*, 13(1):76–90, January 2001.
- [35] R. Choe, T. Durduran, S.H. Chung, D. Konecky, S. Pathak, Han Y. Ban, D. R, E.M. Buckley, M.N. Kim, C. Mies, M.A. Rosen, M. D, and A.G. Yodh. Breast Cancer Therapy Monitoring with Diffuse Optical Tomography and Diffuse Correlation Spectroscopy. In OSA BIOMED Topical, pages 2–4, 2010.
- [36] A.P. Gibson, J.C. Hebden, and S.R. Arridge. Recent advances in diffuse optical imaging. *Physics in Medicine and Biology*, 50(4) :R1–R43, February 2005.
- [37] B. Montcel, R. Chabrier, M. Torregrossa, and P. Poulet. Détection d'activations corticales par des méthodes d'optique diffuse résolues en temps. In *Journal de Physique IV (Proceedings)*, volume 127, pages 105–109, 2005.
- [38] L. Azizi, K. Zarychta, D. Ettori, E. Tinet, and J.M. Tualle. Ultimate spatial resolution with Diffuse Optical Tomography. *Optics Express*, 17(14) :12132–12144, July 2009.
- [39] A.H. Hielscher. Optical tomographic imaging of small animals. Current opinion in biotechnology, 16(0) :79–88, February 2005.
- [40] G. He. Optical phase conjugation : principles, techniques, and applications. Progress in Quantum Electronics, 26(3) :131–191, May 2002.
- [41] S. Popoff, G. Lerosey, M. Fink, A.C. Boccara, and S. Gigan. Image transmission through an opaque material. *Nature Communications*, 1(6) :1–5, September 2010.
- [42] C.L. Hsieh, Y. Pu, R. Grange, and D. Psaltis. Digital phase conjugation of second harmonic radiation emitted by nanoparticles in turbid media. *Optics Express*, 18(12):533-537, 2010.
- [43] X. Xu, H. Liu, and L.V. Wang. Time-reversed ultrasonically encoded optical focusing into scattering media. *Nature Photonics*, 5 :154–155, 2011.
- [44] V. Ntziachristos, A.G. Yodh, M.D. Schnall, and B. Chance. MRI-guided diffuse optical spectroscopy of malignant and benign breast lesions. *Neoplasia*, 4(4) :347– 354, 2002.
- [45] A.G. Bell. On the production and reproduction of sound by light. American Journal of Sciences, 20(118) :305–324, 1880.
- [46] H.F. Zhang, K. Maslov, G. Stoica, and L.V. Wang. Functional photoacoustic microscopy for high-resolution and noninvasive in vivo imaging. *Nature Biotechnology*, 24(7) :848–851, July 2006.
- [47] S. Jiao, Z. Xie, H. F. Zhang, and C.A. Puliafito. Simultaneous multimodal imaging with integrated photoacoustic microscopy and optical coherence tomography. *Optics Letters*, 34(19) :2961–2963, October 2009.
- [48] M. Xu and L.V. Wang. Photoacoustic imaging in biomedicine. Review of Scientific Instruments, 77(041101) :1–22, 2006.
- [49] D. Dolfi and F. Micheron. Procédé et système d'imagerie par transillumination à marquage en frequence des photons, 1989.
- [50] F.A. Marks, H.W. Tomlinson, and G.W. Brooksby. Comprehensive approach to breast cancer detection using light : photon localization by ultrasound modulation and tissue characterization by spectral discrimination. *Proceedings of SPIE*, 1888 :500–510, 1993.
- [51] P. Debye and F.W. Sears. On the scattering of light by supersonic waves. Proceedings of the National Academy of, 18(6) :409–414, 1932.
- [52] R. Lucas and P. Biquard. Propriétés optiques des milieux solides et liquides soumis aux vibrations élastiques ultra sonores, 1932.
- [53] W. Leutz and G. Maret. Ultrasonic modulation of multiply scattered light. *Physica B*, 204 :14–19, August 1995.
- [54] L. Wang, S. L. Jacques, and X. Zhao. Continuous-wave ultrasonic modulation of scattered laser light to image objects in turbid media. *Optics Letters*, 20(6) :629– 631, March 1995.
- [55] M. Kempe, M. Larionov, D. Zaslavsky, and A. Z. Genack. Acousto-optic tomography with multiply scattered light. *Journal of the Optical Society of America A*, 14(5):1151–1158, May 1997.
- [56] L.V. Wang. Mechanisms of Ultrasonic Modulation of Multiply Scattered Coherent Light : An Analytic Model. *Physical Review Letters*, 87(4) :1–4, July 2001.
- [57] S. Sakadžić and L.V. Wang. Ultrasonic modulation of multiply scattered coherent light : An analytical model for anisotropically scattering media. *Physical Review* E, 66(026603) :1–9, August 2002.
- [58] G.D. Mahan, W.E. Engler, J.J. Tiemann, and E. Uzgiris. Ultrasonic tagging of light : theory. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 95(24) :14015–14019, November 1998.
- [59] M. Kobayashi, T. Mizumoto, Y. Shibuya, M. Enomoto, and M. Takeda. Fluorescence tomography in turbid media based on acousto-optic modulation imaging. *Applied Physics Letters*, 89(181102) :1–3, 2006.
- [60] B. Yuan and Y. Liu. Ultrasound-modulated fluorescence from rhodamine B aqueous solution. Journal of Biomedical Optics, 15(2):021321, 2010.
- [61] M.S. Patterson, B. Chance, and B.C. Wilson. Time resolved reflectance and transmittance for the non-invasive measurement of tissue optical properties. *Applied Optics*, 28(12) :2331–2336, 1989.

- [62] S. Sakadžić and L.V. Wang. Modulation of multiply scattered coherent light by ultrasonic pulses : An analytical model. *Physical Review E*, 72(036620) :1–12, September 2005.
- [63] L.V. Wang. Mechanisms of ultrasonic modulation of multiply scattered coherent light : a Monte Carlo model. Optics Letters, 26(15) :1191–1193, August 2001.
- [64] D.J. Pine, D.A. Weitz, J.X. Zhu, and E. Herbolzheimer. Diffusing-wave spectroscopy : dynamic light scattering in the multiple scattering limit. *Journal de Physique*, 51(18) :2101–2127, 1990.
- [65] J. Selb and D. Boas. Use of a correlation diffusion equation to model the acoustophotonic interaction. In *Biomedical Topical Meeting - Advances in optical imaging and photon migration*, 2002.
- [66] S. Sakadžić and L.V. Wang. Correlation transfer equation for ultrasound-modulated multiply scattered light. *Physical Review E*, 74(036618) :1–10, September 2006.
- [67] S. Sakadžić and L.V. Wang. Correlation Transfer and Diffusion of Ultrasound-Modulated Multiply Scattered Light. *Physical Review Letters*, 96(163902) :1–4, April 2006.
- [68] S. Sakadzić and L.V. Wang. Correlation transfer equation for multiply scattered light modulated by an ultrasonic pulse. *Journal of the Optical Society of America* A, 24(9) :2797–2806, September 2007.
- [69] S.R. Kothapalli, S. Sakadzić, C. Kim, and L.V. Wang. Imaging optically scattering objects with ultrasound-modulated optical tomography. *Optics Letters*, 32(16) :2351–2353, August 2007.
- [70] J. Selb. Source virtuelle acousto-optique pour l'imagerie des milieux diffusants. PhD thesis, 2002.
- [71] J. Selb, L. Pottier, and A.C. Boccara. Nonlinear effects in acousto-optic imaging. Optics Letters, 27(11) :918–920, June 2002.
- [72] H.W. Tomlinson and J.J. Tiemann. Light imaging in a scattering medium, using ultrasonic probing and speckle image differencing, 1993.
- [73] A. Lev and B.G. Sfez. Pulsed ultrasound-modulated light tomography. Optics Letters, 28(17) :1549–1551, September 2003.
- [74] L.V. Wang. Ultrasound-modulated optical tomography of absorbing objects buried in dense tissue-simulating turbid media. Applied Optics, 36(28):7277-7282, 1997.
- [75] T.W. Murray, L. Sui, G. Maguluri, R.A. Roy, A. Nieva, F. Blonigen, and C.A. DiMarzio. Detection of ultrasound-modulated photons in diffuse media using the photorefractive effect. *Optics Letters*, 29(21) :2509–2511, November 2004.
- [76] F. Ramaz, B.C. Forget, M. Atlan, A.C. Boccara, M. Gross, P. Delaye, and G. Roosen. Photorefractive detection of tagged photons in ultrasound modulated optical tomography of thick biological tissues. *Optics Express*, 12:5469–5474, 2004.
- [77] S. Lévêque, A.C. Boccara, M. Lebec, and H. Saint-Jalmes. Ultrasonic tagging of photon paths in scattering media : parallel speckle modulation processing. *Optics Letters*, 24(3) :181–183, February 1999.

- [78] G. Yao and L.V. Wang. Theoretical and experimental studies of ultrasoundmodulated optical tomography in biological tissue. *Applied Optics*, 39(4):659– 664, February 2000.
- [79] M. Gross, P. Goy, and M. Al-koussa. Shot-noise detection of ultrasound-tagged photons in ultrasound-modulated optical imaging. Optics Letters, 28(24) :2482– 2484, 2003.
- [80] J. Li, G. Ku, and L.V. Wang. Ultrasound-modulated optical tomography of biological tissue by use of contrast of laser speckles. *Applied Optics*, 41(28) :6030–6035, October 2002.
- [81] R. Zemp, S. Sakadžić, and L.V. Wang. Stochastic explanation of speckle contrast detection in ultrasound-modulated optical tomography. *Physical Review E*, 73(6) :1–5, June 2006.
- [82] S. Sakadzić and L.V. Wang. High-resolution ultrasound-modulated optical tomography in biological tissues. Optics Letters, 29(23) :2770–2772, December 2004.
- [83] G. Rousseau, A. Blouin, and J.P. Monchalin. Ultrasound-modulated optical imaging using a high-power pulsed laser and a double-pass confocal Fabry-Perot interferometer. *Optics Letters*, 34(21):3445–7, November 2009.
- [84] Y. Li, H. Zhang, C. Kim, K. H. Wagner, P. Hemmer, and L. V. Wang. Pulsed ultrasound-modulated optical tomography using spectral-hole burning as a narrowband spectral filter. *Applied Physics Letters*, 93(011111) :1–3, 2008.
- [85] X. Xu, S.R. Kothapalli, H. Liu, and L.V. Wang. Spectral hole burning for ultrasound-modulated optical tomography of thick tissue. *Journal of Biomedical Optics*, 15(6) :066018, 2010.
- [86] B. Yuan, Y. Liu, P.M. Mehl, and J. Vignola. Microbubble-enhanced ultrasoundmodulated fluorescence in a turbid medium. *Applied Physics Letters*, 95(181113) :1–3, 2009.
- [87] B. Yuan. Ultrasound-modulated fluorescence based on a fluorophore-quencherlabeled microbubble system. *Journal of Biomedical Optics*, 14(2):024043, 2011.
- [88] J. Honeysett, E. Stride, and T. Leung. Monte Carlo simulations of acousto-optics with microbubbles. In *Proceedings of SPIE*, 2010.
- [89] L.V. Wang and G. Ku. Frequency-swept ultrasound-modulated optical tomography of scattering media. *Optics Letters*, 23(12) :975–977, June 1998.
- [90] G. Yao, S. Jiao, and L.V. Wang. Frequency-swept ultrasound-modulated optical tomography in biological tissue by use of parallel detection. Optics Letters, 25(10):734–736, May 2000.
- [91] B.C. Forget, F. Ramaz, M. Atlan, J. Selb, and A.C. Boccara. High-contrast fast Fourier transform acousto-optical tomography of phantom tissues with a frequencychirp modulation of the ultrasound. *Applied Optics*, 42(7) :1379–1383, March 2003.
- [92] M. Lesaffre, S. Farahi, M. Gross, P. Delaye, C. Boccara, and F. Ramaz. Acoustooptical coherence tomography using random phase jumps on ultrasound and light. *Optics Express*, 17(20) :18211–18218, September 2009.

- [93] S. Farahi, G. Montemezzani, A.A. Grabar, J.P. Huignard, and F. Ramaz. Photorefractive acousto-optic imaging in thick scattering media at 790 nm with a $Sn_2P_2S_6: Te \text{ crystal. Optics Letters}, 35(11): 1798-1800$, June 2010.
- [94] M. Atlan, B.C. Forget, F. Ramaz, A.C. Boccara, and M. Gross. Pulsed acousto-optic imaging in dynamic scattering media with heterodyne parallel speckle detection. *Optics Letters*, 30(11) :1360–1362, June 2005.
- [95] R.M. Macfarlane. Direct process thermal line broadening in Tm :YAG. Journal of Luminescence, 85 :181–186, 2000.
- [96] P. Goldner, O. Guillotnoel, A. Louchet, F. Deseze, V. Crozatier, I. Lorgere, F. Bretenaker, and J. Legouet. Hole burning study of Tm³⁺ : YAG hyperfine structure for quantum storage applications. Journal of Luminescence, 119(120) :293–297, July 2006.
- [97] L. Ménager, I. Lorgeré, J.L. Le Gouët, D. Dolfi, and J.P. Huignard. Demonstration of a radio-frequency spectrum analyzer based on spectral hole burning. *Optics Letters*, 26(16) :1245–1247, August 2001.
- [98] R.M. Macfarlane. High-resolution laser spectroscopy of rare-earth doped insulators : a personal perspective. *Journal of Luminescence*, 100 :1–20, December 2002.
- [99] J.B Gruber, M.E Hills, R.M Macfarlane, C.A Morrison, G.A Turner, G.J Quarles, G.J Kintz, and L. Esterowitz. Spectra and energy levels of Tm³+ : Y₃Al₅O₁₂. Physical Review B, 40(14) :9464–9478, November 1989.
- [100] R.M. Macfarlane. Photon-echo measurements on the trivalent thulium ion. Optics Letters, 18(22) :1958–1960, November 1993.
- [101] Y. Li, P. Hemmer, C. Kim, H. Zhang, and L.V. Wang. Detection of ultrasoundmodulated diffuse photons using spectral-hole burning. *Optics Express*, 16(19) :14862–14874, September 2008.
- [102] N. Ohlsson, M. Nilsson, S. Kröll, and R.K. Mohan. Long-time-storage mechanism for Tm :YAG in a magnetic field. Optics Letters, 28(6) :450–452, March 2003.
- [103] G. Rousseau, A. Blouin, and J.P. Monchalin. Ultrasound-modulated optical imaging using a powerful long pulse laser. *Optics Express*, 16(17) :12577–12590, August 2008.
- [104] D. Gabor. Microscopy by Reconstructed Wave-Fronts. Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 197(1051) :454–487, July 1949.
- [105] E.N. Leith and J. Upatnieks. Wavefront reconstruction with diffused illumination and three-dimensional objects. *Journal of the Optical Society of America*, 54(11):1295–1301, 1964.
- [106] J. W. Goodman. Digital Image Formation From Electronically Detected Holograms. Applied Physics Letters, 11(3):77–79, 1967.
- [107] U. Schnars and W. Jüptner. Direct recording of holograms by a CCD target and numerical reconstruction. Applied Optics, 33(2) :179–181, January 1994.
- [108] E. Cuche, P. Marquet, and C. Depeursinge. Spatial filtering for zero-order and twinimage elimination in digital off-axis holography. *Applied Optics*, 39(23) :4070– 4075, August 2000.

- [109] I. Yamaguchi and T. Zhang. Phase-shifting digital holography. Optics Letters, 22(16) :1268–1270, August 1997.
- [110] F. Le Clerc, L. Collot, and M. Gross. Numerical heterodyne holography with twodimensional photodetector arrays. *Optics Letters*, 25(10) :716–718, May 2000.
- [111] M. Atlan, M. Gross, and E. Absil. Accurate phase-shifting digital interferometry. Optics Letters, 32(11) :1456–1458, June 2007.
- [112] M. Gross and M. Atlan. Digital holography with ultimate sensitivity. Optics Letters, 32(8) :909–911, April 2007.
- [113] F. Verpillat, F. Joud, M. Atlan, and M. Gross. Digital Holography at Shot Noise Level. IEEE/OSA Journal of Display Technology, pages 1–9, 2010.
- [114] A. Ashkin, G.D. Boyd, J.M. Dziedzic, R.G. Smith, A.A. Ballman, J.J. Levinstein, and K. Nassau. Optically-induced refractive index inhomogeneities in *LiNbO*₃ and *LiTaO*₃. Applied Physics Letters, 9(1):72–74, 1966.
- [115] P. Yeh. Introduction to photorefractive nonlinear optics. Wiley, 1993.
- [116] P. Günter and J.P. Huignard. Photorevractive materials and their applications. Springer, 2006.
- [117] A. Adibi, K. Buse, and D. Psaltis. Multiplexing holograms in $LiNbO_3$: Fe: Mn crystals. Optics Letters, 24(10):652–654, May 1999.
- [118] J. Feinberg, D. Heiman, A.R. Tanguay, and R.W. Hellwarth. Photorefractive effects and light-induced charge migration in barium titanate. *Journal of Applied Physics*, 51(3) :1297–1305, 1980.
- [119] N.V. Kukhtarev, V.B. Markov, S.G. Odulov, M.S. Soskin, and V.L. Vinetskii. Holographic storage in electrooptic crystals. I. Steady state. *Ferroelectrics*, 22 :949– 960, 1979.
- [120] M.C. Bashaw, M. Jeganathan, and L. Hesselink. Theory of two-center transport in photorefractive media for low-intensity, continuous-wave illumination in the quasi-steady-state limit. *Journal of the Optical Society of America B*, 11(9):1743–1757, 1994.
- [121] Philippe Delaye, Louis-Anne de Montmorillon, and Gérald Roosen. Transmission of time modulated optical signals through an absorbing photorefractive crystal. *Optics Communications*, 118(1-2):154–164, July 1995.
- [122] Y.H. Hong, P. Xie, J.H. Dai, Y. Zhu, H.G. Yang, and H. J. Zhang. Fanning effects in photorefractive crystals. *Optics Letters*, 18(10) :772–774, May 1993.
- [123] G. Montemezzani, A.A. Zozulya, L. Czaia, D.Z. Anderson, M. Zgonik, and P. Gunter. Origin of the lobe structure in photorefractive beam fanning. *Physical Review* A, 52 :1791–1794, 1995.
- [124] M. Jazbinšek, G. Montemezzani, P. Günter, A.A. Grabar, I.M. Stoika, and Y.M. Vysochanskii. Fast near-infrared self-pumped phase conjugation with photore-fractive Sn₂P₂S₆. Journal of the Optical Society of America B, 20(6) :1241–1246, 2003.
- [125] Q.B. He and P. Yeh. Fanning noise reduction in photorefractive amplifiers using incoherent erasures. Applied Optics, 33(2):283-287, January 1994.

- [126] W.S. Rabinovich, B.J. Feldman, and G.C. Gilbreath. Suppression of photorefractive beam fanning using achromatic gratings. *Optics Letters*, 16(15):1147–1149, August 1991.
- [127] H. Rajbenbach, A. Delboulbé, and J. P. Huignard. Noise suppression in photorefractive image amplifiers. Optics Letters, 14(22) :1275–1277, November 1989.
- [128] M. Lesaffre. Imagerie acousto-optique de milieux diffusants épais par détection photoréfractive. PhD thesis, Université Paris VI, 2009.
- [129] K. Meerholz, B.L. Volodin, B.K. Sandalphon, and N. Peyghambarian. A photorefractive polymer with high optical gain and diffraction efficiency near 100%. *Nature*, 371 :497–500, 1994.
- [130] O. Ostroverkhova and W.E. Moerner. Organic photorefractives : mechanisms, materials, and applications. *Chemical reviews*, 104(7) :3267–3314, July 2004.
- [131] E.V. Rudenko and A.V. Sukhov. Photoinduced electrical conductivity and photorefraction in a nematic liquid crystal. JETP Letter, 59(2) :142–146, 1994.
- [132] U. Bortolozzo, S. Residori, and J.P. Huignard. Enhancement of the two-wave-mixing gain in a stack of thin nonlinear media by use of the Talbot effect. *Optics Letters*, 31(14) :2166–2168, July 2006.
- [133] P.A. Blanche, A. Bablumian, R. Voorakaranam, C. Christenson, W. Lin, T. Gu, D. Flores, P. Wang, W.Y. Hsieh, M. Kathaperumal, B. Rachwal, O. Siddiqui, J. Thomas, R.A. Norwood, M. Yamamoto, and N. Peyghambarian. Holographic three-dimensional telepresence using large-area photorefractive polymer. *Nature*, 468(7320) :80–83, November 2010.
- [134] X. Xu, H. Zhang, P. Hemmer, D. Qing, C. Kim, and L.V. Wang. Photorefractive detection of tissue optical and mechanical properties by ultrasound modulated optical tomography. *Optics Letters*, 32(6) :656–658, March 2007.
- [135] G. Roosen, G. Le Saux, G. Pauliat, M Allain, J.M.C. Jonathan, and A. Brun. Effet photoréfractif dans les cristaux d'oxyde de bismuth et de silicium (Bi₁₂SiO₂₀) ou de germanium (Bi₁₂GeO₂₀). Revue de physique appliquée, 22(10) :1253–1267, 1987.
- [136] E. Ochoa, L. Hesselink, and J.W. Goodman. Real-time intensity inversion using two-wave and four-wave mixing in photorefractive Bi₁₂GeO₂₀. Applied Optics, 24(12):1826–1832, 1985.
- [137] S. Maerten, N. Dubreuil, G. Pauliat, G. Roosen, D. Rytz, and T. Salva. Laser diode made single-mode by a self-adaptive photorefractive filter. *Optics Communications*, 208(1-3) :183–189, July 2002.
- [138] M. Lesaffre, F. Jean, F. Ramaz, A.C. Boccara, M. Gross, P. Delaye, and G. Roosen. In situ monitoring of the photorefractive response time in a self-adaptive wavefront holography setup developed for acousto-optic imaging. *Optics Express*, 15(3):1030–1042, February 2007.
- [139] M. Ziari, W.H. Steier, P.M. Ranon, S. Trivedi, and M.B. Klein. Photorefractivity in vanadium-doped ZnTe. Applied Physics Letters, 60(9) :1052–1054, 1992.
- [140] J.E. Millerd, N.J. Brock, M.S. Brown, P.A. Debarber, and S. Trivedi. Resonant

holographic interferometry with ZnTe :V :Mn. *Applied Optics*, 35(26) :5275–5285, September 1996.

- [141] S.G. Odoulov, A.N. Shumelyuk, U. Hellwig, R.A. Rupp, and A.A. Grabar. Photorefractive beam coupling in tin hypothiodiphosphate in the near infrared. *Optics Letters*, 21(10) :752–754, May 1996.
- [142] S.G. Odoulov, A.. Shumelyuk, U. Hellwig, R.A. Rupp, A.A. Grabar, and I.M. Stoyka. Photorefraction in tin hypothiodiphosphate in the near infrared. *Journal of the Optical Society of America B*, 13(10) :2352–2360, October 1996.
- [143] T. Bach, M. Jazbinsek, G. Montemezzani, P. Gunter, Alexander A. Grabar, and Y. M. Vysochanskii. Tailoring of infrared photorefractive properties of Sn₂P₂S₆ crystals by Te and Sb doping. Journal of the Optical Society of America B, 24(7):1535–1541, 2007.
- [144] D. Haertle, G. Caimi, A. Haldi, G. Montemezzani, P. Gunter, Alexander A. Grabar, I.M. Stoika, and Y.M. Vysochanskii. Electro-optical properties of Sn₂P₂S₆. Optics Communications, 215 :333–343, 2003.
- [145] L. Sui, R.A. Roy, C.A. DiMarzio, and T.W. Murray. Imaging in diffuse media with pulsed-ultrasound-modulated light and the photorefractive effect. *Applied optics*, 44(19) :4041–4048, July 2005.
- [146] E. Bossy, L. Sui, T.W. Murray, and R.A. Roy. Fusion of conventional ultrasound imaging and acousto-optic sensing by use of a standard pulsed-ultrasound scanner. *Optics Letters*, 30(7):744–746, April 2005.
- [147] M. Gross, M. Lesaffre, F. Ramaz, P. Delaye, G. Roosen, and A.C. Boccara. Detection of the tagged or untagged photons in acousto-optic imaging of thick highly scattering media by photorefractive adaptive holography. *The European physical journal. E, Soft matter*, 182 :173–182, December 2008.
- [148] M. Lesaffre, S. Farahi, A.C. Boccara, F. Ramaz, and M. Gross. Theoretical study of acousto-optical coherence tomography using random phase jumps on ultrasound and light. *Journal of the Optical Society of America A*, 28(7) :1436–1444, 2011.
- [149] A.B. Draudt, P. Lai, T.W. Murray, R.O. Cleveland, and R.A. Roy. Acousto-optic detection of high-intensity focused ultrasound lesions in real time. *Journal of the Acoustical Society of America*, 126(4) :2239, 2009.
- [150] P. Lai, R.A. Roy, and T.W. Murray. Quantitative characterization of turbid media using pressure contrast acousto-optic imaging. *Optics Letters*, 34(18):2850–2852, 2009.
- [151] M.D. Levenson. High-resolution imaging by wave-front conjugation. Optics Letters, 5(5) :182–184, May 1980.
- [152] R.A. McFarlane and D.G. Steel. Laser oscillator using resonator with self-pumped phase-conjugate mirror. Optics Letters, 8(4) :208–210, April 1983.
- [153] M.C. Gower. KrF laser amplifier with phase-conjugate Brillouin retroreflectors. Optics Letters, 7(9) :423–425, September 1982.
- [154] I.V. Tomov, R. Fedosejevs, D. C. McKen, C. Domier, and A.A. Offenberger. Phase conjugation and pulse compression of KrF-laser radiation by stimulated Raman scattering. *Optics Letters*, 8(1) :9–11, January 1983.

- [155] Z. Yaqoob, D. Psaltis, M.S. Feld, and C. Yang. Optical phase conjugation for turbidity suppression in biological samples. *Nature Photonics*, 2(2) :110–115, January 2008.
- [156] A. Brignon, G. Feugnet, J.P. Huignard, and J.P. Pocholle. Efficient degenerate fourwave mixing in a diode-pumped microchip Nd : YVO84 amplifier. Optics Letters, 20(6) :548–550, March 1995.
- [157] C. Bellanger, A. Brignon, J. Colineau, and J.P. Huignard. Coherent fiber combining by digital holography. *Optics Letters*, 33(24) :2937–2939, December 2008.
- [158] M. Cronin-Golomb, B. Fischer, J. White, and a. Yariv. Theory and applications of four-wave mixing in photorefractive media. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 20(1) :12–30, January 1984.
- [159] R.L. Abrams and R.C. Lind. Degenerate four-wave mixing in absorbing media. Optics Letters, 3(5):94–96, November 1978.
- [160] T. Bach, M. Jazbinsek, P. Günter, A.A. Grabar, I.M. Stoika, and Y.M. Vysochanskii. Self pumped pptical phase conjugation at $1.06\mu m$ in Te-doped $Sn_2P_2S_6$. Optics Express, 13(24) :9890–9896, 2005.
- [161] M. Zgonik, P. Bernasconi, M. Duelli, R. Schlesser, P. Günter, M. Garrett, D. Rytz, Y. Zhu, and X. Wu. Dielectric, elastic, piezoelectric, electro-optic, and elastooptic tensors of *BaTiO*₃ crystals. *Physical Review B*, 50(9) :5941–5949, September 1994.
- [162] E.N. Leith and J. Upatnieks. Holographic imagery through diffusing media. *Journal* of the Optical Society of America, 56(4):523, August 1966.
- [163] E. Leith, C. Chen, H. Chen, Y. Chen, and D. Dilworth. Imaging through scattering media with holography. *Journal of the Optical Society of America A*, 9(7):1148– 1153, July 1992.
- [164] M. Fink. Time-Reversed Acoustics. Scientific American, 281(5) :91–97, November 1999.
- [165] G.S. Agarwal, A.T. Friberg, and E. Wolf. Scattering theory of distortion correction by phase conjugation. *Journal of the Optical Society of America*, 73(5):529–538, May 1983.
- [166] E.J. McDowell, M. Cui, I.M. Vellekoop, V. Senekerimyan, Z. Yaqoob, and C. Yang. Turbidity suppression from the ballistic to the diffusive regime in biological tissues using optical phase conjugation. *Journal of Biomedical Optics*, 15(2):025004, 2010.
- [167] M. Cui, E.J. McDowell, and C. Yang. An in vivo study of turbidity suppression by optical phase conjugation (TSOPC) on rabbit ear. Optics Express, 18(1) :25–30, January 2010.
- [168] M. Cui and C. Yang. Implementation of a digital optical phase conjugation system and its application to study the robustness of turbidity suppression by phase conjugation. *Optics Express*, 18(4) :3444–3455, February 2010.
- [169] C.L. Hsieh, Y. Pu, R. Grange, G. Laporte, and D. Psaltis. Imaging through turbid layers by scanning the phase conjugated second harmonic radiation from a nanoparticle. *Optics Express*, 18(20) :15342–15349, 2010.

- [170] I.M. Vellekoop and A.P. Mosk. Focusing coherent light through opaque strongly scattering media. Optics Letters, 32(16) :2309–2311, August 2007.
- [171] S. M. Popoff, G. Lerosey, R. Carminati, M. Fink, A.C. Boccara, and S. Gigan. Measuring the transmission matrix in optics : an approach to the study and control of light propagation in disordered media. *Physical Review Letters*, 104(10) :1–4, March 2010.
- [172] H. Liu, X. Xu, P. Lai, and L.V. Wang. Time-reversed ultrasonically encoded optical focusing into tissue-mimicking media with thickness up to 70 mean free paths. *Journal of Biomedical Optics*, 16(8) :0860091–0860093, 2011.
- [173] M. Cui, E. McDowell, and C. Yang. Observation of polarization-gate based reconstruction quality improvement during the process of turbidity suppression by optical phase conjugation. *Applied Physics Letters*, 95(123703) :1–3, September 2009.
- [174] Panametrics. Technical Notes. pages 32–40.
- [175] T.J. Hall, M. Bilgen, M.F. Insana, and T.A. Krouskop. Phantom materials for elastography. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, 44(6) :1355–1365, 1997.
- [176] H.J. van Staveren, C.J. M. Moes, J. van Marie, S.A. Prahl, and M.J.C. van Gemert. Light scattering in Intralipid-10400–1100 nm. *Applied Optics*, 30(31):4507–4514, November 1991.