



**HAL**  
open science

# Contrôle spatio-temporel multi-spectral de la lumière en milieux complexes

Daria Andreoli

► **To cite this version:**

Daria Andreoli. Contrôle spatio-temporel multi-spectral de la lumière en milieux complexes. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2014. Français. NNT : 2014PA066679 . tel-01229445

**HAL Id: tel-01229445**

**<https://hal.science/tel-01229445>**

Submitted on 16 Nov 2015

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

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



Institut **Langevin**  
ONDES ET IMAGES



**Thèse de Doctorat de  
l'Université Paris 6 - Pierre et Marie Curie**

spécialité

**Physique**

École doctorale 564 : « Physique en Île de France »

présentée par

**Daria Andreoli**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

**Contrôle spatio-temporel multi-spectral  
de la lumière  
en milieux complexes**

Soutenue le 12 décembre 2014 devant le jury composé de

Mme Rachel Grange

M. Emmanuel Beurepaire

Mme Agnès Maître

Mme Costanza Toninelli

M. Samuel Grésillon

M. Sylvain Gigan

Rapporteuse

Rapporteur

Présidente du jury

Examinatrice

Membre invité

Directeur de thèse



*A Vanna e Roberio,  
a Maria,  
alla memoria di Bruno e Adriano...*

Daria



# Remerciements

C'est émouvant, dans le noir et le silence d'une salle de manip, de pouvoir participer à un petit bout de connaissance et de réaliser avec ses propres mains l'observation d'un événement aussi formidable qu'une focalisation temporelle. On se sent part de tout ça.

Mes premiers remerciements vont, comme le veut la coutume, à mon directeur de thèse Sylvain Gigan qui m'a encadrée durant cette thèse et m'a permis de mener mes travaux à terme. Merci aussi aux membres de l'équipe *Comedia* avec qui j'ai pu avoir des discussions scientifiques très intéressantes : Samuel Grésillon, Giorgio Volpe et Ori Katz qui a su m'éclairer toujours avec bonne humeur et avec une transparence unique.

Je remercie Rachel Grange et Emmanuel Beaurepaire d'avoir accepté d'être mes rapporteurs, de m'avoir fait l'honneur de leur curiosité pour ce manuscrit et de m'avoir fait partager leurs remarques constructives. Je remercie également les autres membres du jury : Agnès Maître et Costanza Toninelli, ça a été un sincère plaisir de vous voir faire partie du jury de ma thèse.

Je remercie Sébastien Bidault de m'avoir prêté en toute confiance sa salle de chimie pendant trois ans. Vu mon habileté à manipuler du matériel chimique, on peut vraiment dire qu'il a fait preuve d'un grand courage. Bonjour et merci à Abdelhak Souilah, pour sa gentillesse et disponibilité à me faire des pièces mécaniques sur mesure.

Un merci spécial va à Sébastien Popoff pour être toujours aussi enthousiaste de mes résultats et pour en avoir trouvé une bonne partie.

Un petit mot pour Hugo, il ne sera certainement pas touché, mais ça me fait plaisir. Merci à Thomas pour sa gentillesse et pour avoir souvent la réponse à mes dilemmes et à Mickaël, pour son aide et ses travaux qui ont amélioré l'expérience : mon plus sincère « bon courage ! » à vous pour votre continuation. Et encore, un merci spécial pour quelques thésards spéciaux de l'Institut Langevin : merci à Baptiste, Fish, Fabien et aux autres thésards, à toutes et tous les PCn et PC1 de l'institut pour l'ambiance unique que j'ai tant aimée pendant ces années. Merci à Camille, déjà doctoresse, pour le courage et l'exemple d'être aussi forte en étant une femme qui fait de la physique fondamentale, un domaine qui a été et reste toujours presque purement masculin. Merci à Émilie qui a relu ce manuscrit plusieurs fois, mais aussi et surtout pour tout le reste.

Il est de notoriété publique que je ne râle jamais, donc un super merci aux thésards et ex-thésards du bureau 224 pour leur écoute, les blagues et le soutien essentiel pendant presque trois ans et demi : Olichou, Amaury, Mickaël, Jérôme, Nico, Bastou et Ibrahim. Je dédie ma focalisation temporelle à Aniss, parce qu'il est spécial pour moi. Une reconnaissance particulière va à Ariadna, pour tout. *Grazie* à vous du fond de mon cœur.

J'embrasse Dr. (en chimie, mauhouha!) Selma, ma copinette depuis toujours ici à Paris.

Loin des yeux ne signifie pas toujours loin du cœur. J'ai une pensée très forte pour ma terre et pour mes amis de (et pour) toujours lointains et qui me manquent, à mes camarades qui cherchent au jour le jour de rendre le monde, et le mien aussi, meilleur. *Grazie alle Linde, Jole, Genny, Tina per essere venute fino qui a Parigi e per la vostra fedeltà negli anni.* Mes plus grands remerciements vont à mes parents, ma maman et mon papa d'adoption, qui sont devenus docteurs avant moi et qui ont toujours une estime pour moi illimitée et inconditionnée, merci de m'avoir toujours dit que j'en étais capable!, et à ma toute petite grand-mère, qui, en ayant obtenu le diplôme d'école élémentaire seulement après la trentaine, a toujours espéré mieux pour sa fille et sa petite fille. Et, bien, voilà !

---

Moi : « Je focaliseeeeeeee! »  
S.G : « Il n'y a pas un problème ici ? »  
Moi : « Où? »  
S.G : « Ici ? »  
« ... »  
Moi : « ...Ah. »

---

\* il y a un petit kiwi caché entre ces pages..



# Résumé

La matrice de transmission permet de décrire les effets produit par un milieu multi-diffusant sur une onde monochromatique incidente. L'objectif des travaux présentés dans cette thèse est de développer le concept de matrice de transmission d'un milieu multi-diffusant au cas plus général d'une onde polychromatique impulsionnelle ultra-brève. Dans ce manuscrit nous présentons et mesurons la matrice de transmission multi-spectrale d'un milieu complexe. Cette nouvelle matrice nous donne l'information fondamentale sur le couplage spatio-temporel et spatio-spectral que le milieu engendre au passage d'une onde ultra-brève. Elle permet aussi de contrôler une source monochromatique et polychromatique, après avoir traversé un milieu complexe, de manière déterministe. Nous exploitons ainsi cette connaissance du milieu pour compenser les distorsions du champs en focalisant, façonnant et contrôlant spatialement, spectralement et temporellement un laser ultra-bref grâce à la seule mesure d'une matrice de transmission multi-spectrale. Cette méthode ouvre les portes de plusieurs applications d'imagerie à travers des milieux complexes, ainsi que pour l'interaction lumière-matière en milieux diffusants.

**Mots clés :** optique, diffusion multiple, laser ultra-bref, contrôle spatio-temporel, focalisation, imagerie



# Abstract

The transmission matrix allows to describe the effects generated by a multiple scattering medium on an incident monochromatic wave. The aim of the work presented in this dissertation is to develop the concept of transmission matrix of a multiple scattering medium to the more general case of a polychromatic ultra-fast pulsed light. In this dissertation we present and measure the multi-spectral transmission matrix of a complex medium. This new matrix describes the spatio-temporal coupling and the spatio-spectral coupling induced by the medium on a polychromatic illumination passing through it. The measurement of the multi-spectral transmission matrix allows us to control a monochromatic as well as a polychromatic source, after being scattered by the medium, in a deterministic way. We exploit this knowledge about the medium to compensate the distortions of the optical field by focusing, shaping and controlling spatially, spectrally and temporally an ultra-fast laser, thanks to the knowledge of the multi-spectral transmission matrix. This method paves the way towards many applications in the domain of imaging and light-matter interaction of light through complex media.

**Key words :** optics, multiple scattering, ultra-fast laser, spatio-temporal shaping, focusing, imaging



# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Contrôle spatio-temporel de la lumière à travers les milieux multi-diffusants</b>	<b>7</b>
A La lumière à travers un milieu complexe . . . . .	9
A.1 De la diffusion simple à la diffusion multiple . . . . .	9
A.2 Effets spatiaux de la lumière et caractérisation d'un milieu multi-diffusant par ses degrés de liberté spectraux . . . . .	11
B Contrôle spatial de la lumière . . . . .	13
B.1 Les modulateurs spatiaux de lumière . . . . .	13
B.2 Contrôle de front d'onde par optimisation . . . . .	15
B.3 Représentation matricielle de la propagation à travers un milieu diffusant	17
B.4 Mesure de la matrice de transmission . . . . .	20
B.5 Contrôle spatial par conjugaison de phase . . . . .	22
C Contrôle temporel de la lumière . . . . .	24
C.1 Corrélacion spatio-temporelle et dilatation d'un faisceau impulsionnel ultra-bref . . . . .	24
C.2 Focalisation temporelle par contrôle des degrés de liberté spectraux . .	28
C.3 Focalisation spatio-temporelle par contrôle des degrés de liberté spatiaux	30
Conclusion . . . . .	34
<b>2 La matrice de transmission multi-spectrale (MTMS)</b>	<b>35</b>
A De la matrice de transmission à la matrice multi-spectrale . . . . .	36
A.1 Théorie . . . . .	36
B Largeur de corrélation spectrale d'un milieu multi-diffusant . . . . .	38
B.1 Échantillons diffusants et leur fabrication . . . . .	39
B.2 Mesure de la largeur de corrélation spectrale . . . . .	41
C Mesure d'une matrice de transmission multi-spectrale . . . . .	43
C.1 Montage expérimental . . . . .	43
C.2 Méthode de mesure d'une MTMS . . . . .	45
C.3 Problème de la mesure de la phase spectrale relative . . . . .	45
C.4 Problème de stabilité d'une matrice MTMS . . . . .	47
D Contrôle spatio-temporel par MTMS . . . . .	49
Conclusion . . . . .	53

<b>3</b>	<b>Contrôle spatial et spectral par MTMS</b>	<b>54</b>
A	Focalisation spatiale d'un laser monochromatique . . . . .	55
A.1	Contrôle sélectif d'une longueur d'onde par MTMS . . . . .	55
A.2	Focalisation d'une source monochromatique par MTMS. . . . .	57
B	Contrôle spectral de la lumière polychromatique . . . . .	58
B.1	Réseau spectral par MTMS . . . . .	59
C	Focalisation spatiale d'un laser impulsionnel ultra-bref . . . . .	61
C.1	Contrôle spatial et qualité du signal sur bruit . . . . .	61
	Conclusion . . . . .	66
<b>4</b>	<b>Contrôle spatial et temporel</b>	<b>67</b>
A	Détection de la compression temporelle . . . . .	69
A.1	Principe de l'excitation à deux photons . . . . .	71
A.2	Échantillons fluorescents et leur fabrication . . . . .	73
A.3	Montage expérimental pour une mesure de la compression temporelle de l'impulsion . . . . .	77
B	Mesure de la compression temporelle . . . . .	79
B.1	Analyse qualitative par ratio entre le signal linéaire et le signal non linéaire . . . . .	82
B.2	Résultats expérimentaux de focalisation spatio-temporelle . . . . .	83
B.3	Focalisation temporelle en fonction du nombre de degrés de liberté spectraux . . . . .	84
B.4	Comparaison avec l'approche itérative . . . . .	87
	Conclusion . . . . .	90
	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>93</b>
	<b>Annexes</b>	<b>95</b>
A	Calibration du modulateur spatial de lumière	97
B	Détection de la position de la tache laser à l'écran du modulateur spatial de lumière	99
	<b>Bibliographie</b>	<b>101</b>

# Table des figures

1.1	Diffusion de la lumière par une particule . . . . .	9
1.2	Exemple de figure de <i>speckle</i> . . . . .	11
1.3	Caractérisation d'un speckle spatial . . . . .	12
1.4	Principe d'un écran à cristaux liquides . . . . .	14
1.5	Principe de focalisation par conjugaison de phase . . . . .	16
1.6	Principe de focalisation par optimisation . . . . .	17
1.7	Matrice de transmission pour différents milieux . . . . .	19
1.8	Montage expérimental pour la mesure de la MT . . . . .	20
1.9	Les bases de mesure d'entrée du SLM . . . . .	22
1.10	Focalisation par conjugaison de phase avec la matrice de transmission . . . . .	23
1.11	Représentation du speckle temporel . . . . .	27
1.12	Montage expérimental pour une focalisation temporelle par contrôle des degrés de liberté spectraux . . . . .	29
1.13	Résultats d'une focalisation temporelle avec contrôle des degrés de liberté spectraux . . . . .	30
1.14	Montage expérimental pour une focalisation spatio-temporelle par contrôle des degrés de liberté spatiaux . . . . .	31
1.15	Résultat de l'optimisation spatio-temporelle par contrôle des degrés de liberté spatiaux . . . . .	32
1.16	Montage expérimental d'optimisation sur un signal non linéaire . . . . .	33
1.17	Résultats par optimisation sur un signal non linéaire . . . . .	33
2.1	Stabilité d'un milieu non biologique . . . . .	40
2.2	Échantillons utilisés dans les expériences . . . . .	41
2.3	Largeur de corrélation spectrale de différents milieux . . . . .	42
2.4	SLM à cristaux liquides . . . . .	44
2.5	Montage expérimental pour une mesure de MTMS . . . . .	45
2.6	Schéma de la matrice de transmission multi-spectrale . . . . .	46
2.7	Corrélation entre les MTs . . . . .	46
2.8	Stabilité de l'image d'interférence du speckle avec une référence externe . . . . .	48
3.1	Schéma pour un contrôle sélectif de longueur d'onde . . . . .	55
3.2	Résultats d'une focalisation en monochromatique par sélection de MT . . . . .	56
3.3	Calcul du RSB . . . . .	57

3.4	Focalisation d'un laser monochromatique par MTMS . . . . .	58
3.5	Schéma pour le contrôle sous forme d'un réseau spectral . . . . .	59
3.6	Résultat d'une focalisation sélective en longueur d'onde d'un laser polychromatique	60
3.7	Schéma pour un contrôle spatial d'une source polychromatique . . . . .	62
3.8	Focalisation spatiale par MTMS . . . . .	63
3.9	Focalisation spatiale selon le nombre de degrés de liberté spectraux contrôlés	64
3.10	Focalisation spatiale en deux points à la fois . . . . .	65
4.1	Détection de la compression temporelle d'une impulsion par interférométrie spectrale . . . . .	70
4.2	Diagramme de Jablonski pour un déplacement de Stokes . . . . .	71
4.3	Diagramme de Jablonski pour une excitation à deux photons . . . . .	72
4.4	Coumarine . . . . .	74
4.5	Fluorescéine . . . . .	75
4.6	Échantillons fluorescents . . . . .	75
4.7	Intensité des échantillons capillaires de 20 $\mu\text{m}$ . . . . .	76
4.8	Schéma du montage expérimental sans ligne à retard . . . . .	77
4.9	Photographie du montage expérimental . . . . .	78
4.10	Focalisation temporelle . . . . .	81
4.11	Focalisation spatio-temporelle pour un signal linéaire . . . . .	81
4.12	Focalisation temporelle pour plusieurs réalisations . . . . .	83
4.13	Évolution du ratio $r$ pour une mesure de MTMS . . . . .	84
4.14	Schéma d'un speckle temporel après focalisation . . . . .	85
4.15	Courbe théorique de l'évolution du ratio $r$ en fonction du nombre de degrés de liberté spectraux $N_\omega$ . . . . .	86
4.16	Focalisation en plusieurs réalisations avec un échantillon de coumarine . . . . .	87
4.17	Focalisation par optimisation . . . . .	88
A.1	Modulation du faisceau . . . . .	97
A.2	Calibration . . . . .	98
B.1	Modulation du faisceau . . . . .	99
B.2	Détection de la position du faisceau . . . . .	100

# Nomenclature

- $L$  : épaisseur du milieu (m)
- $l_e$  : libre parcours moyen élastique (m)
- $l^*$  : libre parcours moyen de transport (m)
- $\lambda$  : longueur d'onde centrale (m)
- $n$  : indice de réfraction
- $\bar{A}$  : dimension caractéristique d'un grain de speckle (m)
- $\phi$  : phase de l'onde électromagnétique
- $\tau_T$  : temps de Thouless (s)
- $D$  : coefficient de diffusion ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )
- $v_e$  : vitesse de la lumière dans le milieu ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ )
- $L_{\Delta\lambda}$  : corrélation spectrale (m)
- $\Delta\omega_{corr}$  : fréquence de corrélation spectrale (Hz)
- $\hat{g}_0(r, r', t, t')$  : fonction de Green
- $G$  : tenseur de Green
- $\mathbf{H}$  : matrice de transmission (abréviation MT)
- $k$  : vecteur d'onde ( $\text{m}^{-1}$ )
- $\dagger$  : opérateur transposé conjugué ou adjoint
- $E^{in}$  : champs électrique en entrée du milieu ( $\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$ )
- $E^{out}$  : champs électrique en sortie du milieu ( $\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$ )
- $\tau_L$  : durée de l'impulsion d'un laser mode bloqué (s)
- $\Delta\lambda_L$  : largeur spectrale à mi-hauteur d'un laser mode bloqué (m)
- $\Delta\omega_L$  : largeur fréquentielle à mi-hauteur d'un laser mode bloqué (Hz)
- $\omega_L$  : fréquence centrale du laser (Hz)
- $N_\lambda(N_\omega)$  : degrés de liberté spectraux
- $\mathbb{C}$  : contraste
- $N_{in}$  : degrés de liberté de contrôle
- $N_{out}$  : degrés de liberté en sortie
- $h_{mnk}$  : élément de la matrice de transmission multi-spectrale
- $\tilde{\mathbf{H}}$  : matrice de transmission multi-spectrale (abréviation MTMS)
- $C_s$  : fonction de la corrélation spectrale
- $\eta$  : efficacité quantique
- $\psi$  : efficacité de collection de l'objectif
- $\sigma$  : section efficace ( $\text{m}^{-1}$ )
- NA : ouverture numérique
- $f_L$  : taux de répétition du laser impulsionnel (Hz)
- $S_L^C$  : signal linéaire à phase spectrale constante
- $S_L^A$  : signal linéaire à phase spectrale aléatoire
- $S_{NL}^C$  : signal non linéaire à phase spectrale constante
- $S_{NL}^A$  : signal non linéaire à phase spectrale aléatoire



# Introduction générale

Qui, parmi nous, n'a jamais rêvé de voir à travers les choses ou un mur, ou simplement de voir très loin dans le brouillard ?

Cette idée, en apparence de science fiction, est un concept très développé et de grand intérêt dans le domaine du militaire, comme aussi de l'imagerie pour le diagnostic médical.

La limite principale qui nous interdit de voir à travers des milieux très opaques et peu absorbants comme le brouillard, une couche très épaisse de vernis blanche, la vitre d'une douche ou un tissu biologique comme la peau est la diffusion de la lumière.

À l'intérieur de ces milieux, la lumière subit un très grand nombre de diffusions qui lui font perdre toute information de direction, phase et polarisation initiale. Dans le passage à travers ces milieux, la lumière dite balistique, celle qui n'a pas subi de changement de direction et qui a conservé sa phase, est extrêmement réduite.

Les chemins que la lumière emprunte à l'intérieur de ces milieux sont nombreux et très compliqués et ils ne peuvent pas être décrits par de simples équations ou prévus de manière déterministe. L'optique adaptative ne suffit pas, dans ces cas, à corriger les effets produits sur la lumière à son passage à travers ces types de milieu [Tyson, 2010] qui prennent le nom de *milieux multi-diffusants*. Leur complexité vis-à-vis d'une description physique dans leur interaction avec la lumière amène à employer pour ces milieux le terme de *milieux complexes*. Pouvoir limiter ces effets ou les contrôler pour guider la lumière à travers ces types de milieu est un défi dans beaucoup de domaines de la recherche, de l'imagerie médicale à travers les tissus [Dubois et al., 2008, Myaing et al., 2006], au domaine de la télécommunication [Simon et al., 2001].

Les toutes premières méthodes de contrôle à travers un milieu diffusant de la lumière remontent aux années soixante. Bien que dans ces expériences on ne parlait pas encore de *conjugaison de phase*, à travers un renversement du front d'onde de la lumière diffusée on était capable de reconstruire un objet à travers un milieu diffusant. Le retournement du front d'onde était fait, par exemple, à l'aide d'une plaque photographique sur laquelle l'interférence entre le faisceau provenant du milieu diffusant et celui d'une référence s'imprimait. Ensuite la plaque photographique développée était placée au même endroit sur le montage et éclairée par une référence renversée par rapport à la référence d'enregistrement de la plaque. De cette manière le front d'onde de l'onde diffusée était renversé et il permettait une focalisation de l'onde à travers le milieu diffusant [Kogelnik, 1965, Leith and Uptnieks, 1966].

Bien sûr cette méthode était encore trop rudimentaire pour être assez rapide et précise pour pouvoir reproduire ce contrôle pour des milieux très diffusants ou biologiques. Pourtant elles

ont été à la base des concepts innovants de contrôle de front d'onde et de focalisation et imagerie à travers des milieux complexes.

Quelques années plus tard, une inversion du front d'onde d'une onde diffusée pour imager à travers un milieu complexe a été mise en place grâce aux cristaux photoréfractifs [Yariv, 1978]. Ces cristaux, qui ont le rôle de la plaque photographique des expériences citées auparavant, peuvent être marqués par un champ électrique par effet Pockels [Günter and Huignard, 1989] : le champ incident dans le cristal crée une distribution de charges proportionnelle à l'intensité du champ incident local, la migration des porteurs génère un champ électrique qui induit une modification de l'indice de réfraction du milieu par effet Pockels. Ainsi le cristal peut être marqué par l'interférence entre l'onde diffusée et une onde de référence. Un éclairage par le conjugué de l'onde de référence peut alors créer une conjugaison en phase de l'onde diffusée. Les matériaux photoréfractifs sont utilisés et étudiés aujourd'hui, au-delà d'autres applications possibles [He, 2002], pour faire de l'imagerie à travers [Yaqoob et al., 2002], mais aussi dans les milieux [Xu et al., 2011] diffusants par conjugaison de la phase de la lumière diffusée.

Ces dernières années, le contrôle de front d'onde d'une source lumineuse a été rendu possible grâce à l'arrivée des modulateurs spatiaux [Efron et al., 1986]. Ces appareils sont capables de moduler spatialement le front d'onde en intensité ou en phase, comme on le souhaite.

L'utilisation de ces modulateurs a permis de contrôler la lumière à travers des milieux diffusants [Vellekoop and Mosk, 2007, Popoff et al., 2010a] ou encore d'exploiter ces milieux pour une focalisation à la limite de la diffraction [Vellekoop et al., 2010]. Mais ils ont aussi permis la manipulation de modes d'une fibre optique multimode pour la télécommunication, l'imagerie médicale [Carpenter and Wilkinson, 2012, Papadopoulos et al., 2012], ou l'imagerie à travers des milieux biologiques [Chaigne et al., 2014].

Les milieux complexes ne sont pas un problème uniquement pour la distorsion spatiale de la lumière mais ils dispersent aussi la lumière temporellement. Cela est un problème critique pour beaucoup d'applications qui font usage de sources cohérentes impulsionnelles très rapides comme les lasers mode bloqué. Des impulsions ultra-brèves sont requises dans le domaine de l'imagerie de spectroscopie fluorescente [Zipfel et al., 2003], dans la nanochirurgie [Vogel et al., 2005] ou encore dans la spectroscopie ultra-rapide [Zewail, 2000]. Quand la lumière mode bloqué traverse un milieu diffusant, elle n'est plus comprimée temporellement et elle perd son efficacité dans ce genre d'applications. En outre, les « distorsions » temporelle et spatiale qu'une source cohérente ultra-brève subit à son passage à travers un milieu diffusant ne sont pas séparables [Lemoult et al., 2009]. Le milieu diffusant produit un couplage spatio-temporel et spatio-spectral de la lumière. C'est dans ce contexte que nous nous sommes intéressés à pouvoir accéder à cette information du milieu pour compenser ces distorsions.

Il est d'un grand intérêt de pouvoir contrôler la lumière impulsionnelle à travers ou dans les milieux diffusants. Beaucoup d'expériences, comme l'amélioration de la résolution de la microscopie de fluorescence pour l'imagerie à travers les tissus [Rueckel et al., 2006] ou la focalisation spatiale d'une impulsion ultra-brève dans un milieu diffusant très fin [Hsieh et al., 2010], sont vite limitées par la multi-diffusion et le contrôle est alors restreint seulement aux photons balistiques.

Avec l'aide des modulateurs spatiaux de lumière, plusieurs expériences réalisées au cours des dernières années, ont permis une focalisation en un point à la fois spatiale et temporelle d'une source mode bloqué après diffusion par un milieu complexe [McCabe et al., 2011,

[Katz et al., 2011, Aulbach et al., 2011].

Cela dit, ces expériences récentes s'appuient toutes sur une optimisation du signal spatio-temporel à la sortie du milieu. En d'autres termes, elles ne donnent aucune connaissance sur comment le milieu déforme spatialement et temporellement la lumière. Le contrôle permet une focalisation de la lumière à un endroit précis à la sortie du milieu et, n'étant pas déterministe, il doit être itéré si l'expérimentateur veut focaliser la lumière à un autre endroit à la sortie du même milieu multi-diffusif. De plus, cette technique ne permet pas un contrôle différent de la simple focalisation spatio-temporelle en un seul point, comme un profil spatio-temporel souhaité du front d'onde à la sortie du milieu diffusant. Pouvoir façonner l'onde en sortie de manière plus élaborée permettrait par exemple d'exciter plusieurs fluorophores positionnés à deux endroits différents dans le milieu (focaliser spatio-temporellement en deux points), ou séparer le spectre de la source incidente en utilisant le milieu comme un réseau spectral ou encore séparer le contrôle spatial du temporel.

L'objectif de cette thèse est celui de monter une expérience d'optique capable de contrôler la lumière spatialement et temporellement de manière reproductible et capable de façonner la source en sortie comme on le souhaite grâce à l'acquisition de l'information primaire sur comment le milieu diffuse un laser ultra-bref à large bande.

En exploitant le concept déjà développé de *matrice de transmission* [Popoff et al., 2010a] (un opérateur physique permettant de connaître, dans le cas d'une source monochromatique, le déphasage appliqué par le milieu diffusant point par point du front d'onde et donc de relier le champ incident au champ diffusé), nous avons élargi ce concept au cas plus général d'une matrice qui puisse décrire l'interaction milieu-lumière en fonction de la longueur d'onde de la source. Ainsi, l'expérimentateur a accès à la façon dont le milieu déphase point par point le front d'onde d'une source à n'importe quelle longueur d'onde. Cela nous permet d'appliquer cette mesure pour connaître le déphasage spectral d'un laser mode bloqué à travers le milieu diffusant et pouvoir le contrôler pour refocaliser spatialement et temporellement l'impulsion diffusée.

Ce nouveau opérateur, que nous avons appelé *matrice de transmission multi-spectrale* nous renseigne sur le couplage spatio-temporel et spatio-spectral de la lumière opéré par le milieu en permettant un contrôle d'une source ultra-brève plus complexe que la simple focalisation en un point comme dans le cas de l'optimisation. Dans cette thèse, nous démontrerons comment avec cette acquisition nous pouvons contrôler spectralement une source polychromatique en utilisant le milieu diffusant comme un réseau spectral. En outre, nous présenterons comment nous pouvons séparer le contrôle spatial du temporel d'une impulsion femtoseconde. Nous serons aussi capable de faire un contrôle spatial d'un laser polychromatique en différents points en même temps à la sortie du milieu.

Pendant ces travaux, nous avons développé une nouvelle méthode pour accéder à l'information de corrélation spectrale du milieu. La corrélation spectrale est la capacité du milieu à « distinguer » deux longueurs d'onde pour leur « appliquer » un déphasage différent. La connaissance de cette grandeur caractéristique du milieu, comme nous le verrons dans ce manuscrit, est fondamentale pour une mesure de la matrice de transmission multi-spectrale. En outre, la corrélation spectrale du milieu nous renseigne sur l'épaisseur du milieu et sur le temps de confinement des photons dans le milieu diffusant, donc sur la complexité des chemins optiques empruntés par la lumière à l'intérieur.

Dans nos études, nous avons développé un montage expérimental permettant une mesure de corrélation spectrale de n'importe quel milieu multi-diffusant et d'acquérir la matrice de transmission multi-spectrale. Ce montage permet un contrôle spatio-temporel déterministe pour un milieu donné et une détection d'une compression spatiale et temporelle de l'impulsion après passage dans le milieu complexe.

Cette nouvelle méthode nous donne la possibilité de plusieurs applications dans le domaine de l'imagerie et contrôle cohérent. Connaître l'information primaire de comment le milieu modifie la lumière spatialement et temporellement nous permet de façonner le front d'onde à la sortie d'un milieu diffusant de manière plus évoluée que la simple focalisation spatio-temporelle et faire de la source une sonde modulée pour l'excitation d'objets uniques à la surface du milieu multi-diffusant et observer comment ils se comportent dans un environnement diffusif.

Ce manuscrit est organisé en quatre chapitres.

Un premier chapitre donne les concepts clés qui abordent la lumière quand elle traverse un milieu multi-diffusant. Il est divisé en deux parties principales : une première partie traite de la déformation spatiale d'une source cohérente monochromatique à son passage à travers un milieu diffusant et comment s'en affranchir grâce à un contrôle spatial, une deuxième partie traite des concepts de déformation temporelle d'un laser mode bloqué et les récentes expériences de contrôle spatio-temporel. Dans ce chapitre, le concept de *speckle* est abordé, ainsi que les effets spatiaux qu'une source monochromatique subit après passage à travers un milieu complexe. Nous parlerons de corrélation spectrale et de degrés spectraux indépendants d'un milieu. Ces concepts nous serviront par la suite pour décrire le contrôle par modulation du front d'onde. Nous décrirons brièvement les parties qui composent un modulateur spatial de lumière (SLM) et comment cet appareil permet une modulation de la phase ou de l'amplitude du front d'onde. Nous citerons et décrirons la toute première expérience de contrôle d'une onde monochromatique par modulation de phase du front d'onde par optimisation et le concept de conjugaison de phase. Ensuite nous expliquerons comment le comportement d'un milieu complexe peut être décrit par un formalisme matriciel. Cela nous permettra d'introduire le concept innovant de matrice de transmission d'un milieu pour une onde monochromatique et le contrôle spatial de la lumière à une longueur d'onde donnée par conjugaison de phase de cette matrice. Ensuite nous donnerons le concept de speckle temporel et expliquerons comment une onde ultra-brève est déformée spatialement et temporellement. Nous concluons le chapitre par citer des expériences déjà réalisées de contrôle spatio-temporel par optimisation d'une source femtoseconde.

Le deuxième chapitre est consacré à l'introduction de la matrice de transmission multi-spectrale et la description du montage expérimental qui permet d'y accéder : nous présenterons les équations théoriques qui permettent un passage de la matrice de transmission vers une matrice multi-spectrale et comment cette matrice prédit la possibilité de contrôler séparément le domaine spatial et temporel avec le seul contrôle des degrés spatiaux (et pas spectraux) du front d'onde. Nous décrirons en détails la fabrication des échantillons diffusants utilisés, le montage expérimental, ses composants et comment faire une mesure de corrélation spectrale du milieu et sa liaison avec une bonne mesure de la matrice de transmission multi-spectrale. Nous concluons le chapitre par le concept d'un contrôle à la fois spatial et temporel par matrice de transmission multi-spectrale et la manière de contrôler la phase spectrale d'une

impulsion ultra-brève après passage dans le milieu complexe.

Le troisième chapitre montre les principaux résultats de contrôle spatio-spectral d'un laser femtoseconde : la possibilité avec une mesure de matrice de transmission multi-spectrale de contrôler sélectivement une seule longueur d'onde donnée comme dans le cas d'une simple matrice de transmission, l'utilisation du milieu diffusant comme un réseau spectral pour un laser polychromatique et enfin la possibilité de focaliser et contrôler toutes les longueurs d'onde qui composent la bande spectrale d'un laser femtoseconde simultanément.

Le quatrième et dernier chapitre se consacre au contrôle spatio-temporel d'une impulsion mode bloqué : nous parlerons de la méthode choisie de détection de compression temporelle de l'ordre de la centaine de femtosecondes par excitation à deux photons et émission fluorescente. Nous donnerons les bases de l'excitation à deux photons et sa dépendance avec la durée d'une impulsion. Ensuite nous détaillerons la méthode de fabrication des échantillons fluorescents, le montage expérimental qui permet une détection de la focalisation spatio-temporelle et les problèmes techniques auxquels nous avons dû faire face. Nous donnerons des solutions pour lesquelles nous avons opté et enfin nous montrerons des résultats expérimentaux de compression et contrôle temporel par matrice de transmission multi-Spectrale.



# Chapitre 1

## Contrôle spatio-temporel de la lumière à travers les milieux multi-diffusants

*Ce premier chapitre est une introduction générale à la physique de la propagation de la lumière à travers des milieux multi-diffusants. Dans un premier temps nous nous intéresserons au concept même de lumière multi-diffusée et à la génération d'une figure spatiale de speckle. Puis, nous nous intéresserons à la caractérisation d'un milieu complexe par l'étude de cette figure de speckle. Ensuite, nous nous demanderons comment, sur la base de ces connaissances, il est possible de contrôler la lumière spatialement à la sortie d'un milieu diffusant par optimisation spatiale ou par conjugaison de phase à travers la mesure de la matrice de transmission (MT) d'un milieu complexe. Enfin, nous passerons au cas plus complexe d'une lumière cohérente mode bloqué ou impulsion ultra-brève femtoseconde. Nous introduirons les concepts d'étude d'une impulsion ultra-brève qui se déforme par son passage dans un milieu multi-diffusant : dans ce cas l'impulsion génère un speckle à la fois spatial et temporel, la lumière cohérente est diffusée dans l'espace tout en étant étirée dans le temps. Nous concluons en détaillant les expériences déjà réalisées qui permettent le contrôle d'un laser femtoseconde à la fois spatialement et temporellement.*

### Sommaire

---

<b>A</b>	<b>La lumière à travers un milieu complexe . . . . .</b>	<b>9</b>
A.1	De la diffusion simple à la diffusion multiple . . . . .	9
A.2	Effets spatiaux de la lumière et caractérisation d'un milieu multi-diffusant par ses degrés de liberté spectraux . . . . .	11
<b>B</b>	<b>Contrôle spatial de la lumière . . . . .</b>	<b>13</b>
B.1	Les modulateurs spatiaux de lumière . . . . .	13
B.2	Contrôle de front d'onde par optimisation . . . . .	15
B.3	Représentation matricielle de la propagation à travers un milieu diffusant . . . . .	17
B.4	Mesure de la matrice de transmission . . . . .	20
B.5	Contrôle spatial par conjugaison de phase . . . . .	22

<b>C</b>	<b>Contrôle temporel de la lumière . . . . .</b>	<b>24</b>
C.1	Corrélation spatio-temporelle et dilatation d'un faisceau impulsionnel ultra-bref . . . . .	24
C.2	Focalisation temporelle par contrôle des degrés de liberté spectraux .	28
C.3	Focalisation spatio-temporelle par contrôle des degrés de liberté spatiaux	30
	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>34</b>

---

## A La lumière à travers un milieu complexe

Dans l'histoire des sciences, les concepts physiques de lumière et de matière sont depuis longtemps en contact étroit. Proposée pour la première fois par Pierre Gassendi en 1600, une théorie corpusculaire de la lumière cherchait déjà à rapprocher ces deux idées. Bien que cette vision de la lumière ait été appliquée pendant plus de cent ans dans l'histoire de la physique, c'est seulement avec l'introduction de la nature ondulatoire de la lumière, la théorie de Christiaan Huygens [Huyghens, 1690], qu'on a pu expliquer des phénomènes qui se produisent lorsque la lumière interagit avec des objets dont les dimensions caractéristiques sont inférieures ou comparables à la longueur d'onde. Les concepts de diffraction et d'interférence résultent de la nature ondulatoire de la lumière.

L'interaction lumière-matière est un domaine de la physique très complexe et sur certains points encore obscur, surtout lorsque ce comportement ondulatoire de la lumière se présente. La figure de *speckle* (« tavelure » en français) en est un exemple : cette figure d'interférence, déjà observée à l'époque de Newton [Korotkova, 2013], prit vraiment de l'intérêt il y a seulement 50 ans avec la fabrication des premières sources cohérentes. Bien qu'aujourd'hui son comportement statistique soit décrit par la théorie, le speckle reste un phénomène physique incontrôlé et gênant pour des mesures d'imagerie.

Dans cette partie nous aborderons les notions de diffusion multiple, de figure de speckle et de caractérisation d'un milieu diffusant.

### A.1 De la diffusion simple à la diffusion multiple

Quand une onde rencontre un diffuseur, une partie de l'énergie est diffractée en fonction des propriétés de l'objet : pour un diffuseur dont la taille est très grande devant la longueur d'onde de la lumière, la théorie de l'optique géométrique suffit à décrire l'effet de l'obstacle.

Par contre, lorsque la taille de l'objet est plus petite ou comparable à la longueur d'onde,

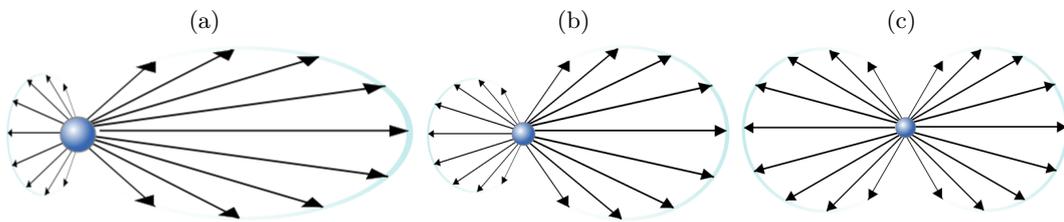


FIGURE 1.1 – **Diffusion de la lumière par une particule** : diffusion de Mie (a) par une particule de taille très grande devant la longueur d'onde de l'onde incidente, (b) par une particule de taille comparable à la longueur d'onde et (c) diffusion de Rayleigh par une particule de taille très petite devant la longueur d'onde de l'onde incidente.

le comportement de la lumière est décrit par la théorie de Mie. Cette théorie, d'interaction élastique, prédit la direction privilégiée pour le rayonnement diffusé [Mie, 1908] : plus le rayon  $a$  de la particule devient petit devant la longueur d'onde de la lumière incidente  $\lambda = \frac{2\pi}{k}$ , plus le rayonnement de l'onde diffusée devient isotrope (Fig. 1.1). Quand  $a \ll \lambda$ , l'émission

est complètement isotrope : cette limite des équations de Mie est décrite par la théorie de Rayleigh [Strutt, 1871].

Puisque la section efficace des particules nous donne la probabilité d'interaction de l'objet avec l'onde, un diffuseur de très faible section efficace interagira très peu avec la lumière.

Par conséquent, dans le cas d'une diffusion simple, si on connaît la position, la section efficace et la taille d'un diffuseur unique il est possible de remonter au champ diffusé.

En revanche, si nous regardons ce qui se passe quand la lumière traverse un milieu composé de plusieurs diffuseurs, une description des interactions n'est plus envisageable car le nombre de particules concernées dont il faut connaître la position et la taille peut être trop grand pour être calculable aisément. Dans ce cas, classiquement, on définit deux grandeurs macroscopiques qui caractérisent le comportement diffusif de la lumière quand elle traverse un milieu diffusant : le libre parcours moyen élastique  $l_e$ , qui donne la distance parcourue par un photon entre deux événements diffusifs, et le libre parcours moyen de transport  $l^*$ , qui définit la distance pour laquelle le photon, en moyenne, perd toute information, directionnelle et de phase, initiale.

Pour un nombre très petit de diffuseurs dont les positions sont connues, les prédictions de la théorie de la diffusion nous permettent de trouver le champ total diffusé. Lorsque l'épaisseur du milieu  $L$  est inférieur ou comparable au libre parcours moyen élastique  $l_e$ , la lumière ne subit qu'une faible interaction avec la matière ou elle est très peu déviée de sa direction incidente. On parle alors de régime balistique. La lumière balistique obéit aux lois de l'optique géométrique et est à la base de plusieurs techniques d'imagerie [Dunsby and French, 2003].

Cependant, la lumière balistique décroît exponentiellement [Paciaroni and Linne, 2004] avec l'épaisseur du milieu. Quand  $L$  devient supérieur au libre parcours moyen élastique, une ou plusieurs interactions entre la lumière et des diffuseurs ont lieu. Lorsque le milieu est très dilué ou lorsque la section efficace des diffuseurs est très faible, la lumière diffusée peut être décrite par les théories de la diffusion de Mie ou Rayleigh. On parle, alors, de régime de diffusion simple.

$$\begin{cases} L \leq l_e & , \text{ régime balistique} \\ L > l_e & , \text{ régime de diffusion simple} \\ L \gg l^* & , \text{ régime multi-diffusif} \end{cases}$$

Lorsque  $L$  est beaucoup plus grand que le libre parcours moyen de transport  $l^*$ , de multiples événements de diffusion successifs entrent en jeu. Les événements de diffusion unique ne peuvent pas être considérés de manière indépendante. Le champ diffusé par un diffuseur peut être le champ incident pour un autre et vice-versa. La lumière perd, non seulement sa directionnalité, mais aussi toute information de départ de l'onde incidente, comme sa phase ou sa polarisation. On parle alors de régime multi-diffusif qui se traduit par des équations implicites dont la prédiction est limitée à la fois par le besoin de connaître la position et la taille de chaque diffuseur et par la capacité de calcul nécessaire.

C'est dans ce domaine que la plupart des techniques d'imagerie et de contrôle de la lumière sont vite limitées.

Tout au long de cette thèse nous nous intéressons à ce régime complexe de diffusion multiple pour pouvoir décrire et contrôler la lumière à travers des milieux multi-diffusants.

## A.2 Effets spatiaux de la lumière et caractérisation d'un milieu multi-diffusant par ses degrés de liberté spectraux

Une onde monochromatique cohérente qui traverse un milieu multi-diffusant donne, à la sortie du milieu, une figure d'intensité très complexe et, en apparence, aléatoire, appelée *speckle*. Le speckle est constitué de grains, lumineux ou sombres, plus ou moins intenses qui sont le résultat d'interférences, constructives ou destructives, des nombreux et différents chemins optiques parcourus par la lumière à l'intérieur du milieu (Fig. 1.2). Il n'y a plus alors de relation simple entre le champ diffusé et l'onde incidente.

La taille de la tache totale du speckle en transmission du milieu, dans l'hypothèse d'un éclairage par une source ponctuelle ( $d \ll L$ , où  $d$  est le diamètre de la tache qui éclaire le milieu à l'entrée et  $L$  est l'épaisseur du milieu) est proportionnelle à la largeur du milieu traversé [Akkermans, 2011] :

$$D_{spot} \propto L \quad (1.1)$$

où  $D_{spot}$  est la largeur à mi-hauteur de l'enveloppe de la tache qui se forme à la surface en sortie du milieu. À la surface, en négligeant les effets de champ proche, la dimension caractéristique  $\bar{A}$  d'un grain de speckle est donnée par la limite de diffraction [Vellekoop et al., 2010] :

$$\bar{A} \approx \frac{\lambda}{2\bar{n}} \quad (1.2)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde de la lumière et  $\bar{n}$  est l'indice de réfraction moyen du milieu (Fig. 1.3).

Si, par contre, nous laissons le speckle se propager dans l'espace libre à la sortie du milieu nous aurons la relation [Goodman, 2010] :

$$\bar{A} \approx \frac{\lambda r}{D_{spot}} \quad (1.3)$$

où  $r$  est la distance d'observation depuis la sortie du milieu.

Le speckle, en apparence aléatoire, est, dans sa totalité, une distribution déterministe à un front d'onde et à une longueur d'onde donnés [Goodman, 1976]. À chaque fois que nous éclairons un milieu diffusant de la même façon avec un faisceau monochromatique donné et si

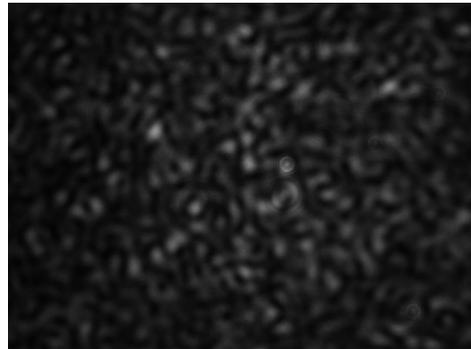


FIGURE 1.2 – Exemple d'un speckle produit par la diffusion à travers un milieu complexe d'un laser monochromatique.

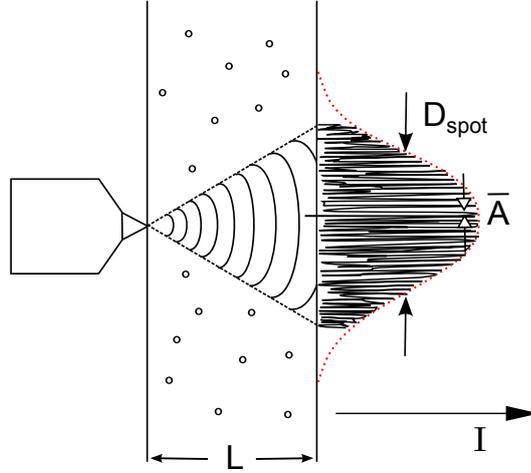


FIGURE 1.3 – **Caractérisation d'un speckle spatial** : schéma simplifié d'un faisceau éclairant un milieu diffusant d'épaisseur  $L$ . À la sortie du milieu une figure de speckle apparaît. Ce motif est composé de grains d'intensité variable  $I$ , distribués dans l'espace. La largeur à mi-hauteur de la tache totale est désignée par  $D_{spot}$ , elle est proportionnelle à la largeur du milieu  $L$ . Le diamètre moyen d'un grain dans cette tache, appelé ici  $\bar{A}$ , est donné par la limite de diffraction  $\frac{\lambda}{2}$ .

nous supposons le milieu stable dans le temps, il va apparaître en sortie un speckle identique. Cette propriété est intrinsèque au milieu : le milieu, éclairé par la même lumière, mélange les chemins optiques, de manière très complexe mais toujours de la même façon.

Si nous considérons un intervalle de longueurs d'onde tel que toutes les fréquences se trouvent dans le même régime multi-diffusif [Mie, 1908], nous pouvons affirmer que toutes les longueurs d'onde empruntent les mêmes chemins à l'intérieur du milieu. Cependant, comme la phase d'une onde dépend de sa longueur d'onde :

$$\Phi = kz = \frac{2\pi z}{\lambda} \quad (1.4)$$

où  $z = ct$  est la longueur du chemin parcouru dans le milieu, la figure d'interférence qui se crée en sortie du milieu est différente pour des longueurs d'onde différentes. Comme la phase est une fonction continue de  $\lambda$ , le speckle aussi change de manière continue d'une longueur d'onde à l'autre. Plus les chemins empruntés sont longs et complexes (pour des milieux plus épais par exemple), plus le léger déphasage entre deux longueurs d'onde voisines deviendra important et plus les figures de speckle qu'elles génèrent seront décorréelées.

Cette décorrélation est reliée au temps de confinement des photons dans le milieu, le temps de Thouless  $\tau_T$  [Thouless, 1977], défini par :

$$\tau_T = \frac{L^2}{\pi^2 D} \quad (1.5)$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion du milieu :

$$D = \frac{v_e l^*}{3} \quad (1.6)$$

où  $v_e$  est la vitesse de la lumière dans le milieu et  $l^*$  le libre parcours moyen de transport. Ce temps caractéristique de la diffusion dans le milieu nous donne une information sur la complexité des chemins à l'intérieur du milieu. Le temps de Thouless est défini comme la moyenne de tous les différents temps possibles de confinement des photons dans le milieu, qui sont liés à tous les chemins possibles parcourus.

Par transformée de Fourier de la distribution des temps de trajet dans le milieu, il est possible de déterminer la fonction de corrélation spectrale de l'image du speckle. Par conséquent, nous pouvons définir une grandeur caractéristique dans le domaine des fréquences inversement reliée au temps de Thouless. Cette grandeur, appelée largeur de corrélation spectrale du milieu, est donnée par l'écart entre deux longueurs d'onde,  $L_{\Delta\lambda}$  (ou entre deux fréquences  $\Delta\omega_{corr} = \frac{2\pi c}{L_{\Delta\lambda}}$ ), générant deux speckles complètement décorrelés [McCabe et al., 2011].

La largeur de corrélation spectrale, comme le temps de Thouless, est une caractéristique du milieu qui peut être mesurée. Nous verrons plus en détail dans la section C.1 comment ces deux grandeurs entrent en jeu pour décrire le comportement d'une onde mode bloqué à travers un milieu complexe. Dans le chapitre 2 nous montrerons comment accéder à la largeur de corrélation spectrale d'un milieu multi-diffusant.

## B Contrôle spatial de la lumière

Le speckle a été considéré, pendant longtemps, comme une perturbation et limitation dans l'imagerie à travers ou dans les milieux complexes. Des techniques d'imagerie, dans les ultrasons [Gross et al., 2003] comme aussi dans l'optique cohérente [Ozcan et al., 2007] cherchent depuis des années à s'affranchir de ce problème qui limite vite un signal issu de la profondeur d'un milieu multi-diffusant.

Expérimentalement, malgré cette distorsion de la lumière, il a été prouvé, dans les dernières années, qu'il est possible de focaliser ou façonner l'onde en sortie d'un milieu complexe ou encore d'imager à travers ou dans ce milieu. Dans les parties qui suivent, nous étudierons ces méthodes pour contrôler la lumière dans le régime multi-diffusif et s'affranchir du caractère perturbateur du speckle.

### B.1 Les modulateurs spatiaux de lumière

Parmi les éléments clés pour façonner l'onde à l'entrée d'un milieu multi-diffusant il y a, indiscutablement, le modulateur spatial de lumière (SLM, de l'anglais *Spatial Light Modulator*). Ce dispositif, initialement conçu pour moduler la lumière en intensité [Konforti, 1988], entraîne aussi une modulation de la phase en permettant, pour un coût modeste, de contrôler la lumière sur un très grand nombre de degrés de liberté.

Différents modulateurs spatiaux existent aujourd'hui, ils diffèrent sur les composants et les processus physiques qui engendrent la modulation selon leur utilisation en rapidité ou précision. Dans cette partie, nous ferons une brève description des SLMs le plus répandus : les modulateurs à cristaux liquides et les modulateurs à micro-miroirs.

Les modulateurs à cristaux liquides nématiques torsadés (TN LCD, de l'anglais *Twisted Nematic Liquid Cristal Display*), celui utilisé pendant ma thèse en est un, sont composés d'un écran à très grand nombre de pixels. Les pixels sont constitués d'un liquide dont les molécules organiques sont sous forme de petits bâtonnets. À l'état naturel, ces bâtonnets sont disposés entre eux avec une direction privilégiée. Ces cristaux liquides sont capables de faire tourner la polarisation de la lumière, propriété similaire aux cristaux biréfringents. Cependant ces bâtonnets ne sont pas fixes. Ils changent d'orientation si on leur applique une différence de potentiel. La modification de l'orientation provoque une modification de l'interaction avec la lumière. Par exemple, les TN LCD d'amplitude en transmission sont composés de deux polariseurs croisés et d'une couche de cristaux liquides, entourée par deux électrodes, qui est placée entre les deux polariseurs.

Quand aucune tension n'est appliquée, l'orientation hélicoïdale des cristaux fait tourner la

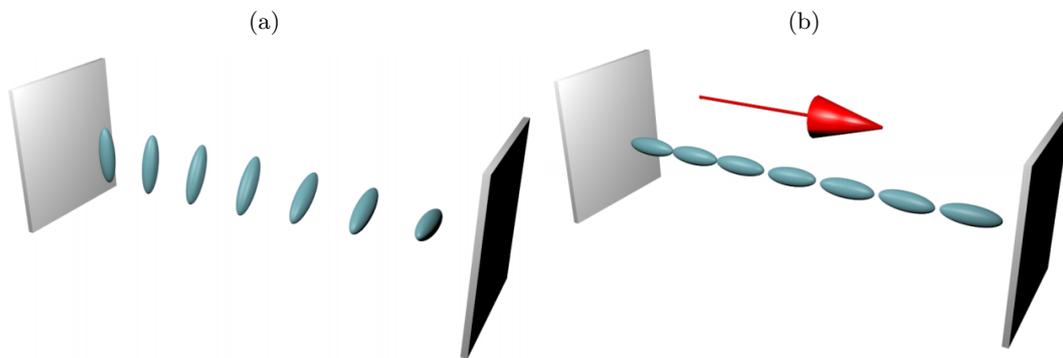


FIGURE 1.4 – **Principe d'un écran à cristaux liquides nématiques torsadés** : sans tension appliquée, les cristaux hélicoïdaux font tourner la polarisation de la lumière de  $90^\circ$  (a). Lorsqu'une différence de potentiel est appliquée (b), les cristaux s'orientent suivant le champ électrique créé et ils n'affectent pas la polarisation de la lumière incidente (extrait de la thèse [Popoff, 2011]).

polarisation de la lumière de  $90^\circ$  permettant de laisser passer la lumière à travers le deuxième polariseur sans perte d'intensité. Lorsqu'une différence de potentiel est appliquée entre les deux électrodes, les cristaux liquides vont s'orienter selon le champ électrique créé. Selon la tension appliquée la polarisation de la lumière incidente est plus ou moins tournée jusqu'un seuil de tension pour lequel la polarisation de la lumière incidente n'est pas modifiée. Ainsi, la lumière est bloquée par le deuxième polariseur (Fig. 1.4). De cette façon, en chacun des pixels de l'écran, la lumière peut être transmise de manière variable ou bloquée par l'application d'une tension.

Bien que ce modèle ait été conçu pour une modulation en intensité, en choisissant une combinaison correcte de la polarisation incidente et sortante, le dispositif peut entraîner une modulation de phase de  $0$  à  $2\pi$  pour une longueur d'onde incidente donnée sans pour autant modifier l'intensité. En effet, cela est possible lorsque ces bâtonnets ne sont pas complètement alignés entre eux : pour des faibles valeurs de tension, des études à ce sujet [Konforti, 1988] ont montré que seule une modification de la phase est engendrée.

Pour la suite de cette thèse, dans nos expériences, nous allons utiliser des modulateurs spatiaux en réflexion pour réaliser une modulation de phase uniquement, « phase only ». Les SLMs en réflexion présentent un miroir après le deuxième polarisateur pour réfléchir la

lumière et ils sont composés par des polarisateurs parallèles. Le déphasage est donné par le double passage dans les cristaux liquides. Le principe de ces modèles de SLM est un peu plus compliqué [Wu and Yang, 2001] mais il reste proche du cas des modulateurs à transmission. La principale limitation de ces modulateurs spatiaux est leur temps de rafraîchissement : à chaque tension appliquée, les molécules ont besoin d'un certain temps pour changer leur direction sur toute l'épaisseur de la couche de cristaux liquides. Ce temps de réponse varie de modèle à modèle pour une fréquence de rafraîchissement entre 10 et  $10^3$  Hz.

Un deuxième type de SLM que nous aimerions mentionner ici pour leur très grande rapidité par rapport à ses concurrents TN LCD sont les modulateurs à micro-miroirs. De tels dispositifs sont composés d'une matrice de petits miroirs (de dimensions inférieures à quelques dizaines de microns) que l'on peut déplacer par l'application d'une différence de potentiel. Il y a deux types de déplacements : la rotation et la translation.

Les modulateurs à micro-miroirs par rotation sont généralement employés dans les nouvelles générations de vidéoprojecteurs. Quand on applique une tension à ces micro-miroirs, par rotation ils dévient la lumière vers un dispositif qui la bloque, le pixel est alors éteint ; si la différence de potentiel est nulle, la lumière passe dans le système de projection, le pixel est allumé. Ce type de déplacement par rotation permet donc une modulation en intensité binaire. Au contraire, les micro-miroirs par translation permettent de retarder ou avancer la phase de la lumière en induisant une différence de chemin optique entre les différents miroirs et moduler ainsi le front d'onde. Le temps de réponse des actionneurs dans ce cas est inférieur à la centaine de  $\mu$ s permettant un rafraîchissement très rapide, de l'ordre de la dizaine de kilohertz.

En revanche, ce type de modulateurs est fabriqué avec une électronique coûteuse et en petites séries pour être au final composé par peu de pixels (de l'ordre du millier alors qu'un TN LCD en a plus de  $10^6$ ). Notre choix s'est donc porté sur l'utilisation d'un TN LCD pour les expériences de cette thèse.

## B.2 Contrôle de front d'onde par optimisation

Puisqu'un modulateur spatial peut façonner un front d'onde en phase, ou en amplitude, nous pouvons nous servir de ces degrés de liberté spatiaux de contrôle pour focaliser l'onde en sortie d'un milieu diffusant ou encore imager à travers ce milieu.

Le point de départ d'une telle approche a été l'expérience menée par A. Mosk et I. Vellekoop en 2007 : ils ont réussi, pour la première fois, à focaliser de la lumière cohérente monochromatique à travers un milieu très diffusant en utilisant un SLM [Vellekoop and Mosk, 2007].

Le principe repose sur une opération équivalente à une conjugaison de phase. Pour un milieu complexe, le champ électromagnétique en sortie est une somme algébrique des champs correspondants à différents chemins empruntés par la lumière à l'intérieur du milieu diffusant : la figure de speckle que nous observons est composée par des points sombres où ces champs interfèrent destructivement et des points plus lumineux où les différentes contributions interfèrent constructivement [Zel'Dovich et al., 1985]. Une opération de conjugaison de phase revient à mettre en phase toutes les différentes composantes du champ en un point donné

à la sortie du milieu (Fig. 1.5), augmentant ainsi l'amplitude du champ total en ce point et donc sa luminosité. La qualité de cette tache brillante dépend du nombre de contributions indépendantes auxquelles l'expérimentateur a accès pour les contrôler. Il s'agit du nombre de degrés de liberté spatiaux.

Or, le SLM permet de contrôler  $N_{in}$  portions indépendantes du front d'onde dont leur somme

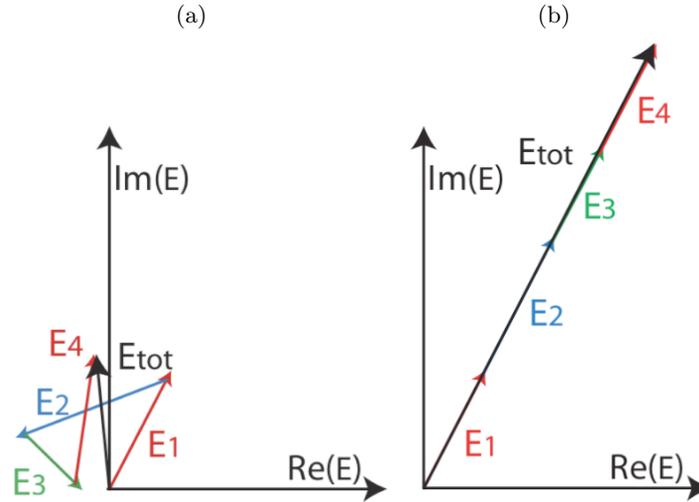


FIGURE 1.5 – **Principe de focalisation par conjugaison de phase** : (a) le champ total dans le plan complexe en un point donné à la sortie du milieu diffusant, pour une illumination quelconque, est donné par la contribution de tous les champs aléatoires en ce point donné. (b) Après une conjugaison de phase, tous les champs contribuant au champ total en ce point sont mis en phase, ce qui induit une augmentation de l'amplitude du champ total (extrait de la thèse [Popoff, 2011]).

algébrique donne le champ total diffusé à la sortie en un point donné. Dans l'expérience menée en 2007, pour chaque pixel du SLM, plusieurs valeurs de phase sont testées. Seule la valeur de phase qui maximise le champ en sortie au point choisi est gardée. Cela permet d'avoir une combinaison finale de pixels du SLM en entrée (masque de phase) qui optimise l'amplitude au point choisi. L'optimisation est une opération qui converge vers une conjugaison de phase (Fig. 1.5). L'intensité du point optimisé est alors augmentée par rapport à l'intensité moyenne du speckle de fond, d'un facteur proportionnel à  $N_{in}$  (Fig. 1.6) [Vellekoop, 2008]. Le principal avantage de cette méthode de contrôle spatial de la lumière à travers un milieu diffusant est qu'aucune information *a priori* sur le milieu n'est nécessaire. Les inconvénients majeurs du contrôle spatial par optimisation sont la nécessité de réitérer le processus pour pouvoir focaliser à un nouveau point en sortie, ce qui rend la méthode trop lente pour pouvoir déplacer un point de focalisation en temps réel, et l'inaptitude à la reconstruction d'une image transmise par le milieu, par exemple, comme dans d'autres méthodes de contrôle [Popoff et al., 2010b]. En plus de ces inconvénients, la focalisation par optimisation ne donne aucune information sur le milieu et sur son action sur le front d'onde pour le déformer spatialement, c'est-à-dire que l'optimisation ne nous apprend rien de fondamental sur l'interaction lumière-matière dans le régime multi-diffusif.

Néanmoins, cette méthode a été largement exploitée dans différentes applications comme focaliser la lumière à l'intérieur d'un milieu [Vellekoop et al., 2008] pour exciter une particule

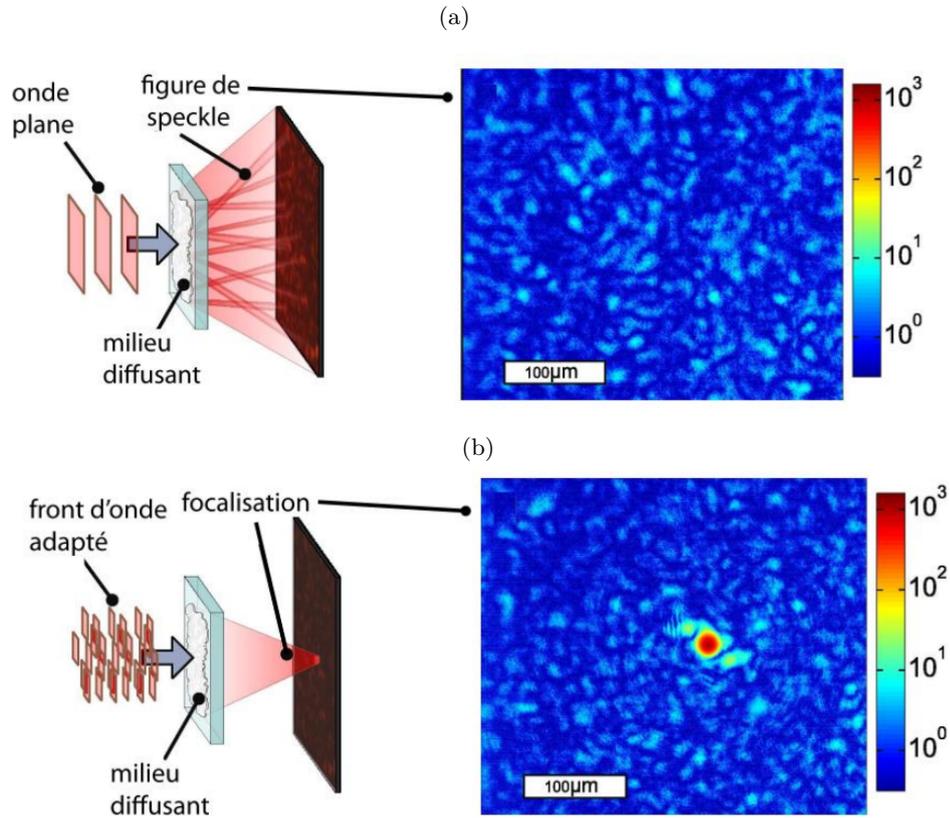


FIGURE 1.6 – **Principe de focalisation par optimisation** : (a) milieu complexe éclairé par une onde plane (non modulée). L'image d'intensité est une figure de speckle. (b) milieu diffusant éclairé par un front d'onde modulé selon la séquence d'optimisation pour un point cible choisi. La figure à la sortie est un speckle avec le point cible optimisé en intensité par le masque de phase appliqué (extrait de [Vellekoop and Mosk, 2007]).

fluorescente, focaliser à la limite de diffraction en transmission [Vellekoop et al., 2010] ou à travers une fibre multimode [Cizmar and Dholakia, 2011].

Dans la suite de ce chapitre, nous présenterons une manière déterministe de contrôler spatialement la lumière monochromatique à travers un milieu complexe. Cette nouvelle méthode, mise en place à l'Institut Langevin en 2011, a ouvert la possibilité d'avoir une connaissance plus approfondie des milieux diffusants et leurs effets sur des ondes lumineuses et de pouvoir façonner le speckle en sortie de manière plus complexe.

### B.3 Représentation matricielle de la propagation à travers un milieu diffusant

La propagation de la lumière à travers un milieu homogène diffusant dérive des équations de Maxwell.

S'il n'y a pas génération d'ordre supérieur du champ au passage à travers le milieu, alors les interactions lumière-matière sont élastiques. On parle alors de milieu linéaire.

Un milieu linéaire quelconque, et plus particulièrement un milieu diffusant, peut être vu comme la somme de strates d'épaisseur infinitésimale [Born and Wolf, 1964]. Pour chaque

couche infinitésimale, le problème de la propagation d'une onde à travers ce milieu revient à connaître le champ à différents points de l'espace et connaître sa réponse temporelle à l'émission depuis une source ponctuelle. Par linéarité de l'équation d'onde nous pouvons traiter chaque source de manière indépendante et superposer les solutions pour obtenir le champ total.

Par la fonction de Green impulsionnelle  $\hat{g}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t - t')$  [Papap, 1965] est possible de décrire la réponse infinitésimale d'un milieu de position  $\mathbf{r}$  au temps  $t$  à une source de position  $\mathbf{r}'$  et qui émet un signal au temps  $t'$ . Cette fonction lie un champ vecteur au point d'observation au champ vecteur au point de l'émission, donc elle s'écrit sous la forme d'un tenseur  $4 \times 4$  :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \hat{g}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}', t') dt' \quad (1.7)$$

Or, par continuité des équations de Maxwell, nous pouvons intégrer le comportement d'une couche infinitésimale sur tout le milieu diffusant : cette opération est équivalente à voir le milieu diffusant comme un opérateur linéaire qui modifie le champ incident pour générer un champ très complexe en sortie, le speckle [Beenakker, 1997].

Expérimentalement, nous pouvons modéliser la propagation à travers un milieu linéaire comme une matrice entre des sources (entrée), ou des modulateurs dans notre cas, et des récepteurs (sortie). Nous pouvons nous limiter au cas d'une seule polarisation en entrée et en sortie, ce qui revient à traiter les champs en entrée  $E_i^{in}(\omega)$  et sortie  $E_j^{out}(\omega)$  comme des scalaires à une longueur d'onde fixée. Les sources ou les modulateurs ont des dimensions non nulles, donc nous nous intéressons à un nombre de sources ou modulateurs finis  $N$ .

Le champ mesuré en sortie pour un détecteur  $j$  est donné par la somme des contributions de chaque source ou modulateur en entrée après avoir traversé le milieu dont le tenseur de Green  $G_{ij}$  à une fréquence donnée en décrit la réponse :

$$E_j^{out}(\omega) = \sum_i^N G_{ij}(\omega) E_i^{in}(\omega). \quad (1.8)$$

Matriciellement cette équation devient :

$$\mathbf{E}^{out} = \mathbf{G} \cdot \mathbf{E}^{in}. \quad (1.9)$$

Lorsque les sources et les récepteurs sont du même côté du milieu nous parlerons de matrice de réflexion (MR) et nous la noterons  $\mathbf{K}$ . Quand les sources et les récepteurs sont de part et d'autre du milieu, nous parlerons de matrice de transmission (MT ou plus communément en anglais TM) et nous la noterons  $\mathbf{H}$  (selon la nomenclature extraite de [Popoff, 2011]).

Nous avons défini les matrices de propagation d'une onde monochromatique comme une matrice dont les éléments relient le champ d'un modulateur à celui d'un récepteur de position donnée. Nous avons donc construit la matrice dans une base de positions spatiales au niveau du modulateur. En optique, avec l'introduction d'une lentille par exemple, il est très facile de passer de l'espace des positions à l'espace des vecteurs d'onde  $\mathbf{k}$  incidents sur le milieu. Par la suite, nous privilégierons ce formalisme plus courant en optique.

Dans cette thèse nous nous sommes intéressés à la transmission des ondes dans les milieux diffusants. Par la suite donc, nous parlerons et traiterons le cas de la matrice de transmission,

en négligeant l'étude et la mesure de la matrice de réflexion.

Voyons maintenant des exemples de MT pour différents milieux : la propagation très simple dans l'espace libre, la propagation à travers une lentille parfaite et enfin, la propagation à travers un milieu multi-diffusant.

Le cas plus simple de la propagation dans un espace libre, laisse la composante du champ

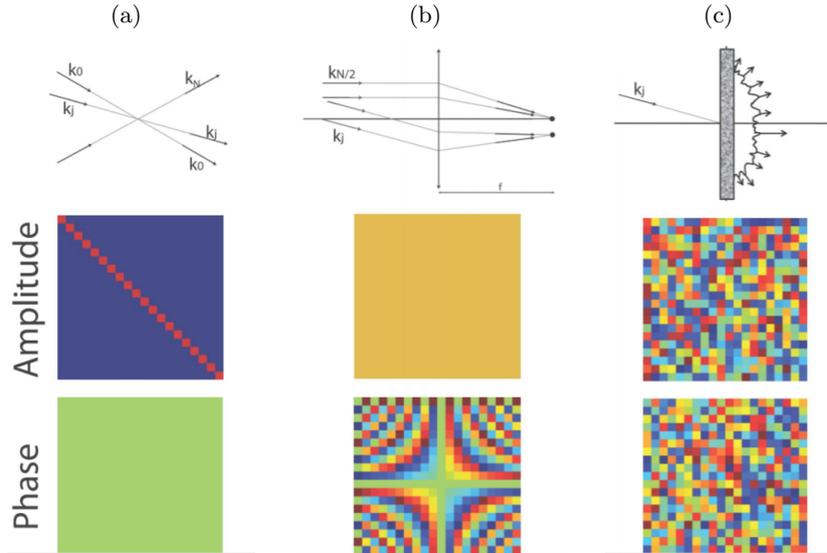


FIGURE 1.7 – **Matrice de transmission pour différents milieux** : allures de la matrice en amplitude et phase pour le cas (a) d'une propagation en espace libre, (b) à travers une lentille parfaite et (c) à travers un milieu diffusant (extrait de [Popoff, 2011]).

incident  $E_i^{in}$ , portée par le vecteur  $\mathbf{k}_i$ , inchangée. La MT  $\mathbf{H}$  est alors la matrice identité. Si on considère maintenant une lentille parfaite, convergente, l'optique géométrique prévoit que deux ondes planes incidentes avec des vecteurs d'onde différents convergent en deux points distincts du plan image. Le champ en sortie  $E^{out}$  est la transformée de Fourier du champ incident  $E^{in}$ . Pour deux ondes planes de vecteurs d'onde  $\mathbf{k}_i$  et  $\mathbf{k}_i'$ , la lentille induit simplement un décalage en phase de sorte qu'il y a un déplacement du point focal pour que les deux ondes participent de la même façon à la focalisation. Cela se traduit sous forme matricielle comme une MT d'amplitude constante et de phase donnée par un calcul de transformée de Fourier. Si nous regardons la propagation à travers un milieu diffusant, une onde plane incidente de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$ , génère à la sortie du milieu un champ en apparence aléatoire dont, à priori, nous ne sommes pas capables de prévoir la décomposition sur les vecteurs d'onde de sortie. Une deuxième onde plane de vecteur d'onde suffisamment différent du premier  $\mathbf{k}_i'$  produit un champ encore aléatoire qui ne présente aucune corrélation avec le champ de sortie de l'onde précédente. La MT a dans ce cas une apparence très complexe et aléatoire en amplitude et phase (Fig. 1.7).

Pourtant cette matrice, d'apparence très compliquée, est accessible et sa mesure peut être exploitée pour contrôler et façonner l'onde à travers les milieux diffusants.

À l'Institut Langevin en 2010, Sébastien Popoff *et al.* [Popoff *et al.*, 2010a] ont mesuré pour la première fois la MT optique d'un milieu diffusant. Ces travaux sont la base de cette thèse, qui

a consisté à l'étendre au domaine temporel. Dans les prochains paragraphes nous donnerons un bref descriptif de la méthode pour accéder à la connaissance de la MT d'un milieu diffusant quelconque et nous verrons comment exploiter cette connaissance pour contrôler et focaliser la lumière à travers des milieux complexes.

#### B.4 Mesure de la matrice de transmission

La mesure de la MT d'un milieu diffusant nécessite une modulation de l'onde incidente [Popoff et al., 2010a]. Un SLM est employé pour moduler le front d'onde en entrée du milieu diffusant. Le montage expérimental est montré en Fig. 1.8.

Un faisceau monochromatique éclaire un SLM qui réfléchit la lumière vers la pupille d'un

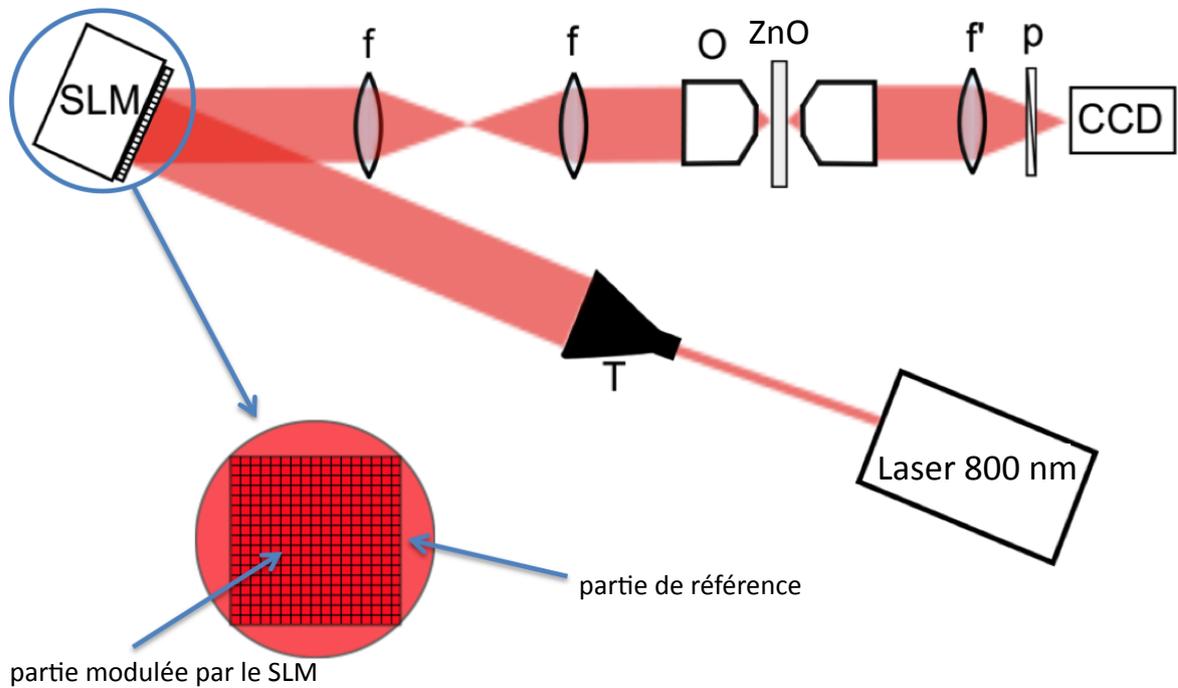


FIGURE 1.8 – **Montage expérimental pour la mesure de la MT** : un laser monochromatique de longueur d'onde  $\lambda = 800 \text{ nm}$  éclaire un modulateur de phase en réflexion (SLM) avant d'être focalisé sur un milieu très diffusant, une couche de ZnO (oxyde de zinc), grâce à un objectif à faible ouverture numérique ( $NA = 0,3$ ). La lumière transmise à travers le milieu est ensuite imagée sur une caméra CCD avec une sélection en polarisation (P).

objectif à faible ouverture numérique qui focalise la lumière à la surface d'un milieu de oxyde de zinc (ZnO) d'épaisseur  $L \simeq 80 \text{ }\mu\text{m}$  et de libre parcours moyen  $l^* \simeq 6 \text{ }\mu\text{m}$  (comme  $L \gg l^*$ , nous sommes bien dans le régime multi-diffusif). La lumière en transmission du milieu est collectée et imagée sur une caméra CCD (de l'anglais *Charge-Coupled Device*, ou en français « dispositif à transfert de charge »).

Pour avoir une mesure du champ optique modifié par le milieu nous avons besoin d'accéder à la fois à l'intensité et à la phase du champ. En optique, une mesure d'interférométrie permet d'avoir ces informations. Considérons une onde plane monochromatique qu'on sépare en deux

bras dont un présente un objet qui modifie le front d'onde de l'onde plane incidente de manière inconnue par l'expérimentateur. En recombinaison les deux ondes sur une caméra, l'intensité mesurée par celle-ci à un point donné  $(x,y)$  de l'écran est donnée par :

$$I_\alpha(x, y) = | e^{i\alpha} E_{ref} + E(x, y) |^2 \quad (1.10)$$

avec  $E(x, y)$  le champ provenant de l'objet inconnu et  $e^{i\alpha} E_{ref}$  le champ de l'onde de référence de phase connue  $\alpha$ .

Si cette intensité est mesurée pour quatre différentes phases de l'onde plane de référence ( $\alpha = 0, \frac{\pi}{2}, \pi, \frac{3\pi}{2}$ ) il est possible de calculer le champ incident à une position donnée  $(x,y)$  par combinaison linéaire de ces quatre intensités :

$$E(x, y) = \frac{1}{E_{ref}} \left( \frac{I_0(x, y) - I_\pi(x, y)}{4} + i \frac{I_{\frac{3\pi}{2}}(x, y) - I_{\frac{\pi}{2}}(x, y)}{4} \right). \quad (1.11)$$

Cette méthode d'interférométrie est appelée méthode de décalage à quatre phases et un montage avec une onde plane comme bras de référence est appelé interféromètre de Mach-Zehnder [Zehnder, 1891]. Rien change au résultat final si nous choisissons comme faisceau de référence, à la place d'une onde plane, une partie du speckle coaxial non modulé.

Cette méthode d'interférométrie a été utilisée pour mesurer la MT. Néanmoins, une onde de référence amenée par un bras externe a été remplacée par un speckle coaxial de référence  $S(x, y)$  pour augmenter la stabilité du système et garantir une bonne mesure de la matrice. Dans le montage de la Fig. 1.8 seulement une partie (un carré central) du SLM éclairé est modulée, l'autre partie reste statique et fait office de référence. Le speckle en sortie du milieu, alors, n'est que l'interférence entre le speckle issu de la partie non modulée du SLM et celui de la partie modulée. Si nous appliquons maintenant la méthode de décalage à quatre phases pour un champ  $e^{i\alpha_n} E_n$ ,  $n \in \{0 \dots N\}$  de la partie modulée du SLM de  $N$  pixels, le champ optique mesuré pour un pixel  $m$  de la caméra CCD est donné, d'après la définition de la MT même, par :

$$\sum_n^N E_n h_{mn} = \frac{1}{s_m^*} \left( \frac{I_{0m} - I_{\pi m}}{4} + i \frac{I_{\frac{3\pi}{2}m} - I_{\frac{\pi}{2}m}}{4} \right) \quad (1.12)$$

où  $s_m^*$  est le champ relié au speckle de référence pour le pixel  $m$  de la CCD et  $h_{mn}$  la composante de la MT qui relie le champ du pixel  $n$  du SLM avec le champ total du pixel  $m$  de la CCD.

Donc la valeur complexe que nous mesurons pour le pixel  $m$  de la caméra CCD est simplement :

$$H_m^{obs} = \frac{I_{0m} - I_{\pi m}}{4} + i \frac{I_{\frac{3\pi}{2}m} - I_{\frac{\pi}{2}m}}{4} = s_m^* \sum_n E_n h_{mn}. \quad (1.13)$$

Nous pouvons maintenant reconstruire, colonne par colonne, la MT en envoyant une base spatiale en entrée sur le SLM. On peut par exemple, dans le cas le plus simple, envoyer une base canonique, c'est-à-dire allumer un seul pixel à la fois de la partie modulée du SLM. Pour un pixel  $n$  allumé, l'élément de la MT  $h_{mn}$  est donné, à un facteur de normalisation près, par la combinaison linéaire des intensités pour les quatre phases du pixel en sortie  $m$  de la caméra

CCD :

$$\frac{I_{0m} - I_{\pi m}}{4} + i \frac{I_{\frac{3\pi}{4}m} - I_{\frac{\pi}{2}m}}{4} = s_m^* h_{mn} \quad (1.14)$$

et après itération sur chacun des pixels de la partie modulée du SLM nous obtenons :

$$\mathbf{H}_{obs} = \mathbf{S}_{ref} \mathbf{H} \quad (1.15)$$

$\mathbf{H}$  est la MT du milieu et a sur chaque ligne, correspondant à chaque pixel de la CCD, toutes les valeurs du champ de la base choisie (s'est une matrice  $n \times m$ ).  $\mathbf{S}_{ref}$  est une matrice diagonale dont les éléments sont les contributions de la référence en amplitude et phase. Cette méthode de mesure du champ complexe ne donne pas l'accès direct à la MT à cause de la référence non uniforme. En réalité, nous mesurons la matrice observable  $\mathbf{H}_{obs}$ , mais comme la référence, bien que non uniforme, est toujours la même pour tous les pixels en sortie sur la CCD, elle affecte de la même façon chaque colonne indépendante de la matrice.

Cependant, une mesure de la MT par une base canonique a plusieurs inconvénients : allumer un seul pixel à la fois n'est pas physiquement possible pour un SLM qui ne module qu'en phase et ne peut pas renvoyer une amplitude nulle, et, de plus, une base canonique utilise un grand nombre de pixels de taille petite et l'amplitude du champ modulé par un seul pixel est donc faible, la mesure devient, alors, très sensible au bruit.

Pour contourner ce problème, l'expérience réalisée en 2010 utilise comme base d'acquisition

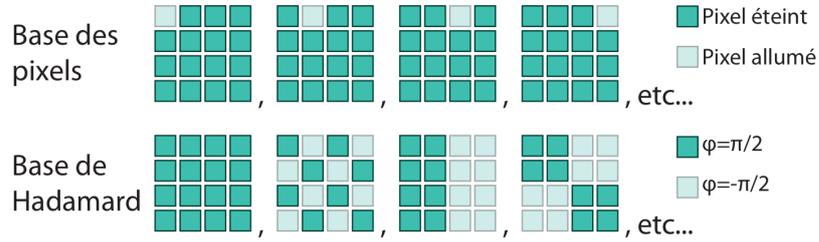


FIGURE 1.9 – **Les bases de mesure d'entrée du SLM** : schéma simplifié d'une base canonique (en haut) sur les pixels modulés du SLM et d'une base d'Hadamard (en bas) où chaque élément de la base utilise l'ensemble des pixels sans modifier leur amplitude (extrait de [Popoff, 2011]).

de la matrice une base d'Hadamard (Fig. 1.9) qui utilise tous les pixels à la fois en modifiant seulement la phase de chacun.

Ce choix de base pour la mesure de la MT sera aussi appliqué tout au long de cette thèse.

## B.5 Contrôle spatial par conjugaison de phase

Dans un système décrit par une MT, chaque speckle généré pour un  $\mathbf{k}$  incident donné est relié à une colonne de la matrice. Si toutes les composantes du champ incident sont contrôlées, nous pouvons les remettre en phase en un point donné. Cela revient à faire une opération de conjugaison de phase comme décrite en partie B.2, c'est-à-dire trouver une bonne combinaison de phases incidentes pour que les différents vecteurs d'onde  $\mathbf{k}$  interfèrent constructivement en un point donné de la sortie.

La MT est l'opérateur qui transforme l'onde incidente (une onde plane par exemple)  $E^{in}$  en

l'onde très complexe en sortie  $E^{out}$  telle que :

$$E^{out} = \mathbf{H} \cdot E^{in}. \quad (1.16)$$

Donc réaliser une conjugaison de phase pour obtenir un speckle choisi en sortie,  $\widetilde{E}^{out}$  (par exemple ayant un point brillant), se traduit par un champ incident  $E^{in}$  envoyé tel que :

$$E^{in} = \mathbf{H}^\dagger \cdot \widetilde{E}^{out}. \quad (1.17)$$

où  $(\dagger)$  représente l'opérateur transposé conjugué ou adjoint. Si nous envoyons ce champ  $E^{in}$  en entrée du milieu diffusant, le milieu le déforme à nouveau selon la MT et le champ que nous obtiendrons en sortie sera donné par :

$$E^{out} = \mathbf{H} \cdot E^{in} = \mathbf{H} \cdot \mathbf{H}^\dagger \cdot \widetilde{E}^{out}. \quad (1.18)$$

Nous voyons qu'une identité parfaite  $E^{out} = \widetilde{E}^{out}$  entre notre champ cible et le champ observé est vérifiée si le produit  $\mathbf{H} \cdot \mathbf{H}^\dagger$  est la matrice identité. L'opérateur  $\mathbf{H} \cdot \mathbf{H}^\dagger$  est appelé opérateur de retournement temporel.

En théorie, une focalisation parfaite est obtenue en choisissant  $\mathbf{H}^{-1}$  à la place de l'opération  $\mathbf{H}^\dagger$ . Néanmoins dans les travaux de thèse de Sébastien Popoff [Popoff, 2011], il a été montré que l'opérateur  $\mathbf{H} \cdot \mathbf{H}^{-1}$  engendre plus d'erreur dans la focalisation que l'opérateur de retournement temporel quand ils sont tous les deux soumis au même bruit expérimental.

Le rapport signal sur bruit (RSB) de l'intensité transmise en sortie en un point focalisé

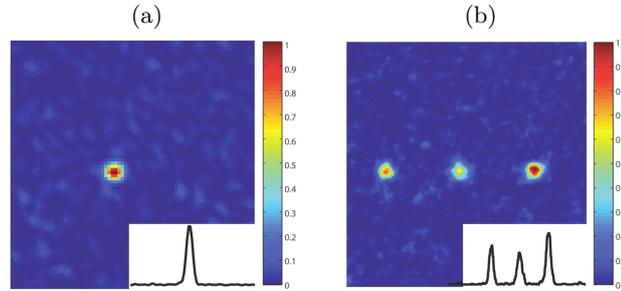


FIGURE 1.10 – **Focalisation par conjugaison de phase avec la matrice de transmission** : résultats de focalisation obtenus dans l'expérience menée aux laboratoires de l'Institut Langevin [Popoff et al., 2010a]. Les focalisations sont obtenues pour un nombre de degrés de liberté de contrôle  $N = 256$  (a) en un point de  $RSB=56$  et (b) en trois points de  $RSB \approx 17$  chacun.

est approximativement donné par le nombre de degrés de liberté de contrôle  $N$  du SLM, c'est-à-dire le nombre de pixels indépendants modulés pour façonner l'onde incidente sur le milieu [Popoff, 2011] :

$$RSB = \frac{I_{cible}}{\bar{I}} \approx N \quad (1.19)$$

où  $I_{cible}$  est l'intensité au point focalisé et  $\bar{I}$  est l'intensité moyenne ailleurs du point cible. Cette valeur de RSB baisse à  $\frac{\pi}{4}N$  dans le cas d'une modulation de phase seulement du SLM [Popoff et al., 2010a].

La MT permet une focalisation spatiale (en un point ou en plusieurs points) de haut RSB (Fig. 1.10) d'un faisceau monochromatique à travers un milieu diffusant. Une fois la MT mesurée, nous pouvons façonner le faisceau en transmission comme nous le souhaitons et instantanément grâce à l'équation 1.17, sans devoir itérer le processus, comme dans le cas de l'optimisation. Néanmoins, cela est vrai tant que le système est stable c'est qui n'est pas le cas par exemple d'un échantillon diffusant *in vivo* qui change en quelques millisecondes [Gross et al., 2005] ou d'un matériel non biologique qui peut changer, à la suite des fluctuations de température ou d'humidité, au mieux en quelques heures. Quand, à la suite des changements qui subit le milieu, le speckle a décorrélé, la MT mesurée n'est plus correcte, il faudra, seulement à ce moment-là, rémesurer la nouvelle MT.

Un autre avantage de cette méthode par rapport à l'optimisation présentée en partie B.2 est qu'elle nous permet d'accéder à des informations plus fondamentales de ce qui se passe dans l'interaction lumière-matière pour un régime très complexe comme la multi-diffusion. La MT contient tous les éléments et les informations pour décrire la physique d'une onde qui traverse un milieu diffusant [Goetschy and Stone, 2013, Popoff et al., 2014]. Cette matrice, par conjugaison de phase, permet un contrôle déterministe qui se sert d'une connaissance fondamentale pour focaliser la lumière et aussi façonner l'onde de manière plus complexe en transmission d'un milieu multi-diffusant, comme focaliser en trois points [Popoff et al., 2010a] mais aussi reconstruire des images après leurs passage à travers un milieu complexe [Popoff et al., 2010b].

## C Contrôle temporel de la lumière

Nous avons vu jusqu'à maintenant comment une onde monochromatique est modifiée par le passage à travers un milieu multi-diffusant et comment nous pouvons contrôler cette onde à la sortie du milieu. Nous avons introduit en optique le concept innovant de MT, comment y accéder et la mesurer pour une longueur d'onde donnée et pouvoir l'exploiter pour contrôler une onde monochromatique qui a été multi-diffusée.

Dans cette partie, nous nous intéresserons au cas plus complexe du contrôle d'une onde mode bloqué, donc, à grande largeur spectrale. Alors que dans le cas monochromatique nous devons contrôler la lumière uniquement spatialement, dans le cas d'une onde d'impulsion ultra-brève un contrôle à la fois temporel et spatial doit être garanti. Dans ce chapitre, nous donnerons une rapide explication physique de ce qui se passe pour une impulsion femtoseconde (limitée par transformée de Fourier) quand elle traverse un milieu multi-diffusant et nous présenterons quelques expériences déjà réalisées pour atteindre une focalisation spatiale et, à la fois, une compression temporelle de l'impulsion en transmission d'un milieu diffusant.

### C.1 Corrélacion spatio-temporelle et dilatation d'un faisceau impulsional ultra-bref

Dans cette partie, nous introduirons les effets spatio-temporels engendrés par un milieu multi-diffusant dans le cas plus complexe d'une impulsion ultra-brève femtoseconde ( $10^{-15}$  s)

incidente.

**Impulsion laser femtoseconde** Un laser peut osciller avec beaucoup de modes longitudinaux possibles ayant des fréquences qui sont séparées par un espacement intermodal

$$\nu_F = \frac{c}{2d}$$

où  $d$  est la longueur de la cavité laser.

Normalement, ces modes oscillent indépendamment. On parle alors de *free-running modes*, modes relaxés du laser.

Cependant, ces modes peuvent, par des contraintes externes, être forcés à osciller ensemble, avec la même phase. On parle alors de laser à modes bloqués ou simplement *laser mode bloqué*. À chaque période  $T_F = \frac{1}{\nu_F}$  ces modes, en se retrouvant en phase, constitueront un pic d'intensité proportionnel au nombre de modes  $M$  de la cavité. La largeur temporelle à mi-hauteur de ce pic sera donné par la cohérence temporelle entre tous ces modes  $\tau_L = \frac{T_F}{M}$ . Plus le nombre de modes est grand, plus l'intervalle temporel dans lequel les modes se trouveront en phase sera bref et donc plus les impulsions du laser seront rapides.

Les modes bloqués qui constituent un train d'onde d'impulsions cycliques peuvent être approximés par des ondes planes uniformes qui se propagent en direction  $z$  avec une vitesse  $c$  et elles peuvent être vues comme les composantes d'une série de Fourier d'une fonction périodique de période  $T_F$  [Saleh and Teich, 1991] :

$$U(z, t) = \sum_k A_k e^{i2\pi\nu_k(t - \frac{z}{c})} \quad (1.20)$$

où  $\nu_k = \nu_0 + k\nu_F$ ,  $\forall k = 0, \pm 1, \pm 2 \dots$  est la fréquence du mode  $k$  et  $c$  la vitesse de propagation de l'onde dans le milieu d'indice  $n$ . Par convention  $k = 0$  coïncide avec la fréquence centrale d'émission du laser.

D'après les propriétés de la transformée de Fourier, la relation entre largeur spectrale et largeur temporelle d'une impulsion d'un laser mode bloqué est donnée par [Rullière, 2004] :

$$\Delta t \Delta \nu \geq \frac{1}{4\pi}. \quad (1.21)$$

La durée de l'impulsion minimale est donnée par l'inverse de la largeur spectrale du laser. Nous ne pouvons pas obtenir une impulsion plus brève. Pour cette raison, les lasers à mode bloqué sont aussi appelés *lasers limités par transformée de Fourier*.

Si on développe l'eq. 1.20 avec la définition que nous avons donnée de  $\nu_k$ , nous avons :

$$U(z, t) = e^{i2\pi\nu_0(t - \frac{z}{c})} \sum_k A_k e^{i\frac{k2\pi(t - \frac{z}{c})}{T_F}}. \quad (1.22)$$

L'enveloppe complexe :

$$A(t) = \sum_k A_k e^{i\frac{k2\pi t}{T_F}} \quad (1.23)$$

est une fonction périodique de  $t$  de période  $T_F$  et  $A(t - \frac{z}{c})$  une fonction périodique de  $z$  de période  $cT_F$ .

Si on suppose les amplitudes de tous les modes  $A = A_k$  toutes égales, l'enveloppe peut être écrite comme :

$$A(t) = A \frac{\sin(\frac{M\pi t}{T_F})}{\sin(\frac{\pi t}{T_F})} \quad (1.24)$$

et alors l'intensité est donnée par :

$$I(x, y) = |A(t - \frac{z}{c})|^2 = |A|^2 \frac{\sin^2(\frac{M\pi(t - \frac{z}{c})}{T_F})}{\sin^2(\frac{\pi(t - \frac{z}{c})}{T_F})}. \quad (1.25)$$

La forme du laser mode bloqué dépend des modes qui définissent la largeur spectrale  $\Delta\nu_L$ . Donc la durée de chaque impulsion est donnée par :

$$\tau_L = \frac{T_F}{M} \sim \frac{1}{\Delta\nu_L}.$$

Une impulsion femtoseconde est donc la plus brève possible seulement si elle est limitée par transformée de Fourier. Les fréquences se trouvant alors dans sa largeur spectrale, se propageront à une différence de phase relative constante.

Un laser femtoseconde limité par transformée de Fourier subit des effets à la fois spatiaux et temporels à son passage à travers un milieu multi-diffusant.

Premièrement, comme le laser a une certaine largeur spectrale  $\Delta\lambda_L = -\frac{c\Delta\nu_L}{\nu^2} = -\frac{c\Delta\omega_L}{2\pi\omega_L^2}$ , à la sortie du milieu diffusant nous n'avons plus, comme dans le cas monochromatique, un seul speckle à une longueur d'onde donnée, mais une superposition de plusieurs speckles. Ces speckles, qui sont une fonction continue de la longueur d'onde, peuvent être considérés complètement décorrélés seulement quand l'écart entre les longueurs d'onde est supérieur ou égal à la largeur de corrélation spectrale du milieu  $L_{\Delta\lambda}$ , introduite dans la partie A.2. Par la suite, pour une impulsion femtoseconde, nous appellerons degrés de liberté spectraux indépendants le nombre de speckles décorrélés à la sortie du milieu. Le nombre de degrés spectraux est donné par la largeur spectrale de la source lumineuse  $\Delta\lambda_L$  divisée par la largeur de corrélation spectrale  $L_{\Delta\lambda}$  du milieu [Curry et al., 2011] :

$$N_\lambda = \frac{\Delta\lambda}{L_{\Delta\lambda}}. \quad (1.26)$$

En termes plus simples, nous pouvons approximer le comportement du milieu diffusant comme s'il « discrétisait » spectralement l'impulsion femtoseconde à la sortie du milieu et nous pouvons voir le speckle total comme un motif où chaque longueur d'onde « indépendante » interfère constructivement et destructivement à la fois avec elle-même et avec toutes les autres longueurs d'onde indépendantes [Liu and Zhou, 2005]. Plus précisément, le champ total en un point donné en sortie  $E_{out}(t)$  peut être écrit comme :

$$E_{out}(t) = \sum_{i=1}^{N_\lambda} E_i(t) e^{i\Delta\Phi_i} \quad (1.27)$$

où  $E_i(t)$  sont les différentes variables en entrée qui contribuent au champ en sortie  $E_{out}(t)$  au temps  $t$  et qui ont subi un déphasage  $\Delta\Phi_i$ .  $E_i(t)$  sont des variables non corrélées de phase  $\Delta\Phi_i$  uniformément distribuée [Van Tiggelen et al., 1999].

Plus la source est étendue spectralement, plus les speckles indépendants qui vont se superposer dans la figure de diffusion seront nombreux. Le contraste  $\mathbb{C}$ , entre les grains sombres et les grains lumineux, de la figure de speckle spatial résultante de la superposition de ces différents speckles indépendants, sera alors de plus en plus faible selon l'évolution [Thompson et al., 1997] :

$$\mathbb{C} = \frac{1}{\sqrt{N_\lambda}}. \quad (1.28)$$

Pour focaliser spatialement un faisceau impulsionnel en transmission il faudra alors accéder à tous les degrés de liberté spectraux pour pouvoir les contrôler spatialement tous à la fois. Maintenant, étudions ce qui se passe dans le domaine temporel. Dans le cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier, la compression temporelle ultra-brève est donnée, comme nous avons dit précédemment, par l'invariance de la phase spectrale de la lumière. Quand une telle impulsion traverse un milieu diffusant, comme dans le cas monochromatique, la lumière parcourt divers chemins qui déphasent le front d'onde différemment pour chaque longueur d'onde. L'impulsion n'est plus limitée par transformée de Fourier. Temporellement, cela se traduit par une perte globale de la compression [Curry et al., 2011].

À chaque grain du speckle spatial  $(x,y)$ , la lumière présente un profil temporel complexe :

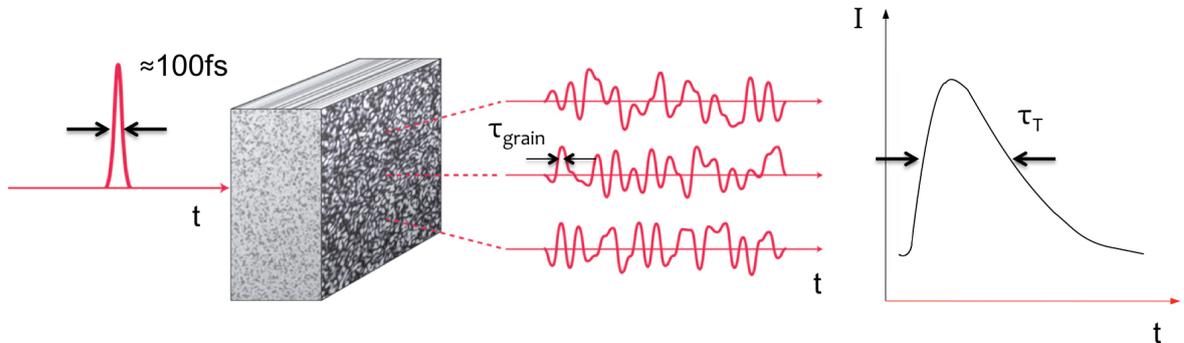


FIGURE 1.11 – **Représentation du speckle temporel** : représentation schématique du speckle temporel à la sortie d'un milieu diffusant. Chaque grain de speckle spatial est composé dans le domaine temporel par un speckle temporel. La largeur de l'impulsion avant de rentrer dans le milieu est de l'ordre de la centaine, voire dizaine, de femtosecondes. À la sortie, si nous intégrons spatialement sur tous les speckles temporels, nous obtenons une courbe dont la largeur temporelle à mi-hauteur  $\tau_T$ , le temps de Thouless, nous donne le temps caractéristique de confinement des photons dans le milieu.

elle est plus ou moins compressée à différents moments de l'impulsion selon qu'à un instant temporel donné (Fig. 1.11) il y a plus ou moins de longueurs d'onde à la même phase. L'intensité fluctue donc dans le temps et on parle alors de speckle temporel.

Une autocorrélation du champ total [McCabe et al., 2011] nous permet de remonter à la durée caractéristique d'un grain temporel et à la durée du speckle temporel total c'est-à-dire la valeur moyenne de l'impulsion à la sortie du milieu. Cette dernière est donnée par le temps de Thouless,  $\tau_T$ , défini dans l'éq. 1.5. La durée caractéristique d'un grain de speckle  $\tau_{grain}$  est

donnée par la durée de l'impulsion lorsqu'elle est limitée par transformée de Fourier  $\tau_L$  et donc, inversement proportionnelle à sa largeur spectrale  $\Delta\omega_L$  :

$$\tau_{grain} \approx \frac{1}{\Delta\omega_L}. \quad (1.29)$$

Un laser ultra-bref d'une centaine de femtosecondes de largeur temporelle d'impulsion, peut alors sortir d'un milieu suffisamment épais et très diffusant avec une durée d'impulsion de l'ordre du picoseconde composé par des grains temporels de différentes intensités de l'ordre de la centaine de femtosecondes [McCabe et al., 2011]. Cet effet empêche une bonne performance pour l'utilisation de lasers ultra-brefs comme source d'excitation pour des cibles fluorescentes dans un environnement multi-diffusif ou dans le cas de l'imagerie.

Dans les parties qui suivent, pour conclure ce chapitre introductif, nous allons présenter quelques expériences importantes déjà réalisées qui ont amené à une focalisation temporelle par optimisation (et parfois en même temps spatiale) d'une lumière ultra-brève après qu'elle ait été allongée par le passage dans un milieu complexe.

## C.2 Focalisation temporelle par contrôle des degrés de liberté spectraux

En 2011 David McCabe *et al.* [McCabe et al., 2011] ont mis en place un modulateur d'impulsion femtoseconde pour la recomprimer à la limite de la transformée de Fourier après un milieu diffusant. L'expérience est montrée en Fig. 1.12. Le contrôle temporel est fait à l'aide d'un modulateur spectral de phase : un réseau (noté  $G$  dans la Fig. 1.12) sépare la source, étendue en longueur d'onde, en ses composantes spectrales qui sont envoyées, à l'aide des miroirs, à différentes positions spatiales d'un SLM à une dimension qui module en phase seulement. Ainsi, chaque longueur d'onde peut avoir une compensation particulière en phase pour ajuster la phase spectrale globale à l'entrée du milieu diffusant de ZnO.

La focalisation est faite par optimisation sur une image d'interférence spectrale entre le faisceau déformé par le milieu et un faisceau de référence comprimé dans le temps (54 fs). Un spectromètre mesure cette interférence dont les franges ont une période spatiale déterminée par le délai relatif entre les deux faisceaux. Ces franges sont en plus modulées par le SLM qui change la phase spectrale relative. Donc le SLM module sur une rétroaction de profil de phase spectrale. Le signal sur le au spectromètre est donné par :

$$\begin{aligned} S(x, \omega) &= | A_s(x, \omega)e^{i\phi_s(x, \omega)} + A_r(x, \omega)e^{i\phi_r(x, \omega) - \omega\tau - k_x x} |^2 \\ &= | A_s(x, \omega) |^2 + | A_r(x, \omega) |^2 + \\ &+ | A_s(x, \omega) || A_r(x, \omega) | \cos[\phi_s(x, \omega) - \phi_r(x, \omega) - \omega\tau - k_x x] \end{aligned} \quad (1.30)$$

où  $A_s(x, \omega)$  et  $\phi_s(x, \omega)$  sont l'amplitude et la phase du faisceau diffusé,  $A_r(x, \omega)$  et  $\phi_r(x, \omega)$  ceux du faisceau de référence et  $\tau$  et  $k_x$  le délai temporel relatif et le vecteur d'onde relié à l'angle entre les deux ( $\theta = \frac{k_x}{|k|}$ ).

Les résultats sont montrés en Fig. 1.13. Après deux itérations pour optimiser le signal (Fig. 1.13(a)), McCabe *et al.* obtiennent une compression temporelle (Fig. 1.13(b)) localisée spatialement. Il faut remarquer que l'image 1.13(b) ne montre pas une focalisation à la fois

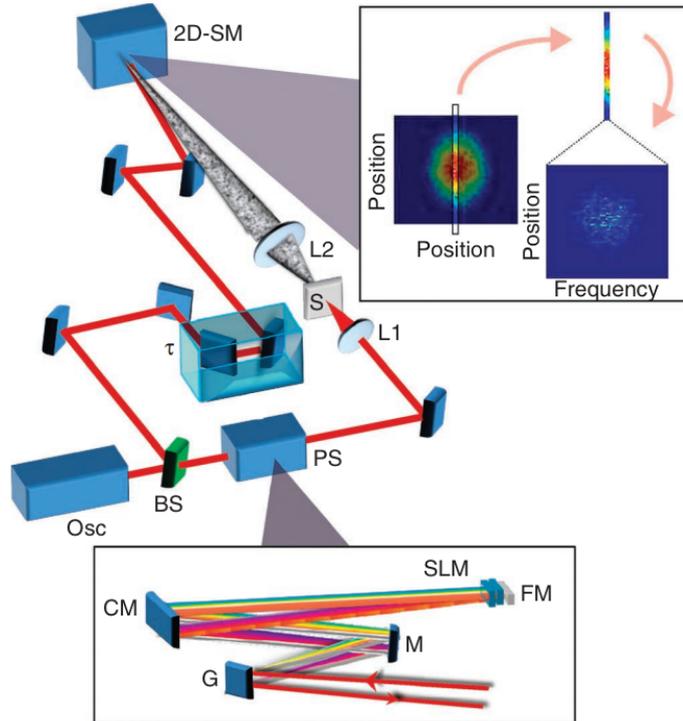


FIGURE 1.12 – **Montage expérimental pour une focalisation temporelle par contrôle des degrés de liberté spectraux** : une source ultra-brève de 54 fs et de largeur spectrale 80 nm centrée autour de 800 nm est divisée en deux bras d'interférence, une partie est envoyée dans le modulateur spectral de phase (PS) et après dans le milieu diffusant de ZnO (S), l'autre sert comme bras de référence grâce à une zone de longueur ajustable qui permet d'introduire un retard ou une anticipation temporelle ( $\tau$ ). La recombinaison des deux bras est imagée sur un spectromètre à deux dimensions (2D-SM) (depuis [McCabe *et al.*, 2011]).

spatiale et temporelle comme on pourrait le croire : le pic rouge et le pic noir désignent à la fois une localisation spatiale et temporelle de l'impulsion mais, alors que l'intégrale des intensités sur le speckle temporel (courbe noire en haut dans 1.13(b)) présente bien un pic, prouve qu'il y a eu une focalisation temporelle, l'intégrale des intensités du speckle spatial (courbe rouge en haut dans 1.13(b)) ne montre pas une focalisation.

L'intérêt de l'expérience de McCabe *et al.*, au-delà de recréer une compression temporelle par compensation de la phase spectrale par optimisation, repose sur le fait qu'une description assez minutieuse du champ en sortie (phase et amplitude) est mise en place, ce qui permet aussi une description du milieu (sa largeur  $L$  et son coefficient de diffusion  $D$ ) grâce à une autocorrélation du champ même. Néanmoins, cette méthode ne permet pas de contrôler le front d'onde pour garantir à la fois une focalisation spatiale et temporelle d'une impulsion femtoseconde.

Étant donné que dans cette expérience un contrôle des degrés de liberté spectraux n'agit que sur une compression temporelle sans affecter le speckle spatial, il semblerait que pour focaliser la lumière à la fois spatialement et temporellement nous ayons besoin de contrôler séparément les degrés de liberté spectraux et spatiaux. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous présenterons deux expériences réalisées il y a quelques années qui démontrent, à travers

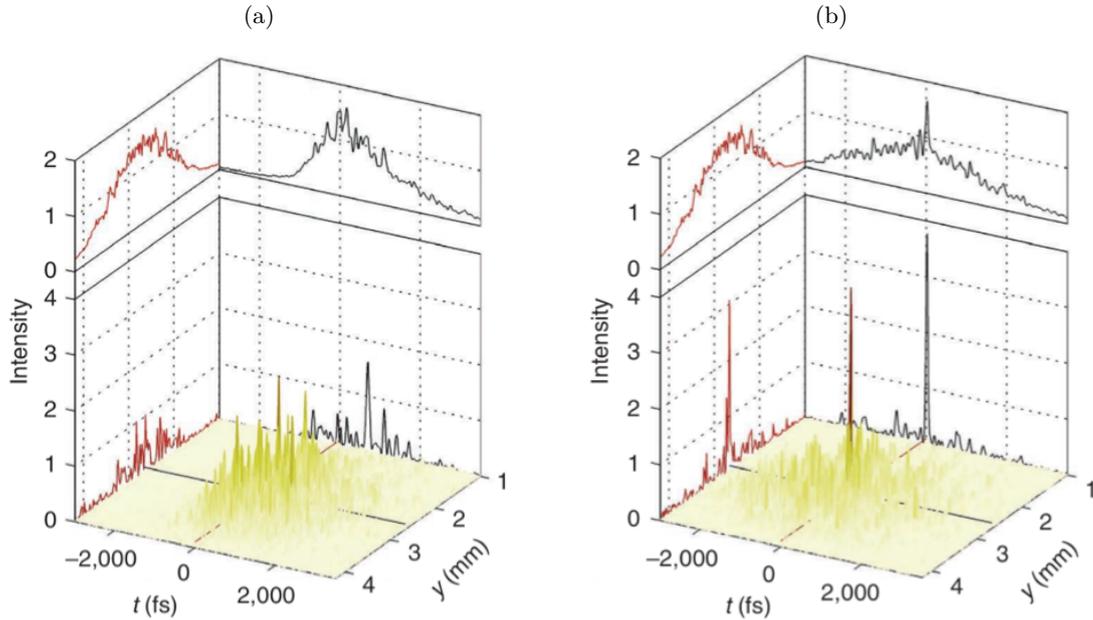


FIGURE 1.13 – **Résultats d'une focalisation temporelle avec contrôle des degrés de liberté spectraux** : un profil du champ après passage dans le milieu opaque avant optimisation est présenté ici (a). La courbe noire donne un profil d'intensité en fonction du temps pour un point donné de l'axe spatial  $y$  (nous remarquons le speckle temporel), la courbe rouge donne un profil d'intensité du speckle spatial toujours le long de cet axe. Dans (a) les courbes rouge et noire plus haut montrent l'intégrale du signal spatial et temporel respectivement. Dans (b) nous retrouvons les mêmes courbes après optimisation : nous observons un pic dans le domaine temporel et une localisation spatiale de ce même pic dans les courbes noire et rouge du bas. Par contre on remarque que, alors que dans la somme du signal temporel il y a un pic noir qui apparaît, dans le cas spatial, le speckle ne présente pas de pic. Il y a bien, alors, une focalisation temporelle sans que la focalisation ne soit garantie (extrait de [McCabe et al., 2011]).

l'optimisation, une focalisation spatiale et temporelle, cette fois, avec un contrôle par degrés de liberté spatiaux uniquement. Ce résultat surprenant vient du fait que le milieu même mélange et couple les degrés de liberté spatiaux et spectraux en introduisant une différence de marche optique entre les ondes diffusées. Ces différents chemins génèrent un retard temporel contrôlable spatialement [Katz et al., 2011].

### C.3 Focalisation spatio-temporelle par contrôle des degrés de liberté spatiaux

La même année, quelques mois avant l'expérience présentée dans la partie C.2, deux expériences de focalisation par optimisation, cette fois, spatio-temporelle, apparaissent dans *Physical Review Letters* et *Nature Photonics*. Nous voulons les présenter dans cette partie car elles représentent une base importante pour les travaux de cette thèse et un tout premier essai réussi de contrôle spatio-temporel d'un laser mode bloqué.

Aulbach et al. [Aulbach et al., 2011] présentent en 2011 une méthode de focalisation spatio-temporelle par optimisation à travers les degrés de liberté de contrôle spatiaux.

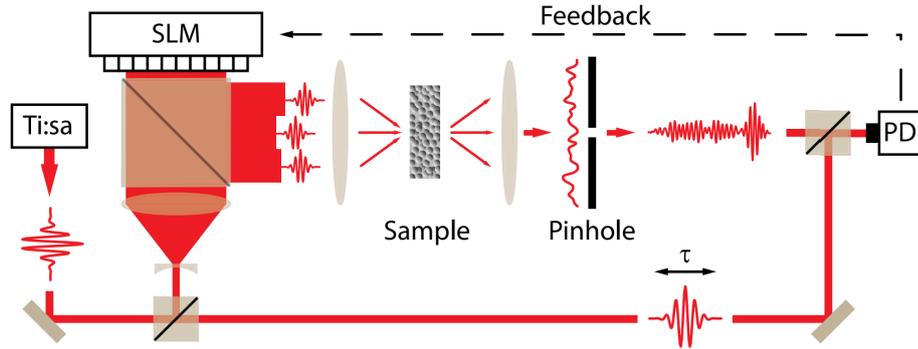


FIGURE 1.14 – **Montage expérimental pour une focalisation spatio-temporelle par contrôle des degrés de liberté spatiaux** : un laser ultra-bref est séparé en deux bras, une partie du faisceau est envoyée sur un SLM à deux dimensions qui ne module qu'en phase et ensuite à travers un milieu diffusant pour se recombiner, à la fin, avec l'autre faisceau utilisé comme référence. Un signal d'interférence hétérodyne entre les deux impulsions est imagé sur une photodiode (depuis [Aulbach et al., 2011]).

L'expérience (Fig. 1.14) est composée d'un laser impulsionnel ultra-bref de 64 fs centré autour de 795 nm qui illumine un écran à deux dimensions d'un modulateur en phase seulement (SLM). Le modulateur réfléchit la lumière sur la surface d'un milieu très diffusant de dioxyde de titane ( $TiO_2$ ) d'épaisseur et de libre parcours moyen de transport connus,  $L = 13.5 \mu\text{m}$  et  $l^* = 1 \mu\text{m}$  respectivement. Le speckle spatio-temporel est optimisé à un endroit et à un temps choisis. Spatialement à la sortie du milieu diffusant le speckle est filtré par un diaphragme qui en sélectionne le grain spatio-temporel pour l'optimisation en un point donné et qui est imagé sur un photodétecteur. Temporellement, une onde de référence ultra-brève, interfère de manière hétérodyne en un temps donné avec le speckle spatio-temporel à la sortie du diaphragme (le signal  $S(\tau)$  est donné sous une forme similaire à  $S(x, \omega)$  dans l'eq. 1.30 en fonction du délai  $\tau$ ). Le signal hétérodyne correspond à la corrélation croisée du profil de référence avec l'intensité locale du speckle diffusé.

Le signal d'interférence est utilisé comme rétroaction pour l'optimisation. En modulant la phase en entrée à différents points spatiaux du front d'onde grâce au SLM, quand les différentes contributions du champ au point et temps choisis sont en phase, le signal sur la photodiode augmente. L'optimisation est alors faite grâce au contrôle des degrés de liberté spatiaux. Un algorithme d'itération maximise ce signal pour une combinaison particulière de phase en entrée.

Quand nous modifions le délai entre les deux faisceaux, l'optimisation est faite à un temps  $t$  différent sur le speckle temporel diffusé (Fig. 1.15). Comme l'optimisation est faite sur un grain de speckle spatial sélectionné par le diaphragme nous obtenons une augmentation du signal sur un grain de speckle donné qui nous garantit une focalisation à la fois spatiale et temporelle par optimisation du signal hétérodyne.

Quelque mois après, une expérience de focalisation spatio-temporelle avec détection fluorescente apparaît dans le journal *Nature Photonics* [Katz et al., 2011].

Dans cette méthode aussi, la compression temporelle et la focalisation spatiale sont faites grâce à un contrôle des seuls degrés de liberté spatiaux. L'optimisation est réalisée par contre sur un signal non linéaire d'absorption à deux photons. Ce signal est proportionnel à l'intensité au carré de la source qui l'éclaire et inversement proportionnel à la durée de l'impulsion (le

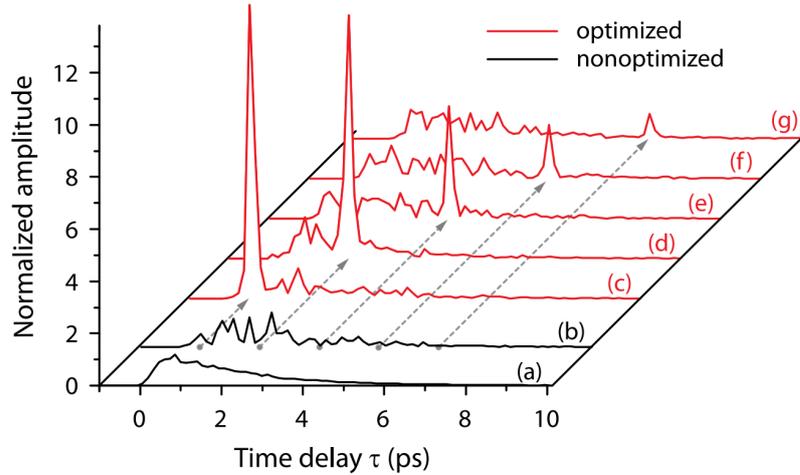


FIGURE 1.15 – **Résultat de l’optimisation spatio-temporelle par contrôle des degrés de liberté spatiaux** : l’optimisation a été faite à différents moments sur le speckle spatio-temporel non-optimisé en décalant le délai entre le faisceau diffusé et celui de référence. Des pics en amplitude à différents moments apparaissent (depuis [Aulbach et al., 2011]).

principe d’absorption à deux photons et son application pour la détection de la compression temporelle d’une impulsion ultra-brève est présentée plus en détail dans la section A.1 du chapitre 4).

Les deux corrections sur la lumière diffusée, une compression de l’impulsion et une focalisation spatiale, sont fondamentales pour maximiser le signal non linéaire.

L’expérience est montrée dans la Fig. 1.16. Un laser mode bloqué modulé par un SLM est envoyé à travers un milieu diffusant ; le speckle diffusé éclaire un échantillon fluorescent, générateur de processus à deux photons, très fin dans la direction de propagation ( $<50 \mu\text{m}$ ). Le signal non linéaire est filtré pour ne pas être perturbé par la source d’excitation et, enfin, imagé sur une caméra EMCCD (de l’anglais *electron-multiplying CCD*).

L’algorithme d’optimisation du signal non linéaire est fait à partir d’un faible signal non linéaire de départ généré par le speckle diffusé. Dans Fig. 1.17(a) nous voyons le signal normalisé au maximum d’intensité avant et après optimisation, dans Fig. 1.17(b) nous avons le signal en unité femtoseconde. Pour avoir une estimation de la durée de l’impulsion après optimisation, un interféromètre de Michelson est mis en place dans l’expérience pour faire l’autocorrélation de l’impulsion comprimée et estimer sa largeur temporelle.

La Fig. 1.17(a) montre la présence d’une focalisation spatiale, la mesure directe par autocorrélation d’une impulsion ultra-brève nous donne une preuve de la compression temporelle. Bien que cette méthode donne une focalisation spatio-temporelle, elle présente par contre l’inconvénient d’avoir besoin d’un signal non linéaire de départ sur lequel pouvoir faire l’optimisation. Cet inconvénient limite l’épaisseur des échantillons diffusants car une perte importante de l’intensité génère vite une perte du signal non linéaire de départ.

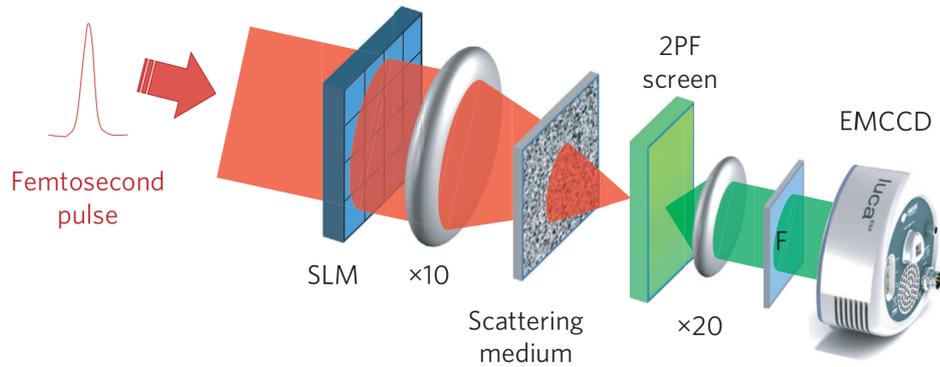


FIGURE 1.16 – **Montage expérimental d'optimisation sur un signal non linéaire** : un laser de 100 fs limité par transformée de Fourier et de largeur spectrale centrée autour de 800 nm, éclaire un modulateur spatial en phase à deux dimensions. Le faisceau passe ensuite à travers un milieu diffusant (ici un cerveau de souris de 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur) et le speckle en sortie éclaire un échantillon fluorescent très fin de fluorescéine (longueur d'excitation  $\sim 400$  nm et ré-émission autour de 500 nm). La lumière provenant de la source est filtrée pour que la fluorescence seule soit imagée sur une caméra EMCCD (depuis [Katz et al., 2011]).

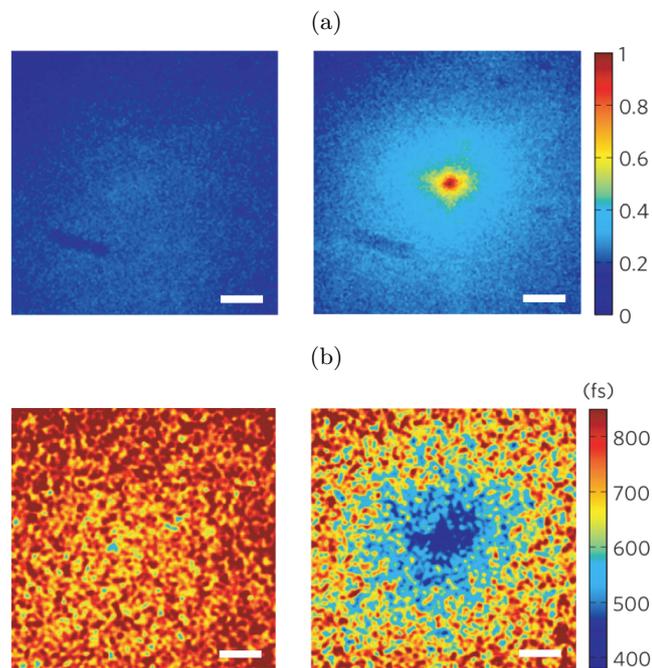


FIGURE 1.17 – **Résultats par optimisation sur un signal non linéaire** : focalisation spatio-temporelle par optimisation d'un signal non linéaire. Dans (a) nous avons l'image du signal non linéaire du speckle de fond non optimisé (à gauche) et après optimisation (à droite). Nous remarquons une tache plus intense, preuve d'une focalisation spatiale. Dans (b) nous avons les deux mêmes images mais données par autocorrélation avec une impulsion de référence (échelle en unité femtoseconde) qui prouve une compression temporelle au niveau de la focalisation spatiale (extrait de [Katz et al., 2011]).

## Conclusion

Dans ce chapitre synthétique nous avons présenté les notions physiques qui nous ont utiles, tout au long des travaux de cette thèse.

Nous avons présenté les effets du passage à travers un milieu complexe opaque par une lumière monochromatique. Nous avons donné quelques statistiques de cette figure très compliquée qui apparaît à une longueur d'onde donnée en sortie du milieu : le speckle. Ce champ n'a plus aucun lien avec le champ en entrée et il est alors très difficile de s'affranchir du speckle ou de le contrôler. Les milieux diffusants limitent, très vite, l'efficacité de certaines techniques d'imagerie.

Nous avons alors introduit la première méthode jamais réalisée qui a permis de contrôler la lumière à travers un milieu complexe par optimisation pour la focaliser après passage dans ce milieu. Cela a été possible grâce à un modulateur de phase de la lumière. Ces modulateurs de phase sont les éléments clés des travaux passés, et de ce travail même, et ont permis de révolutionner les manières de contrôler un faisceau à travers ou dans les milieux diffusants.

Nous avons ensuite présenté la matrice de transmission d'un milieu et comment, une fois mesurée, elle peut être exploitée pour contrôler un faisceau monochromatique. À la différence de la simple optimisation, cette méthode a trois avantages majeurs. Premièrement, elle permet de mieux connaître le milieu même et son interaction avec la lumière. Deuxièmement, elle rend possible un contrôle plus rapide sans avoir besoin de réitérer le processus. Enfin, elle est capable de recréer un champ en sortie pas uniquement en le focalisant mais aussi en le façonnant de manière plus complexe comme on le souhaite.

Ensuite nous avons présenté le cas plus complexe de la diffusion d'un faisceau impulsionnel ultra-bref. Nous avons brièvement défini une impulsion limitée par transformée de Fourier grâce à la condition d'une phase spectrale linéaire. Quand une source étendue spectralement et limitée par transformée de Fourier traverse un milieu opaque, les effets ne sont plus uniquement spatiaux avec l'apparition de nombreux speckles superposés, mais aussi temporels, avec une dilatation de l'impulsion qui fait perdre tous les avantages liées à la brièveté temporelle des impulsions de ce type de source. Nous avons, alors, présenté quelques caractéristiques et statistiques du speckle spatio-temporel que nous retrouvons dans le cas d'une source ultra-brève.

Nous avons enfin évoqué trois réalisations déjà mises en œuvre de contrôle temporel et spatio-temporel d'une source femtoseconde : une première capable de ne focaliser que temporellement grâce au contrôle des degrés de liberté spectraux, les deux autres, capables de focaliser à la fois spatialement et temporellement, grâce au contrôle des degrés de liberté spatiaux uniquement. Les trois expériences ont été mises en place par optimisation d'un signal de départ à la sortie du milieu complexe. Dans cette thèse, nous proposerons une méthode plus déterministe en exploitant la capacité de mesurer la matrice de transmission dans le cas simple d'une source monochromatique pour arriver à focaliser spatialement et temporellement une source femtoseconde sans être obligé d'avoir un signal de départ à la sortie du milieu et sans devoir itérer le processus. De plus, cette méthode permet, en théorie, de façonner l'impulsion spatialement et temporellement de manière plus complexe que la simple focalisation spatiale et compression temporelle.

## Chapitre 2

# La matrice de transmission multi-spectrale (MTMS)

*Dans ce chapitre nous détaillerons une méthode de mesure pour la matrice de transmission multi-spectrale (MTMS) d'un milieu diffusant.*

*D'abord nous donnerons les étapes théoriques qui expliquent le passage de la matrice de transmission vers une MTMS et comment il est possible de contrôler spatialement et temporellement un laser mode bloqué à travers les degrés de liberté spatiaux uniquement grâce à la MTMS.*

*Nous introduirons ensuite les détails techniques de la fabrication des différents milieux diffusants utilisés tout au long de cette thèse. Nous décrirons le montage expérimental pour une mesure de la largeur de corrélation spectrale d'un milieu complexe et le rôle important que joue cette grandeur dans la construction de la MTMS.*

*Dans la dernière partie de ce chapitre, nous détaillerons les éléments techniques qui composent le montage expérimental et la méthode de mesure de cette matrice.*

### Sommaire

---

<b>A</b>	<b>De la matrice de transmission à la matrice multi-spectrale . . .</b>	<b>36</b>
A.1	Théorie . . . . .	36
<b>B</b>	<b>Largeur de corrélation spectrale d'un milieu multi-diffusant . . .</b>	<b>38</b>
B.1	Échantillons diffusants et leur fabrication . . . . .	39
B.2	Mesure de la largeur de corrélation spectrale . . . . .	41
<b>C</b>	<b>Mesure d'une matrice de transmission multi-spectrale . . . . .</b>	<b>43</b>
C.1	Montage expérimental . . . . .	43
C.2	Méthode de mesure d'une MTMS . . . . .	45
C.3	Problème de la mesure de la phase spectrale relative . . . . .	45
C.4	Problème de stabilité d'une matrice MTMS . . . . .	47
<b>D</b>	<b>Contrôle spatio-temporel par MTMS . . . . .</b>	<b>49</b>
	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>53</b>

---

## A De la matrice de transmission à la matrice de transmission multi-spectrale

La MT relie un champ en sortie d'un milieu avec celui en entrée à une longueur d'onde donnée. Par contre, quand le champ est polychromatique les degrés de liberté spectraux entrent en jeu et la MT ne suffit plus pour décrire le comportement de la lumière passant au travers du système diffusant.

La matrice de transmission multi-spectrale, dont nous nous apprêtons à introduire le formalisme, peut décrire ce comportement du milieu à la fois dans le domaine spatial et temporel (ou spectral). À partir de ce qui a déjà été introduit pour le cas monochromatique, nous verrons comment cette matrice, qui est en réalité un tenseur à trois dimensions, peut décrire le comportement plus complexe d'un milieu diffusant quand il est traversé par un laser mode bloqué. Nous expliquerons également comment focaliser et façonner la lumière dans l'espace comme dans le temps avec des degrés de liberté spatiaux uniquement grâce à l'opérateur de retournement temporel.

### A.1 Théorie

Dans la partie B.3 du chapitre 1, nous avons défini le champ mesuré en sortie par un détecteur  $n$  comme la somme des contributions de chaque source ou modulateur en entrée après avoir traversé le milieu dont le tenseur de Green  $G_{mn}$  à une fréquence donnée  $\omega$  en décrit la réponse. Nous en récrivons ici l'équation :

$$E_n^{out}(\omega) = \sum_m^{N_{in}} G_{mn}(\omega) E_m^{in}(\omega). \quad (2.1)$$

Dans le domaine temporel, par transformée de Fourier, l'eq. 2.1 pour le même détecteur ou  $n^{\text{ème}}$  pixel de la CCD peut être exprimée comme :

$$E_n^{out}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \sum_m^{N_{in}} G_{mn}(\omega) E_m^{in}(\omega) \right) e^{i\omega t} d\omega. \quad (2.2)$$

$N_{in}$  est le nombre total de pixels du SLM contrôlés en entrée du milieu (degrés de liberté spatiaux de contrôle) et nous appelons par la suite  $N_{out}$  le nombre total de pixels de la CCD en transmission du milieu diffusant.

Comme introduit précédemment dans le chapitre 1, les fréquences angulaires  $\omega_k$ , ( $k = 1 \dots N_\omega$ ), sont indépendantes seulement si elles sont séparées au moins par la fréquence de largeur de corrélation spectrale  $\Delta\omega_{corr}$  du milieu où  $N_\omega$  est le nombre de degrés de liberté spectraux (noté  $N_\lambda$  dans la partie A.2 du chapitre 1). Dans ce cas, l'eq. 2.2 peut être discrétisée sous la forme :

$$E_n^{out}(t) = \sum_k^{N_\omega} E_{nk}^{out} e^{i\omega_k t} = \sum_k^{N_\omega} \left( \sum_m^{N_{in}} G_{mnk} E_{mk}^{in} \right) e^{i\omega_k t}. \quad (2.3)$$

La contribution de la fréquence angulaire  $k$  pour le pixel en sortie  $n$  est alors donné par :

$$E_{nk}^{out} = \sum_m^{N_{in}} G_{mnk} E_{mk}^{in}. \quad (2.4)$$

Si la taille des pixels sur la CCD (sur le SLM respectivement) est au moins égale à la taille en sortie (en entrée respectivement) de la longueur de cohérence du système, c'est-à-dire la taille d'un grain de speckle, et si les fréquences angulaires  $\omega_k$  sont séparées au moins par la fréquence de la largeur de corrélation spectrale du système, alors nous pouvons supposer les coefficients  $G_{mnk}$ ,  $(m,n,k) \in \{1\dots N_{in}\} \times \{1\dots N_{out}\} \times \{1\dots N_{\omega}\}$  tous indépendants.

L'eq. 2.4 devient sous forme matricielle :

$$E^{out} = \tilde{\mathbf{H}} \cdot E^{in} \quad (2.5)$$

où  $\tilde{\mathbf{H}}$  est un tenseur  $N_{out} \times N_{\omega} \times N_{in}$ .

Ce tenseur relie un champ polychromatique total initial  $E^{in}$ , constitué de  $N_{in} \times N_{\omega}$  composantes spatio-spectrales, à son champ résultant  $E^{out}$ , comptant  $N_{out} \times N_{\omega}$  composantes spatio-spectrales.  $\tilde{\mathbf{H}}$  nous donne, en bref, toute l'information de comment chaque fréquence indépendante  $\omega_k$  se modifie par passage à travers un milieu diffusant à partir d'un champ polychromatique total initial  $E^{in}$  pour en générer un résultant  $E^{out}$ . Nous appellerons par la suite ce tenseur  $\tilde{\mathbf{H}}$  matrice de transmission multi-spectrale (MTMS).

La MTMS est un tenseur à trois dimensions ( $N_{out} \times N_{\omega} \times N_{in}$ ) qui nous donne l'information discrétisée de comment un milieu multi-diffusif modifie une source polychromatique longueur d'onde par longueur d'onde. Cela est particulièrement utile dans l'étude de diffusion d'une source cohérente ultra-brève dont la perte de compression temporelle à la limite de transformée de Fourier est due au déphasage relatif entre longueurs d'onde.

Bien que nous mesurons la MTMS pour des longueurs d'onde complètement indépendantes, la MTMS peut être mesurée pour des MTs écartées d'un pas inférieur à la largeur de corrélation spectrale du milieu. De cette manière, la MTMS peut nous donner l'information complète de comment le milieu déforme le front d'onde longueur d'onde par longueur d'onde. Cela dit, l'information fournie par la MTMS a du sens dans le cas du contrôle d'une source à largeur de bande étendue seulement dans l'hypothèse où ses coefficients, que nous dénoterons par la suite  $\tilde{h}_{mnk}$ , sont complètement indépendants. Ce critère évite un sur-échantillonnage d'information que causerait, dans le cas d'un contrôle spatio-temporel, un partage des degrés de liberté de modulation de phase engendrée par le SLM entre plusieurs longueurs d'onde non complètement indépendantes.

Inversement, un sous-échantillonnage de longueurs d'onde, obtenu dans le cas d'une différence en longueur d'onde entre MTs plus proches voisines supérieure à la longueur de corrélation du milieu, amènerait à une perte d'information. Nous illustrerons cette explications par la suite dans le chapitre 3 par des résultats expérimentaux.

Il va de soi que pour avoir une MTMS efficace pour le contrôle dans le cas d'un laser mode bloqué, une connaissance approfondie de la largeur de corrélation spectrale du milieu est exigée. Dans la partie qui suit, nous allons présenter une méthode possible pour accéder à cette information, indispensable pour une bonne mesure de MTMS.

## B Largeur de corrélation spectrale d'un milieu multi-diffusant

Comme nous l'avons déjà évoqué dans la partie A.2 du chapitre 1, la largeur de corrélation spectrale d'un milieu multi-diffusant joue un rôle important dans la déformation d'une impulsion limitée par transformée de Fourier.

Pour exprimer l'idée physique qui repose derrière la largeur de corrélation spectrale d'un milieu, nous pouvons faire une comparaison entre le comportement d'un milieu diffusant et un réseau de diffraction. Le réseau de diffraction, comme celui présent dans les spectromètres, n'est qu'un nombre de traits (rayures réfléchissantes dans le cas d'un réseau à réflexion, ou fentes parallèles dans le cas d'un réseau à transmission) espacés de façon régulière d'une distance  $d$  appelée *pas* du réseau. Quand une source éclaire le réseau, d'après le principe de Huygens–Fresnel selon lequel tout point d'une source étendue peut être considéré comme une source ponctuelle et le front d'onde peut être décrit comme l'interférence de tous ces points-sources [Born and Wolf, 1964], chaque trait du réseau se comporte comme un point-source depuis lequel la lumière se propage dans toutes les directions. Donc la lumière diffractée est décrite comme la somme des interférences entre tous les points-sources. À chaque point de l'espace, chaque source ponctuelle a parcouru une distance différente et donc la source a une phase qui dépend du chemin parcouru. Quand la différence de marche entre deux points-sources est égale à  $\frac{\lambda}{2}$ , les deux faisceaux se trouvent en opposition de phase et le champ total est annulé. Au contraire, quand la différence de marche est égale à  $\lambda$ , les deux sources sont en phase et les champs sont sommés pour donner lieu à un maximum d'intensité. Ce maximum se présente alors à chaque fois que :

$$d \sin \theta_m = m \lambda \quad (2.6)$$

où  $\theta_m$  est l'angle entre la direction normale du réseau et l'onde diffractée et  $m$  est l'ordre d'interférence.

Donc à une longueur d'onde donnée mais à ordre d'interférence variable nous avons :

$$\frac{d\theta}{dm} = \frac{\lambda}{d \cos \theta}. \quad (2.7)$$

Un pas d'interférence correspond à  $dm = 1$  et donc à un intervalle angulaire  $d_\theta$

$$d_\theta = \frac{\lambda}{d \cos \theta}.$$

Si on illumine  $N$  traits du réseau nous aurons les interférences espacées d'un intervalle angulaire  $N$  fois plus petit :

$$(d_\theta)' = \frac{d_\theta}{N} = \frac{\lambda}{N d \cos \theta} \quad (2.8)$$

ce qui veut dire que plus le nombre de fentes éclairées est élevé plus le pouvoir de résolution angulaire du réseau est grand.

Les maxima dépendent de la longueur d'onde de la source incidente  $\lambda$ . La dispersion angulaire du réseau est alors donnée par :

$$\frac{d\theta}{d\lambda} = \frac{m}{d \cos \theta} \quad (2.9)$$

donc pour un ordre donné, la dispersion angulaire est d'autant plus évidente que les traits du réseau sont denses.

La résolution en longueur d'onde du réseau est alors donnée par :

$$R = d\lambda = \frac{d\lambda}{d\theta}(d\theta)' \quad (2.10)$$

qui donne avec  $dm = 1$  :

$$R = \frac{\lambda}{mN}. \quad (2.11)$$

L'écart en longueur d'onde résolu par le réseau devient de plus en plus bon quand le nombre de fentes  $N$  éclairées augmente et donc quand la distance  $d$  entre les fentes diminue, à condition que le nombre total de fentes  $N$  soit le même.

De manière similaire, le milieu diffusant peut engendrer une différence de marche entre deux sources de longueurs d'onde proches en fonction de la distance entre deux événements diffusifs et du nombre total d'événements. En bref, le pouvoir résolutif du milieu multi-diffusant n'est donné que par la distribution des chemins possibles empruntés par la lumière à l'intérieur : plus le milieu est épais avec des libres parcours moyens de diffusion petits et plus son pouvoir de résolution, sa capacité à générer deux speckles différents pour deux sources de longueurs d'onde proches, sera haut. La largeur de corrélation spectrale peut être vue comme la résolution spectrale d'un milieu multi-diffusant.

Alors que la complexité des chemins empruntés par la lumière est une information inaccessible à l'expérimentateur, cette corrélation peut être mesurée directement, sans forcément connaître ni le libre parcours moyen de diffusion, ni l'épaisseur du milieu. Connaître la largeur de corrélation spectrale permet l'accès au nombre de degrés de liberté spectraux du milieu, comme défini dans la partie C.1 du chapitre 1, qui peuvent être exploités pour un contrôle spatio-temporel d'un faisceau ultra-bref.

Dans cette partie, nous détaillerons la mesure de la largeur de corrélation spectrale d'un milieu multi-diffusant.

## B.1 Échantillons diffusants et leur fabrication

Les types d'échantillons diffusants utilisés tout au long de cette thèse sont des fines couches d'oxyde de zinc (ZnO) et dioxyde de titane (TiO<sub>2</sub>). Comme déjà dit dans la partie B.5 du chapitre 1, une mesure de la MT peut être efficace pour contrôler la lumière seulement si entre temps l'image de speckle n'a pas décorrélé. Ces matériaux non biologiques ont une stabilité dans le temps (Fig. 2.1) de plusieurs heures. Pour avoir le temps suffisant pour faire des mesures de MT et MTMS pour un contrôle spatio-temporel de la lumière sans que le speckle décorrèle notablement entre temps, nous avons limité le nombre de degrés de liberté de contrôle de nos expériences à 256 (base d'Hadamard de  $2^4 \times 2^4$ ). Cela permet une mesure, dans nos expériences, de MT d'environ 2 min et une mesure de MTMS d'environ 20 min pour 10 MTs indépendantes mesurées.

La mesure de la MT est limitée par le taux de rafraîchissement de notre SLM à cristaux liquides. Des SLM à micro-miroirs, beaucoup plus rapides, peuvent résoudre cet inconvénient.

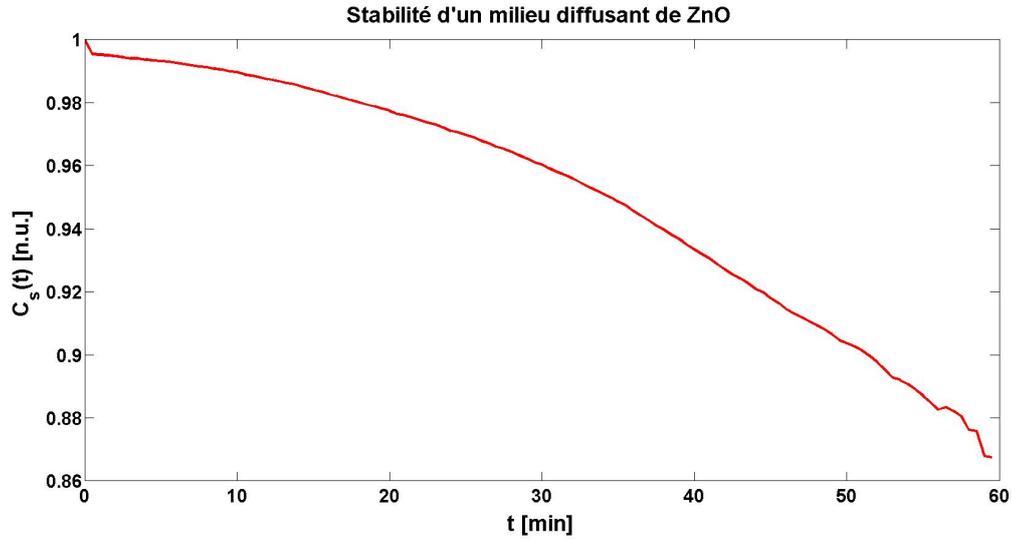


FIGURE 2.1 – **Stabilité d'un milieu non biologique** : décorrélation typique du speckle généré par un milieu diffusant de ZnO quand l'échantillon est éclairé par une lumière monochromatique à 795 nm pendant une heure. Nous avons tracé la corrélation d'une image de speckle  $C_s$  en fonction du temps  $t$ . Ici, la figure décorrèle d'environ 14% après 60 min.

L'intérêt principal de cette thèse ne s'adresse pas une application directe à la biologie, où le speckle décorrèle très vite, d'où notre choix pour des échantillons stables mais très diffusifs avec des libres parcours moyens de transport de l'ordre de  $l^* \sim 1-3 \mu\text{m}$ .

Nous avons principalement travaillé sur des poudres micrométriques d'oxyde de zinc (ZnO) qui est une poudre de couleur blanche. La couleur blanche de la poudre vient du fait que le ZnO est très peu absorbant dans le domaine du visible. Pour les tailles de particules considérées, avec un libre parcours moyen de transport de l'ordre du micromètre, qui le rend très diffusif, le ZnO est un bon candidat pour nos expériences.

Néanmoins, une source impulsionnelle ultra-brève peut engendrer des processus à deux photons et le ZnO peut générer de l'auto-fluorescence [García et al., 2007].

Les échantillons de ZnO sont préparés en solution de deux concentrations différentes d'une poudre de la marque *SIGMA-ALDRICH* qui fournit des particules dont la dimension est estimée  $< 5 \mu\text{m}$ . Cela dit, en moyenne la dimension des particules est largement inférieure (de l'ordre de la centaine de nanomètres) pour un libre parcours moyen de transport qui a été à  $l^* \sim 2 \mu\text{m}$  [Curry et al., 2011] pour un laser centré à 800 nm. Les solutions sont faites en diluant les particules dans de l'eau deux fois distillée pour une concentration massique de 0,5% et 0,75%. De même, nous avons préparé des solutions de dioxyde de titane ( $\text{TiO}_2$ ), une poudre blanche composée de particules de 200 nm de dimension et de libre parcours moyen de transport de l'ordre de  $l^* \sim 1 \mu\text{m}$ .

Nous avons déposé des quantités différentes (de 200  $\mu\text{L}$  à 400  $\mu\text{L}$ ) de ces deux solutions sur des lamelles en verre de microscope et nous les avons laissés sécher par sédimentation. L'échantillon à la fin de la sédimentation est montré comme en Fig. 2.2.

Ces couches de poudre ont une épaisseur qui varie, selon le type et la quantité de solution déposée, entre 20  $\mu\text{m}$  et 300  $\mu\text{m}$ . Comme leur libre parcours moyen de transport est de 1-2  $\mu\text{m}$ , la lumière est complètement multi-diffusée à travers ces types d'échantillons, la quantité de



FIGURE 2.2 – **Échantillons utilisés dans les expériences** : l'échantillon de gauche est composé de 200  $\mu\text{L}$  d'une solution de concentration massique à 0,75% de  $\text{ZnO}$ . Celui de droite est composé de 250  $\mu\text{L}$  d'une solution de  $\text{TiO}_2$  à 0,5%.

photons balistiques est négligeable.

## B.2 Mesure de la largeur de corrélation spectrale

Pendant cette thèse, nous avons mis en place une méthode efficace afin de mesurer rapidement la largeur de corrélation spectrale,  $L_{\Delta\lambda}$ , d'un milieu multi-diffusant, comme ceux fabriqués avec la méthode présentée ci-dessus (B.1). Nous rappelons que cette grandeur nous permet de définir le nombre de degrés de liberté spectraux indépendants générés par le milieu pour une impulsion de largeur spectrale donnée. La largeur de corrélation spectrale est reliée au temps de Thouless de la lumière, qui est, à son tour, associé à l'épaisseur et au coefficient de diffusion du milieu [Faez et al., 2009]. Nous avons vu dans la partie A de ce chapitre comment cette grandeur est fondamentale pour un bon contrôle d'un laser mode bloqué.

Le protocole pour accéder à la largeur de corrélation spectrale d'un milieu est très simple : un laser monochromatique accordable en longueur d'onde éclaire un milieu multi-diffusant, une image de speckle est récupérée par une CCD à la sortie de ce milieu. Le laser est balayé pour des longueurs d'onde différentes écartées de 0,2 nm et à chaque longueur d'onde on récupère le speckle généré. Le contrôle en longueur d'onde du laser accordable est fait grâce à un spectromètre fibré de résolution en longueur d'onde  $\pm 0,2$  nm. Une fois toutes les images de speckle enregistrées, nous calculons la corrélation entre deux images  $A$  et  $B$  de valeurs moyennes en intensité  $\bar{A}$  et  $\bar{B}$ , de même dimension  $M \times N$ , selon la définition :

$$C_s = \frac{\sum_m^M \sum_n^N (A_{mn} - \bar{A})(B_{mn} - \bar{B})}{\sqrt{\sum_m^M \sum_n^N (A_{mn} - \bar{A})^2} \sqrt{\sum_m^M \sum_n^N (B_{mn} - \bar{B})^2}} \quad (2.12)$$

où  $A_{mn}$  et  $B_{mn}$  sont les valeurs en intensité, respectivement de l'image  $A$  et de l'image  $B$ , pour le pixel  $(m,n)$ .

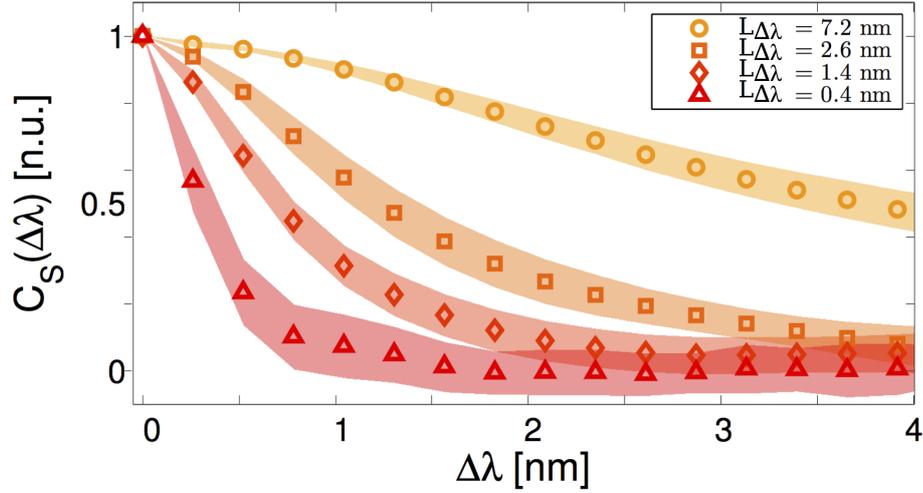


FIGURE 2.3 – **Largeur de corrélation spectrale de différents milieux** : courbes de corrélation tracées avec l'écart type pour des milieux de solution et composition variées (pour une largeur de corrélation spectrale décroissante : 350  $\mu\text{L}$  de ZnO à 0,5%, 300  $\mu\text{L}$  de ZnO à 0,5%, 200  $\mu\text{L}$  de ZnO à 0,75% et 250  $\mu\text{L}$  de TiO<sub>2</sub> à 0,5%) fabriqués comme décrit dans la partie B.1. La valeur affichée en légende est la largeur à mi-hauteur de chaque courbe qui nous donne la largeur de corrélation spectrale du milieu.

La première donnée de la courbe de corrélation  $C_s$  est calculée entre une image et elle-même ( $C_s = 1$ ) et moyennée sur toutes les images. La deuxième valeur de la courbe est calculée entre une image et sa plus proche voisine en terme de longueur d'onde et moyennée sur le nombre de paires d'images. Le troisième point de la courbe de corrélation est la valeur moyenne de  $C_s$  entre une image et sa deuxième plus proche voisine, et ainsi de suite.

La fonction  $C_s$  dépend uniquement de l'écart relatif entre les deux longueurs d'onde qui génèrent les speckle  $A$  et  $B$ . Nous appellerons par la suite cette fonction  $C_s(\Delta\lambda)$  fonction de corrélation spectrale.

Cette fonction prend une allure comme montré en Fig. 2.3 : la valeur de corrélation  $C_s$  passe d'une valeur de 1 (pour la corrélation entre une image et elle-même) à 0 pour des images complètement décorréliées quand elles sont écartées en longueur d'onde d'une valeur différente de milieu à milieu. En Fig. 2.3 plusieurs courbes de fonction de corrélation spectrale, mesurées expérimentalement, sont tracées pour différents échantillons.

On remarque que l'allure de la fonction de corrélation spectrale dépend du milieu diffusant. Plus le milieu est épais plus les chemins empruntés par la lumière seront complexes, le temps de confinement à l'intérieur du milieu sera alors plus important ( $\tau_T \sim \frac{L^2}{D}$ ) et les événements de diffusion plus nombreux, la fonction de corrélation décroîtra alors plus rapidement.

Par la suite, nous parlerons de largeur de corrélation spectrale comme la valeur définie par la largeur à mi-hauteur de la courbe totale, c'est-à-dire quand sa partie symétrique pour des valeurs négatives est tracée. Pour cette valeur d'écart entre longueurs d'onde nous considérerons les speckles indépendants et décorréliés.

## C Mesure d'une matrice de transmission multi-spectrale

Nous allons maintenant voir comment la MTMS totale peut être accessible à travers des mesures de MT d'un milieu diffusant.

Nous détaillerons ici la méthode de mesure, le montage expérimental et les outils qui nous ont permis d'accéder à la matrice en trois dimensions.

### C.1 Montage expérimental

Nous présentons maintenant plus en détail le montage expérimental et ces différents composants clés.

**La source laser** La source lumineuse de l'expérience est un laser titane-saphir mode bloqué (MaiTai Spectra-Physics) d'impulsions d'environ 100 fs et de cadence 80 MHz. La puissance moyenne autour de la longueur d'onde optimale (800 nm) est de 2 W. La largeur spectrale de cette source est de 10 nm et elle est accordable entre 710 nm et 920 nm.

Cependant le laser peut travailler en mode non bloqué et être utilisé comme source continue monochromatique de longueur de cohérence de plusieurs centimètres. Cela est possible grâce à une fente mobile à l'intérieur de la cavité et contrôlée *via* ordinateur qui peut, lorsqu'elle est presque fermée, empêcher le laser de fonctionner en mode bloqué et forcer le laser à être monochromatique avec une perte en puissance totale. Le laser en mode continu est aussi accordable et la position de cette fente peut se déplacer avec un moteur interne à la cavité pour sélectionner des longueurs d'onde entre 710 nm et 920 nm.

Le laser est piloté par une interface qui a été implémentée pendant ces travaux : le laser accorde la longueur d'onde à travers des pas du moteur de la fente mobile. L'interface permet des déplacements de cette fente et une calibration de la longueur d'onde d'émission réelle grâce à un spectromètre fibré (OceanOptics HR4000) qui, à la sortie de la source lumineuse, nous permet de contrôler la fréquence centrale d'émission. Une fonction gaussienne est ajustée sur les données fournies par le spectromètre. La valeur centrale de la gaussienne nous donne une estimation de la longueur d'onde centrale d'émission avec une précision de 0,2 nm. Par contre la largeur à mi-hauteur en mode continu ne peut pas être résolue par le spectromètre. Cependant, grâce à une image d'interférence, nous avons pu constater que la source en mode non bloqué avait une longueur de cohérence supérieure à la dizaine de centimètres.

Pendant cette thèse une interface pour contrôler automatiquement l'émission du laser en régime femtoseconde comme en régime monochromatique a été mise en place.

**Le SLM** Le SLM (LCOS-SLM Hamamatsu) utilisé dans ces travaux est un modulateur de phase uniquement, composé d'un écran à cristaux liquides de  $800 \times 600$  pixels indépendants de  $20 \times 20$   $\mu\text{m}$  chacun. Le contrôle de ce SLM est fait à travers l'affichage en double écran de l'ordinateur. L'image en nuances de gris entre 0 et 255 affichée sur l'écran donne un équivalent



FIGURE 2.4 – **SLM à cristaux liquides** : une photographie du SLM utilisé pendant les expériences. À droite, détail de l'écran réfléchissant à cristaux liquides qui module en phase uniquement pour une polarisation horizontale de la lumière incidente.

de déphasage du front d'onde par le SLM entre 0 et  $2\pi$ . La valeur en nuances de gris qui engendre un déphasage de  $2\pi$  de l'onde dépend de la longueur d'onde de la source incidente. Dans l'annexe A nous détaillons la méthode de calibration du déphasage par affichage en double écran à une longueur d'onde donnée.

La source lumineuse est élargie par un télescope ( $T$  dans la Fig. 2.5) et envoyé sur l'écran du SLM. Une méthode de détection de la position de la tache lumineuse a été mise en place (annexe B) pour déterminer et moduler seulement la partie du SLM éclairée.

Pour les mesures, l'écran du modulateur est, pour questions pratiques et de rapidité, divisé en macro-pixels de manière à avoir un nombre de degrés de liberté de contrôle en entrée divisible par une puissance de 2 et pouvoir ainsi afficher une base d'Hadamard ( $2^2 \times 2^2$ ,  $2^3 \times 2^3$ ,  $2^4 \times 2^4$ , etc.).

La Fig. 2.5 montre le montage expérimental. Le laser est contrôlé par ordinateur en mode non bloqué à une longueur d'onde définie. Élargi par un télescope  $T$ , il éclaire un SLM qui module en phase uniquement. Le SLM est imagé dans le plan focal arrière d'un objectif à travers un système  $4f$  de focale  $f = 75$  mm. Un objectif ( $O$ ), d'ouverture numérique  $NA = 0,3$  (de l'anglais *Numerical aperture*) et grossissement  $10\times$ , éclaire un échantillon diffusant de ZnO.

Le speckle en transmission est récupéré par un objectif de  $NA = 0,75$  et grossissement  $100\times$  et imagé grâce à une lentille de focale  $f' = 20$  cm sur une caméra CCD (Manta G-046 AVT) de  $780 \times 580$  pixels d'environ  $8 \mu\text{m}$  chacun.

Un polariseur  $P$  est positionné devant la caméra pour sélectionner une seule polarisation. En effet, la lumière sortant du milieu n'est plus polarisée linéairement [MacKintosh et al., 1989], sur la caméra nous obtiendrons deux speckles superposés pour les deux composantes de la polarisation, verticale et horizontale. Si on gardait les deux polarisations de la lumière sortant du milieu, les degrés de liberté spatiaux de contrôle en entrée du SLM seraient partagés sur deux speckles indépendants et le contrôle de la lumière en sortie serait moins efficace [Popoff, 2011].



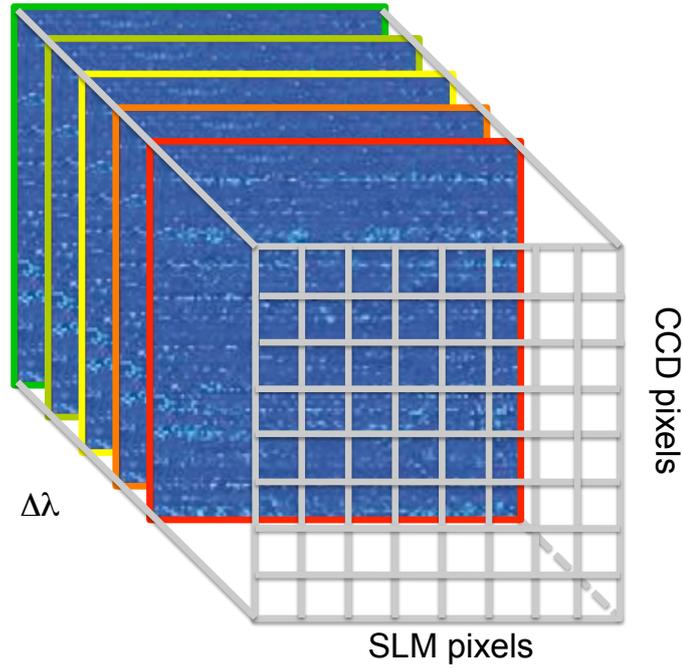


FIGURE 2.6 – **Schéma de la matrice de transmission multi-spectrale** : représentation de la MTMS comme un tenseur en trois dimensions dont les axes sont fixés par le nombre de pixels en entrée du SLM, le nombre de pixels en sortie de la CCD et le nombre de longueurs d'onde indépendantes. Chaque coupe verticale n'est qu'une MT à une longueur d'onde donnée.

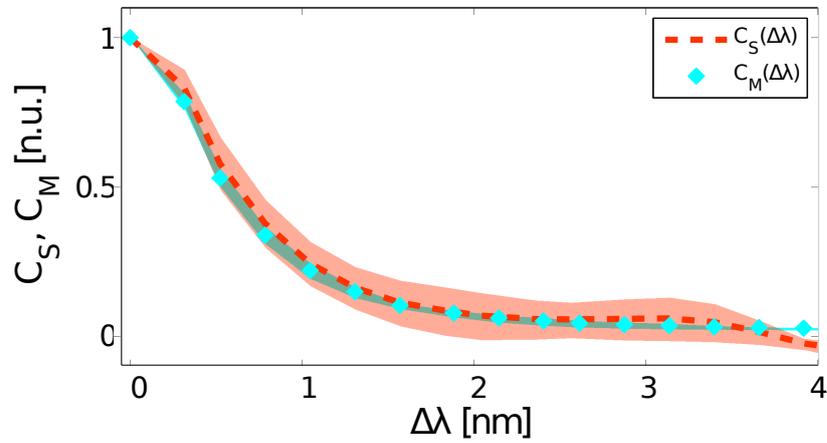


FIGURE 2.7 – **Corrélation entre les MTs** : la fonction de corrélation spectrale  $C_S$  mesurée comme décrit dans la partie B.2 est tracée, avec l'écart type, ainsi que la fonction de corrélation entre proches MTs  $C_M$  pour le même échantillon diffusant. Nous avons un très bon accord entre les deux courbes : un écart en longueur d'onde donné par la largeur de corrélation spectrale garantit que les MTs mesurées pour la MTMS avec cet écart en longueur d'onde peuvent être considérées indépendantes.

dans ce cas n'est qu'un speckle non modulé.

Ce choix repose sur le fait qu'un speckle de référence a un temps de décorrélation qui dépend de la stabilité du milieu (environ une heure) alors qu'une référence externe avec une onde plane est beaucoup moins stable car soumise à des perturbations plus rapides comme les vibrations et les fluctuations de température, les courants d'air ou même des fluctuations

d'humidité de la pièce.

Pour une mesure avec une référence donnée par un speckle non modulé, la MT est affectée à chaque degré de liberté en sortie de la même façon à une phase inconnue près. Comme les degrés de liberté en sortie sont indépendants, n'empêche pas un contrôle spatial.

Par contre, cette situation est très contraignante pour un contrôle temporel où nous avons besoin de compenser la phase relative entre les différentes longueurs d'onde pour obtenir une phase spectrale constante. En effet, la phase pour une longueur d'onde fixée qui interfère avec une référence en un point donné  $n_c$  en sortie est  :

$$\phi_{n_c k}^{tot} = \phi_{n_c k}^M + \phi_{n_c k}^S \quad (2.13)$$

où  $\phi_{n_c k}^M$  est le déphasage produit par la partie modulée du SLM à la longueur d'onde  $k$  et  $\phi_{n_c k}^S$  la phase produite par la référence pour la même longueur d'onde, qui varie en fonction de la longueur d'onde avec la largeur de corrélation spectrale du milieu. Or, si on avait accès au déphasage  $\phi_{n_c k}^M$  par une référence externe nous pourrions avoir l'information de la phase ajoutée par le milieu longueur d'onde par longueur d'onde. Cela nous permettrait de remonter à la phase relative générée par le milieu permettant de compenser toutes les longueurs d'onde en ce point donné et obtenir une phase spectrale constante. Cette mesure n'est pas accessible par l'interférence avec un speckle de référence dont la phase à chaque longueur d'onde reste inconnue.

L'option d'une interférence avec une onde plane est possible dans l'hypothèse que le bras de référence est stable, pas seulement dans l'intervalle de mesure d'une MT à une longueur d'onde donnée, mais aussi, comme nous voulons obtenir l'information de phase relative, tout au long de toute la mesure de la MTMS.

Dans la partie suivante, nous allons discuter du problème de stabilité pour une mesure de la MTMS et de notre choix de référence pour la mesure de phase.

#### C.4 Problème de stabilité d'une matrice MTMS

Une mesure de MT pour un nombre de degrés de liberté de contrôle en entrée de 256 (équivalent à une base d'Hadamard  $2^4 \times 2^4$ ) nous demande un temps d'acquisition d'un peu plus de 2 min. Ce temps est limité inférieurement par la fréquence de rafraîchissement du SLM et par le temps de calcul de l'ordinateur.

Dans le cas de nos échantillons diffusants, la figure d'interférence entre le speckle et un speckle de référence a une stabilité dans le temps (Fig. 2.1) de plusieurs dizaines de minutes. Pour le contrôle d'un faisceau continu par une mesure de MT avec un speckle de référence coaxial, la stabilité ne pose pas de problème : l'expérimentateur a le temps de focaliser spatialement en plusieurs points en sortie avec la même MT mesurée.

Nous pouvons accéder à une mesure de MTMS partielle, c'est-à-dire sans l'information de phase relative, avec un speckle de référence. Dans ce cas, l'impulsion femtoseconde sera contrôlée de manière purement spatiale. À titre d'exemple, pour une impulsion femtoseconde de 10 nm de largeur de bande et diffusée par un milieu de largeur de corrélation spectrale autour de 0,5-1 nm, l'expérimentateur a besoin de mesurer de 10 à 20 MTs à la suite.

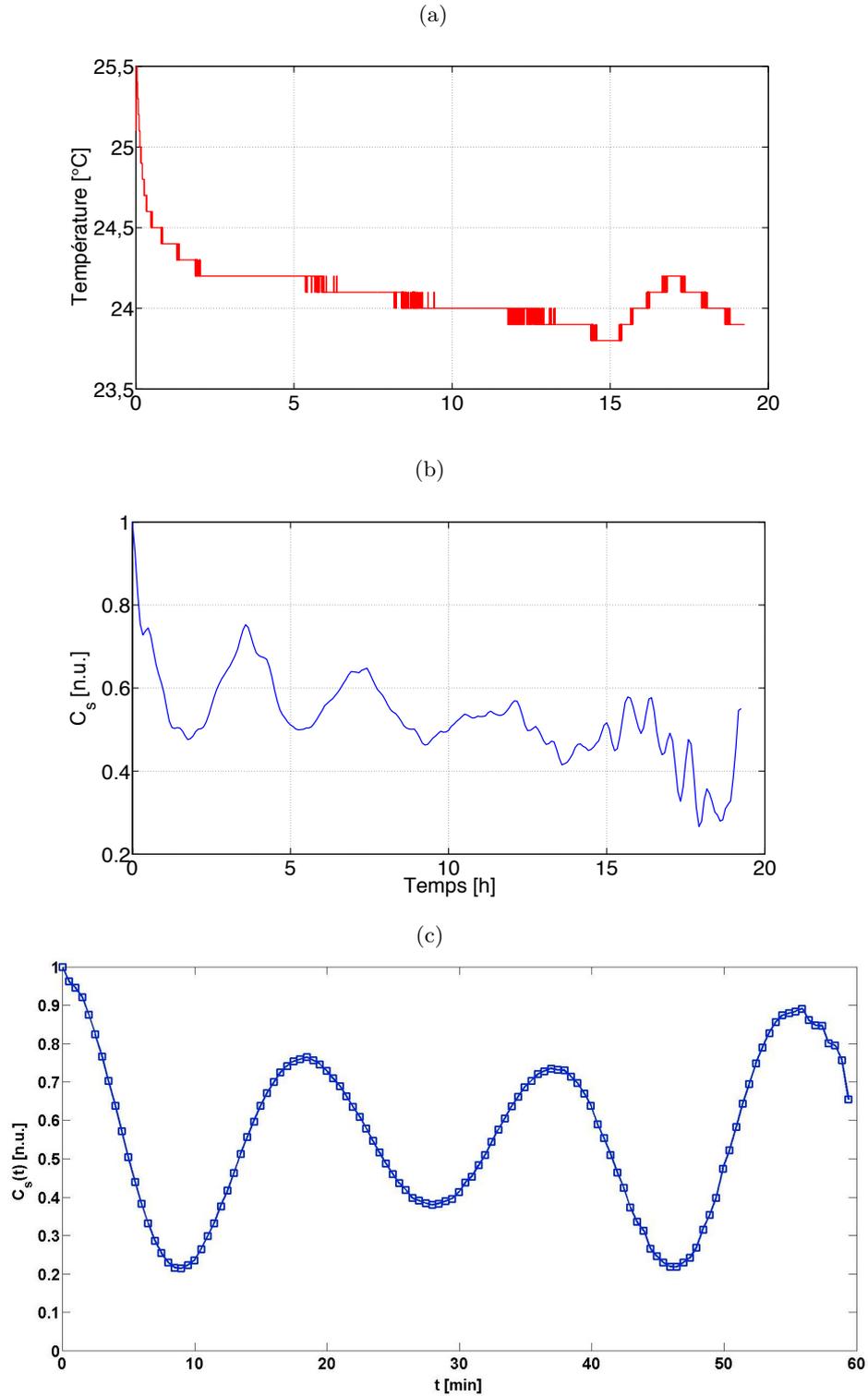


FIGURE 2.8 – **Stabilité de l'image d'interférence du speckle avec une référence externe** : en (a) la figure montre la température de la salle où se trouve l'expérience en fonction du temps et la courbe (b) représente la décorrélation de l'image d'interférence entre le speckle et la référence externe. Les deux images montrent un comportement corrélé, en particulier nous voyons osciller la corrélation du speckle au même moment que la température de la pièce. La figure (c) est une mesure de corrélation effectuée en journée pendant 10 min d'évolution : nous remarquons que, dans ce cas, après 2 min la figure a décorrélée de 25% et après 4 min l'image a décorrélée de 50%.

Cette opération peut demander 20 à 40 min pour une base d'Hadamard  $2^4 \times 2^4$  selon le temps que nous laissons au laser pour se stabiliser quand il est accordé à différentes fréquences entre des mesures de différentes MTs. Dans ce cas, la stabilité est aussi largement suffisante à l'expérimentateur pour focaliser spatialement un laser ultra-bref avec une mesure de MTMS. Par contre, si l'expérimentateur veut accéder à l'information de phase relative pour pouvoir mesurer la MTMS intégrale qui permet un contrôle à la fois temporel et spatial, une mesure avec un speckle de référence n'est plus suffisant. Il sera obligé de faire toutes les mesures de MTs avec une référence externe.

La décorrélation de la figure d'interférence entre le speckle et la référence externe, tracée en Fig. 2.8, nous montre que le speckle n'est pas stable sur un temps suffisant aux mesures de MTs. À la suite de la décorrélation rapide de la figure d'interférence, chaque mesure de MT sera soumise au bruit dû à l'instabilité du milieu.

La MTMS totale serait alors gênée par l'erreur engendré par l'instabilité de la référence externe à chaque mesure de MT. Cela produit une perte d'information totale pour la phase relative, mais aussi une perte partielle d'information pour chaque MT.

Une solution appliquée tout au long de ces travaux pour obtenir la MTMS complète pour une focalisation à la fois spatiale et temporelle est de mesurer d'abord toutes les MTs avec la référence externe et seulement en dernier, faire une mesure de phase relative en affichant un seul vecteur d'Hadamard pour chaque longueur d'onde.

Une mesure de phase relative de ce type demande des temps d'acquisition qui dépendent du nombre de degrés de liberté spectraux indépendants (30 s pour 5 MTs, une minute pour 10 MTs), mais qui restent inférieurs au temps de décorrélation de l'image d'interférence entre le speckle et la référence externe.

Cependant pour une mesure de MTMS avec une information de phase relative, chaque MT mesurée est affectée par une perte d'information due à la décorrélation de la figure d'interférence entre le speckle et la référence externe.

Nous ne pouvons pas compenser la perte d'information à laquelle chaque mesure de MT est soumise. L'éventualité de réduire le temps d'acquisition d'une MT par une base d'Hadamard plus petite engendre tout de même une perte d'information. Cette perte induit des erreurs dans le contrôle spatial de la lumière que nous n'avons pas dans le cas de mesures de MT par un speckle de référence.

La stabilité du système reste un problème important et encore ouvert de cette méthode et elle est une des principales limitations à l'application de la focalisation par MTMS à des milieux diffusants épais où le nombre de degrés de liberté spectraux, et donc des MTs à connaître, dépasse facilement 40, pour un temps total d'acquisition de la phase relative largement supérieur au temps de décorrélation de la référence externe.

## D Contrôle spatio-temporel par MTMS

Nous avons introduit le concept de MTMS, l'information qu'on peut en extrapoler et comment l'expérimentateur peut y accéder par des mesures de MTs décorréliées.

Nous voulons conclure ce chapitre en clarifiant ici comment, à partir de ce tenseur à trois

dimensions, nous pouvons contrôler une lumière ultra-brève spatialement et temporellement après qu'elle a été multi-diffusée par un milieu complexe.

Idéalement, une manière de focaliser la lumière spatialement et temporellement est de mettre en phase en un point donné en sortie de la CCD toutes les différentes contributions du champ à différentes fréquences en ce point. Cette opération, qui constitue une opération de conjugaison de phase pour chaque composante spectrale, n'est qu'une opération équivalente à une expérience de retournement temporel [Fink, 2008].

Donc, pour optimiser le champ en sortie dans un pixel cible  $n_c$  de la CCD voulu, les composantes idéales en entrée sont données par :

$$E_{mk}^{in} = \tilde{h}_{mn_c k}^* \quad \forall (m, k) \in \{1 \dots N_{in}\} \times \{1 \dots N_{\omega}\}$$

où  $\tilde{h}_{mn_c k}^*$  est le coefficient de la MTMS,  $\tilde{\mathbf{H}}$ , lié au pixel en sortie  $n_c$ . Cette opération maximise le champ en sortie au point  $n_c$ .

Pour avoir à la fois une focalisation spatiale et une compression temporelle, il faut que les  $N_{\omega}$  différentes contributions en fréquence soient en phase entre elles au point cible  $n_c$ . Cela se traduit par une phase relative nulle et une recompression par transformée de Fourier en ce point. L'énergie en  $n_c$  est alors focalisée à la fois spatialement et temporellement.

Cependant, cette opération nécessite une manipulation à la fois des degrés de liberté spatiaux et temporels indépendamment.

En utilisant un seul SLM éclairé par un laser mode bloqué, les composantes spectrales en entrée ne peuvent pas être traitées indépendamment, un déphasage engendré par un pixel du SLM affecte de la même manière toutes les  $\omega_k$  à la fois.

Si nous supposons que l'effet sur la phase apporté par le SLM est le même sur toutes les composantes spectrales (ni le comportement des cristaux liquides du SLM, ni celui de la réflectivité des ses miroirs ne dépend de la longueur d'onde), nous pouvons écrire la relation :

$$E_{mk}^{in} \propto e^{i\phi_m \frac{\omega_k}{\omega_1}} \quad (2.14)$$

où  $\phi_m$  est la différence de phase induite par le SLM au pixel  $m$  par rapport à la fréquence angulaire  $\omega_1$ .

Si on considère une source polychromatique dont la largeur spectrale est petite devant la longueur d'onde centrale,  $\Delta\omega = \omega_{N_{\omega}} - \omega_1 \ll \omega_1$ , ce qui est le cas pour les lasers que nous utilisons, nous pouvons admettre que  $E_{mk}^{in}$  ne dépend pas de la fréquence angulaire, c'est-à-dire faire subir le même déphasage local sur le SLM à toutes les fréquences :

$$E_m^{in} \approx E_m e^{i\phi_m}. \quad (2.15)$$

Dans cette situation, l'expérimentateur a accès aux seuls degrés de liberté spatiaux : le décalage en phase est appliqué à différents pixels du SLM. Cela dit, il est possible de convertir les degrés de liberté spatiaux en degrés de liberté temporels [Lemoult et al., 2009] et, en particulier, de focaliser la lumière spatialement et temporellement en ayant accès seulement aux degrés de liberté spatiaux [Aulbach et al., 2011, Katz et al., 2011].

Puisque nous avons supposé tous les éléments  $\tilde{h}_{mnk}^*$  indépendants, la phase qui affecte le pixel en sortie  $n_c$  associé au coefficient  $\tilde{h}_{mnck}^*$  n'affectera pas les autres positions en sortie. Donc, lorsque l'on contrôle spatialement ou temporellement à une position donnée, cette indépendance devrait assurer qu'aucune focalisation spatiale ni temporelle ne se produit ailleurs.

Maintenant considérons le système total : les paramètres en entrée sont les champs de  $N_{in}$  pixels du SLM et les paramètres en sortie sont les  $N_\omega$  composantes spectrales du champ au pixel  $n_c$  de la CCD.

Le champ pour une fréquence angulaire donnée au pixel  $n_c$  sera donné par :

$$E_{nck}^{out} = \sum_m^{N_{in}} \tilde{h}_{mnck} E_m e^{i\phi_m}. \quad (2.16)$$

Or, le vecteur en sortie pour la composante spectrale  $\omega_k$ ,  $E_k^{spectral} = E_{nck}^{out}$  est relié au vecteur en entrée de composante spatiale  $m$ ,  $E_m^{spatial} = E_m e^{i\phi_m}$  par la sous matrice de la MTMS  $\mathbf{H}_{n_c}$  de composantes  $h_{mk} = \tilde{h}_{mnck}$  :

$$E_k^{spectral} = \sum_m^{N_{in}} h_{mk} E_m^{spatial} \quad (2.17)$$

d'où :

$$E^{spectral} = \mathbf{H}_{n_c} \cdot E^{spatial}. \quad (2.18)$$

Cette matrice  $\mathbf{H}_{n_c}$  relie les degrés de liberté spatiaux (dans le cas expérimental, les pixels du SLM) du champ en entrée  $\mathbf{E}^{spatial}$  avec les degrés de liberté spectraux (dans le cas expérimental, les speckles indépendants dans un pixel de la CCD) du champ en sortie  $\mathbf{E}^{spectral}$  en un point choisi  $n_c$ .

La solution idéale pour focaliser temporellement est que toutes les fréquences angulaires aient la même phase au point choisi en sortie. Cette supposition, par simplicité, peut être écrite comme  $E_k^{cible} = 1, \forall k \in \{1 \dots N_\omega\}$ . Pour avoir une estimation du champ voulu au point cible en sortie, nous pouvons utiliser l'opérateur de conjugaison de phase  $\mathbf{H}_{n_c}^\dagger$  associé à la matrice  $\mathbf{H}_{n_c}$ . Cela consiste à envoyer en entrée l'opérateur  $\mathbf{H}_{n_c}^\dagger \cdot E^{cible}$ . Nous obtenons alors :

$$E^{spectral} = \mathbf{H}_{n_c} \cdot \mathbf{H}_{n_c}^\dagger \cdot E^{cible}. \quad (2.19)$$

L'opérateur  $\mathbf{H}_{n_c} \cdot \mathbf{H}_{n_c}^\dagger$  [Prada and Fink, 1994, Popoff et al., 2011] est comparable à un opérateur de retournement temporel. Cette opération correspond à une conjugaison de phase spectrale : nous utilisons les degrés de liberté spatiaux pour mettre en phase en un point donné les composantes spectrales du champ en sortie.

Pour des éléments de  $\mathbf{H}_{n_c}$  indépendants et de distribution gaussienne,  $\mathbf{H}_{n_c} \cdot \mathbf{H}_{n_c}^\dagger$  a une diagonale très forte par rapport aux autres éléments : l'amplitude moyenne de la diagonale divisée par l'amplitude moyenne des autres éléments est égal à  $\sqrt{N_{in}}$ . Le rapport signal sur bruit théorique pour l'opérateur  $\mathbf{H}_{n_c} \cdot \mathbf{H}_{n_c}^\dagger$  de retournement temporel est alors de l'ordre de  $N_{in}$ . Pour montrer cela, nous prenons le cas de  $E_k^{cible} = 1, \forall k \in \{1 \dots N_\omega\}$ . Le vecteur spectral de

sortie au pixel cible est alors donné par :

$$e_k^{spectral} = \sum_q^{N_\omega} \sum_j^{N_{in}} h_{qj} h_{kj}^* \quad (2.20)$$

donc, le champ temporel pour  $t = 0$  sera donné par :

$$E^{out}(t = 0) = \sum_k^{N_\omega} \sum_q^{N_\omega} \sum_j^{N_{in}} h_{qj} h_{kj}^*. \quad (2.21)$$

L'énergie pour  $t = 0$  peut être calculée comme :

$$\begin{aligned} |E^{out}(t = 0)|^2 &= \sum_{k,k'}^{N_\omega} \sum_{q,q'}^{N_\omega} \sum_{j,j'}^{N_{in}} h_{qj} h_{kj}^* h_{q'j'} h_{k'j'}^* \\ &= \sum_{k=q}^{N_\omega} \sum_{k'=q'}^{N_\omega} \sum_{j,j'}^{N_{in}} |h_{kj}|^2 |h_{k'j'}|^2 + \sum_{k=k'}^{N_\omega} \sum_{q=q'}^{N_\omega} \sum_j^{N_{in}} |h_{qj}|^2 |h_{kj}|^2 + \dots \end{aligned} \quad (2.22)$$

La valeur moyenne de l'énergie est définie comme suit :

$$\begin{aligned} \langle |E^{out}(t = 0)|^2 \rangle &= N_\omega N_{in} (N_\omega N_{in} - 1) \langle |k|^2 \rangle^2 + N_\omega N_{in} \langle |k|^4 \rangle + \\ &\quad + N_{in} N_\omega (N_\omega - 1) \langle |k|^2 \rangle^2 + N_{in} N_\omega \langle |k|^4 \rangle + 0 \\ &\approx N_\omega^2 N_{in}^2 \langle |k|^2 \rangle^2 \quad \forall N_{in} \gg 1, N_\omega \gg 1. \end{aligned} \quad (2.23)$$

Par contre, pour  $t \neq 0$  nous aurons :

$$|E^{out}(t \neq 0)|^2 = \sum_{k,k'}^{N_\omega} \sum_{q,q'}^{N_\omega} \sum_{j,j'}^{N_{in}} h_{qj} h_{kj}^* h_{q'j'} h_{k'j'}^* e^{i\omega_k t} e^{-i\omega_{k'} t}. \quad (2.24)$$

Pour  $t \gg \frac{1}{\Delta\omega}$ , où  $\Delta\omega$  est la largeur spectrale de la source, on aura :

$$\langle |E^{out}(t \neq 0)|^2 \rangle \approx N_\omega^2 N_{in} \langle |k|^2 \rangle^2. \quad (2.25)$$

De cette façon le rapport signal sur bruit (RSB) sera donné par :

$$\frac{\langle |E^{out}(t = 0)|^2 \rangle}{\langle |E^{out}(t \neq 0)|^2 \rangle} \approx N_{in}. \quad (2.26)$$

Puisque deux pixels différents en sortie sont indépendants, focaliser temporellement en un point n'affecte pas les autres points en sortie. Le rapport entre l'intensité au point cible focalisée dans le temps et l'énergie moyenne ailleurs de ce point sera alors égal à  $N_{in}$ .

## Conclusion

Nous avons consacré ce chapitre au formalisme, à la méthode de mesure et à la problématique de la matrice de transmission multi-spectrale (MTMS) d'un milieu diffusant.

D'abord nous avons présenté la théorie, le passage à partir de la matrice de transmission pour le cas monochromatique vers une matrice multi-spectrale.

Ce tenseur en trois dimensions nous permet d'avoir toute l'information, longueur d'onde par longueur d'onde, de comment le milieu agit sur le champ multi-spectral en entrée. Il est construit à partir des mesures de MT à différentes longueurs d'onde. L'écart en longueur d'onde entre une MT et l'autre est défini par la corrélation du milieu qui nous garanti une indépendance complète entre les MTs.

Nous avons décrit la fabrication de nos échantillons diffusants et leurs caractéristiques pour ensuite aborder une méthode implémentée au cours de ces travaux pour une mesure de longueur de corrélation spectrale de ces milieux. Cette mesure est prise en compte pour l'intervalle entre une MT à une longueur d'onde donnée et une autre dans la construction de la MTMS.

Ensuite, une fois défini le protocole pour une mesure de MTMS nous avons détaillé le montage expérimental et ces composants. En particulier, nous avons décrit le laser qui est capable de travailler en mode bloqué comme en continu : cette particularité a permis une mesure de MTMS. Nous avons aussi donné les détails du SLM et sa méthode de contrôle.

Nous avons décrit la méthode d'acquisition : puisque la MTMS doit donner l'information de phase relative entre les différentes longueurs d'onde pour ensuite exploiter cette information pour une recompression temporelle, les mesures de MT avec un speckle de référence ne sont plus envisageables. Nous avons alors présenté une possibilité de mesure avec une référence externe. Ce montage est très sensible et la stabilité est l'un des problèmes le plus important qui cause dans la mesure de la MTMS une perte d'information.

Enfin, nous avons détaillé comment nous pouvons exploiter une mesure de MTMS pour focaliser spatialement et temporellement un laser mode bloqué.

La sous-matrice de la MTMS associée à un point en sortie de la CCD relie les degrés de liberté spatiaux en entrée (les pixels du SLM) avec les degrés de liberté spectraux en sortie (les speckles indépendants superposés au point en sortie de la CCD).

Cela nous permet par conjugaison de phase de contrôler spatialement et temporellement une source ultra-brève avec les degrés de liberté spatiaux uniquement.

## Chapitre 3

# Contrôle spatial et spectral par MTMS

*Dans ce chapitre nous présentons les multiples utilisations de la MTMS pour le contrôle spatial d'un faisceau lumineux.*

*Nous montrerons d'abord comment, à partir de la connaissance de la MTMS, il est possible de contrôler une source monochromatique pour la focaliser à travers un milieu diffusant. Nous ferons ensuite une comparaison avec le cas plus simple de la focalisation spatiale par MT.*

*Ensuite nous présenterons comment la connaissance de la MTMS peut être exploitée de manière plus élaborée, si on le souhaite, pour contrôler séparément les différentes longueurs d'onde indépendantes qui composent une source cohérente polychromatique pour les focaliser en divers points à la sortie d'un milieu diffusant. Cette opération revient à utiliser le milieu multi-diffusant comme réseau spectral pour une source cohérente de grande largeur spectrale.*

*Dans un second temps, nous aborderons le cas du contrôle spatial d'un laser mode bloqué. Nous montrerons une focalisation spatiale en un point en sortie d'un milieu complexe pour toutes les longueurs d'onde indépendantes à la fois.*

### Sommaire

---

<b>A</b>	<b>Focalisation spatiale d'un laser monochromatique . . . . .</b>	<b>55</b>
A.1	Contrôle sélectif d'une longueur d'onde par MTMS . . . . .	55
A.2	Focalisation d'une source monochromatique par MTMS. . . . .	57
<b>B</b>	<b>Contrôle spectral de la lumière polychromatique . . . . .</b>	<b>58</b>
B.1	Réseau spectral par MTMS . . . . .	59
<b>C</b>	<b>Focalisation spatiale d'un laser impulsionnel ultra-bref . . . . .</b>	<b>61</b>
C.1	Contrôle spatial et qualité du signal sur bruit . . . . .	61
	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>66</b>

---

## A Focalisation spatiale d'un laser monochromatique

La MTMS nous donne l'information de comment un milieu diffusant modifie, longueur d'onde par longueur d'onde, une source cohérente polychromatique pour générer en transmission une superposition de speckles indépendants.

Nous commençons par présenter une application évidente de la MTMS pour une source monochromatique grâce à un contrôle sélectif par MTMS d'une longueur d'onde choisie.

### A.1 Contrôle sélectif d'une longueur d'onde par MTMS

Une mesure unique de MTMS nous permet de contrôler toute source monochromatique ayant été multi-diffusée par un milieu complexe.

Puisque chaque coupe longitudinale de la MTMS n'est qu'une MT à une longueur d'onde choisie, une fois mesurée la MTMS, on peut sélectionner une coupe correspondant à la bonne MT (Fig. 3.1) pour contrôler par conjugaison de phase la lumière monochromatique. Seulement

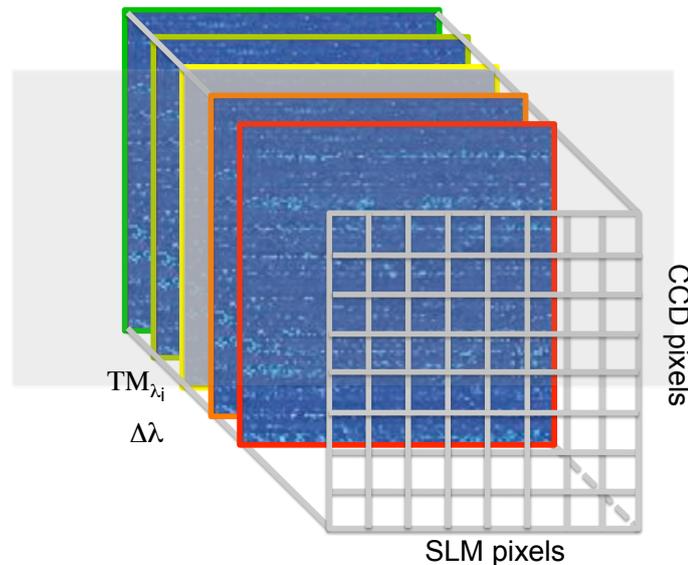


FIGURE 3.1 – **Schéma pour un contrôle sélectif de longueur d'onde** : une coupe longitudinale de la MTMS permet une sélection d'une MT à une longueur d'onde donnée. La conjugaison de phase de cette MT permet de contrôler seulement la fraction de la source correspondant à cette longueur d'onde.

la fraction de la source en entrée correspondante à la bonne MT sera contrôlée.

Dans la Fig. 3.2 nous montrons quelques résultats obtenus par contrôle sélectif de longueur d'onde à partir d'une MTMS. Pour chaque sélection, une coupe transverse de la MTMS choisit une MT à une longueur d'onde donnée. La conjugaison de phase de cette MT permet un contrôle spatial d'une source monochromatique à cette longueur d'onde. Une fois affiché le bon masque de phase sur le SLM pour focaliser en un point donné de la sortie, le laser (décrit en partie C.1 du chapitre 2) est mis en mode continu et balayé sur différentes longueurs d'onde y compris celle contrôlée par le masque de phase affiché. Nous voyons que la focalisation

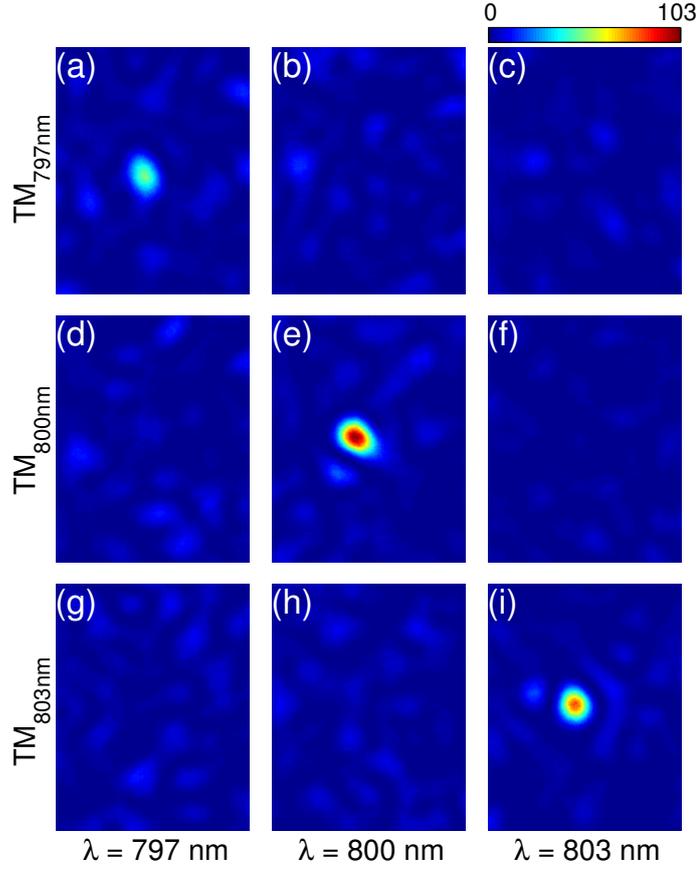


FIGURE 3.2 – **Résultats d'une focalisation en monochromatique par sélection de MT** : à chaque ligne, un masque de phase donné par conjugaison de phase d'une MT sélectionnée depuis la MTMS est affiché sur le SLM. Le laser en mode continu est balayé pour des longueurs d'onde indépendantes pour observer que la focalisation est possible seulement pour la longueur d'onde correspondant à celle pour laquelle le masque de phase a été mesuré. Les focalisations présentent des RSB de (a) 11,7, (e) 21,4 et (i) 22 respectivement. L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra CCD [0,255].

apparaît uniquement quand la longueur d'onde du laser correspond à la longueur d'onde pour laquelle le masque de phase a été affiché.

Cette façon de contrôler une longueur d'onde de manière sélective par coupes longitudinales de la MTMS revient exactement au cas du contrôle par MT, avec les mêmes résultats. Par contre, nous pouvons accorder le laser pour vérifier que le contrôle est bien sélectif et qui affecte la seule longueur d'onde choisie. Le rapport du signal sur le bruit dépend du nombre de degrés de liberté de contrôle en entrée (la dimension de la base d'Hadamard) [Popoff et al., 2010a]. De même il est possible de focaliser la lumière en plusieurs points en sortie avec une somme cohérente des différents masques de phase qui permettent la focalisation en chaque point : le rapport signal sur bruit (RSB) obtenu dans le cas d'une seule focalisation sera alors partagé sur plusieurs points [Popoff et al., 2010a]).

Nous avons défini le RSB pour nos résultats comme :

$$\text{RSB} = \frac{\bar{S}}{\bar{C}}. \quad (3.1)$$

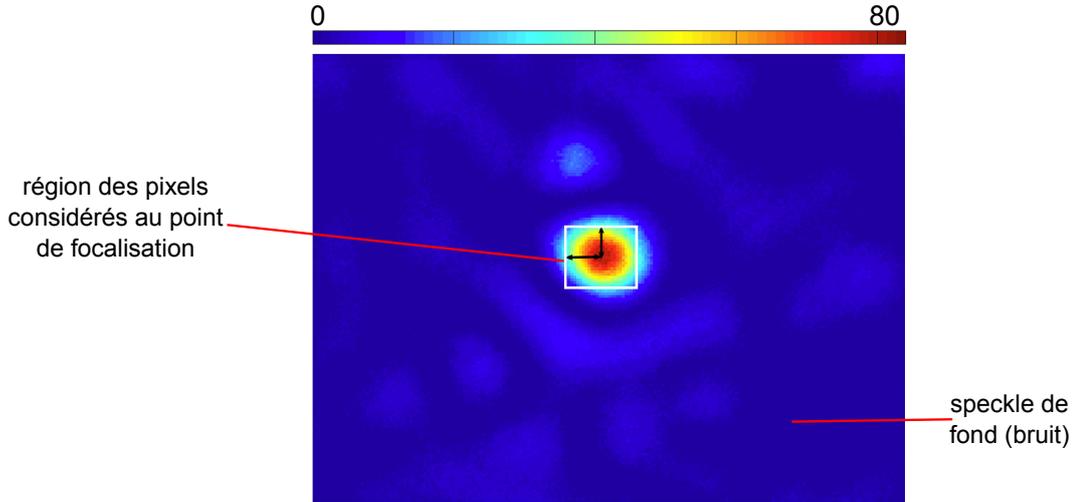


FIGURE 3.3 – **Calcul du RSB** : représentation de la méthode utilisée pour estimer le RSB. Le signal est donné par la valeur moyenne des pixels autour de la valeur maximale de focalisation. Dans cette moyenne tous les pixels avec une valeur plus grande que la moitié de la valeur maximale et qui se trouvent dans ses alentours sont comptés. Le bruit est défini comme la valeur moyenne du speckle de fond autour qui n'est pas compris dans la moyenne du signal. L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra CCD [0,255].

$\bar{S}$  est la valeur moyenne de tous les pixels autour de la valeur maximale du point de focalisation (signal) et  $\bar{C}$  est la valeur moyenne du speckle de fond qui n'est pas au signal (bruit). Pour choisir ces pixels nous avons pris dans la moyenne du signal  $\bar{S}$  tous les pixels qui arrivent jusqu'à une valeur égale à la moitié de la valeur maximale dans les deux axes  $(x,y)$  de l'image (Fig. 3.3). Par la suite, toutes les valeurs du RSB sont données selon ce critère.

L'avantage de connaître l'information complète par MTMS est d'avoir déjà une connaissance du milieu pour plusieurs longueurs d'onde à la fois, une sorte de « calibration » de comment le milieu déforme le front d'onde longueur d'onde par longueur d'onde. Le désavantage principal est l'allongement des temps d'acquisition de plusieurs matrices à la place d'une seule qui rend la qualité du RSB plus sensible à la stabilité du milieu. Cela dit, la décorrélation de l'image de speckle est assez lente pour permettre un contrôle spatial pour plusieurs longueurs d'onde avec une perte en qualité du RSB en comparaison à une mesure par une seule MT : pour une mesure de MTMS composée par 6 MTs la focalisation en un point en sortie a un RSB  $\sim 20$ , contre un RSB  $\sim 23$  pour le cas d'une seule MT mesurée à la bonne longueur d'onde du laser monochromatique.

## A.2 Focalisation d'une source monochromatique par MTMS.

Il est intéressant de voir ce qu'il se passe dans le cas d'un laser monochromatique quand, à la place d'envoyer un masque de phase donné par sa propre MT, nous le modulons avec le masque correspondant à la conjugaison de phase de la somme cohérente de toutes les MTs qui composent la MTMS pour un pixel de la CCD donné  $n_c$ .

Cela nous renseigne sur comment les degrés de liberté de contrôle sont partagés entre les

différents degrés de liberté spectraux (MTs).

Dans la Fig. 3.4 nous montrons les résultats d'une expérience de contrôle spatial d'un laser

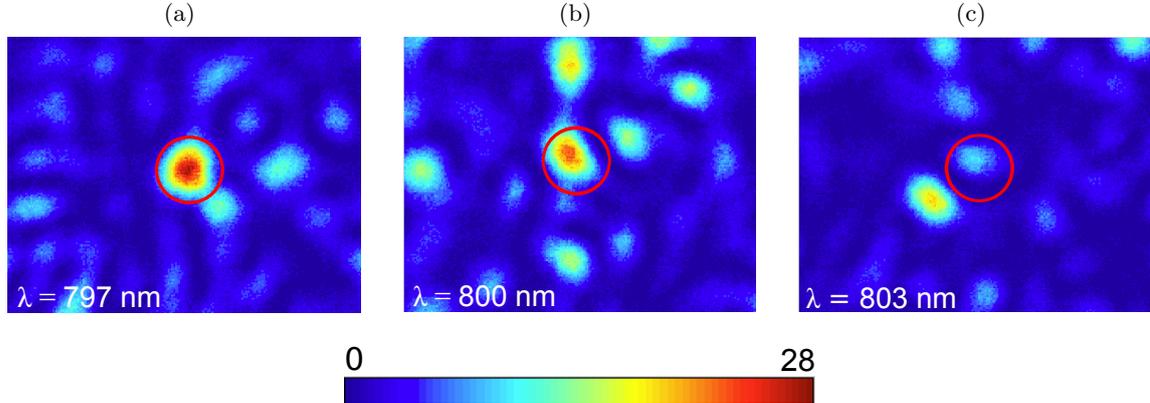


FIGURE 3.4 – **Focalisation d'un laser monochromatique par MTMS** : contrôle de trois sources monochromatiques par un masque de phase donné par la conjugaison de phase de la somme cohérente de toutes les MTs qui composent la MTMS. Dans ce cas, nous affichons un masque qui contrôle à la fois plusieurs longueurs d'onde pour un point donné  $n_c$ . Le masque étant toujours le même, nous avons pour un laser monochromatique (a) à 797 nm un RSB = 7,4, (b) à 800 nm un RSB = 5 et (c) à 803 nm un RSB = 3,9. L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra CCD [0,255].

monochromatique à différentes longueurs d'onde avec le même masque de modulation dérivant de la conjugaison de phase de la somme cohérente de toutes les MTs d'une MTMS pour focaliser en un point  $n_c$  de la CCD.

Le laser utilisé dans nos expériences a un profil de puissance gaussien centré à 800 nm. Sa puissance dépend d'où l'on se trouve dans la bande spectrale du laser et elle devient beaucoup moins importante sur les bords. Donc pour ne pas favoriser des longueurs d'onde dans le contrôle, la MTMS est mesurée avec une normalisation en puissance du laser. Cela explique pourquoi en Fig. 3.4 le RSB à 800 nm n'est pas meilleur que celui à 797 nm ou à 803 nm. La décroissance du RSB avec l'augmentation de la longueur d'onde qu'on observe en Fig. 3.4 n'est pas un effet systématique et il dépend de la distribution complexe de la lumière à une longueur d'onde donnée en un point en sortie choisi. Puisque le contrôle est fait par un nombre fini de vecteurs de la base d'Hadamard et qu'un contrôle de comment ces degrés de liberté sont partagés entre les différentes longueurs d'onde n'est pas imposé (donnons un poids égal à toutes les longueurs d'onde dans la focalisation), la qualité de la focalisation de chaque longueur d'onde fluctuera de point à point de la CCD.

Cela dit une combinaison linéaire des MTs pondérée par des coefficients différents, longueur d'onde par longueur d'onde, permet un changement d'intensité du point de focalisation de chaque longueur d'onde contrôlée séparément.

## B Contrôle spectral de la lumière polychromatique

Comme nous avons vu dans le chapitre 1, grâce au couplage spatio-temporel du milieu diffusant, les distorsions spatiales et temporelles qu'un faisceau ultra-bref subit à son passage à

travers le milieu peuvent être corrigées, toutes les deux à la fois, par une manipulation des degrés de liberté spatiaux de l'onde incidente uniquement [Katz et al., 2011, Aulbach et al., 2011]. Puisque le milieu complexe couple les degrés de liberté spatiaux avec les degrés de liberté temporels, il couple de même les degrés de liberté spatiaux avec les degrés de liberté spectraux [Small et al., 2012].

Une conséquence de ce couplage spatio-spectral que le milieu garanti quand il est traversé par une source à largeur de bande spectrale étendue est la possibilité d'exploiter la MTMS pour un contrôle spectral de la lumière polychromatique.

Nous montrerons dans cette partie comment à la différence de la simple optimisation, nous pouvons focaliser spatialement une source polychromatique en un point à la sortie du milieu en contrôlant si on le souhaite chaque longueur d'onde séparément par simple contrôle des degrés de liberté spatiaux. Cela nous permet de façonner spatialement de manière plus compliquée un laser femtoseconde et utiliser le milieu diffusant comme réseau spectral.

### B.1 Réseau spectral par MTMS

Une autre manière de façonner la lumière par MTMS est de séparer les longueurs d'onde entre elles en les adressant en sortie à des pixels différents de la CCD : cette opération revient à exploiter le milieu diffusant comme réseau spatial de longueurs d'onde.

Ce procédé n'est pas possible avec un contrôle par simple optimisation, qu'il soit seulement

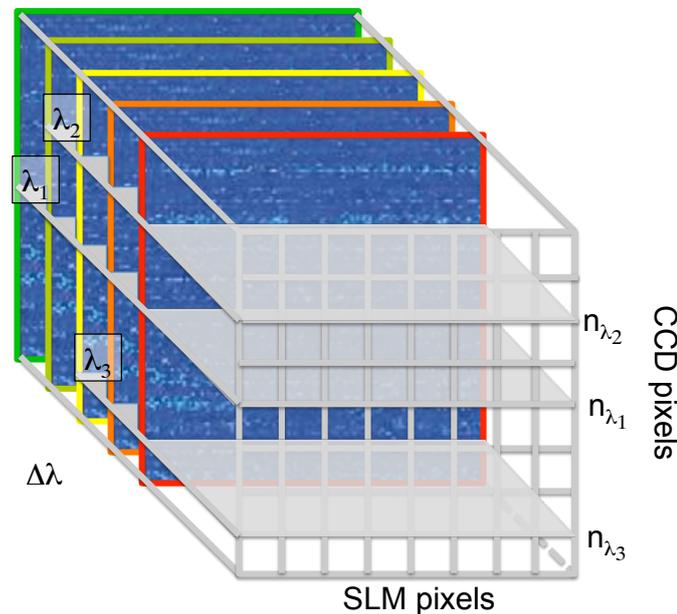


FIGURE 3.5 – **Schéma pour le contrôle sous forme d'un réseau spectral** : le contrôle de plusieurs longueurs d'onde vers différents points en sortie est possible en sélectionnant de chaque MT qui compose la MTMS et correspondante à une longueur d'onde donnée, le vecteur associé au point en sorti choisi. Ce procédé peut être fait pour plusieurs longueurs d'onde et le masque de phase de contrôle sera donné par la somme cohérente de la conjugaison de phase de chaque vecteur.

spatial ou spatio-temporel d'un faisceau à largeur spectrale étendu.

Pour faire cela, le masque de phase est calculé comme conjugaison de phase de la somme de différentes intersections de coupes transverses et longitudinales de la MTMS. La direction transverse de la MTMS choisit la longueur d'onde à contrôler et la direction longitudinale le point de focalisation  $n_c$  en sortie. En Fig. 3.5 nous montrons un schéma explicatif : selon la longueur d'onde que l'on veut contrôler, nous choisissons la MT correspondante (coupe longitudinale) et nous en sélectionnons uniquement le vecteur qui correspond au point choisi en sortie sur la CCD. Ceci est répété pour différentes longueurs d'onde. Au final, chaque longueur d'onde est associée à un vecteur de la MTMS de dimension égale au nombre de degrés de liberté de contrôle  $N_{in}$ . La somme cohérente de la conjugaison de phase de chaque vecteur nous donne le masque de phase pour pouvoir focaliser chaque longueur d'onde en des points différents en sortie. En Fig. 3.6 nous montrons un résultat de cette méthode : une

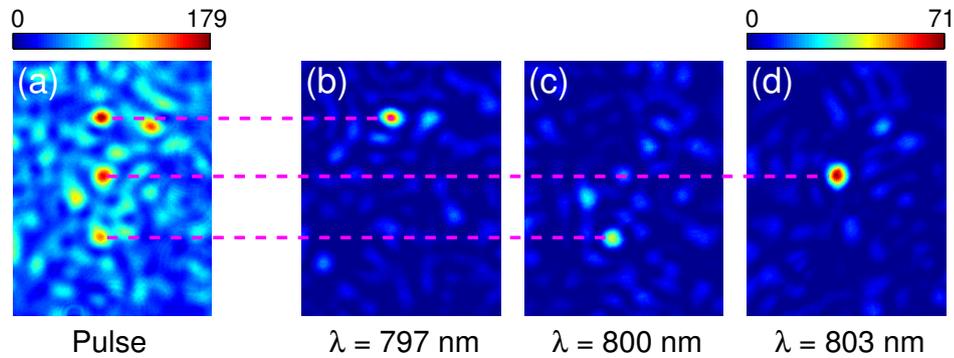


FIGURE 3.6 – **Résultat d'une focalisation sélective en longueur d'onde d'un laser polychromatique** : en (a) trois taches de focalisation apparaissent en trois points différents en sortie d'un milieu diffusant de largeur de corrélation spectrale de 1,6 nm. Pour vérifier que la contribution dans chaque tache est due à la seule longueur d'onde voulue, le laser est mis en mode continu et balayé en fréquence : (b-d) à la bonne longueur d'onde de focalisation, à chaque fois, une tache de focalisation apparaît. L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra CCD [0,255].

fois le masque voulu affiché, un laser femtoseconde de largeur de bande de 10 nm est façonné en entrée pour focaliser différentes longueurs d'onde en des points différents en laissant les autres degrés de liberté spectraux incontrôlés. L'image montre un contrôle de trois longueurs d'onde (797 nm, 800 nm et 803 nm) qui sont focalisées en trois points différents sur la CCD pour un milieu diffusant de largeur de corrélation spectrale de 1,6 nm. Pour vérifier que dans chaque tache de focalisation il y a bien une contribution due à la longueur d'onde attendue, avec le même masque affiché, nous débloquons le laser en mode continu et balayons la source entre 797 nm et 803 nm afin de montrer qu'il y a une tache de focalisation au pixel choisi pour la bonne longueur d'onde. Dans l'image Fig. 3.6(a), le contraste du point de focalisation par rapport au speckle de fond est moins bon du cas des images Fig. 3.6(b-d) car pour une onde impulsionnelle plusieurs degrés de liberté spectraux contribuent au speckle de fond, en augmentant le bruit total.

Une combinaison linéaire des masques des différentes longueurs d'onde, avec des coefficients bien choisis, permet une maîtrise aussi des intensités des différentes taches de focalisation (comme dans le cas du contrôle spatial d'un faisceau monochromatique par MTMS). Cela nous permet de contrôler non seulement la position pour chaque degré de liberté spectral

indépendamment mais aussi la quantité de lumière contrôlée à chaque longueur d'onde pour un point donné en sortie.

Bien qu'exploiter le milieu complexe pour en créer un réseau spectral a été un approche déjà développé récemment pour la fabrication de spectromètres compactes de nouvelle génération [Redding et al., 2013], notre méthode a l'originalité et l'avantage d'être déterministe et donc contrôlée [Park et al., 2012].

## C Focalisation spatiale d'un laser impulsionnel ultra-bref

Maintenant nous présentons de quelle manière une mesure de MTMS d'un milieu diffusant peut être exploitée pour le contrôle spatial d'un laser de grande largeur spectrale pour focaliser toutes les longueurs d'onde qui le composent en un point donné. Dans nos expériences, nous avons utilisé un laser ultra-bref de largeur spectrale de 10 nm.

### C.1 Contrôle spatial et qualité du signal sur bruit

Dans la partie précédente, nous avons décrit une application possible d'une mesure de MTMS. Ce contrôle sélectif de longueur d'onde peut être très utile dans le cas de plusieurs sources de longueurs d'onde différentes pour les contrôler séparément.

Cela dit, la MTMS permet de façonner la lumière de manière beaucoup plus efficace quand la source est polychromatique.

Ce tenseur contient l'information spatiale comme spectrale de toutes les longueurs d'onde qu'on souhaite. Cela rend possible de façonner une source ultra-brève spatialement, comme spectralement de manière plus complexe que le simple contrôle par optimisation.

Pour le contrôle d'un laser monochromatique, nous avons vu qu'une coupe longitudinale de la MTMS nous donne par conjugaison de phase de la MT, un contrôle spatial à une longueur d'onde donnée. Pour un laser polychromatique cela correspond à contrôler seulement la fraction du faisceau incident à la longueur d'onde correspondante à la bonne MT sélectionnée [van Beijnum et al., 2011].

Or, dans le cas plus complexe d'un laser avec une certaine largeur spectrale, pour obtenir une focalisation de toutes les longueurs d'onde à la fois en un point donné, il nous faut contrôler tous les speckles indépendants superposés à la sortie du milieu en un point de la CCD.

Un contrôle de tous les degrés de liberté spectraux se traduit par une coupe transverse du tenseur 3.7 : cette sous-matrice de dimension  $N_\omega \times N_{in}$  nous donne l'information de comment chaque champ à une longueur d'onde donnée contribue au champ total dans le point en sorti choisi.

Elle lie les  $N_{in}$  composantes spatiales en entrée avec les  $N_\omega$  composantes spectrales en sortie. Pour une focalisation simplement spatiale des différentes composantes spectrales, nous n'avons pas besoin de l'information de phase relative entre les différents degrés de liberté spectraux. Nous pouvons alors procéder à une mesure de MTMS par interférence avec un speckle de

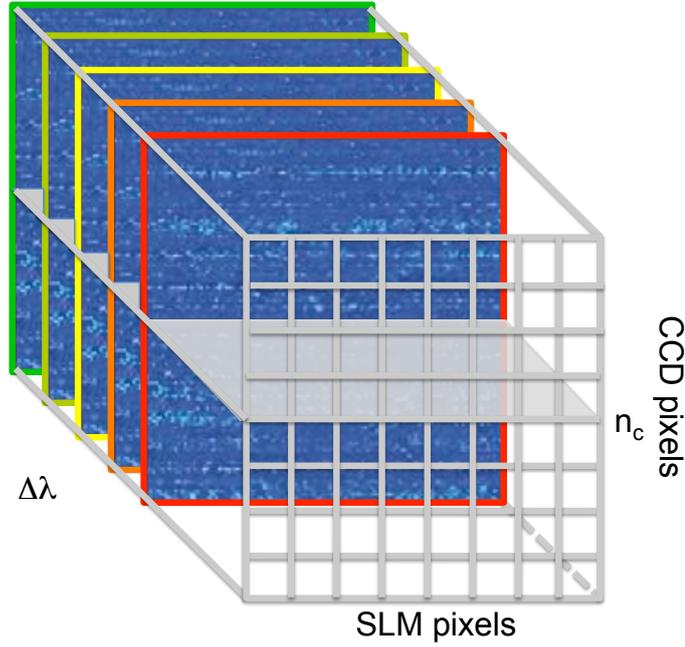


FIGURE 3.7 – **Schéma pour un contrôle spatial d'une source polychromatique** : une coupe transverse de la MTMS permet une sélection d'un point en sortie sur la CCD ( $n_c$ ). Cette sous-matrice de dimension  $N_\omega \times N_{in}$  nous donne l'information de comment chaque champ à une longueur d'onde donnée contribue au champ total au point en sorti choisi.

référence, c'est-à-dire sans bras de référence externe, qui rend la mesure moins sensible aux vibrations et aux dérives de phase.

Pour contrôler la lumière spatialement nous appliquons l'opération de conjugaison de phase à la matrice ainsi obtenue. Selon l'éq. 2.19, le masque de phase à afficher pour une focalisation en un point en sortie  $n_c$  sera donné par :

$$E^{in} = \mathbf{H}_{n_c}^\dagger \cdot E^{cible} \quad (3.2)$$

où  $E^{cible} = A_0 \sum_k^{N_\omega} e^{i\phi_k}$ , le vecteur qui impose la phase à chaque longueur d'onde au point considéré, peut être n'importe quel vecteur de dimension  $N_\omega \times 1$  et composantes  $e^{i\phi_k}$ ,  $\forall \phi_k \in [0, 2\pi]$ . Une amplitude  $A_0$  constante pour toutes les longueurs d'onde et non nulle ( $A_0 = 1$ ) garantit une focalisation spatiale au point cible  $n_c$  de toutes les longueurs d'onde à la fois avec la même intensité. Par contre, imposer  $E^{cible} = 1$  pour une compression temporelle perd toute signification tant que la phase relative entre longueurs d'onde est inconnue. Dans ce cas le contrôle temporel ne sera pas possible.

La conjugaison de phase de la matrice  $\mathbf{H}_{n_c}$  ne correspond pas au cas physique de conjugaison de phase d'une source monochromatique. Bien qu'on impose à chaque longueur d'onde d'être en phase avec elle-même, elle n'est pas forcément en phase avec les autres degrés de liberté spectraux indépendants. Les degrés de liberté de contrôle sont partagés pour conjuguer en phase chaque longueur d'onde séparément.

Le fait qu'on ne connaît pas la phase relative entre les différentes composantes spectrales, et qu'on ne peut pas donc la contrôler, ne change rien à la focalisation spatiale : dans le cas d'un

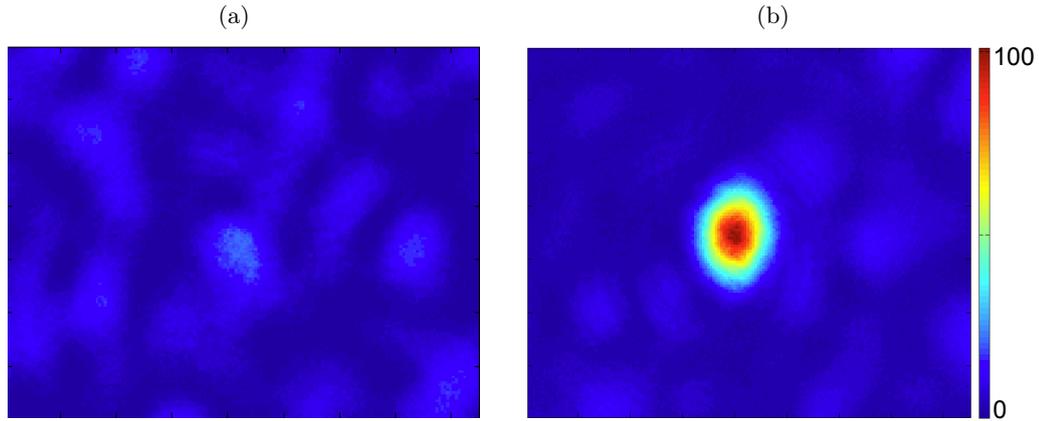


FIGURE 3.8 – **Focalisation spatiale par MTMS** : (a) image expérimentale d'un speckle avant contrôle par MTMS généré par un laser femtoseconde après passage dans un milieu multi-diffusant de ZnO de largeur de corrélation spectrale de 1,6 nm. Nous montrons en (b) la même image expérimentale après avoir modulé le front d'onde du laser grâce à une conjugaison de phase de la MTMS de  $N_\omega = 6$  degrés de liberté spectraux contrôlés. Nous obtenons un RSB  $\sim 12,8$  pour une mesure de MTMS avec référence externe. L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra CCD [0,255].

laser polychromatique, la conjugaison de phase permet un contrôle de chaque longueur d'onde qui focalise au même point choisi de la CCD sans pour autant être en phase avec les autres longueurs d'onde.

Dans la figure 3.8, nous montrons un résultat expérimental de focalisation d'un laser femtoseconde de 10 nm de largeur spectrale à la sortie d'un milieu de ZnO de largeur de corrélation spectrale égale à 1,6 nm : le masque de phase affiché par le SLM est mesuré par conjugaison de phase de la MTMS composée de 6 MTs indépendantes séparées d'environ 1,7 nm.

Avec une mesure d'une MTMS par interférence avec un speckle de référence, nous avons pu obtenir un RSB  $\sim 15$ . Pour une MTMS mesurée par une référence externe, les fluctuations de phase perturbent la mesure pour chaque MT et nous donne des contrôles moins performants avec un RSB qui oscille entre 12 et 13 selon la stabilité de la référence pendant la mesure. Dans la Fig. 3.8(b), nous montrons une focalisation obtenue avec une mesure de MTMS par une référence externe.

La qualité du point de focalisation est liée au nombre de degrés de liberté spectraux qu'on contrôle. Un nombre de MTs inférieur au nombre de speckles indépendants nous donne un contraste inférieur car les longueurs d'onde non contrôlées contribuent au speckle de fond qui devient plus intense.

En revanche, un nombre de MTs supérieur au nombre de degrés de liberté spectraux ne nous donne pas d'information supplémentaire et le contraste du point de focalisation ne sera pas pour autant meilleur. Au contraire, le fait de mesurer un très grand nombre de MTs augmente l'erreur dans le contrôle à cause d'une décorrélation majeure de l'image de speckle sur des temps plus longs d'acquisition, dans le cas d'une mesure de MT par speckle de référence (décorrélation plus lente) ou, davantage, dans le cas d'une mesure de MT par référence externe (décorrélation plus rapide).

Dans la Fig. 3.9 nous quantifions par des résultats expérimentaux l'importance du nombre de

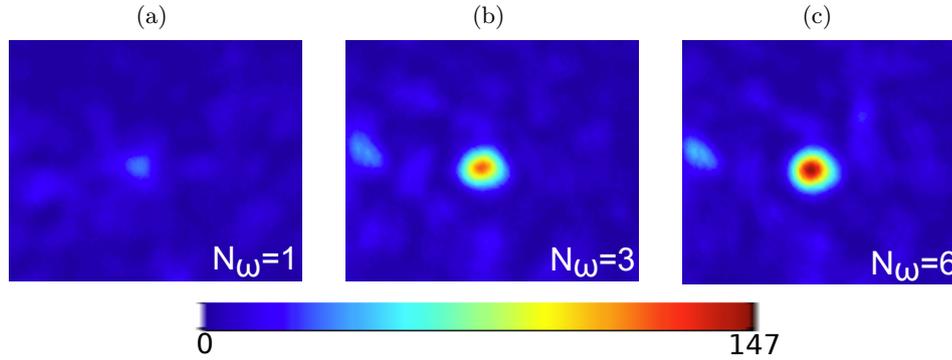


FIGURE 3.9 – **Focalisation spatiale selon le nombre de degrés de liberté spectraux contrôlés** : à partir d'une MTMS mesurée pour un échantillon diffusant de largeur de corrélation spectrale de 1,6 nm par interférence avec un speckle de référence nous montrons des résultats expérimentaux de focalisation spatiale selon le nombre de degrés de liberté spectraux contrôlés : en (a) la focalisation spatiale est faite avec le contrôle d'un seul degré de liberté spectral, c'est-à-dire une seule MT mesurée à la longueur d'onde centrale du laser, pour un RSB de 4,5, en (b) le contrôle est fait pour 3 MTs pour un RSB de 11 et en (c) nous montrons une focalisation spatiale pour 6 MTs mesurées pour un RSB de 13,2. L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra CCD [0,255]. Le même masque affiché en (c) a été utilisé pour étudier le contrôle à travers le même échantillon dans le cas d'ondes monochromatiques dans la Fig. 3.4.

degrés de liberté spectraux contrôlés (nombre de MTs indépendantes connues) : nous avons focalisé la lumière en régime mode bloqué après son passage dans un milieu diffusant de ZnO sur le même pixel de la caméra CCD  $n_c$  pour des sous-matrices  $\mathbf{H}_{n_c}$  de différentes dimensions dans l'axe des degrés de liberté spectraux de contrôle ( $N_\omega = 1$ ,  $N_\omega = 3$ ,  $N_\omega = 6$ ). Nous obtenons une focalisation avec un RSB de plus en plus haut en augmentant le nombre de degrés de liberté spectraux contrôlés jusqu'à saturer. Ce seuil de saturation dépend à la fois de la vitesse de décorrélation du speckle par rapport au temps de mesure de la MTMS et à la fois du nombre de MTs mesurées par rapport à la largeur de corrélation spectrale du milieu. En effet nous avons défini la largeur de corrélation spectrale comme la différence en longueur d'onde de deux sources qui génèrent deux speckles indépendants. Ce même écart permet des mesures de MTs complètement décorréliées. Ce point est fondamental pour qu'il n'y ait pas superposition de MTs. La conjugaison de phase de deux MTs corrélées peut en effet engendrer un partage des degrés de liberté de contrôle entre speckles spectralement corrélés avec une baisse de performance de la focalisation. À même nombre total de degrés de liberté de contrôle, sur-échantillonner les MTs avec un écart en longueur d'onde inférieur à la largeur de corrélation spectrale amène à une perte de contrôle.

Dans le cas de l'expérience dont on a montré les résultats dans la Fig. 3.9, pour 10 MTs mesurées (c'est-à-dire une différence spectrale entre proches MTs de 1 nm, inférieure à la largeur de corrélation spectrale du milieu de 38%) nous obtenons un RSB de 11,6, moins bon que celui obtenu pour une mesure de 6 MTs (RSB = 13,2). Cela dit, le temps d'acquisition de 10 MTs est presque deux fois plus grand que pour 6 MTs pour une décorrélation supérieure de 2%.

Comme dans le cas monochromatique nous pouvons focaliser la lumière mode bloqué en plusieurs points à la fois. Cela est possible par somme cohérente des masques correspondant à la conjugaison de phase de plusieurs sous-matrices  $\mathbf{H}_{n_i}$  en coupes transverses de la MTMS

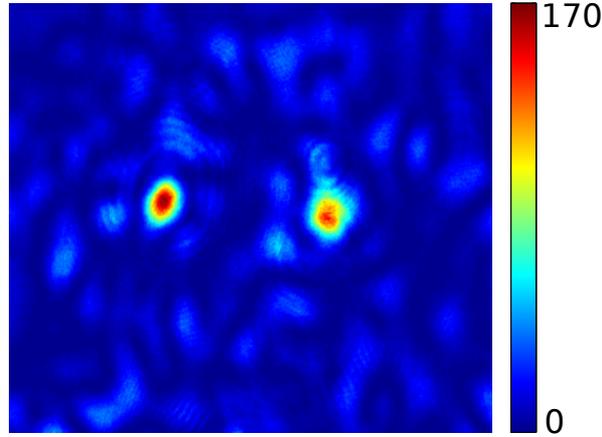


FIGURE 3.10 – **Focalisation spatiale en deux points à la fois** : focalisation en deux points à la fois (cerclés en rouge) avec un RSB de 12 (point à gauche) et 11,3 (point à droite).

coïncidant aux points en sortie  $n_i$ ,  $i \in [1, N_{out}]$ .

Nous montrons en Fig. 3.10 un résultat expérimental de focalisation en deux points. Le RSB est inférieur au cas d'un seul point dû au fait que les degrés de liberté de contrôle sont partagés parmi deux points en sortie plutôt que un seul comme dans le cas monochromatique [Popoff et al., 2010a]. Le nombre limité de degrés de liberté de contrôle produit des erreurs dans la focalisation spatiale dans le cas de la conjugaison de phase par MT [Popoff, 2011]. Ces erreurs, dans le cas d'un contrôle par MTMS, se reproduisent pour chaque longueur d'onde contrôlée. La contribution des parties non contrôlées de la source à chaque longueur d'onde est  $N_\omega$  fois plus importante que dans le cas monochromatique.

## Conclusion

Nous avons présenté comment exploiter la connaissance d'une MTMS pour contrôler et façonner spatialement la lumière polychromatique à travers un milieu diffusant.

D'abord nous avons parlé du cas plus évident de contrôle spatial d'un laser monochromatique en sélectionnant la MT de la MTMS correspondant à la bonne longueur d'onde. Cela nous permet un contrôle sélectif de la lumière (car les longueurs d'onde qui ne sont pas associées à la MT ne sont pas contrôlées).

Dans ce cas, la MTMS peut être vue comme une « calibration » à *a priori* en longueur d'onde du milieu. Nous avons alors comparé le RSB dans le cas d'une focalisation par MT et dans le cas d'une focalisation par coupe longitudinale de la MTMS : en étant le temps d'acquisition pour une seule MT plus court que celui pour une mesure de MTMS, le RSB pour une focalisation d'une source monochromatique par MTMS diminue d'environ 15% par rapport au RSB obtenu par MT.

Dans un deuxième temps, nous avons montré une focalisation par conjugaison de phase de la somme cohérente de toutes les MTs qui composent la MTMS : dans le cas d'un laser continu, cela nous a permis d'étudier comment les degrés de liberté de contrôle sont partagés parmi les degrés de liberté spectraux.

Dans le cas d'un laser polychromatique, la MTMS permet un contrôle spectral : cela est possible par combinaison linéaire de masques de phase qui contrôlent une seule longueur d'onde à la fois pour des points divers en sortie. Ces masques sont des vecteurs de la MTMS extraits de chaque MT choisie (choix de la longueur d'onde à contrôler) et correspondant à un point en sortie donné. Cette opération revient à utiliser le milieu diffusant comme réseau spectral d'une source cohérente polychromatique. Un choix raisonné des coefficients pour chaque masque en combinaison linéaire peut engendrer un changement d'intensité du point de focalisation de chaque longueur d'onde contrôlée séparément.

Pour conclure ce chapitre, nous avons expliqué comment à partir de la MTMS nous pouvons cette fois contrôler spatialement une lumière ultra-brève : une coupe transverse de la MTMS nous permet d'accéder à l'information de comment un milieu diffusant modifie une lumière polychromatique pour chacun de ses degrés de liberté spectraux indépendants. Nous pouvons l'exploiter à travers une opération de conjugaison de phase pour refocaliser en sortie toutes les longueurs d'onde en un point souhaité.

Nous avons analysé ce procédé de focalisation en donnant une estimation de la qualité de la focalisation (RSB) en fonction du nombre de degrés de liberté spectraux contrôlés : le RSB augmente avec le nombre de longueurs d'onde maîtrisées, par contre un nombre de longueurs d'onde supérieur au nombre de degrés de liberté spectraux indépendants n'améliore pas la focalisation et différents effets (un partage de degrés de liberté de contrôle entre longueurs d'onde non indépendantes et une dilatation trop importante des temps d'acquisition de la MTMS) peuvent même engendrer une baisse du RSB.

## Chapitre 4

# Contrôle spatial et temporel d'une impulsion femtoseconde

*Après la présentation des résultats de focalisation spatiale par MTMS, ce chapitre s'intéresse à la compression temporelle d'une impulsion ultra-brève par MTMS mesurée à l'aise d'une référence externe.*

*La méthode choisie pour démontrer la compression temporelle est la détection d'un signal non linéaire généré par l'absorption à deux photons d'un milieu fluorescent. Dans la suite le principe physique de l'absorption à deux photons est décrit ainsi que la façon dont il peut être utilisé pour renseigner sur la présence d'une compression temporelle de l'impulsion.*

*Ensuite, nous décrirons la fabrication des échantillons fluorescents et le nouveau montage expérimental pour une détection de focalisation à la fois spatiale et temporelle.*

*Nous montrerons quelques résultats de compression temporelle, en même temps qu'une focalisation spatiale, d'une impulsion femtoseconde après passage à travers un milieu multi-diffusant. Puis nous présenterons comment, théoriquement, la qualité de la focalisation dépend du nombre de degrés de liberté spectraux et nous montrerons quelques résultats expérimentaux pour le cas d'un milieu diffusant.*

*Pour conclure, nous ferons une comparaison de la méthode de contrôle par conjugaison de phase par MTMS avec le cas déjà réalisé de contrôle par optimisation.*

### Sommaire

---

<b>A</b>	<b>Détection de la compression temporelle . . . . .</b>	<b>69</b>
A.1	Principe de l'excitation à deux photons . . . . .	71
A.2	Échantillons fluorescents et leur fabrication . . . . .	73
A.3	Montage expérimental pour une mesure de la compression temporelle de l'impulsion . . . . .	77
<b>B</b>	<b>Mesure de la compression temporelle . . . . .</b>	<b>79</b>
B.1	Analyse qualitative par ratio entre le signal linéaire et le signal non linéaire . . . . .	82
B.2	Résultats expérimentaux de focalisation spatio-temporelle . . . . .	83

B.3	Focalisation temporelle en fonction du nombre de degrés de liberté spectraux . . . . .	84
B.4	Comparaison avec l'approche itérative . . . . .	87
<b>Conclusion</b>	. . . . .	<b>90</b>

---

## A Détection de la compression temporelle

Expérimentalement, observer une focalisation spatiale est assez simple : il s'agit de regarder avec une caméra CCD, même pas très sensible, avec des temps d'exposition de l'ordre de la dizaine de microseconde, le champ optique en sortie du milieu. Cela nous donne des valeurs d'intensité du champ dans une échelle qui dépend du temps d'intégration et du coefficient de conversion de la caméra du signal électrique transféré en valeurs digitales.

Nous voyons très rapidement une limitation à l'utilisation d'une caméra CCD pour la détection d'une focalisation temporelle : la durée de l'impulsion est tellement brève que l'électronique d'une caméra, même la plus performante, ne sera jamais assez rapide pour détecter une impulsion de l'ordre de la picoseconde (pour une impulsion allongée), voir de la femtoseconde. L'image qu'une CCD nous fournit est une intégration sur plusieurs impulsions et l'estimation d'une compression temporelle est irréalisable.

Une méthode possible pour mettre en évidence un raccourcissement de l'impulsion à la sortie d'un milieu diffusant est de regarder l'auto-corrélation [Sala et al., 1980] ou la corrélation croisée avec une impulsion de référence [Monmayrant et al., 2010] de l'onde en un grain de speckle donné. Le principe pour ces deux méthodes est similaire. Pour l'auto-corrélation l'impulsion à mesurer est divisée en deux faisceaux et envoyée dans un interféromètre de Michelson où un retard  $\tau$  est appliqué à un des deux bras. Les deux faisceaux sont ensuite focalisés avec un angle et superposés à l'intérieur d'un cristal non linéaire qui génère un signal de second harmonique qui contient trois contributions séparées spatialement : la superposition du faisceau  $E(t)$  avec lui-même, la superposition du deuxième faisceau  $E(t - \tau)$  avec lui-même et un terme de corrélation croisée entre les deux. Ce dernier terme augmente quand les deux faisceaux se superposent temporellement car le signal est donné par :

$$S(\tau) \propto \int |E(t)E(t - \tau)|^2 dt \propto \int I(t)I(t - \tau)dt. \quad (4.1)$$

La méthode est la même pour le cas de la corrélation croisée à condition qu'un des deux faisceaux soit remplacé par une impulsion ultra-brève de référence.

Le rôle du cristal non linéaire peut être remplacé par un spectromètre. Dans ce cas, l'interférence entre les deux faisceaux donne un signal sur le spectromètre du type :

$$\begin{aligned} I(\omega) &= |E(\omega) + E_{ref}(\omega)|^2 \\ &= A(\omega)^2 + A_{ref}(\omega)^2 + 2A(\omega)A_{ref}(\omega)\cos[\phi(\omega) - \phi_{ref}(\omega) - \omega\tau] \end{aligned} \quad (4.2)$$

Le terme cosinus contient deux contributions, une due au retard entre les deux ondes  $\omega\tau$  et une due à la différence de phase spectrale,  $\phi(\omega) - \phi_{ref}(\omega)$ , entre l'onde de référence et l'onde inconnue. Pour extraire cette information de la phase spectrale relative qui nous donne une information sur la durée de l'impulsion inconnue, il suffit de faire un filtrage de la transformée de Fourier du signal  $I(\omega)$ . La transformée de Fourier de  $I(\omega)$  consiste en trois lobes centrés en  $-\tau$ ,  $0$  et  $\tau$ . La transformée de Fourier inverse de ce dernier lobe nous donne la fonction :

$$I_{\tau}(\omega) = A(\omega)A_{ref}(\omega)e^{i[\phi(\omega) - \phi_{ref}(\omega) - \omega\tau]} \quad (4.3)$$

depuis laquelle nous pouvons extraire

$$\theta(\omega) = \phi(\omega) - \phi_{ref}(\omega) - \omega\tau.$$

Ce procédé (Fig. 4.1) peut être appliqué à la détection d'une compression temporelle : un

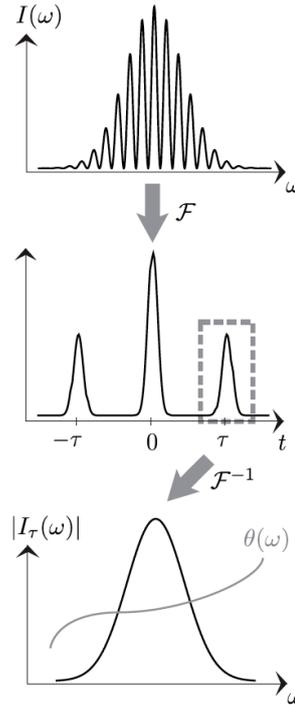


FIGURE 4.1 – **Détection de la compression temporelle d'une impulsion par interférométrie spectrale** : principe de l'interférométrie spectrale donnant accès à la phase relative entre une impulsion recomprimée et une impulsion de référence (extrait de [Monmayrant et al., 2010]).

faisceau de référence interfère avec un grain de speckle contrôlé spatialement et temporellement par l'expérimentateur. Un spectromètre peut donner l'intensité en fonction de la longueur d'onde de la figure d'interférence en ce grain de speckle. Nous pouvons alors estimer la phase relative entre les longueurs d'onde du faisceau modulé et donc la durée de son impulsion par rapport à l'impulsion de référence.

Cette méthode demande beaucoup de précision pour analyser l'interférence provenant d'un seul grain de speckle et éviter que les franges soient moyennées. De plus, si nous voulons montrer une focalisation spatiale en même temps qu'une compression temporelle, dans notre cas nous avons besoin de coupler avec extrême précision le même grain de speckle au spectromètre et à la caméra CCD de manière à observer que la compression temporelle a eu lieu dans le grain de speckle de la CCD où l'intensité était maximisée par conjugaison de phase.

Bien que cette manipulation soit concevable nous avons préféré pour un aspect pratique, la méthode de détection par génération de signal à deux photons. Ce choix repose aussi sur l'idée d'une possible application de ces travaux pour l'excitation de molécules fluorescentes à l'intérieur du milieu diffusant.

Les molécules fluorescentes ont la propriété de pouvoir absorber la lumière et la ré-émettre

très rapidement. En principe, elles absorbent des photons qui sont en résonance avec le niveau d'énergie excité. Cela dit, elles peuvent être excitées par des photons d'énergie inférieure quand des processus non linéaires sont engendrés.

Dans la suite de cette partie, nous allons détailler le principe d'excitation à deux photons, sa dépendance avec la durée de l'impulsion, les échantillons fluorescents utilisés et leur fabrication. Enfin, nous allons décrire le montage expérimental pour une détection de fluorescence et une mesure de compression temporelle.

### A.1 Principe de l'excitation à deux photons

La luminescence est la capacité d'une substance à émettre de la lumière. Un photon peut être absorbé par une molécule faisant passer un électron de l'état fondamental à un état excité (singulet ou triplet). Quand cet électron se trouve dans un état excité de singulet, son spin est opposé à celui de l'électron qui se trouve encore dans l'état fondamental. Le temps de vie dans l'état excité est alors bref et la molécule se désexcite très rapidement avec l'émission d'un photon. On parle alors de fluorescence [Lakowicz, 2011].

Cet événement est très rare car pour qu'il y ait absorption d'un photon de la part de la

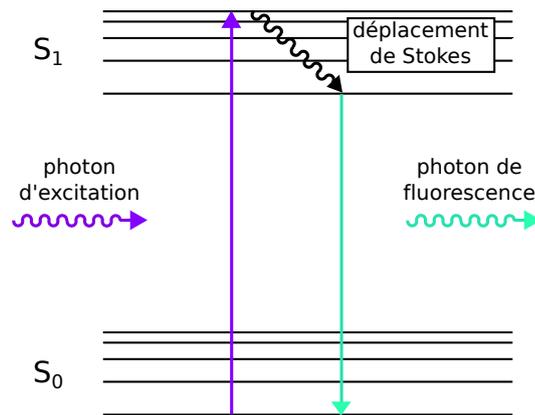


FIGURE 4.2 – **Diagramme de Jablonski pour un déplacement de Stokes** : diagramme de Jablonski [Lakowicz, 2011] explicatif d'émission fluorescente par absorption à un photon avec un déplacement de Stokes (une transition interne de désexcitation non radiative).

molécule, il faut que la lumière soit en résonance avec le niveau d'excitation et, typiquement, il se produit avec une émission de lumière d'énergie inférieure à celle du photon absorbé. Cet événement a été observé pour la première fois par Sir G. G. Stokes en 1852 [Lakowicz, 2011], dont il a pris le nom de *déplacement de Stokes*. La différence d'énergie est convertie par la molécule en modes non radiatifs sous forme de chaleur ou de modes vibrationnels de la matière. Grâce à ce processus le spectre d'émission fluorescent peut être distingué de la source d'excitation.

En principe, un photon d'énergie équivalente à la différence d'énergie entre l'état excité et l'état fondamental est absorbé puis, à la suite de la désexcitation, la molécule émet un photon d'énergie inférieure ou égale à celle du photon incident.

Pourtant en 1930, l'allemande Maria Goeppert-Mayer, prédit dans sa thèse la probabilité non

nulle que la matière puisse être excitée par une source lumineuse d'énergie inférieure à son énergie de résonance grâce à l'absorption de deux photons [Goeppert-Mayer, 1931].

Cet effet non linéaire décrit l'absorption de deux photons d'énergie égale à la moitié de la valeur de résonance pour émettre un seul photon à la fréquence de fluorescence.

Cette transition dérive du développement de Taylor au troisième ordre de la polarisation [Boyd, 2003]

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \mathbf{P}_0 + \mathbf{P}_1 + \mathbf{P}_2 + \mathbf{P}_3.. = \\ &= \mathbf{P}_0 + \epsilon_0\chi^{(1)}\mathbf{E} + \epsilon_0\chi^{(2)}\mathbf{E}^2 + \epsilon_0\chi^{(3)}\mathbf{E}^3.. \end{aligned} \quad (4.4)$$

où la susceptibilité électrique du troisième ordre  $\chi^{(3)}$  est de plusieurs ordres de grandeur plus faible que la susceptibilité du premier ordre  $\chi^{(1)}$ , qui fait que les événements d'absorption à deux photons, bien que de probabilité non nulle, restent beaucoup plus rares que l'absorption linéaire.

Quoique ce phénomène fut déjà prédit, il put être observé pour la première fois seulement

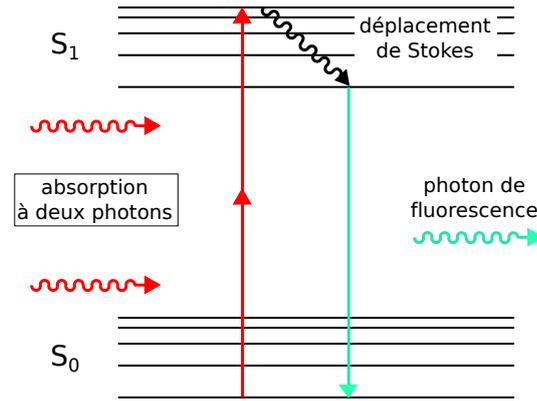


FIGURE 4.3 – **Diagramme de Jablonski pour une excitation à deux photons** : transition par absorption de deux photons à la fois et d'énergie deux fois plus petite que l'énergie du niveau excité et qui engendrent une émission fluorescente d'un seul photon d'énergie deux fois supérieure à celui des photons incidents.

trente ans après avec l'arrivée du laser en 1961 [Kaiser and Garrett, 1961].

Pour un faisceau laser monochromatique la probabilité d'absorption de deux photons est beaucoup plus faible que l'absorption linéaire. Quand par contre nous éclairons une molécule fluorescente avec un laser impulsif très bref, le flux de photons est temporellement très concentré et la probabilité de transition non linéaire augmente considérablement.

L'émission de photons fluorescents dépend du nombre de photons absorbés. Comme l'excitation à deux photons est un processus du second ordre en intensité  $I^2$  le nombre total de photons absorbés par unité de temps est donné par [Xu and Webb, 1996] :

$$N_{abs}(t) = C\sigma \int_V I^2(\mathbf{r}, t) dV \quad (4.5)$$

où  $C$  est la concentration de marqueurs fluorescents,  $\sigma$  est la section efficace d'absorption à deux photons et  $I(\mathbf{r}, t)$  décrit l'intensité de la lumière incidente dans un volume  $V$ . Cette dernière est composée d'une distribution spatiale  $S(\mathbf{r})$ , par exemple une onde gaussienne, et d'une distribution temporelle  $I_0(t)$  qui, dans le cas d'un laser femtoseconde ou d'impulsion très

brève, peut être représentée par une gaussienne très piquée dans le temps :  $I(\mathbf{r}, t) = S(\mathbf{r}) \cdot I_0(t)$ . Si on suppose qu'il n'y a pas d'émission stimulée ni de *self-quenching* (« auto-extinction », c'est-à-dire la désactivation de la fluorescence par absorption des photons émis par les molécules voisines), le nombre de photons fluorescents collectés par unité de temps sera donné par :

$$N_{fluo}(t) = \frac{1}{2} \eta \psi N_{abs} \quad (4.6)$$

où  $\eta$  et  $\psi$  sont l'efficacité quantique des molécules et l'efficacité de collection de la lumière respectivement. Le facteur  $\frac{1}{2}$  vient simplement du fait que pour chaque événement fluorescent il faut que deux photons incidents soient absorbés.

Dans la pratique, nous mesurons seulement la valeur moyenne du nombre de photons fluorescents par unité de temps  $\langle N_{fluo}(t) \rangle$ . Pour une distribution gaussienne de l'intensité  $S(\mathbf{r})$ , si nous substituons dans l'eq. 4.6 la définition donnée dans l'eq. 4.5, nous obtenons [Xu and Webb, 1996] :

$$\langle N_{fluo}(t) \rangle \sim \frac{1}{2} \eta \psi C \sigma \frac{1}{f_L \tau_L} \langle I_0(t) \rangle^2 \frac{n \lambda^3}{\pi (\text{NA})^4} \quad (4.7)$$

où  $n$  est l'indice de réfraction,  $\text{NA} = n \sin \theta$  l'ouverture numérique de focalisation de la lumière incidente,  $\lambda$  la longueur d'onde centrale de l'onde incidente,  $f_L$  son taux de répétition et  $\tau_L$  la durée de l'impulsion.

L'intensité  $I_0(t)$  est proportionnelle à la puissance  $P(t)$  qui atteint les marqueurs fluorescents et à l'ouverture numérique NA de focalisation sur l'échantillon fluorescent :

$$I_0(t) \sim \frac{(\text{NA})^2}{\lambda^2} P(t). \quad (4.8)$$

Si nous substituons l'eq. 4.8 dans l'eq. 4.7 nous avons finalement :

$$\langle N_{fluo}(t) \rangle \sim \eta \psi C \sigma \frac{n}{\lambda} \frac{1}{f_L \tau_L} \langle P(t) \rangle^2. \quad (4.9)$$

Pour un laser femtoseconde ( $\tau_L \sim 10^{-13}$  s) avec un taux de répétition de 80 MHz le terme  $\frac{1}{f_L \tau_L}$  est de l'ordre de  $10^5$ . Par conséquent, des lasers mode bloqué peuvent exciter des marqueurs à basse puissance. De plus, l'intensité de la lumière fluorescente est inversement proportionnelle à la durée temporelle de l'impulsion et peut donc nous renseigner sur une contraction temporelle par contrôle de front d'onde du laser après passage dans un milieu diffusant.

## A.2 Échantillons fluorescents et leur fabrication

Au cours de ces travaux, plusieurs échantillons fluorescents ont été fabriqués pour détecter la focalisation temporelle à travers des milieux multi-diffusants. Dans cette partie, nous allons décrire les solutions et les fluorophores utilisés, faire un bilan de leurs avantages et inconvénients et expliquer également leur fabrication et mise en place sur le montage expérimental.

**Coumarine** La coumarine ( $C_{13}H_{12}F_3NO_2$ ) est une molécule fluorescente qui se présente sous forme de cristaux jaunes. Elle émet entre 477 nm et 531 nm selon la concentration et le solvant utilisé [Reynolds and Drexhage, 1975].

Pendant ces travaux nous avons utilisé la coumarine comme source de signal à deux photons : nous en avons posé quelques milligrammes sous forme solide sur une lamelle de verre de microscope. Pour de petites quantités de substance, le signal non linéaire détecté est très intense (dix fois plus intense que celui obtenu avec la fluorescéine, l'autre fluorophore utilisé dans les travaux de cette thèse). Par contre la disposition des cristaux joue un rôle important dans l'intensité d'émission. La disposition aléatoire de ces cristaux sur la lamelle de verre oblige l'expérimentateur à sonder l'échantillon fluorescent pour trouver le cristal optimal.

Cette inhomogénéité de la coumarine produit aussi des problèmes d'aberrations de la lumière.

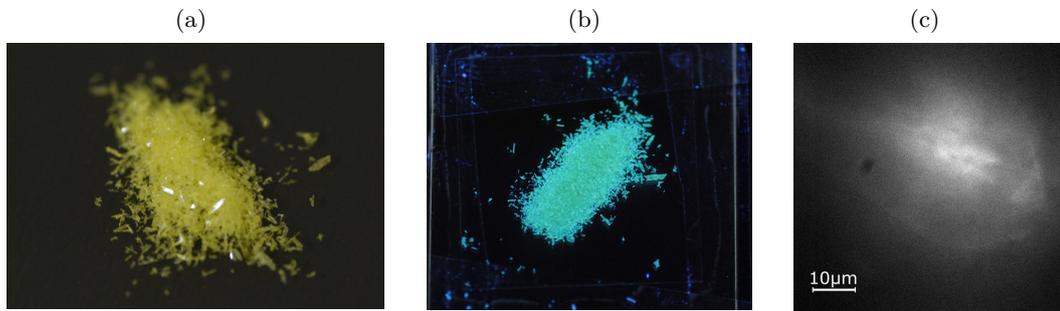


FIGURE 4.4 – **Coumarine** : quelques milligrammes de coumarine sous forme de poudre jaune (a). En (b) la fluorescence de la coumarine à l'œil nu sous éclairage d'une lampe UV et en (c) fluorescence d'un seul cristal à la caméra EMCCD, nous pouvons distinguer la forme très nette du cristal par sa fluorescence.

Ces aberrations parasites modifient le speckle en sortie quand la lumière diffusée passe à travers en altérant la forme des grains du speckle à la caméra.

La coumarine peut subir du photo-blanchiment [Lakowicz, 2011] (*photobleaching* en anglais) qui peut amener l'expérimentateur à changer de cristal. Ce phénomène reste lent pour des puissances du laser de l'ordre de la centaine de milliwatts (comme la source employée dans nos expériences) et l'échantillon de coumarine est très stable dans le temps (plusieurs semaines).

**Fluorescéine** La fluorescéine (Sel de sodium de fluorescéine  $C_{20}H_{10}Na_2O_5$ ) est une poudre rouge soluble dans l'eau et l'éthanol. Elle émet entre 510 nm et 520 nm selon le Ph du solvant [Emmart, 1958].

Pour la préparation de ce type d'échantillon fluorescent nous avons scellé la solution entre deux lames de verre de microscope, de 1 mm et 130-170  $\mu\text{m}$  respectivement, qui ont été collées entre elles à l'aide de fines couches de paraffine chauffées à 100 °C. La lamelle de verre la plus fine a été posée sur deux morceaux de paraffine, chacun composé de deux couches superposées et en contact avec l'autre lamelle, espacées d'environ 2 mm. Après avoir refroidi, la paraffine joue le rôle d'isolant aux bords de la lamelle. Il reste deux petites ouvertures qui sont utilisées par l'expérimentateur pour remplir par capillarité le canal entre les deux morceaux de paraffine par la solution fluorescente. Les deux ouvertures sont ensuite scellées par de la cire chaude. L'épaisseur de la couche de fluorescéine entre les deux lamelles a été

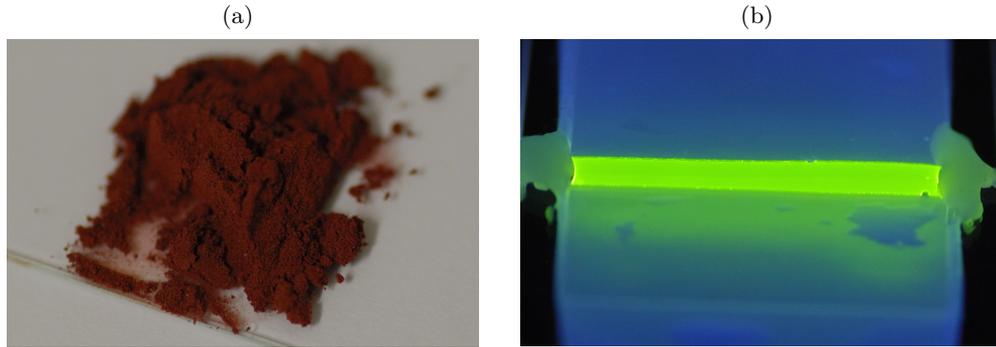


FIGURE 4.5 – **Fluorescéine** : sel de sodium de fluorescéine dans son état naturel (a) et fluorescence d'un échantillon de solution de concentration massique à 0,1% (b).

mesuré à  $\sim 200 \mu\text{m}$ .

Nous avons ensuite testé l'intensité de la fluorescence de différentes solutions de fluorescéine dans l'eau et l'éthanol. Des concentrations trop élevées de fluorophore produisent du *self-quenching* et de la réabsorption et des concentrations trop faibles diminuent l'intensité d'émission. Nous avons mesuré grâce à une caméra EMCCD (*electron-multiplying CCD*, une caméra qui amplifie le signal en entrée) l'intensité de fluorescence des solutions pour différentes concentrations massiques en fluorescéine et l'intensité optimale d'émission a été observée, pour ces types d'échantillons, à  $\sim 0,1\%$  de concentration massique. Cela dit, l'intensité maximale obtenue pour une concentration massique de 0,1% dans notre cas est dix fois plus faible que celle obtenue avec la coumarine.

Le problème principal de ces échantillons est qu'ils ont une durée de vie limitée : la solution sèche (diminution de l'intensité d'émission avec le temps) ou elle s'évapore en une semaine, voire quelques jours. En effet, cette méthode de fabrication ne permet pas de sceller efficacement les échantillons. Cela ne se produit pas avec les échantillons de coumarine qui restent dans un état solide.

Par contre, l'avantage de cet échantillon par rapport à ceux fabriqués avec la coumarine est son homogénéité qui permet d'avoir une figure de speckle non déformée par les aberrations optiques et une émission de fluorescence uniforme en tout point de la solution.

**Capillaires de fluorescéine** La coumarine, comme les échantillons de fluorescéine décrits jusqu'ici, sont des échantillons d'une centaine de micromètres d'épaisseur. Cela pose un problème pour la détection de la focalisation temporelle quand l'objectif de microscope utilisé pour focaliser la lumière fluorescente a une ouverture numérique très grande (ce qui est souvent le cas pour une détection d'un signal proportionnel à la puissance au carré  $P^2$  comme celui généré par un fluorophore après passage dans un milieu diffusant).

Dans ce cas, la lumière qui éclaire l'échantillon excite les couches de fluorophore qui se trouvent dans le cône de lumière de l'objectif. Le signal non linéaire final est moyenné sur plusieurs points où la lumière n'a pas été focalisée temporellement en baissant le signal global ou en créant un halo autour du point de focalisation.

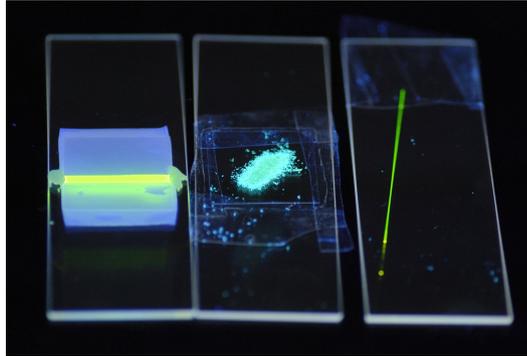


FIGURE 4.6 – **Échantillons fluorescents** : fluorescence par lampe UV des trois types d'échantillons fluorescents utilisés pour la détection du contrôle temporel. À gauche une solution de fluorescéine (concentration massique de 0,1%) entre deux lamelles de verres scellées avec de la paraffine, au centre des cristaux de coumarine et à droite une solution de fluorescéine (concentration massique de 0,9%) dans un capillaire de dimensions  $0,02\text{ mm} \times 0,2\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ .

Un point important a été de fabriquer des échantillons plus fins ( $20\text{ }\mu\text{m}$ ) pour diminuer cet effet perturbateur et pour ne pas sous-estimer l'intensité du signal non linéaire au foyer de l'objectif.

Dans le cadre du travail de stage de Master 2 de Mickaël Mounaix, effectué au sein du

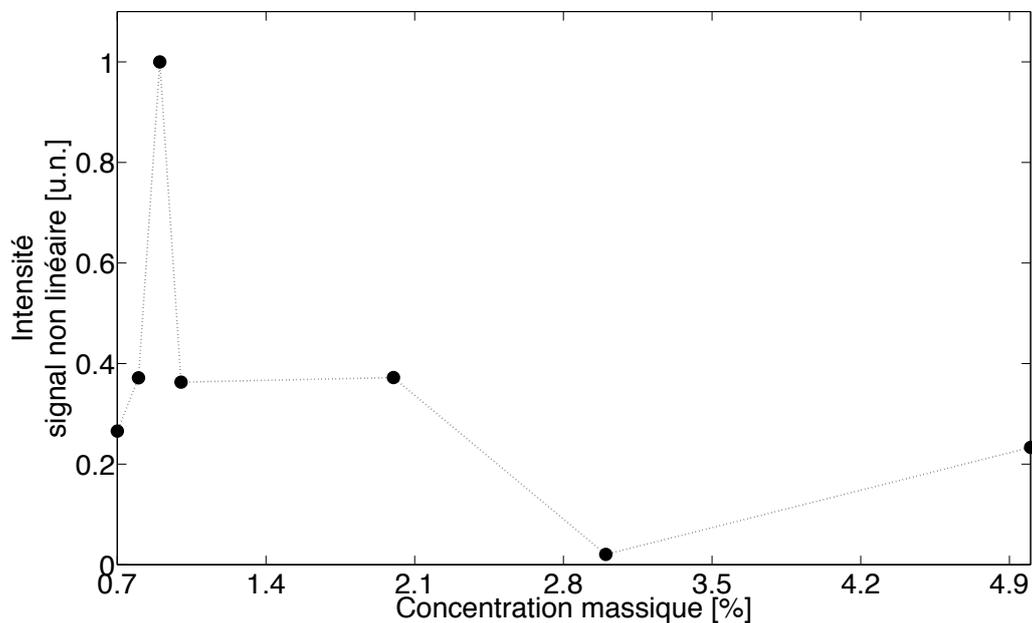


FIGURE 4.7 – **Intensité des échantillons capillaires de  $20\text{ }\mu\text{m}$  d'épaisseur en fonction de la concentration massique** : courbe de valeurs d'intensité en unités normalisées (u.n.) mesurées avec une caméra EMCCD en fonction de la concentration massique de fluorescéine pour des échantillons capillaires. La valeur optimale est située à  $\sim 0,9\%$  de concentration massique.

laboratoire entre mars 2014 et juin 2014, nous avons fabriqué des échantillons de fluorescéine à l'aide de capillaires en verre très fins ( $0,02\text{ mm} \times 0,2\text{ mm} \times 50\text{ mm}$  et une gaine rectangulaire en verre d'épaisseur de  $20\text{ }\mu\text{m}$ ). Par capillarité la solution pénètre dans la petite cuvette en



Objectif	NA	$\gamma$
$O_1, O_3$	0,3	10×
$O_2$	0,75	40×
$O_4$	0,8	100×

TABLEAU 4.1 – **Objectifs de microscope utilisés** : les valeurs d'ouverture numérique (NA) et grandissement ( $\gamma$ ) des objectifs de microscope employés dans le montage expérimental.

figure de speckle est récupérée par un deuxième objectif ( $O_2$ ) qui collecte la lumière vers un troisième objectif ( $O_3$ ) qui éclaire l'échantillon non linéaire. Enfin un quatrième objectif ( $O_4$ ) collecte la lumière en transmission du signal non linéaire ainsi que linéaire. Les deux signaux sont séparés en fréquence à l'aide d'un dichroïque ( $D$ ) et envoyés vers deux caméras, une CCD qui récupère le signal linéaire et une EMCCD qui récupère le signal non-linéaire. Le signal linéaire étant supérieur au non linéaire de plusieurs ordre de grandeur, un filtre passe-haut en fréquence ( $F_2$ ) élimine le signal linéaire qui n'a pas été filtré par le dichroïque.

Comme déjà dit précédemment dans la partie B.1 du chapitre 2, l'échantillon multi-diffusant peut générer de l'auto-fluorescence. Pour éviter toute détection de cette fluorescence parasite, un filtre passe-bas en fréquence ( $F_1$ ) est placé entre les deux échantillons et les deux caméras couplées imagent le plan à l'intérieur de l'écran à deux photons. L'auto-fluorescence du milieu complexe nous oblige au choix de séparer le système d'imagerie du milieu diffusant du système de l'échantillon non linéaire pour éviter l'erreur de collecter la fluorescence du milieu plutôt que du fluorophore.

Un obturateur contrôlé par ordinateur coupe le faisceau de référence après mesure de la

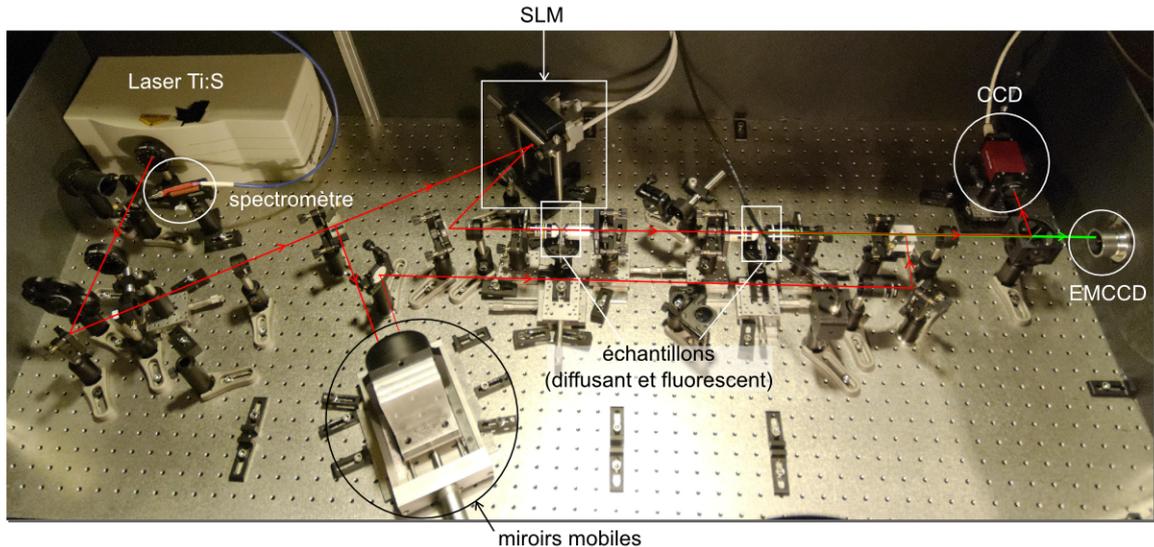


FIGURE 4.9 – **Photographie du montage expérimental.**

MTMS et avant focalisation.

Dans la Fig. 4.8 nous avons schématisé le montage et nous montrons le montage réel dans la Fig. 4.9.

## B Mesure de la compression temporelle

Pour focaliser temporellement nous utilisons une acquisition de la MTMS. Cette fois chaque MT qui compose la MTMS est mesurée grâce à l'interférence du speckle avec une référence externe : la zone du SLM éclairée par la source monochromatique est entièrement modulée pour chaque MT et elle interfère à la sortie du milieu diffusant avec l'onde plane du bras de référence.

L'acquisition de la MTMS requiert une mesure durant plusieurs minutes, temps pendant lequel la phase relative n'est pas suffisamment stable pour être mesurée. Donc, une fois mesurées toutes les matrices qui composent la MTMS, une acquisition de phase relative entre MTs est effectuée : pour cela nous envoyons en entrée un seul vecteur d'Hadamard (le premier par exemple) pour chaque longueur d'onde et nous appliquons, comme pour le cas de la mesure de MT, la méthode de décalage à quatre phases de façon à recréer le champ en sortie pour chaque longueur d'onde d'un seul vecteur d'Hadamard donné. Nous pouvons alors connaître la phase du champ en chaque pixel en sortie et pour chaque longueur d'onde. Cela nous permet d'accéder à la phase relative entre une longueur d'onde et l'autre de manière très rapide (6 s par longueur d'onde) et d'être moins sensible à la décorrélacion du système.

Nous notons  $\tilde{\Phi}_{N_\omega}^{n_c}$  la matrice contenant les phases relatives de chaque longueur d'onde pour un pixel en sortie  $n_c$ . La MTMS mesurée est composée par des matrices  $N_\omega \times N_{in}$  pour chaque pixel indépendant  $n_c$  en sortie de la caméra CCD :

$$\mathbf{H}_{N_\omega, N_{in}}^{n_c} = \begin{pmatrix} h_{11} & h_{12} & \cdots & h_{1N_{in}} \\ h_{21} & h_{22} & \cdots & h_{2N_{in}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ h_{N_\omega 1} & h_{N_\omega 2} & \cdots & h_{N_\omega N_{in}} \end{pmatrix}. \quad (4.10)$$

Chaque élément complexe  $h_{km}$  est un champ donné par la méthode des quatre phases en un point de la CCD pour une longueur d'onde  $k$  et vecteur d'Hadamard  $m$  donnés. Puisque chaque  $h_{km} = A_{km}e^{i\phi_{km}}$  et que nous modulons en phase uniquement, nous pouvons traiter cette partie du champ séparément en écrivant :

$$\Phi_{N_\omega, N_{in}}^{n_c} = \begin{pmatrix} \phi_{11} & \phi_{12} & \cdots & \phi_{1N_{in}} \\ \phi_{21} & \phi_{22} & \cdots & \phi_{2N_{in}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \phi_{N_\omega 1} & \phi_{N_\omega 2} & \cdots & \phi_{N_\omega N_{in}} \end{pmatrix}, \quad \forall \phi_{km} = \arctan\left(\frac{\text{Im}(h_{km})}{\text{Re}(h_{km})}\right) \quad (4.11)$$

Cette matrice est définie pour chaque longueur d'onde à une phase près du premier vecteur d'Hadamard. En d'autres termes, nous pouvons imposer une phase nulle au premier vecteur d'Hadamard pour toutes les longueurs d'onde sans en modifier l'information :

$$\Phi_{N_\omega, N_{in}}^{n_c} = \begin{pmatrix} 0 & \phi_{12} - \phi_{11} & \cdots & \phi_{1N_{in}} - \phi_{11} \\ 0 & \phi_{22} - \phi_{21} & \cdots & \phi_{2N_{in}} - \phi_{21} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & \phi_{N_\omega 2} - \phi_{N_\omega 1} & \cdots & \phi_{N_\omega N_{in}} - \phi_{N_\omega 1} \end{pmatrix}. \quad (4.12)$$

Ainsi, les phases relatives entre vecteurs d'Hadamard (qui permettent par conjugaison de phase de contrôler le faisceau) restent inchangées, alors que la phase relative entre longueurs d'onde est imposée nulle. Maintenant nous pouvons y ajouter la phase relative précédemment mesurée  $\tilde{\Phi}_{N_\omega}^{n_c}$  :

$$\mathbf{\Phi}_{N_\omega, N_{in}}^{n_c} = \mathbf{H}_{N_\omega, N_{in}}^{n_c} + \tilde{\Phi}_{N_\omega}^{n_c} = \begin{pmatrix} \tilde{\phi}_{11} & \phi_{12} - \phi_{11} + \tilde{\phi}_{11} & \cdots & \phi_{1N_{in}} - \phi_{11} + \tilde{\phi}_{11} \\ \tilde{\phi}_{21} & \phi_{22} - \phi_{21} + \tilde{\phi}_{21} & \cdots & \phi_{2N_{in}} - \phi_{21} + \tilde{\phi}_{21} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \tilde{\phi}_{N_\omega 1} & \phi_{N_\omega 2} - \phi_{N_\omega 1} + \tilde{\phi}_{N_\omega 1} & \cdots & \phi_{N_\omega N_{in}} - \phi_{N_\omega 1} + \tilde{\phi}_{N_\omega 1} \end{pmatrix}. \quad (4.13)$$

Les composantes de la matrice  $\mathbf{\Phi}_{N_\omega, N_{in}}^{n_c}$  sont les nouvelles phases des composantes de la matrice  $\mathbf{H}_{N_\omega, N_{in}}^{n_c}$ . Nous avons donc « recalé » les phases relatives entre longueurs d'onde de la MTMS. Nous pouvons appliquer les opérations décrites jusqu'ici à toutes les matrices  $\mathbf{H}_{N_\omega, N_{in}, N_{out}}$  de tous les pixels en sortie  $N_{out}$ .

L'équation après conjugaison de phase de la matrice  $\mathbf{H}_{N_\omega, N_{in}}^{n_c}$  pour un point donné  $n_c$  de la CCD est alors :

$$E^{in} = \mathbf{H}_{N_\omega, N_{in}}^{n_c \dagger} \cdot E^{cible}. \quad (4.14)$$

$E^{cible} = A_0 \sum_k^{N_\omega} e^{i\phi_k}$  impose la phase relative en sortie du milieu diffusant en un point  $n_c$  pour chaque longueur d'onde. L'amplitude  $A_0$  du champ cible, constante et non nulle pour toutes les longueurs d'onde, garantit une focalisation spatiale au point  $n_c$  de la même intensité pour toutes les longueurs d'onde à la fois.

Si  $E^{cible} = e^{i\phi}$ ,  $\phi \in [0, 2\pi]$  nous imposons, simultanément à une focalisation spatiale, une phase relative constante qui produit une impulsion ultra-brève à un instant  $t = 0$  défini par la référence. De manière similaire, imposer une phase relative linéaire  $\phi' = \pm k\phi$  caractérisera une impulsion ultra-brève au temps  $t \neq 0$ .

Dans le cas d'une combinaison aléatoire des phases  $\phi_k$  la compression temporelle ne sera pas vérifiée alors que l'amplitude imposée  $A_0 = 1$  maintient la focalisation spatiale.

Selon [Derode et al., 1999], une modulation de phase uniquement suffit pour recomprimer une impulsion dans sa durée donnée par la limite par transformée de Fourier, une modulation en amplitude par contre pourrait être utile pour réduire le speckle temporel de fond qui persiste autour du point de focalisation.

Dans notre cas, nous devrions pouvoir observer une compression temporelle grâce à une modulation de phase spatiale uniquement par conjugaison de phase.

Pour vérifier cela, nous focalisons spatialement en imposant soit une phase relative entre les longueurs d'onde constante et soit une phase relative aléatoire et nous comparons le signal non linéaire dans ces deux cas.

Dans la Fig. 4.10 nous montrons une expérience de focalisation spatio-temporelle. Le signal non linéaire dans le cas d'une phase constante a un RSB 2,6 fois supérieur au cas de la simple focalisation spatiale.

Cela dit, pour conclure qu'il y a bien compression temporelle, nous devons regarder ce qui se passe en même temps sur le signal linéaire. En effet, nous appliquons une modulation en phase uniquement, c'est-à-dire que nous ne regardons pas l'information d'amplitude de la matrice. Imposer une phase relative plutôt qu'une autre modifie donc, dans le cas d'un contrôle par

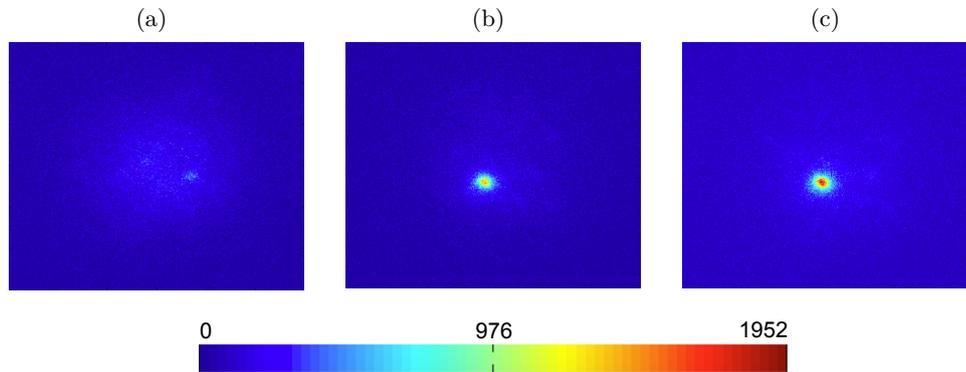


FIGURE 4.10 – **Focalisation temporelle** : résultat expérimental de focalisation temporelle par MTMS à travers un échantillon de corrélation spectrale de 1,6 nm. Dans l'image (a) le signal non linéaire (speckle) avant modulation. Dans la figure (b) un signal non linéaire de  $RSB = 3,1$  est obtenu par focalisation spatiale grâce à la MTMS et une phase relative aléatoire. Dans l'image (c) le signal non linéaire pour la même expérience mais une phase relative entre longueurs d'onde constante ( $RSB = 8,1$ ). L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra EMCCD [0,16000].

les seuls degrés de liberté spatiaux, le masque de phase qui permet la focalisation. Cette modification du masque affecte non seulement le contrôle temporel mais aussi le contrôle spatial. La focalisation spatiale sous l'effet d'un masque de phase qui impose une phase spectrale aléatoire plutôt qu'une phase spectrale constante génère des fluctuations en intensité et donc une modification du RSB du signal linéaire.

Un meilleur RSB dans le signal non linéaire peut être alors dû simplement à une meilleure

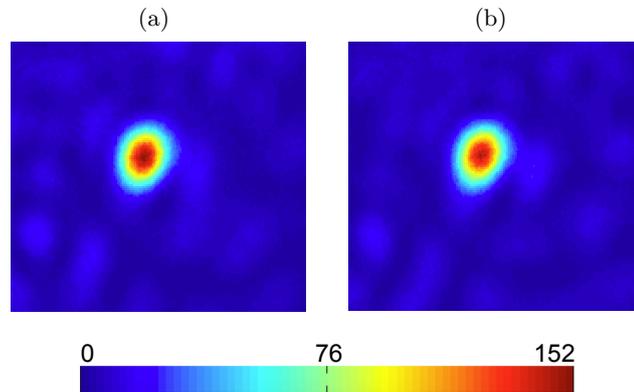


FIGURE 4.11 – **Focalisation spatio-temporelle pour un signal linéaire** : résultats expérimentaux pour le signal linéaire dans le cas de la même mesure présentée en Fig. 4.10 pour le signal non linéaire. L'image (a) a un  $RSB$  de 12,9 et l'image (b) un  $RSB$  de 12,7, pourtant dans le cas (a) une phase relative aléatoire a été imposée et dans le cas (b) nous avons forcé une phase relative constante. L'échelle est exprimée en niveaux de gris de la caméra CCD [0,255].

focalisation spatiale.

Pour l'expérience présentée en Fig. 4.10 nous montrons pour cette même réalisation, ce qui se passe entre temps pour le signal linéaire en Fig. 4.11. Nous pouvons remarquer qu'aucune différence significative du RSB n'est observable, au contraire nous avons une focalisation légèrement meilleure de 2% dans le cas d'une phase aléatoire contrairement au cas non linéaire.

### B.1 Analyse qualitative par ratio entre le signal linéaire et le signal non linéaire

Une méthode pertinente pour évaluer la compression temporelle à travers l'observation d'un signal non linéaire est de définir un ratio entre les quatre signaux observés : les signaux linéaires (phase constante  $S_L^C$  et phase aléatoire  $S_L^A$ ) et les signaux non linéaires (phase constante  $S_{NL}^C$  et phase aléatoire  $S_{NL}^A$ ).

Nous avons choisi de définir chaque signal ( $S_L^C, S_L^A, S_{NL}^C, S_{NL}^A$ ) comme le RSB du point de focalisation par rapport à son bruit de fond, comme défini dans la partie A.1 du chapitre 3. Ainsi, nous ne serons pas concernés par les caractéristiques des différentes caméras qui détectent les signaux.

Le signal linéaire est proportionnel à la puissance moyenne de la source :

$$S_L \propto \langle P \rangle. \quad (4.15)$$

Le signal non linéaire est selon ce que nous avons montré dans la partie précédente A.1 :

$$S_{NL} \propto \frac{\langle P \rangle^2}{\tau} \quad (4.16)$$

où  $\tau$  est la durée de l'impulsion.

Donc nous définissons le ratio entre les signaux comme il suit :

$$r = \frac{\frac{S_{NL}^C}{S_{NL}^A}}{\left(\frac{S_L^C}{S_L^A}\right)^2} \sim \frac{\tau_C}{\tau_A} \quad (4.17)$$

où  $\tau_C$  et  $\tau_A$  sont les durées de l'impulsion pour une phase relative entre longueurs d'onde constante et aléatoire respectivement. Puisque nous pouvons considérer les effets d'un milieu diffusant sur une source cohérente complètement aléatoires [Ishimaru, 1978], nous pouvons alors envisager que les phases relatives entre degrés de liberté spectraux indépendants que le milieu ajoute à une impulsion sont aussi aléatoires. Donc  $r$  nous indique de combien l'impulsion a été recomprimée par rapport à une impulsion diffusée par le milieu quand il n'y a pas eu de modulation.

Si  $r > 1$  alors nous aurons :

$$\frac{\tau_C}{\tau_A} > 1$$

et donc une compression temporelle de l'impulsion. Nous parlerons alors de focalisation temporelle par MTMS.

## B.2 Résultats expérimentaux de focalisation spatio-temporelle

Le ratio  $r$  quantifie la compression temporelle et nous renseigne donc sur la présence ou non de la focalisation temporelle.

Nous pouvons répéter l'expérience de focalisation par phase relative aléatoire et constante pour la même mesure de la MTMS et faire une statistique du RSB pour les signaux linéaires et non linéaires et donner un ratio moyen sur plusieurs réalisations.

En Fig. 4.12 nous montrons des réalisations expérimentales de focalisation spatio-temporelle

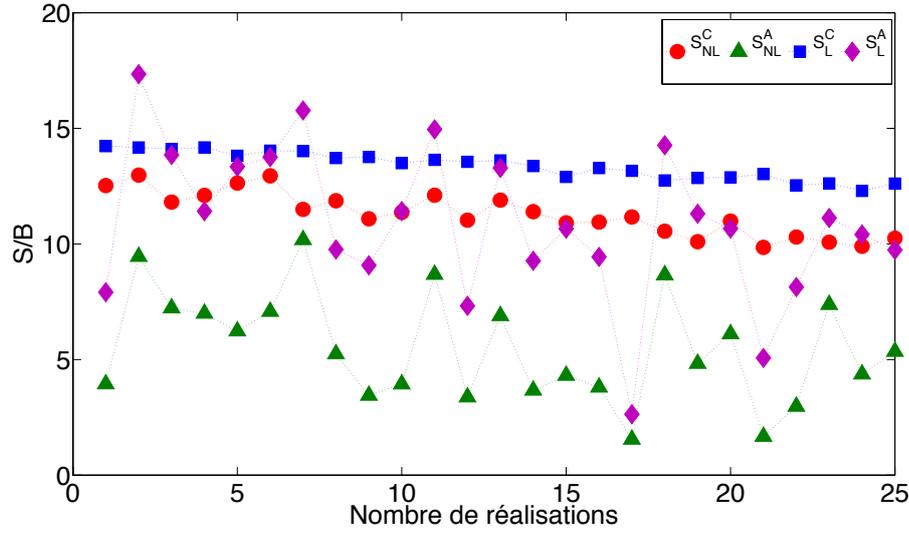


FIGURE 4.12 – **Focalisation temporelle pour plusieurs réalisations** : données expérimentales du RSB de plusieurs réalisations (25) d'une focalisation par phase constante et phase aléatoire effectué au même point en sortie pour la même mesure de MTMS composée de 5 MTs à travers un échantillon de corrélation spectrale de 2 nm. Le ratio  $r$  moyen sur 25 réalisations est pour cette expérience de 1,6 avec une valeur maximale de 2 et une valeur minimale de 0,3.

pour plusieurs phases relatives aléatoires alternées avec des réalisations de phase relative constante pour le même point en sortie de la CCD et pour la même mesure de MTMS.

Nous remarquons déjà que globalement le signal non linéaire pour la phase relative constante ( $S_{NL}^C$ ) est supérieur au signal non linéaire pour une phase relative aléatoire ( $S_{NL}^A$ ), ce qui n'est pas le cas du signal linéaire.

Puisque le signal non linéaire est toujours proportionnel à  $S_{NL} \propto \langle P \rangle^2$  alors que le signal linéaire est proportionnel à  $S_L \propto \langle P \rangle$ , on s'attendrait à ce que les courbes des signaux non linéaire soient plus élevées que les courbes des signaux linéaires. Cela dit, il ne faut pas oublier que l'intensité à deux photons dépend, entre autres, de l'efficacité quantique  $\eta$  et de la section efficace  $\sigma$  du fluorophore (partie A.1) qui rendent le signal non linéaire  $S_{NL}$  très faible par rapport au signal linéaire  $S_L$ .

Une autre observation que nous pouvons faire est que les deux signaux à phase relative constante sont soumis à une diminution graduelle du RSB, alors que le même masque de phase est affiché à chaque réalisation.

Cette perte progressive en qualité du RSB peut être expliquée par le fait que le milieu diffusant

génère une image de speckle qui décorrèle petit à petit et le masque devient de moins en moins efficace.

En effet le signal fluorescent reste un signal très faible par rapport au signal linéaire. La caméra EMCCD qui détecte la fluorescence a des temps d'expositions très longs (de l'ordre de la dizaine de secondes) ce qui donne un temps de mesure d'une dizaine de minutes pour 25 réalisations. Le milieu ne reste pas stable pendant toute la détection.

La focalisation temporelle a lieu seulement quand  $r > 1$ . Il est pertinent de voir le comporte-

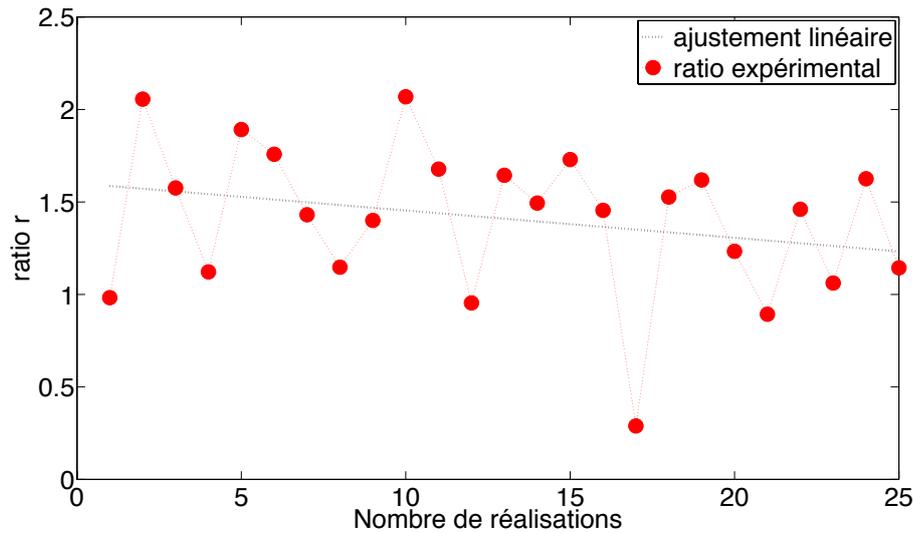


FIGURE 4.13 – **Évolution du ratio  $r$  pour une mesure de MTMS** : pour l'expérience montrée en Fig 4.12, changement du ratio  $r$  avec différents tirages de la phase spectrale aléatoire.

ment du ratio  $r$  le long des réalisations pour voir si la focalisation temporelle a toujours lieu. Dans la Fig. 4.13 nous montrons l'évolution du ratio  $r$  pour les réalisations présentées en Fig. 4.12. Le ratio n'est pas toujours supérieur à un, par contre on voit que la focalisation temporelle est beaucoup plus fréquente au début des réalisations et devient de plus en plus rare : après 25 itérations (une dizaine de minutes) nous avons une diminution du ratio de 22%. Plus le milieu est épais, plus les degrés de liberté spectraux à contrôler seront nombreux et, donc, le ratio  $r$  plus élevé. Nous présentons dans la partie qui suit, la variation théorique du ratio  $r$  avec le nombre de degrés de liberté spectraux indépendants et nous discuterons notre cas spécifique avec ses limitations dans l'emploi d'échantillons diffusants plus épais.

### B.3 Focalisation temporelle en fonction du nombre de degrés de liberté spectraux

Quand une source polychromatique passe à travers un milieu diffusant, spatialement on obtient, en chaque point, un speckle temporel, correspondant à une impulsion allongée, dont le nombre de grains temporels est proportionnel aux nombre de degrés de liberté spectraux  $N_\omega$  [Thompson et al., 1997].

En un point spatial, le signal total linéaire et non linéaire sont donnés expérimentalement par

l'intégrale de l'intensité reçue pendant le temps d'exposition de deux caméras  $t$  :

$$\begin{cases} P_L = \int_t I(t) dt \\ P_{NL} = \int_t I(t)^2 dt \end{cases}$$

où, bien sur, le signal non linéaire est proportionnel à une constante près au carré de l'intensité. Avant modulation de l'onde incidente pour la focaliser en un point donné en transmission du milieu diffusant, les deux signaux ne sont que la somme des intensités des  $N_\omega$  grains de speckles. Pour simplifier nous normalisons l'amplitude d'un grain de speckle à 1 pour les deux

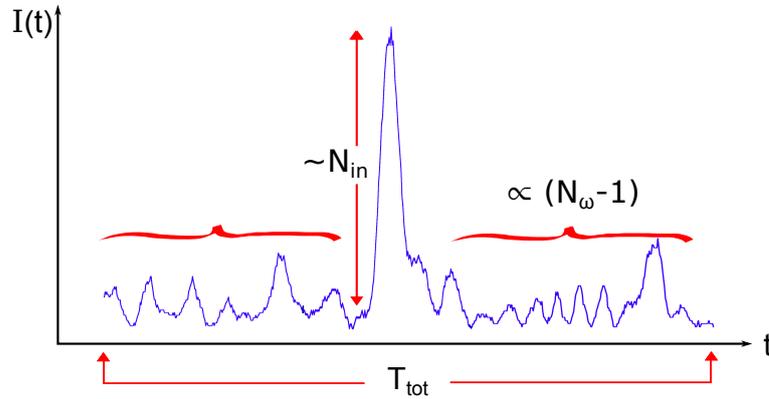


FIGURE 4.14 – **Schéma d'un speckle temporel après focalisation** : schéma explicatif de la courbe d'intensité d'un speckle temporel.  $T_{tot}$  est le temps total de l'impulsion à la sortie du milieu diffusant. Le speckle total est composé d'un nombre de grains proportionnel à  $N_\omega$ . Un grain est focalisé temporellement avec une valeur en intensité de l'ordre du nombre de degrés de liberté de contrôle  $N_{in}$  et supérieure à l'intensité des autres grains ( $N_\omega - 1$ ) qui composent le speckle de fond.

cas et nous avons :

$$\begin{cases} P_L \sim N_\omega \cdot 1 = N_\omega \\ P_{NL} \sim N_\omega \cdot 1^2 = N_\omega \end{cases}$$

Quand il y a focalisation spatio-temporelle, l'intensité d'un seul grain augmente proportionnellement au nombre de degrés de liberté de contrôle utilisés  $N_{in}$  (Fig. 4.14) comme nous avons vu dans la partie D du chapitre 2. Donc, chaque caméra recevra un signal de  $(N_\omega - 1)$  grains non optimisés (d'amplitude 1) et un grain de speckle temporel d'intensité  $\sim N_{in}$ . Donc nous aurons :

$$\begin{cases} P_L^{foc} \sim (N_\omega - 1) \cdot 1 + 1 \cdot N_{in} = N_\omega - 1 + N_{in} \\ P_{NL}^{foc} \sim (N_\omega - 1) \cdot 1^2 + 1 \cdot N_{in}^2 = N_\omega - 1 + N_{in}^2 \end{cases}$$

Selon la définition que nous avons donnée du ratio  $r$  nous avons :

$$r = \frac{\frac{P_{NL}^{foc}}{P_L^{foc}}}{\left(\frac{P_L^{foc}}{P_L}\right)^2} \sim \frac{N_\omega(N_\omega - 1 + N_{in}^2)}{(N_\omega - 1 + N_{in})^2}. \quad (4.18)$$

Nous avons alors que le ratio  $r$  pour  $N_{in} \gg N_\omega$  augmente avec  $N_\omega$  jusqu'à atteindre une valeur maximale pour  $N_\omega = N_{in} + 1$  qui donne un ratio  $r = \frac{(N_{in}+1)^2}{4N_{in}}$ . Quand par contre  $N_\omega$  devient élevé devant les degrés de liberté de contrôle,  $N_\omega \gg N_{in}$ , le ratio diminue jusqu'à 1 (pas de

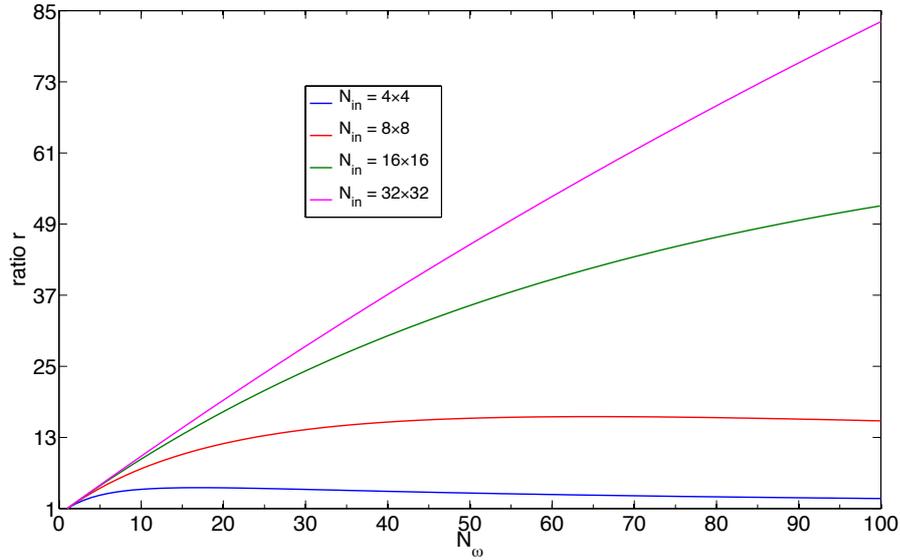


FIGURE 4.15 – *Courbe théorique de l'évolution du ratio  $r$  en fonction du nombre de degrés de liberté spectraux  $N_\omega$  : courbes du ratio  $r$  en fonction du nombre de degrés de liberté spectraux  $N_\omega$  pour des nombre  $N_{in}$  de degrés de liberté de contrôle divers. Pour un nombre très grand de  $N_\omega$  par rapport à la valeur  $N_{in}$  le ratio  $r$  tend asymptotiquement vers 1.*

focalisation temporelle). Ce résultat ne surprend pas : quand les degrés de liberté en entrée  $N_{in}$  sont partagés parmi un très grand nombre de degrés de liberté spectraux  $N_\omega$  la modulation du SLM n'est plus efficace. Nous remarquons aussi que dans le cas monochromatique ( $N_\omega = 1$ ) le ratio est  $r = 1$ .

Le fait que le rapport signal sur bruit de la focalisation temporelle croît avec  $N_\omega$  pour  $N_{in} \gg N_\omega$  a été démontré expérimentalement dans le cas d'un contrôle par optimisation : plus le milieu est diffusif, plus la focalisation temporelle est efficace [McCabe et al., 2011]. Dans notre cas expérimental, la faible fluorescence de la fluorescéine limite l'épaisseur des échantillons diffusants. Pour des  $N_\omega > 5$  la perte en intensité du milieu non linéaire demande des temps d'exposition de l'ordre de la dizaine de secondes, le système expérimental décorrèle alors après quelques mesures de focalisation et la statistique peut être faite sur une dizaine de réalisations seulement. De plus, puisque l'échantillon diffusant ainsi fin n'allonge pas considérablement l'impulsion et que la recompression ne peut pas être meilleure que la durée originale de l'impulsion avant d'être diffusée, le facteur de compression  $r$  varie entre 1,2 et 2. Au mieux, nous sommes alors capable de comprimer l'impulsion diffusée de la moitié.

Les échantillons de coumarine, dix fois plus fluorescents que la fluorescéine, ont permis des expériences avec des milieux diffusants caractérisés par des  $N_\omega \sim 10, 15$ . Cela a permis d'avoir pour chaque expérience plusieurs dizaines de réalisations avec des ratios moyens par expérience de 1,5 à 3 de compression temporelle.

Nous montrons en Fig. 4.16 une expérience de focalisation temporelle par MTMS pour un échantillon de  $N_\omega = 12$ . Par rapport au cas de focalisation temporelle détectée avec la fluorescéine dans le cas d'un échantillon de  $N_\omega = 5$  (Fig. 4.12), nous obtenons une focalisation temporelle plus accentuée avec un ratio moyen de 3,1 pour le même nombre de réalisations.

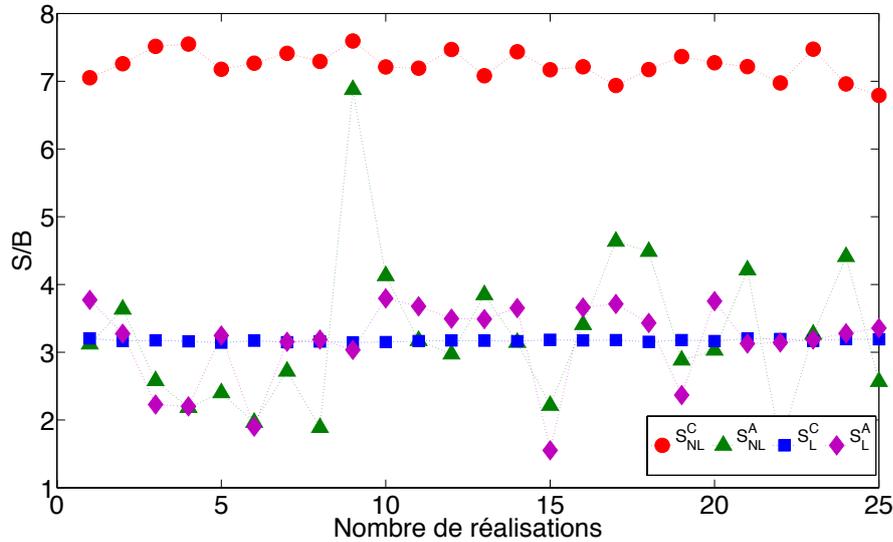


FIGURE 4.16 – **Focalisation en plusieurs réalisations avec un échantillon de coumarine** : évolution du RSB pour les signaux linéaires et non linéaires dans le cas de focalisation par phase relative constante et aléatoire est tracé en fonction du nombre des réalisations. Dans ce cas d'échantillon multi-diffusant épais de corrélation spectrale de 0,8 nm, nous avons mesuré une MTMS composée de 12 MTs. Le ratio  $r$  moyen est de 3,1.

Cela dit, ces valeurs sont très probablement sous-estimées. Comme nous l'avons déjà dit, les échantillons de coumarine ont une épaisseur de l'ordre de la centaine de micromètres et ils sont dix fois plus fluorescents. L'éclairage produit une excitation à deux photons de plusieurs couches du fluorophore. La tache focalisée est alors moyennée par un signal autour plus faible provenant d'autres strates.

Bien que ce même effet soit présent aussi dans le cas de la fluorescéine, il est tout de même limité par un épaisseur dix fois plus faible (20  $\mu\text{m}$ ) quand les échantillons sont préparés en capillaires.

#### B.4 Comparaison avec l'approche itérative

Pour vérifier l'efficacité du contrôle spatio-temporel par MTMS, nous pouvons comparer le ratio  $r$  obtenu par MTMS avec le contrôle par optimisation.

Nous avons implémenté un algorithme dit *de partition* [Vellekoop and Mosk, 2008]. Pour le comparer au cas d'une focalisation spatio-temporelle par MTMS, nous avons divisé l'écran du SLM en 256 macro-pixels indépendants, nombre égal aux degrés de liberté de contrôle utilisés pour la mesure de la MTMS. L'algorithme réalise d'abord une division aléatoire des 256 modes en deux parties grâce à l'affichage d'un premier vecteur d'Hadamard. Une moitié du SLM est modulée de façon constante pendant toute la première itération, l'autre partie est modulée de manière variable entre 0 et  $2\pi$ . Encore une fois, pour comparer l'optimisation à notre cas, nous avons fait varier la modulation de cette moitié du SLM en décalant le front d'onde quatre fois pour quatre phases distinctes entre 0 et  $\pi$  (équivalente à notre modulation

à quatre phases pour la mesure de MTMS). En sortie, pour ces quatre phases, l'amplitude du signal non linéaire en un point choisi varie et elle évolue de manière sinusoïdale avec les phases. Les données sont ajustées par une fonction  $\sin$  qui nous permet de remonter à la combinaison de phase optimale pour les 128 pixels qui permet de maximiser le signal. Cette étape marque la fin de la première itération.

Ensuite une deuxième itération se fait avec le deuxième vecteur d'une base d'Hadamard  $16 \times 16$  qui sélectionne une nouvelle moitié des pixels modulés avec les quatre phases. Ainsi de suite jusqu'à épuiser les 256 vecteurs.

Ce processus définit un masque de phase qui génère une augmentation d'intensité en un point choisi en sortie. Il peut être réinitialisé et répété de la même façon en partant du nouveau masque pour chercher à optimiser ultérieurement le signal.

En Fig. 4.17 nous montrons un résultat par optimisation sur un signal à deux photons d'un

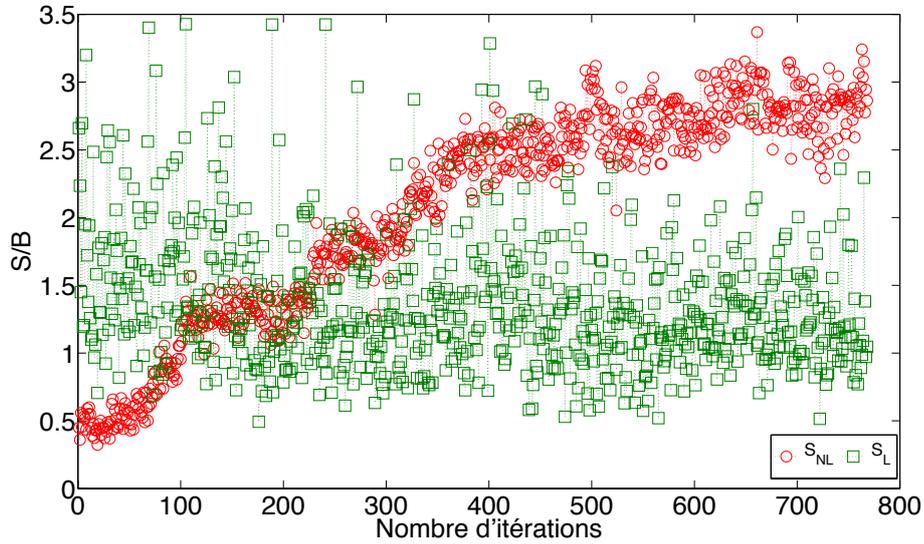


FIGURE 4.17 – **Focalisation par optimisation** : le RSB du signal non linéaire et linéaire sont tracés en fonction du nombre d'itérations de l'algorithme. Ce procédé dans cette réalisation a pris plusieurs heures pour atteindre à la 768ème itération un ratio  $r$  de 2,6. La valeur moyenne de  $r$  pour les dernières cinq mesures est de  $r = 2,2$ .

échantillon de fluorescéine après que la lumière ait traversé un milieu diffusant de  $N_\omega = 5$  (même configuration que dans l'expérience par MTMS de la Fig. 4.12).

Le  $r$  pour le cas d'optimisation a été calculé simplement comme le RSB du signal non linéaire ( $S_{NL}$ ) divisé par le RSB ( $S_L$ ) au carré du signal linéaire :

$$r^{opt} = \frac{S_{NL}}{S_L^2}. \quad (4.19)$$

Une première comparaison avec la focalisation par MTMS est que l'algorithme d'optimisation ne converge pas pour 256 itérations (à l'itération 256 le ratio est  $r = 0,5$ ). Après deux heures (768 itérations équivalant à trois répétitions du procédé pour une base d'Hadamard  $16 \times 16$ ), l'optimisation donne un ratio de  $r = 2,6$ .

La convergence par optimisation n'est pas déterministe : la fluorescéine génère un signal très

faible qui demande des temps d'intégration de l'ordre de 10 s et la décorrélation du système est trop rapide pour un seul cycle d'optimisation. Si l'algorithme ne trouve pas, par chance, une bonne combinaison de phase dans les premières itérations pour incrémenter le signal non linéaire de départ, l'optimisation peut tourner à vide pendant des heures sans jamais focaliser temporellement.

De plus, alors que la MTMS peut focaliser spatio-temporellement de manière rigoureuse en seulement 20 min pour 256 degrés de liberté de contrôle, l'optimisation ne donne pas une focalisation spatiale efficace à chaque réalisation (dans la réalisation montrée en Fig. 4.17 après 768 itérations le RSB du signal linéaire est d'environ 1,5).

Pour la même configuration de l'expérience de contrôle spatio-temporel sur un échantillon de fluorescéine, avec une référence stable, nous avons obtenu des focalisations temporelles de  $r \sim 2$  avec des focalisations spatiales de RSB autour de 15.

Donc, bien qu'une seule réalisation de contrôle par optimisation ne puisse pas nous donner une statistique pertinente pour quantifier l'efficacité de l'optimisation par rapport au contrôle par MTMS, nous pouvons toute fois en déduire que le contrôle spatial par optimisation n'est pas rigoureux à chaque réalisation comme dans le cas de la MTMS. L'optimisation a besoin d'un signal non linéaire de départ pour démarrer l'algorithme, alors que pour une compression temporelle par MTMS le signal non linéaire nous est indispensable pour la vérification de la compression uniquement. De plus, en considérant le fait que l'optimisation est faite sur un signal à deux photons, le contrôle temporel ne peut pas être séparé du contrôle spatial ce qui est, au contraire, possible dans le cas du contrôle par MTMS.

## Conclusion

La détection d'une compression temporelle n'est pas aussi simple que celle d'une focalisation spatiale, surtout si l'impulsion à vérifier est de l'ordre de la centaine de femtosecondes. Notre choix pour prouver qu'une mesure de MTMS peut contrôler une impulsion ultra-brève temporellement en plus de spatialement se porte sur une détection de signal non linéaire. En effet, l'excitation à deux photons est un processus inversement proportionnel à la durée de l'impulsion. Ce choix permet la vérification d'une compression temporelle.

Les fluorophores utilisés pour la génération du signal non linéaire ont été principalement la fluorescéine en solution et la coumarine. Cette dernière, bien qu'elle puisse générer un signal fluorescent dix fois plus intense, est composée de cristaux d'une centaine de micromètres. L'épaisseur considérable de ce type de fluorophore, produit, une fois éclairé, de la fluorescence prévenant de différents niveaux de profondeur en moyennant le signal non linéaire généré par focalisation qui en devient sous-estimé.

Nous nous sommes engagés pendant ces travaux à fabriquer des échantillons plus fins grâce à des solutions de fluorescéine en capillaires (20  $\mu\text{m}$ ) avec le désavantage d'une perte considérable d'émission fluorescente. Cela a limité par la suite l'utilisation d'échantillons diffusants avec une corrélation spectrale inférieure à 1,6 nm, correspondante à un nombre de degrés de liberté spectraux inférieur à  $N_\omega = 6$  pour notre source laser femtoseconde de 10 nm de largeur spectrale.

La recompression temporelle étant d'autant plus évidente pour de grands  $N_\omega$ , le faible signal fluorescent est une contrainte pour la détection des effets de compression sur des impulsions plus allongée.

Nous avons pu prouver l'efficacité du contrôle spatio-temporel par MTMS en modulant le faisceau à l'entrée d'un milieu multi-diffusant pour obtenir une impulsion 1,6 fois plus étroite que l'impulsion focalisée uniquement spatialement en transmission du milieu. Cette mesure, faite grâce au signal non linéaire généré par une solution de fluorescéine, a été possible pour un milieu diffusant de  $N_\omega = 6$ . Pour d'autres expériences de recompression, nous avons pu atteindre dans les mêmes conditions et pour un système très stable des ratios entre la durée de l'impulsion avant et après compression de l'ordre de 2.

Grâce à la forte fluorescence de la coumarine, nous avons pu pousser l'expérience pour des milieux encore plus diffusants ( $N_\omega = 12$ ) avec une compression, très probablement sous-estimée par le bruit fluorescent provenant d'autres strates du fluorophore, de 3,1.

De plus nous avons pu prouver un contrôle à la fois spatial et temporel de l'impulsion ultra-brève. Le contrôle par MTMS nous permet de séparer le contrôle spatial du temporel grâce à l'imposition de phases spectrales relatives voulues.

Nous avons trouvé intéressant de comparer le contrôle spatio-temporel par MTMS avec le cas d'une focalisation spatio-temporelle par optimisation. Nous avons confronté l'algorithme de partition utilisé dans des expériences de contrôle spatio-temporel par optimisation [Katz et al., 2011] pour un nombre de degrés de liberté de contrôle comparable à celui du cas de conjugaison de phase par MTMS.

La focalisation temporelle par optimisation prend plusieurs heures comparée au cas du contrôle par MTMS (20 min) et la convergence du procédé n'est pas assurée de manière déterministe

car l'algorithme (selon la chance de la partition) démarre parfois plus lentement que la décorrélation de l'image de speckle.

La différence d'acquisition dans les deux méthodes est due au fait que, tandis que dans le cas de l'optimisation un signal non linéaire de départ est fondamental pour démarrer l'algorithme, dans le cas du contrôle par MTMS, nous ne sommes pas obligés d'avoir un signal fluorescent de départ avant focalisation. Le temps d'exposition pour observer le signal non linéaire dans le cas de l'optimisation est bien supérieur au cas de focalisation par MTMS, par conséquent la durée totale de l'acquisition est une centaine de minutes plus longue.

La focalisation spatiale par optimisation n'est pas garantie à chaque réalisation car elle est faite sur un signal non linéaire qui dépend de la durée de l'impulsion. La focalisation spatiale par MTMS est garantie à chaque réalisation et elle peut être réalisée séparément de la focalisation temporelle si on le souhaite.



# Conclusion générale et perspectives

Ce travail de thèse a été effectué au sein de l'équipe COMEDIA (de l'acronyme anglais *Complex Media Investigation with Adaptive Optics*) de l'Institut Langevin. Ce travail étend le concept, déjà étudié au sein de l'équipe, de la matrice de transmission pour une onde monochromatique au cas plus général d'une onde ultra-brève.

Le milieu diffusant a la propriété de coupler les degrés de liberté spatiaux avec les degrés de liberté spectraux comme les degrés de liberté spatiaux avec les degrés de liberté temporels. Cette caractéristique du milieu n'est pas observable par la simple étude d'une source monochromatique. La matrice de transmission d'un milieu complexe nous renseigne sur la façon dont le milieu déforme spatialement la lumière cohérente à une longueur d'onde donnée.

Nous avons vu comment le milieu multi-diffusant applique une distorsion spatio-temporelle et spatio-spectrale quand il est traversé par une source cohérente ultra-brève à grande largeur spectrale. Ces distorsions restent couplées par le milieu qui applique des changements sur le champ incident sans séparer ses degrés de liberté spatiaux des temporels ou spectraux. Ce comportement du milieu complexe peut être décrit par une matrice, que nous avons mesurée et que nous avons appelée *matrice de transmission multi-spectrale*, qui explique les effets de couplage et distorsion spatiale, temporelle et spectrale induites sur une source ultra-brève.

Dans le chapitre 2 nous avons présenté le formalisme théorique de la matrice de transmission multi-spectrale et la façon de la mesurer. Nous avons décrit, en particulier, le montage expérimental qui permet d'accéder à une mesure de cette information du milieu. Nous avons donné l'explication théorique de comment à partir de la connaissance de cette matrice il est possible, par contrôle des degrés de liberté spatiaux de l'onde incidente uniquement, de façonner et contrôler spatialement, temporellement et spectralement un laser ultra-bref .

Ensuite, dans le chapitre 3 nous avons montré des résultats expérimentaux de contrôle spatio-spectral obtenus par des applications différentes de la matrice de transmission multi-spectrale. Nous avons montré comment, *via* l'acquisition de la matrice, nous pouvons contrôler spatialement de manière sélective une longueur d'onde à la fois. La possibilité de contrôler séparément longueur d'onde par longueur d'onde de manière sélective nous a permis une application plus élaborée de la matrice qui permet d'exploiter le milieu complexe comme réseau spectral pour une source polychromatique. Dans cette partie, nous avons vu comment il est possible de focaliser spatialement en un point l'onde polychromatique dans sa largeur spectrale totale en utilisant la connaissance de la matrice de transmission multi-spectrale.

Le chapitre 4 a été consacré aux résultats du contrôle spatio-temporel. Nous avons décrit le montage expérimental et la méthode de détection d'une compression temporelle d'une

impulsion ultra-brève. Nous avons montré des résultats expérimentaux de contrôle temporel pour des échantillons de différentes épaisseurs. La compression temporelle est d'autant meilleure que le milieu est dispersif. Nous avons comparé nos résultats aux résultats déjà obtenus dans ce domaine pour un contrôle spatio-temporel par optimisation du signal en sortie. La matrice de transmission multi-spectrale est une méthode unique pour un façonnage déterministe de l'onde diffusée. De plus elle nous fournit des informations fondamentales sur le milieu complexe.

Bien que le montage expérimental comme les premières mesures de matrice de transmission multi-spectrale et ses applications au contrôle spatio-temporel et spatio-spectral aient été réalisés pour la première fois au cours de cette thèse, le travail présente quelques limitations et inconvénients.

La mesure de la matrice de transmission multi-spectrale demande une stabilité du système de plusieurs minutes. Pour avoir la perte d'information la plus petite possible le système doit être stable pendant la mesure. Une mesure rapide diminue la probabilité de perte d'information. Aujourd'hui la mesure dure une vingtaine de minutes pour contrôler 10 longueurs d'onde différentes. Les multiples appareils contrôlés demandent un langage de programmation plus rapide et sophistiqué que celui employé pendant cette thèse (*MATLAB*). Ce langage ne permet pas une liberté de gestion de la mémoire de l'ordinateur comme l'expérimentateur en aurait effectivement besoin pour des mesures de matrices complexes très grandes. Le problème de stabilité limite inévitablement l'utilisation d'échantillons plus diffusifs, qui peuvent disperser un très grand nombre de longueurs d'onde ( $>10$ ) et qui permettraient des effets de compression temporelle beaucoup plus importants.

Le choix de détection par signal non linéaire, limite aussi la rapidité de l'expérience et l'emploi d'échantillons plus épais. Comme le signal non linéaire peut être très faible à la suite de la diffusion de la lumière en transmission d'un milieu complexe, les temps d'intégration du signal dépassent facilement la dizaine de secondes. Des méthodes qui ne dépendent pas de l'intégration du signal non linéaire, comme la détection de l'interférence entre une impulsion contrôlée et une de référence à l'aide d'un spectromètre, rendent la vérification de la compression temporelle sur plusieurs réalisations à la suite plus rapide avec la possibilité de démontrer la focalisation temporelle pour des échantillons plus diffusifs.

Cela dit, cette méthode déterministe peut être employée dans un futur très proche pour cibler des objets fluorescents ou émetteurs de photons uniques à l'intérieur de milieux diffusants. Elle pourra être utilisée pour contrôler spatio-temporellement la lumière ultra-brève de manière plus complexe que la simple focalisation en un point. Par exemple, la matrice de transmission multi-spectrale permet un contrôle temporel indépendant de celui spatial qui permettrait, par exemple, de focaliser un laser ultra-bref d'une centaine de femtosecondes en deux points spatiaux distincts tout en étant comprimé temporellement en ces deux points, ou encore pouvoir séparer l'impulsion limitée par transformée de Fourier en deux impulsions successives deux fois plus longue que la durée originale. D'autres manipulations possibles sont encore de mettre en phase différents groupes choisis de longueurs d'onde proches, faisant partie de la même bande spectrale de la source originale, pour en faire des sources ultra-brèves plus étendues en divers points spatiaux. Plus le milieu sera dispersif en longueur d'onde, plus le façonnage spatial, temporel et spectral d'un laser ultra-bref par matrice de transmission multi-spectrale sera varié.

# Annexes



## Annexe A

# Calibration du modulateur spatial de lumière

Le SLM Hamamatsu module le front d'onde en phase uniquement. Il convertit des valeurs de nuance de gris de l'écran dans l'échelle  $[0,255]$  en valeur de déphasage de phase  $[0,2\pi]$ . Pour calibrer cette conversion nous avons divisé la tache du faisceau qui éclaire le SLM en deux parties : une moitié modulée par une phase inconnue donnée par des valeurs de couleur différentes  $\alpha' = 0, 1, 2, \dots, 255$  entre  $[0,255]$ , l'autre moitié inchangée pour une valeur fixée de  $\alpha$  ( $\alpha = 0$  par exemple).

Pour être sûrs de moduler une moitié du faisceau, nous avons choisi de moduler l'écran entier

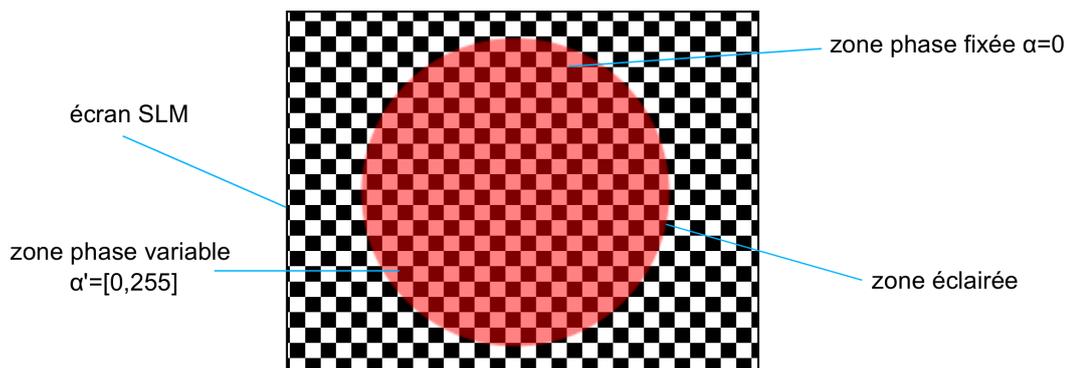


FIGURE A.1 – **Modulation du faisceau** : l'écran du SLM est divisé selon un damier avec un type de carreaux (groupe de pixels) à phase fixe  $\alpha$  et l'autre à phase variable  $\alpha'$  entre 0 et 255. De cette manière, le faisceau qui éclaire le SLM aura un front d'onde à moitié modulé et à moitié de phase constante.

du SLM en le divisant comme un damier. Une moitié des carreaux sera de phase fixée, l'autre moitié sera modulée entre  $[0,255]$  (Fig.A.1). Ainsi, le speckle en sortie du milieu aura un profil d'intensité donné par :

$$I^{tot} = I_{\alpha=0} + I_{\alpha'} + 2\sqrt{I_{\alpha=0}I_{\alpha'}}\cos(\alpha' - \alpha |_{=0}). \quad (A.1)$$

Si maintenant nous balayons la phase  $\alpha'$  entre 0 et 255, pour des valeurs du déphasage  $\Delta\alpha = \alpha' - \alpha$  identiques, la corrélation de l'image nous donnera  $C_s = 1$ . Donc si maintenant on trace la corrélation du speckle  $C_s$  en fonction du déphasage  $\Delta\alpha \in [0, 255]$ ,  $\alpha = 0$  nous obtiendrons la valeur de nuance de gris qui correspond à une période complète, c'est-à-dire à  $2\pi$  (Fig.A.2).

De cette manière nous avons une calibration des valeurs en nuance de gris qui génèrent un déphasage de l'onde incidente entre 0 et  $2\pi$ .

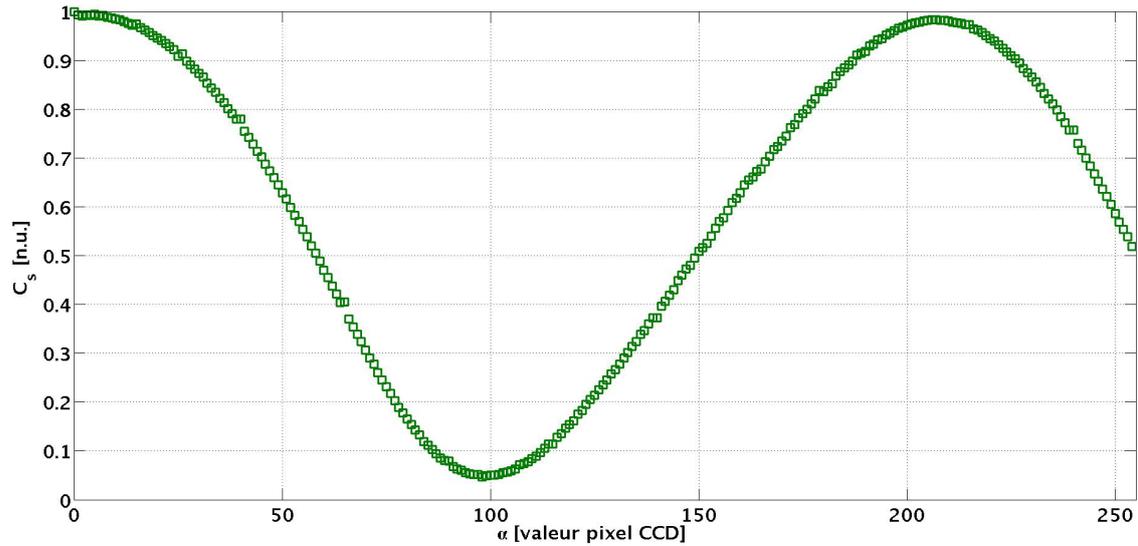


FIGURE A.2 – **Calibration** : corrélation de la figure de speckle ( $C_s$ ) en fonction du déphasage  $\alpha$  entre la partie non modulée du faisceau ( $\alpha'=0$ ) et la partie modulée ( $\alpha \in [0, 255]$ ). Les valeurs du déphasage sont ici exprimées en nuance de gris de la caméra CCD.

## Annexe B

# Détection de la position de la tache laser à l'écran du modulateur spatial de lumière

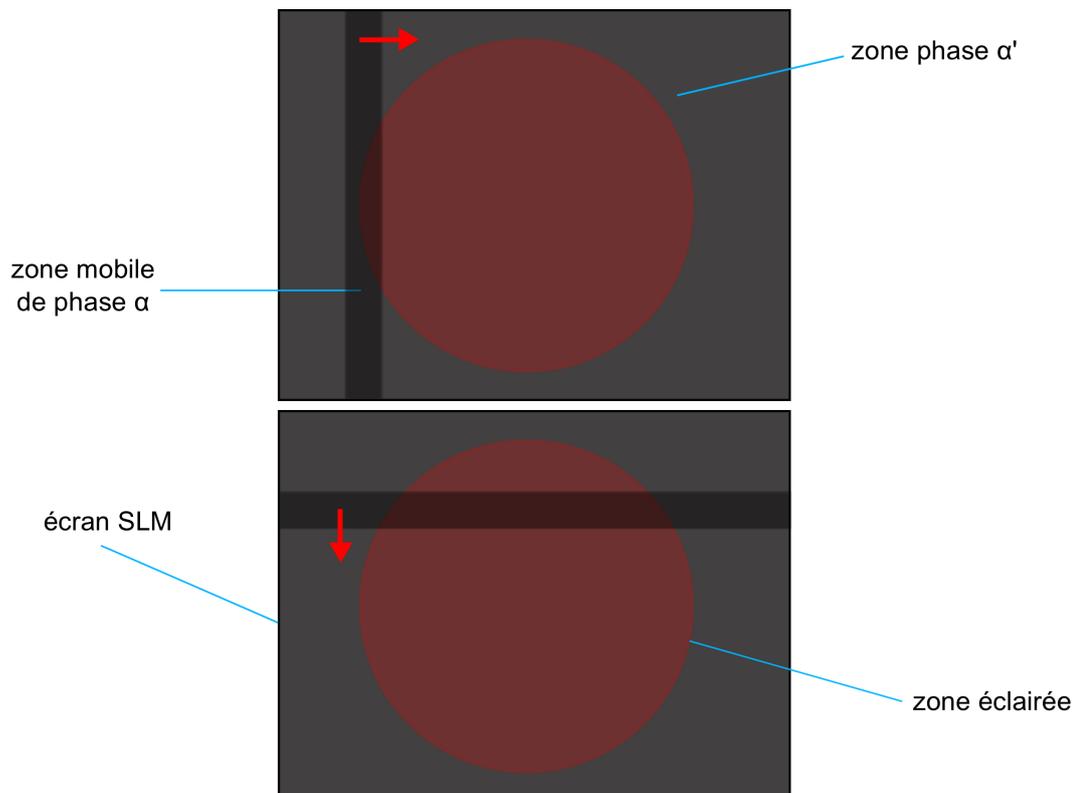


FIGURE B.1 – **Modulation du faisceau** : la phase de l'écran du SLM est fixé à  $\alpha'$  et une bande de pixels à phase  $\alpha$  est déplacée horizontalement (en haut, de gauche à droite) et verticalement (en bas, de haut en bas).

Cette annexe présente une méthode permettant le positionnement de la tache laser au

centre de l'écran du SLM, afin d'en réaliser la modulation complète. Cette méthode est particulièrement utile dans le cas des sources laser dans le proche infrarouge qui sont difficiles à centrer car invisible à l'œil nu.

Le protocole est similaire à celui de l'Annexe A : dans ce cas nous balayons spatialement une bande de pixels de phase  $\alpha$  différente de la phase  $\alpha'$  appliquée par le SLM dans le reste de l'écran. La bande se déplace dans les deux dimensions du SLM, horizontalement de gauche à droite et verticalement de haut en le bas. Quand la bande se situe dans une zone qui n'est pas éclairée par le laser, la figure de speckle observée sera inchangée. Par contre, quand la bande de pixels se déplace sur la tache laser, le speckle en sortie changera plus au moins selon que cette bande module avec une phase différente une grande ou une petite partie du faisceau. La figure de speckle sera alors plus ou moins décorrélée.

Le centre de la tache laser se situe au maximum de la décorrélation de la figure de speckle.

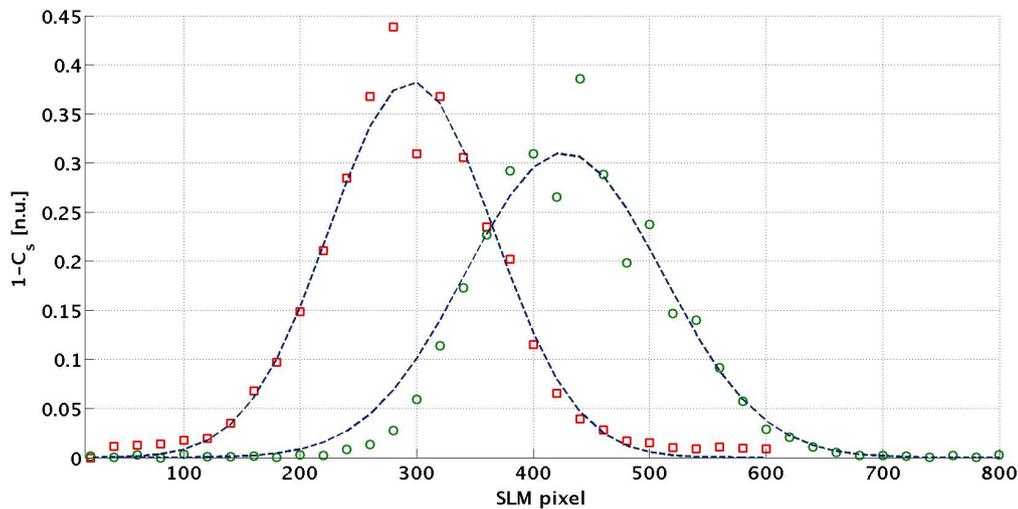


FIGURE B.2 – **Détection de la position du faisceau** : pour faciliter l'interprétation, la corrélation inversée ( $1-C_s$ ) est tracée en fonction des pixels du SLM pour une détection de la position du faisceau. La corrélation diminue à proximité du centre du faisceau. Les données ont été ajustées par une fonction Gaussienne : nous remarquons que la courbe de données rouges (ou  $\square$ ) se place entre  $y \in [0,600]$  (la dimension longitudinale du SLM) et la verte (ou  $\circ$ ) entre  $x \in [0,800]$  (la dimension transversale du SLM). Donc selon ces données le centre du faisceau se trouve aux alentours des coordonnées  $(x,y)=(430,300)$ .

# Bibliographie

## A

---

- [Akkermans, 2011] Akkermans, E. (2011). *Mesoscopic Physics of Electrons and Photons*. Cambridge University Press.
- [Aulbach et al., 2011] Aulbach, J., Gjonaj, B., Jhson, P. M., Mosk, A., and Lagendijk, A. (2011). Control of light transmission through opaque scattering media in space and time. *Physical Review Letters*, 106(103901).

## B

---

- [Beenakker, 1997] Beenakker, C. (1997). Random-matrix theory of quantum transport. *Reviews of Modern Physics*, 69(3) :731–803.
- [Born and Wolf, 1964] Born, M. and Wolf, E. (1964). *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Oxford, Pergamon Press.
- [Boyd, 2003] Boyd, R. W. (2003). *Nonlinear Optics*. Academic Press.

## C

---

- [Carpenter and Wilkinson, 2012] Carpenter, J. and Wilkinson, T. D. (2012). Characterization of multimode fiber by selective mode excitation. *Journal of lightwave technology*, 30(10) :1386.
- [Chaigne et al., 2014] Chaigne, T., Katz, O., Boccara, A. C., Fink, M., Bossy, E., and Gigan, S. (2014). Controlling light in scattering media non-invasively using the photoacoustic transmission matrix. *Nature Photonics*, 8 :58–64.
- [Cižmár and Dholakia, 2011] Cižmár, T. and Dholakia, K. (2011). Shaping the light transmission through a multimode optical fibre : complex transformation analysis and applications in biophotonics. *Optics Express*, 19(18871-18884).
- [Curry et al., 2011] Curry, N., Bondareff, P., Leclercq, M., Van Hulst, N. F., Sapienza, R., Gigan, S., and Grésillon, S. (2011). Direct determination of diffusion properties of random media from speckle contrast. *Optics Letters*, 36 :3.

## D

---

- [Derode et al., 1999] Derode, A., Tourin, A., and Finck, M. (1999). Ultrasonic pulse compression with one-bit time reversal through multiple scattering. *Journal Applied Physics*, 85(6343).

- [Dubois et al., 2008] Dubois, A., Vabre, L., Boccara, C. A., and Beaufrepaire, E. (2008). High-resolution full-field optical coherence tomography with a linnik microscope. *Applied Optics*, 41(4) :110–115.
- [Dunsby and French, 2003] Dunsby, C. and French, P. M. W. (2003). Techniques for depth-resolved imaging through turbid media including coherence-gated imaging. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 36 :R207–R227.

## E

---

- [Efron et al., 1986] Efron, U., Wu, S. T., and Bates, T. D. (1986). Nematic liquid crystals for spatial light modulators : recent studies. *Journal of optics society of America*, 3(2) :247–252.
- [Emmart, 1958] Emmart, E. W. (1958). Observations on the absorption spectra of fluorescein, fluorescein derivatives and conjugates. *Archives of Biochemistry and Biophysics*, 73(1-8).

## F

---

- [Faez et al., 2009] Faez, S., Johnson, P. M., and Legendijk, A. (2009). Varying the effective refractive index to measure optical transport in random media. *Physical review letters*, 103(053903).
- [Fink, 2008] Fink, M. (2008). Time reversed acoustics. *Physics Today*, 50(34-40).

## G

---

- [García et al., 2007] García, P. D., Sapienza, R., Blanco, A., and López, C. (2007). Photonic glass : A novel random material for light. *Advanced Materials*, 19(18).
- [Goepfert-Mayer, 1931] Goepfert-Mayer, M. (1931). Über elementarakte mit zwei quantensprünge. *Annals of Physics*, 9(3).
- [Goetschy and Stone, 2013] Goetschy, A. and Stone, D. (2013). Filtering random matrices : The effect of incomplete channel control in multiple scattering. *Physical Review Letters*, 111(063901).
- [Goodman, 1976] Goodman, J. (1976). Some fundamental properties of speckle. *Journal of the Optical Society of America*, 66(11) :1145–1150.
- [Goodman, 2010] Goodman, J. (2010). *Speckle Phenomena in Optics*. Roberts and Company Publishers.
- [Gross et al., 2003] Gross, M., Goy, P., and Al-Koussa, M. (2003). Shot-noise detection of ultrasound-tagged photons in ultrasound-modulated optical imaging. *Optics Letters*, 28(24) :2482–2484.
- [Gross et al., 2005] Gross, M., Goy, P., Forget, B. C., Atlan, M., Boccara, A. C., and Dunn, A. K. (2005). Heterodyne detection of multiply scattered monochromatic light with a multipixel detector. *Optics Letters*, 30(11) :1357–1359.
- [Günter and Huignard, 1989] Günter, P. and Huignard, J.-P. (1989). *Photorefractive materials and their applications I & II*. Springer Verlag.

---

**H**

---

- [He, 2002] He, G. S. (2002). Optical phase conjugation : principes techniques, and applications. *Progress in Quantum Electronics*, 26 :131–191.
- [Hsieh et al., 2010] Hsieh, C.-L., Pu, Y., Grange, R., and Psaltis, D. (2010). Digital phase conjugation of second harmonic radiation emitted by nanoparticles in turbid media. *Optics Express*, 18(12) :12283.
- [Huyghens, 1690] Huyghens, C. (1690). *Traité de la lumière*. Leyden.

---

**I**

---

- [Ishimaru, 1978] Ishimaru, A. (1978). *Wave Propagation and Scattering in Random Media*. Academic Press.

---

**K**

---

- [Kaiser and Garrett, 1961] Kaiser, W. and Garrett, C. G. B. (1961). Two-photon excitation in  $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$ . *Physical Review Letters*, 7(6).
- [Katz et al., 2011] Katz, O., Small, E., Bromberg, Y., and Silberberg, Y. (2011). Focusing and compression of ultrashort pulses through scattering media. *Nature Photonics*, 5(72).
- [Kogelnik, 1965] Kogelnik, H. (1965). Holographic image projection through inhomogeneous media. *B.S.T.J. Briefs*, pages 2451–2455.
- [Konforti, 1988] Konforti, N. (1988). Phase-only modulation with twisted nematic liquid-crystal spatial light modulators. *Optics Letters*, 13(3) :251–253.
- [Korotkova, 2013] Korotkova, O. (2013). *Random Light Beams : Theory and Applications*. CRC Press.

---

**L**

---

- [Lakowicz, 2011] Lakowicz, J. R. (2011). *Principles of Fluorescence Spectroscopy*. Springer.
- [Leith and Uptnieks, 1966] Leith, E. N. and Uptnieks, J. (1966). Holographic imagery through diffusing media. *Journal of the optical society of America*, 56(4) :523.
- [Lemoult et al., 2009] Lemoult, F., Lerosey, G., de Rosny, J., and Fink, M. (2009). Manipulating spatiotemporal degrees of freedom of waves in random media. *Physical Review Letters*, 103(17).
- [Liu and Zhou, 2005] Liu, W. and Zhou, C. (2005). Femtosecond laser speckles. *Applied Optics*, 44 :5.

---

**M**

---

- [MacKintosh et al., 1989] MacKintosh, F. C., Zhu, J. K., Pine, D. J., and Weitz, D. A. (1989). Polarization memory of multiply scattered light. *Physical Review B*, 40(13).
- [McCabe et al., 2011] McCabe, D. J., Tajalli, A., Austin, D. R., Bondareff, P., Walmsley, I. A., Gigan, S., and Chatel, B. (2011). Spatio-temporal focusing of an ultrafast pulse through a multiply scattering medium. *Nature Communications*, 2(447).
- [Mie, 1908] Mie, G. (1908). Observation of squeezed states with strong photon-number oscillations. *Annalen der Physik*, 330(3) :377–445.

[Monmayrant et al., 2010] Monmayrant, A., Weber, S., and Chatel, B. (2010). A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization. *Journal of Physics B*, 43(103001).

[Myaing et al., 2006] Myaing, M. T., MacDonald, D. J., and Li, X. (2006). Fiber-optic scanning two-photon fluorescence endoscope. *Optics Letters*, 31(8) :1076.

## O

---

[Ozcan et al., 2007] Ozcan, A., Bilenca, A., Desjardins, A. E., Bouma, B. E., and Tearney, G. J. (2007). Speckle reduction in optical coherence tomography images using digital filtering. *Optics Letters*, 24(7) :1901–1910.

## P

---

[Paciaroni and Linne, 2004] Paciaroni, M. and Linne, M. (2004). Single-shot, two-dimensional ballistic imaging through scattering media. *Applied Optics*, 43(26) :5100–5109.

[Papadopoulos et al., 2012] Papadopoulos, I. N., Farahi, S., Moser, C., and Psaltis, D. (2012). Focusing and scanning light through a multimode optical fiber using digital phase conjugation. *Optics Express*, 20(10) :10583.

[Papas, 1965] Papas, C. (1965). *Theory of electromagnetic wave propagation*. McGraw-Hill New York.

[Park et al., 2012] Park, J.-H., Park, C. H., Yu, H., Cho, Y.-H., and Park, Y. K. (2012). Active spectral filtering through turbid media. *Optics Letters*, 37(15).

[Popoff et al., 2010a] Popoff, S., Lerosey, G., Carminati, R., Fink, M., Boccara, A. C., and Gigan, S. (2010a). Measuring the transmission matrix in optics : an approach to study and control of light propagation in disordered media. *Physical Review Letters*, 104 :1000601.

[Popoff et al., 2010b] Popoff, S., Lerosey, G., Fink, M., Boccara, A. C., and Gigan, S. (2010b). Image transmission through an opaque material. *Nature communications*, 1 :81.

[Popoff, 2011] Popoff, S. M. (2011). *Contrôle spatio-temporel de la lumière en milieux complexes*. PhD thesis, Université Paris 7, Denis Diderot.

[Popoff et al., 2011] Popoff, S. M., Aubry, A., Lerosey, G., Fink, M., Boccara, A. C., and Gigan, S. (2011). Exploiting the time-reversal operator for adaptive optics, selective focusing, and scattering pattern analysis. *Physical Review Letters*, 107(263901).

[Popoff et al., 2014] Popoff, S. M., Goetschy, A., Liew, S. F., Stone, A. D., and Cao, H. (2014). Coherent control of total transmission of light through disordered media. *Physical Review Letters*, 112(133903).

[Prada and Fink, 1994] Prada, C. and Fink, M. (1994). Eigenmodes of the time reversal operator : A solution to selective focusing in multiple-target media. *Wave Motion Journal*, 20(151-163).

## R

---

[Redding et al., 2013] Redding, B., Liew, S. F., Sarma, R., and Cao, H. (2013). Compact spectrometer based on a disordered photonic chip. *Nature Photonics*, 7.

[Reynolds and Drexhage, 1975] Reynolds, G. A. and Drexhage, K. H. (1975). New coumarin dyes with rigidized structure for flashlamp-pumped dye lasers. *Optics communications*, 13(3).

- [Rueckel et al., 2006] Rueckel, M., Mack-Bucher, J. A., and Denk, W. (2006). Adaptive wavefront correction in two-photon microscopy using coherence-gated wavefront sensing. *PNAS*, 103(46) :17137–17142.
- [Rullière, 2004] Rullière, C. (2004). *Femtosecond Laser Pulses : Principles and Experiments*. Springer.

## S

---

- [Sala et al., 1980] Sala, K., Kenney-Wallace, G., and Hall, G. (1980). Cw autocorrelation measurements of picosecond laser pulses. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 16(9).
- [Saleh and Teich, 1991] Saleh, B. E. A. and Teich, M. C. (1991). *Fundamentals of Photonics*. John Wiley and sons, Inc.
- [Simon et al., 2001] Simon, H. S., Moustakas, A. L., Stoytchev, M., and Safar, H. (2001). Communication in a disordered world. *Physics Today*, 54(9) :38.
- [Small et al., 2012] Small, E., Katz, O., Guan, Y., and Silberberg, Y. (2012). Spectral control of broadband light through random media by wavefront shaping. *Optics Letters*, 37(16).
- [Strutt, 1871] Strutt, J. (1871). On the scattering of light by small particles. *Philosophical Magazine*, 41(4) :447–454.

## T

---

- [Thompson et al., 1997] Thompson, C., Webb, K., and Weiner, A. (1997). Diffusive media characterization with laser speckle. *Applied Optics*, 36 :9.
- [Thouless, 1977] Thouless, D. J. (1977). Maximum metallic resistance in thin wires. *Physical Review Letters*, 39(18) :1167.
- [Tyson, 2010] Tyson, R. (2010). *Principles of Adaptive Optics*. CRC Press.

## V

---

- [van Beijnum et al., 2011] van Beijnum, F., van Putten, E. G., Lagendijk, A., and Mosk, A. P. (2011). Frequency bandwidth of light focused through turbid media. *Optics letters*, 36(3).
- [Van Tiggelen et al., 1999] Van Tiggelen, B. A., Sebbah, P., Stoytchev, M., and Genack, A. Z. (1999). Delay-time statistic for diffuse waves. *Physical Review E*, 59(6).
- [Vellekoop et al., 2010] Vellekoop, I., Lagendijk, A., and Mosk, A. (2010). Exploiting disorder for perfect focusing. *Nature Photonics*, 4(320-322).
- [Vellekoop and Mosk, 2007] Vellekoop, I. and Mosk, A. (2007). Focusing coherent light through opaque strongly scattering media. *Optics Letters*, 32(12) :2309–2311.
- [Vellekoop and Mosk, 2008] Vellekoop, I. and Mosk, A. (2008). Phase control algorithms for focusing light through turbid media. *Optics Communications*, 281(3071-3080).
- [Vellekoop et al., 2008] Vellekoop, I., Van Putten, E., Lagendijk, A., and Mosk, A. (2008). Demixing light paths inside disordered metamaterials. *Optics Express*, 16(67-80).
- [Vellekoop, 2008] Vellekoop, I. M. (2008). *Controlling the propagation of light in disordered scattering media*. PhD thesis, University of Twente.
- [Vogel et al., 2005] Vogel, A., Noack, J., Hüttman, G., and Paltauf, G. (2005). Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues. *Applied Physics B*, 81 :1015–1047.

**W**

---

[Wu and Yang, 2001] Wu, S.-T. and Yang, D.-K. (2001). *Reflective Liquid Crystal Displays*. Wiley.

**X**

---

[Xu and Webb, 1996] Xu, C. and Webb, W. W. (1996). Measurement of two-photon excitation cross section of molecular fluorophores with data from 690 to 1050 nm. *Journal of Optical Society of America*, 13(3).

[Xu et al., 2011] Xu, X., Liu, H., and Wang, L. V. (2011). Time-reversed ultrasonically encoded optical focusing into scattering media. *Nature Photonics*, 5 :154–157.

**Y**

---

[Yaqoob et al., 2002] Yaqoob, Z., Psaltis, D., Feld, M. S., and Yang, C. (2002). Optical phase conjugation for turbidity suppression in biological samples. *Nature Photonics*, 2 :805–812.

[Yariv, 1978] Yariv, A. (1978). Phase conjugate optics and real-time holography. *Journal of quantum electronics*, 14(9) :650–660.

**Z**

---

[Zehnder, 1891] Zehnder, L. (1891). Ein neuer interferenzrefraktor. *Zeitschrift für Instrumentenkunde*, 11 :11.

[Zel'Dovich et al., 1985] Zel'Dovich, B., Pilipetsky, N., and Shkunov, V. (1985). *Principles of Phase Conjugation*. Springer Series in Optical Sciences.

[Zewail, 2000] Zewail, A. H. (2000). Femtochemistry : atomic-scale dynamics of the chemical bond. *The Journal of Physical Chemistry A*, 104 :5660–5694.

[Zipfel et al., 2003] Zipfel, W. R., Williams, R. M., and Webb, W. W. (2003). Nonlinear magic : multiphoton microscopy in the biosciences. *Nature Biotechnology*, 21 :1369–1377.

