



**HAL**  
open science

# Débruitage, alignement et reconstruction 3D automatisés en tomographie électronique – Applications en Sciences des Matériaux

Tony Printemps

► **To cite this version:**

Tony Printemps. Débruitage, alignement et reconstruction 3D automatisés en tomographie électronique – Applications en Sciences des Matériaux. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Joseph Fourier - Grenoble, 2016. Français. NNT : . tel-01521556

**HAL Id: tel-01521556**

**<https://theses.hal.science/tel-01521556v1>**

Submitted on 11 May 2017

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

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

# THÈSE

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **Nanoscience**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

**Tony PRINTEMPS**

Thèse dirigée par **Lionel HERVE** et  
codirigée par **Pierre BLEUET**

préparée au sein du **Laboratoire d'Electronique et des  
Technologies de l'Information (CEA / Léti, Grenoble)**

dans l'**École Doctorale de Physique de Grenoble**

## **Débruitage, alignement et reconstruction 3D automatisés en tomographie électronique – Applications en Sciences des Matériaux**

**Soutenance de thèse réalisée le 24/11/2016**

devant le jury composé de :

**Pr. Laurent DESBAT**

Professeur, Université Joseph Fourier Grenoble, (Président du jury)

**Dr. Thierry EPICIER**

Directeur de Recherches CNRS, MATEIS INSA Lyon, (Rapporteur)

**Dr. Jean-Luc STARCK**

Directeur de Recherches, CEA Saclay (Rapporteur)

**Dr. Sergio MARCO**

Directeur de Recherches, Institut Curie (Membre)

**Dr. Lionel HERVE**

Ingénieur de recherche, CEA Grenoble (Directeur de thèse)

**Dr. Pierre BLEUET**

Ingénieur de recherche, CEA Grenoble (Encadrant de thèse)





# REMERCIEMENTS

Sans parvenir à être exhaustif, je souhaiterais remercier de tout cœur toutes celles et ceux qui m'ont aidé au cours de ces trois années de thèse : mes amis et collègues, ma famille et Céline avec qui j'ai vécu trois merveilleuses années à Grenoble.

Plus particulièrement, je voudrais remercier mon tuteur Pierre Bleuet qui a su me faire confiance et m'encourager au cours de cette thèse. J'ai conscience de la chance d'avoir eu un encadrant avec autant de qualités humaines, capable de s'adapter aux différentes personnalités de ses étudiants. J'aimerais également remercier mon directeur de thèse, Lionel Hervé pour son aide et son soutien pour la partie plus mathématique et algorithmique de ce travail. Enfin, je voudrais remercier les différents microscopistes grâce auxquels j'ai pu apprendre à utiliser un microscope électronique en transmission. Merci ainsi à Vincent, Nicolas et Georg de m'avoir formé. Merci également à Zineb et Isabelle de m'avoir aidé et relayé aux cours d'acquisitions pendant de longues heures passées au microscope. Puisque rien n'est possible sans une préparation d'échantillon adaptée, merci à Guillaume de m'avoir formé au FIB. Merci également, à Guido Mula de l'université de Cagliari en Italie, pour sa disponibilité, son implication et les échanges fructueux que nous avons eus et qui ont permis des résultats prometteurs sur des échantillons de silicium poreux. Merci enfin, à Frédéric et Kévin de STMicroelectronics de m'avoir procuré des données pour que je puisse tenter d'appliquer les traitements que je propose à d'autres échantillons.

Ces trois années n'auraient pas été les mêmes sans la bonne humeur et l'ambiance formidable qui ont régné au sein de la plateforme de nano-caractérisation du CEA Grenoble. Merci ainsi à mes collègues et amis, stagiaires, thésards, post-doctorants et permanents pour ces bons moments passés au travail et en dehors. Charlotte, Arnaud, Éric, Guillaume, Sylvain, David, Tanguy, Gaël, Luis, Seif, Munique, Julien, Vincent, Ben, Rémi, Nicolas, etc. Merci à vous pour tous ces bons moments autour d'un café, d'un verre, d'une table de billard, d'un jeu de fléchettes, d'un ballon de foot... Merci aussi à tous les collègues du LTBS, Giacomo, Hadrien, Maxime, Vivian, Thibaut, Charlotte, etc.

Merci enfin à ma famille et belle-famille de m'avoir soutenu. Merci en particulier d'être venu assister à nos soutenances de thèse et de nous avoir aidés à tout préparer pour terminer la thèse sur une note festive. Malgré les kilomètres qui nous séparent, ces trois années ont été superbes grâce à vous et à l'arrivée de Louise et Noélia qui ont apporté encore plus de joie et de bonne humeur à cette famille.



# SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE.....	11
----------------------------	----

CHAPITRE I - CONTEXTE GENERAL .....	17
-------------------------------------	----

<b>1) Les nanotechnologies .....</b>	<b>18</b>
I. 1. a. Les nanotechnologies .....	19
I. 1. b. Quelques exemples de nanomatériaux.....	23
I. 1. c. La caractérisation souvent indispensable.....	26
<b>2) Méthodes de nano-caractérisation 3D .....</b>	<b>27</b>
I. 2. a. À chaque échelle sa méthode .....	27
I. 2. b. La tomographie basée sur des projections .....	28
I. 2. c. Les méthodes de tomographie destructives .....	32
<b>3) Traitement du signal appliqué à l'imagerie 2D et 3D.....</b>	<b>36</b>
I. 3. a. Nécessité du traitement du signal.....	36
I. 3. b. La parcimonie .....	38
I. 3. c. Transformées multi-échelles .....	41
I. 3. d. Débruitage.....	44
I. 3. e. Acquisition comprimée ( <i>Compressed Sensing</i> - CS) .....	52

CHAPITRE II - TOMOGRAPHIE ELECTRONIQUE ET PROBLEMES INVERSES.....	55
---	----

<b>1) Reconstructions analytiques et algébriques .....</b>	<b>56</b>
II. 1. a. Projections et transformée de Radon .....	57
II. 1. b. Les reconstructions analytiques .....	62
II. 1. c. Les reconstructions algébriques .....	63
<b>2) Système sous-déterminé et inversion sous contraintes .....</b>	<b>68</b>
II. 2. a. Un système extrêmement sous-déterminé.....	68
II. 2. b. Inversion sous contraintes .....	70
<b>3) Microscopie électronique en transmission .....</b>	<b>74</b>
II. 3. a. Pourquoi utiliser des électrons ? .....	74
II. 3. b. Fonctionnement simplifié de la microscopie électronique en transmission .....	75
II. 3. c. La préparation d'échantillon .....	80
<b>4) Modes de contrastes compatibles avec la tomographie électronique .....</b>	<b>83</b>
II. 4. a. Exigence de projection .....	83
II. 4. b. La tomographie HAADF .....	85
II. 4. c. La tomographie IBF.....	86
II. 4. d. La tomographie analytique .....	88

## **CHAPITRE III - VERS UNE AUTOMATISATION DE LA TECHNIQUE .....91**

<b>1) Débruitage adaptatif, alignement et reconstruction en tomographie électronique en science des matériaux.....</b>	<b>92</b>
III. 1. a. Abstract .....	94
III. 1. b. Introduction.....	94
III. 1. c. Materials and methods.....	96
III. 1. d. Results .....	107
III. 1. e. Discussion .....	112
III. 1. f. Conclusions .....	114
<b>2) Le logiciel GUIDAR.....</b>	<b>115</b>

## **CHAPITRE IV - ÉLARGISSEMENT DE LA TECHNIQUE .....117**

<b>1) Estimation et amélioration de la résolution .....</b>	<b>118</b>
IV. 1. a. Estimation de la résolution .....	119
IV. 1. b. Impact des algorithmes sur la reconstruction .....	122
<b>2) Vers une extension de la taille des échantillons.....</b>	<b>135</b>
IV. 2. a. Les limites au niveau de la taille de l'échantillon.....	135
IV. 2. b. Correction de la non-linéarité.....	137
IV. 2. c. Amélioration de la résolution par focus multiple.....	142
<b>3) S'adapter aux échantillons à faible tenue sous le faisceau d'électrons à l'aide d'un alignement non-rigide .....</b>	<b>150</b>
IV. 3. a. Abstract .....	151
IV. 3. b. Introduction .....	151
IV. 3. c. Materials and methods .....	152
IV. 3. d. Results.....	156
IV. 3. e. Discussion.....	160
IV. 3. f. Conclusions .....	161
IV. 3. g. Acknowledgment .....	161

## **CHAPITRE V - TOMOGRAPHIE ANALYTIQUE..... 163**

<b>1) Reconstructions 3,5D d'éléments chimiques .....</b>	<b>164</b>
V. 1. a. Présentation des échantillons .....	165
V. 1. b. Acquisition des données de tomographie .....	167
<b>2) Adapter les méthodes précédentes au STEM EDX.....</b>	<b>172</b>
V. 2. a. Exploiter la série hyperspectrale pour le débruitage.....	172
V. 2. b. Exploiter la série hyperspectrale pour l'alignement.....	176
<b>3) Comparaison des techniques hyperspectrale et simple et résultats 3D.....</b>	<b>179</b>
V. 3. a. Débruitages hyperspectral et simple .....	179
V. 3. b. Alignements hyperspectral et simple .....	182
V. 3. c. Résultats 3D.....	185
V. 3. d. Conclusions .....	191

SOMMAIRE

**CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES .....193**

**ANNEXES .....199**





## GLOSSAIRE

$\mathbb{A}$	Matrice de projection
${}^t\mathbb{A}$	Matrice transposée de la matrice $\mathbb{A}$
$\ln$	Logarithme népérien
$\log_{10}$	Logarithme base 10
$\mathcal{M}_{P,N}(E)$	Ensemble des matrices de taille $P \times N$ dans le corps $E$
$\mathbb{R}$	Ensemble des réels
$\mathbb{R}^+$	Ensemble des réels positifs
$\mathbb{R}^{++}$	Ensemble des réels strictement positifs
$\Phi$	Fonction d'acquisition, donnant le contraste mesuré en fonction de la transformée de Radon de la quantité physique à reconstruire.
$\Phi^{-1}$	Bijection réciproque de la fonction d'acquisition
$A_M$	Ensemble des profondeurs de focalisation pour $M$ acquisitions
$S_{dur}$	Opérateur de seuillage mou
$S_{dur}$	Opérateur de seuillage dur
$\mathcal{C}^j$	Approximation à l'échelle $j$ obtenue par une transformée en ondelettes
$\mathcal{W}_j^D$	Détails diagonaux à l'échelle $j$ d'une transformée en ondelettes
$\mathcal{W}_j^H$	Détails horizontaux à l'échelle $j$ d'une transformée en ondelettes
$\mathcal{W}_j^V$	Détails verticaux à l'échelle $j$ d'une transformée en ondelettes
$\lambda_e$	Longueur d'onde des électrons
ADF	<i>"Annular Dark Field"</i>
ART	<i>"Algebraic Reconstruction Technique"</i>
ASTRA	Boite à outils <i>"All Scale Tomography Reconstruction Antwerp"</i>
BF	<i>"Bright Field"</i>
CS	<i>"Compressed Sensing"</i> (acquisition comprimée)
EDX ou EDS	<i>"Energy Dispersive X-ray Spectroscopy"</i>
EELS	<i>"Energy Electron Loss Spectroscopy"</i>
EFTEM	<i>"Energy Filtered TEM"</i>
EST	<i>"Equally Sloped Tomography"</i>
$\mathcal{F}[\cdot]$	Opérateur transformée de Fourier
FIB	<i>"Focused Ion Beam"</i>
HAADF	<i>"High Angle Annular Dark Field"</i>
HEMT	<i>"High Electron Mobility Transistor"</i>
K	Nombre d'éléments non-nuls dans une représentation parcimonieuse

NRA	" <i>Non Rigid Alignment</i> " = alignement non-rigide
NRM	" <i>Non Rigid Misalignment</i> " = erreur d'alignement non-rigide
PSNR	" <i>Peak Signal to Noise Ratio</i> "
$\mathcal{R}$	Opérateur transformée de Radon
RA	" <i>Rigid Alignment</i> " = Alignement rigide
$\mathcal{R}f$	Opérateur transformée de Radon appliquée à la fonction $f$
SART	" <i>Simultaneous Algebraic Reconstruction Technique</i> "
SEM	" <i>Scanning Electron Microscope</i> " ou " <i>Microscopy</i> "
SIRT	" <i>Simultaneous Iterative Reconstruction Technique</i> "
SIRT>0	SIRT avec contraintes de positivité
SSIM	" <i>Structural SIMilarity</i> "
STEM	" <i>Scanning Transmission Electron Microscope</i> " ou " <i>Microscopy</i> "
TEM	" <i>Transmission Electron Microscope</i> " ou " <i>Microscopy</i> "
UA	Unités arbitraires
Z	Numéro atomique
$J$	Nombre d'échelle d'une transformée en ondelettes
$L$	Distance caractéristique d'un objet
$P$	Nombre d'éléments présents dans le vecteur $\mathbf{p}$ . Nombre de pixels présents dans l'ensemble des projections
$d$	Épaisseur traversée
$f$	Objet à reconstruire dans le cas continu
$k$	Coefficient de multiplication du bruit $\sigma$ pour un débruitage par seuillage
$t$	Épaisseur traversée
$x$ et $y$	Coordonnées cartésiennes dans l'espace objet 2D
$L$	Ligne quelconque du plan
$\mathbf{b}$	Bruit
$\mathbf{f}$	Vecteur contenant les voxels de l'objet à reconstruire (cas discret)
$\mathbf{p}$	Vecteur contenant les pixels des données mesurées
$\mathcal{N}(\mu, \sigma)$	Loi normale d'espérance $\mu$ et d'écart-type $\sigma$
$\delta$	Libre parcours moyen
$\theta$	Angle d'acquisition d'une projection
$\lambda$	Paramètre de relaxation d'une reconstruction algébrique
$\mu$	Espérance d'une Gaussienne ou d'une loi de Poisson
$\sigma$	Niveau de bruit (écart-type)
FDSOI	" <i>Fully Depleted Silicon On Insulator</i> "

## GLOSSAIRE

SRAM	" <i>Static Random Access Memory</i> "
$h, N_s, N_r$	Paramètres de l'algorithme NLM. Respectivement la puissance du filtre, la taille de la fenêtre de similarités et la taille de la fenêtre de recherche.



# ***INTRODUCTION GENERALE***





## ***Introduction***

Nous nous trouvons aujourd'hui dans un monde d'innovations perpétuelles dans lequel une entreprise doit sans cesse innover pour conserver ses parts de marché et en conquérir de nouvelles. La bonne santé financière d'une entreprise ou même d'un pays est communément évaluée par sa croissance. Une croissance suffisamment importante permet de redistribuer les richesses obtenues pour un pays et d'investir dans de nouvelles technologies ou de nouveaux domaines pour l'entreprise. Il est un fait relativement avéré que la croissance a permis une amélioration notable de la qualité de vie, une meilleure santé, un accès facilité à l'éducation et au savoir, plus de richesses et de confort de vie. À l'inverse une absence de croissance, même si elle ne signifie pas un appauvrissement, est souvent synonyme de morosité, de stagnation et d'absence d'amélioration des conditions de vie.

Ce dictat permanent de la croissance n'est pas approuvé par tous et de nombreux philosophes ou économistes mettent en avant le besoin et même l'intérêt pour l'humanité d'aller volontairement vers une décroissance. L'argument phare des partisans de la décroissance remonte déjà à Malthus qui dès le XVIII<sup>ème</sup> siècle alerta sur le caractère limité de la Terre et de ses ressources et l'impossibilité d'une augmentation démographique exponentielle permanente. Ainsi les décroissants soutiennent que dans un monde limité, l'augmentation permanente de la production n'est pas possible et que la croissance doit forcément s'arrêter tôt ou tard. La décroissance devient un sujet de plus en plus actuel, en particulier dans un courant de prise de conscience de l'impact de l'Homme sur la Terre, que ce soit au niveau du réchauffement climatique ou de l'utilisation des ressources non renouvelables. L'intérêt fort suscité par la conférence sur le climat de Paris (COP21) ayant eu lieu récemment en est un exemple frappant. Mais s'il est de notoriété publique que l'humanité produit et pollue de manière excessive par rapport à ce que la Terre peut offrir, les nations et les peuples ne semblent pas encore prêts à payer le prix d'une décroissance volontaire.

Les nanotechnologies, qui seront définies et présentées par la suite, peuvent apporter une solution partielle à ce problème si urgent. En effet, la matière présente des propriétés nouvelles et remarquables lorsqu'elle est façonnée à l'échelle du nanomètre. Il est ainsi possible d'obtenir des rendements bien meilleurs souvent avec beaucoup moins de matière première consommée. Il est même possible de créer de toutes nouvelles propriétés. C'est pourquoi les nanotechnologies, en essayant de faire mieux avec moins, peuvent être vues comme un premier pas vers un développement soutenable sans forcément remettre en cause la croissance économique. Une condition *sine qua non* au développement des nanotechnologies est cependant de disposer de techniques de nano-caractérisation avancées telles que la tomographie électronique. En rendant possible l'observation non destructive de la structure 3D d'objets nanométriques, la tomographie électronique est ainsi une technique clé dans le développement des nanotechnologies.



La tomographie électronique est une technique de pointe très utile qui reste néanmoins relativement lourde à appliquer. Elle est chronophage au niveau de la préparation d'échantillon et de l'acquisition des images au microscope électronique en transmission mais également pour toute la partie post-acquisition, à savoir l'alignement, la reconstruction 3D et l'extraction d'informations quantitatives. Ces étapes de post-traitement sont pourtant cruciales et très dépendantes de l'utilisateur. Une amélioration de la technique de tomographie électronique passe alors nécessairement par une simplification de toute la partie post-traitement. Les travaux entrepris pendant cette thèse visent justement à simplifier l'utilisation de la tomographie électronique, à améliorer la qualité des reconstructions 3D obtenues tout en les rendant moins dépendantes de l'utilisateur.

### ***Plan de la thèse***

Le plan de cette thèse se déroule en 5 chapitres. Le 1<sup>er</sup> concerne le contexte général, on retrouve dans ce chapitre une introduction brève de ce que sont les nanotechnologies et des différents échantillons qui sont susceptibles d'être caractérisés à l'aide de la tomographie électronique en science des matériaux. Ce chapitre contient également un état de l'art des techniques de nano-caractérisation 3D et des techniques de traitement du signal permettant d'améliorer et d'extraire des informations quantitatives depuis des images 2D ou 3D.

Le 2<sup>ème</sup> chapitre concerne plus spécifiquement la tomographie électronique et les problèmes inverses. Dans ce chapitre, différents algorithmes de reconstructions sont explicités. L'importance de la parcimonie, cette capacité qu'ont les signaux physiques à être compressés, est également abordée en raison de sa place centrale dans le problème d'inversion en tomographie électronique. Ce 2<sup>ème</sup> chapitre traite également de la microscopie électronique en transmission et des modes de contrastes qui sont compatibles avec la théorie de la reconstruction 3D.

Le 3<sup>ème</sup> chapitre de cette thèse présente une technique complète d'alignement, de débruitage, et de reconstruction 3D. Des données réelles et des simulations sont utilisées pour montrer l'intérêt et la qualité des reconstructions obtenues avec ce procédé complet. Un logiciel, développé pendant cette thèse en exploitant la faible intervention de l'utilisateur inhérente à la technique que nous proposons, est également introduit dans ce chapitre.

Le 4<sup>ème</sup> chapitre présente différentes techniques proposées dans une optique d'extension de la tomographie électronique à des échantillons jusqu'alors inadaptés. Ce chapitre commence par une comparaison de différents algorithmes et de leur impact sur les reconstructions 3D pour ensuite proposer des techniques permettant de corriger les artefacts existants avec des échantillons trop épais ou présentant une faible tenue sous le faisceau électronique.

Enfin, le 5<sup>ème</sup> et dernier chapitre de cette thèse concerne la tomographie analytique. C'est-à-dire l'utilisation d'un mode d'imagerie particulier permettant d'acquérir des images spectrales pour ensuite reconstruire en 3D les différents éléments présents dans un échantillon. La tomographie électronique analytique possède des difficultés particulières avec notamment un nombre très restreints de données et un rapport signal sur bruit particulièrement faible. Ce dernier chapitre propose d'exploiter la multiplicité des informations provenant des différents éléments à reconstruire pour améliorer à la fois le débruitage et l'alignement et par suite la reconstruction 3D de tous les éléments simultanément.



# ***Chapitre I***

## ***CONTEXTE GENERAL***

### ***Contenu du chapitre I***

La 1<sup>ère</sup> partie de ce chapitre introduit les nanotechnologies ainsi que les nanomatériaux qui sont particulièrement susceptibles d'être caractérisés à l'aide de la tomographie électronique.

La 2<sup>ème</sup> partie de ce chapitre présente un état de l'art des techniques de nano-caractérisation 3D. Le fonctionnement et les avantages et inconvénients de ces techniques sont abordés.

Enfin, la 3<sup>ème</sup> partie de ce chapitre propose un rapide tour d'horizon des différents enjeux et techniques de traitement du signal qui permettent de traiter des images 2D ou 3D et qui sont cruciales en tomographie électronique.





# 1) Les nanotechnologies

---

## I. 1. a. Les nanotechnologies

### *I. 1. a. (i) Définitions des termes relatifs aux nanotechnologies*

Avant toute chose, il convient de donner les définitions des termes qui seront utilisés dans cette partie. Nous avons choisi d'utiliser les définitions fournies par la norme ISO/TS 80004-1:2015 (Fr) concernant les nanotechnologies :

- **L'échelle nanométrique** est « *l'échelle de grandeur s'étendant approximativement de 1 nm à 100 nm* ».
- **Les nanotechnologies** regroupent les « *applications de connaissances scientifiques à des fins de manipulation et de contrôle de la matière principalement à l'échelle nanométrique afin d'utiliser les propriétés et phénomènes dépendant de la taille et de la structure, différents de ceux associés aux atomes ou molécules individuels, ou aux extrapolations par rapport à des dimensions plus grandes du même matériau* »
- **Les nanosciences** sont « *l'étude, la découverte et la compréhension de la matière à des échelles où se manifestent des propriétés et des phénomènes dépendant de la taille et de la structure, principalement à l'échelle nanométrique, différents de ceux associés aux atomes ou molécules individuels, ou aux extrapolations par rapport à des dimensions plus grandes du même matériau* ».
- **Les nanomatériaux** sont des « *matériaux ayant une dimension externe à l'échelle nanométrique ou ayant une structure interne ou une structure de surface à l'échelle nanométrique* »
- **Les nano-objets** sont une « *portion discrète de matériau dont une, deux ou les trois dimensions externes sont à l'échelle nanométrique* »
- **Les matériaux nanostructurés** sont des « *matériaux ayant une nanostructure interne ou une nanostructure de surface* » ; la nanostructure étant définie comme « *la composition de parties constitutives liées entre elles, dans laquelle une ou plusieurs de ces parties est une région à l'échelle nanométrique* »

D'après les définitions précédentes, il est à noter que les nanomatériaux englobent les nano-objets et les matériaux nanostructurés. Les nanotechnologies ayant recours aux connaissances scientifiques sont quant à elles fortement liées aux nanosciences.

### I. 1. a. (ii) L'origine des nanotechnologies

Avant même qu'elles n'aient été définies, les nanotechnologies ont été utilisées par l'Homme de manière empirique. Ainsi au Moyen-Âge, les maîtres verriers incorporaient déjà des métaux (cuivre, argent ou or) à la pâte de verre pour colorer les vitraux de différentes couleurs. On sait aujourd'hui que ces couleurs proviennent des nanoparticules métalliques en suspension dans les vitraux [1].

La nature regorge également de matière nano-structurée qui confèrent des propriétés uniques au monde animal ou végétal. On peut donner le célèbre exemple du gecko dont les *setae*, ces sortes de poils à l'extrémité de ses pattes, possèdent une adhésion exceptionnelle. La nanostructure des *setae* augmente énormément la surface de contact du gecko avec son environnement (Figure 1), lui permettant d'amplifier les forces d'adhésion faible de type Wan der Waals et d'adhérer à de nombreux types de parois [2].

Dans le monde végétal, la fleur de lotus est souvent citée pour ses propriétés importantes d'hydrophobie. On parle même d'effet Lotus pour qualifier cette super-hydrophobie [3]. C'est la nanostructure de la fleur de lotus qui engendre une surface de contact extrêmement grande et produit cette propriété remarquable de super-hydrophobie qui fait perler les gouttes sur la feuille, Figure 2.

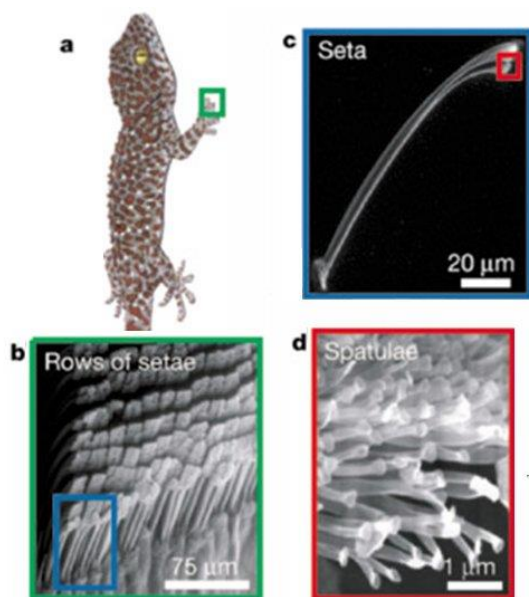


Figure 1 : Schéma adapté de la référence [2] montrant les nanostructures des *setae* du gecko lui procurant cette incroyable force d'adhésion

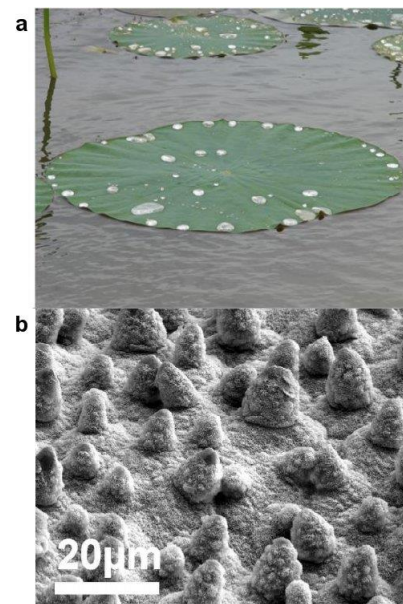


Figure 2 : Schéma adapté de la référence [3] montrant (a) la super-hydrophobie du lotus et (b) la surface nanostructurée vue au microscope électronique à balayage

Outre ces exemples empiriques ou naturels, il est possible de dater l'origine des nanotechnologies à 1959, lorsque Richard Feynman attira l'attention sur l'extraordinaire potentiel des nanotechnologies pendant son discours devant l'*American Physical Society* [4]. Sans expressément parler de nanotechnologies, il posa les bases de ce que pourrait devenir l'infiniment petit et de certaines des

extraordinaires possibilités que ce nouveau paradigme engendrerait. Il attira notamment l'attention sur la possibilité de stocker dans un cube d'environ 1 dixième de millimètre de côté toute l'information que l'humanité avait inscrit dans des livres jusqu'alors. Il insista également sur l'importance capitale d'améliorer la résolution du microscope électronique d'un facteur 100 pour pouvoir descendre en résolution sous l'Angström et « voir » les atomes.

Le terme de nanotechnologie fut ensuite créé par l'universitaire Japonais Norio Tanugachi en 1974 [5], mais c'est en 1986 qu'il fut rendu célèbre par Eric Drexler dans un ouvrage de référence [6]. Il présente dans cet ouvrage les moyens, les applications ainsi que les espoirs et les risques qu'engendreront les nanotechnologies selon lui.

### ***I. 1. a. (iii) Les approches ascendante et descendante***

La fabrication de nano-objets peut se faire selon deux approches dites descendante ("*top-down*") et ascendante ("*bottom-up*") [7]. Comme leur nom l'indique, il s'agit pour l'approche descendante de partir d'objets à l'échelle macroscopique et de progressivement diminuer leur taille pour atteindre une dimension nanométrique, à l'image d'un bloc de pierre taillé progressivement pour en extraire une sculpture [7]. A l'inverse, il s'agit pour l'approche ascendante d'assembler directement les atomes ou les molécules pour former les nano-objets, cette fois on peut prendre l'exemple d'une maison construite progressivement, brique par brique [7]. L'approche descendante est typiquement utilisée en microélectronique à l'aide de la lithographie. L'approche ascendante peut-être réalisée à l'aide d'un microscope à balayage à effet tunnel pour déplacer des atomes un à un, comme ce fut le cas dès 1990 [8]. Plus généralement, l'approche ascendante est celle existante dans la nature [7], où elle est réalisée à l'aide d'auto-assemblages. Elle permet de réaliser des monocouches [9], des nanoparticules [10], des micelles [11], ou encore des structures poreuses régulières avec des pores de quelques nanomètres [12]. Les deux techniques possèdent des avantages et inconvénients récapitulés dans le Tableau 1, traduit à partir de la référence [7].



	Approche descendante	Approche ascendante
Avantages	<p>Techniques déjà bien comprises avec un niveau de maturité avancé</p> <p>Permet le contrôle et la création de motifs de surface avec une grande précision à l'aide de la lithographie</p> <p>Les procédures sont reproductibles</p>	<p>L'auto-assemblage permet la production simple, rapide et à faible coûts de matériaux nanostructurés.</p> <p>Il offre une limite ultime de miniaturisation</p> <p>Opportunités ouvertes pour la fabrication d'un éventail plus large de matériaux nanostructurés par synthèse chimique</p>
Inconvénients	<p>De plus en plus sensibles aux défauts à mesures que la taille diminue</p> <p>Plus coûteux que les techniques d'auto-assemblage</p>	<p>A l'heure actuelle, l'utilisation de l'auto-assemblage se limite à des matériaux nanostructurés simples, sans possibilité de créer des dispositifs intégrés.</p>

Tableau 1 : Avantages et inconvénients des approches ascendantes et descendantes, traduit à partir de la référence [7].

### ***I. 1. a. (iv) Des propriétés exceptionnelles***

La matière à l'échelle du nanomètre possède des propriétés uniques et remarquables. Beaucoup de ces propriétés exceptionnelles proviennent de l'effet d'échelle, c'est-à-dire des conséquences physiques du changement de la longueur caractéristique  $L$  d'un corps. Puisque la surface d'un corps est proportionnelle à  $L^2$  alors que son volume est proportionnel à  $L^3$ , le rapport surface sur volume est inversement proportionnel à la longueur  $L$ . Ainsi, dans un centimètre cube de matière, seule 0,00001% des atomes sont à la surface, alors que dans un nanomètre cube 80% des atomes se situent en surface [5]. C'est cette prépondérance des propriétés de surface qui engendre beaucoup de propriétés extraordinaires de la matière à cette échelle.

L'effet d'échelle permet énormément de choses simplement en augmentant la surface développée pour un même volume de matière. Mais l'échelle du nanomètre est également l'échelle pour laquelle la physique newtonienne dont nous avons l'habitude laisse place à la physique quantique et à toutes ses propriétés très particulières. Les phénomènes de confinement, l'effet tunnel ou le principe de superposition sont autant de propriétés qui peuvent être exploitées par les nanotechnologies.

## I. 1. b. Quelques exemples de nanomatériaux

Avec la définition de la norme ISO/TS 80004-1:2015 (Fr) donnée précédemment, les nanomatériaux regroupent les nano-objets et les matériaux nanostructurés. Les nano-objets qui ont au moins une dimension externe à l'échelle nanométrique peuvent être classés par dimensionnalité [13] en fonction du nombre de dimensions externes qui ont une taille plus grande que l'échelle nanométrique. On parlera ainsi de matériaux 0D, 1D et 2D lorsqu'ils ont respectivement 0, 1 ou 2 dimension(s) externe(s) supérieure(s) à 100 nm environ.

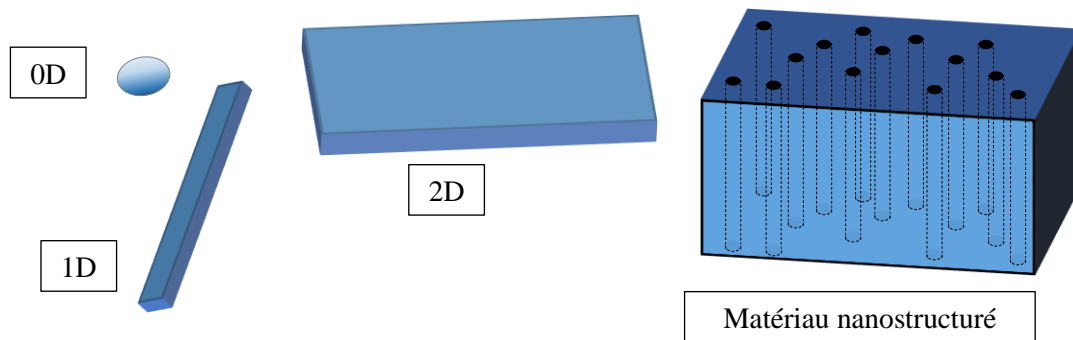


Figure 3 : Représentation schématique des nanomatériaux, avec d'une part les nano-objets classés par dimensionnalité et d'autre part les matériaux nanostructurés.

### I. 1. b. (i) Les nano-objets 0D

Les **nanoparticules d'or** [14] sont des nano-objets 0D qui présentent beaucoup de propriétés intéressantes très dépendantes de leur forme et de leur taille. Il est ainsi possible en jouant sur la taille et la forme des nanoparticules d'or, de changer leur fréquence plasmon de surface par des effets de confinement quantique et ainsi de changer leur spectre d'absorption. L'optimisation de l'absorption de certaines fréquences électromagnétiques permet de s'adapter à la fréquence d'un laser pour que celui-ci chauffe spécifiquement les nanoparticules d'or. Ceci pourrait être utilisé en médecine pour des applications curatives mieux ciblées de certains cancers [15].

Les **fullerènes sphériques** représentent un autre type de nano-objets 0D. Les fullerènes sont des molécules composées de carbone avec une structure creuse ; elles peuvent être sphériques (0D), ellipsoïdales (0D), en tube (1D), ou avoir d'autres formes, cf. Figure 4. Le fullerène sphérique C<sub>60</sub>, composé de 60 atomes de carbone, a été synthétisé en 1985 [16]. Il est connu pour avoir la forme d'un ballon de football. Le fullerène C<sub>60</sub> fait l'objet de nombreuses recherches pour d'éventuelles applications en médecine [17] ou dans le domaine du photovoltaïque [18].

Enfin, les **boîtes quantiques** représentent un autre type de nano-objets 0D. Ce sont des semi-conducteurs avec une dimension de quelques nanomètres dans les 3 directions de l'espace. Le confinement des porteurs de charges, électrons ou trous, à l'intérieur d'une boîte quantique lui procure des propriétés uniques.

### ***I. 1. b. (ii) Les nano-objets 1D***

Les **nanotubes** sont un type de nano-objets 1D. Les nanotubes de carbone, par exemple, sont un type de fullerène cylindrique avec des extrémités ouvertes ou fermées. Ils sont formés à partir d'un simple feuillet ou de multiples feuillets de graphène, Figure 4. On parle alors respectivement de nanotube de carbone à parois simple ou multiple. Les diamètres des nanotubes de carbone à parois simple se situent typiquement entre 0,8 et 2 nm alors que ceux à parois multiples se situent typiquement entre 5 et 20 nm [19]. Les nanotubes de carbone peuvent avoir des longueurs très variées, inférieures à la centaine de nanomètres jusqu'à plusieurs microns [19]. La fabrication d'un nanotube de carbone à parois simple de 18,5 cm de long [20], donnant un ratio d'aspect gigantesque d'environ  $10^7$ , a même été réalisé en 2009. Les nanotubes de carbones possèdent déjà de nombreuses applications industrielles représentant une production annuelle de plusieurs milliers de tonnes en 2013 [19]. Ce sont les propriétés mécaniques, ainsi que les propriétés de conductivités thermique et électrique notamment qui rendent les nanotubes de carbone si intéressants.

Les **nanofils** sont un autre type de nano-objets 1D. Ce sont des nanomatériaux qui ont beaucoup été étudiés pour leurs propriétés électroniques, thermiques, électrochimiques et mécaniques. Leur fabrication par différentes méthodes ascendantes a permis leur développement dans de très nombreux domaines [21] tels que l'électronique, les capteurs, la photonique, le photovoltaïque, l'énergie, les applications biologiques, etc.

**I. 1. b. (iii) Les nano-objets 2D**

Le **graphène** est un matériau bidimensionnel cristallin constitué d'atomes de carbone avec une forme caractéristique en nid d'abeille. Le graphène a été isolé pour la première fois en 2004 [22], ce qui a valu le prix Nobel de physique en 2010 à Andre Geim et Konstantin Novoselov. C'est un nano-objet 2D qui permet de créer des fullerènes sphériques ou des nanotubes de carbone (Figure 4). Son excellente absorption du spectre électromagnétique en fait un candidat de choix pour le blindage électromagnétique [23].

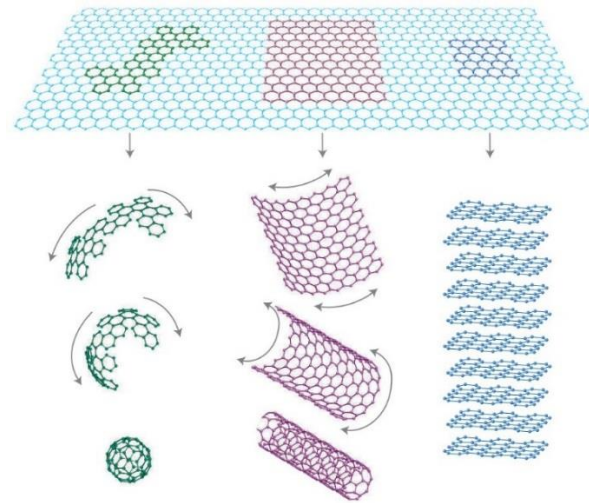


Figure 4 : Représentation du graphène avec cette structure en nid d'abeilles caractéristique et des matériaux 0D, 1D et 3D qu'il peut engendrer. Image provenant de la référence [24].

**I. 1. b. (iv) Les matériaux nanostructurés**

Parmi les matériaux nanostructurés, on peut donner l'exemple des matériaux nano-poreux. Ce sont des matériaux poreux dont au moins une dimension est à l'échelle nanométrique. Les matériaux nano-poreux peuvent être microporeux (diamètre des pores  $\leq 2$  nm), mésoporeux (diamètre compris entre 2 et 50 nm) ou macroporeux (diamètre supérieur à 50 nm) (ISO 15901-3:2007).

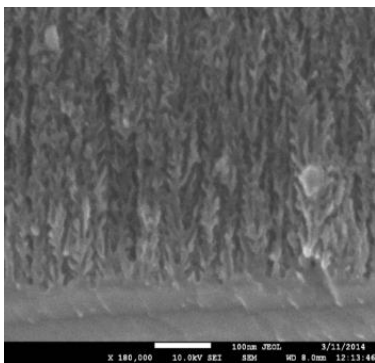


Figure 5 : Image MEB de silicium poreux, Guido Mula, Université de Cagliari

Un exemple de matériaux nano-poreux est le silicium poreux [25] qui fut découvert dès 1956 [26]. Beaucoup d'applications peuvent être faites du silicium poreux grâce à son extraordinaire diversité morphologique et géométrique [27] lui procurant des propriétés diverses. Ces propriétés sont entre autres [27], une luminescence à température ambiante, une isolation thermique bien plus grande que celle du silicium massif (jusqu'à un facteur  $10^5$ ), une résistivité très élevée due à une déplétion de porteurs de charges (facteur d'environ  $10^6$  par rapport au silicium massif) et une surface spécifique très élevée (jusqu'à  $1000 \text{ m}^2/\text{cm}^3$ ).

### **I. 1. c. La caractérisation souvent indispensable**

Nous avons vu que Richard Feynman mettait déjà en avant dans son discours pionnier de 1959 [4], l'importance de la caractérisation et le rôle clé du microscope électronique en transmission pour observer les atomes et développer réellement les nanotechnologies. La caractérisation a joué un rôle dominant dans certaines grandes découvertes qui n'ont pu être faites qu'à la suite de progrès notables en microscopie. C'est le cas notamment de nombreuses découvertes en biologie et médecine qui n'ont pu être réalisées qu'à l'aide du microscope optique. La découverte des cellules par Robert Hooke en 1665, ou les premières utilisations du microscope optique en médecine [28] en sont des exemples. Le microscope optique a ainsi permis à Swammerdam de décrire pour la première fois les globules rouges sanguins en 1667 ou au néerlandais Leeuwenhoek de décrire en premier des bactéries présentes dans la bouche humaine, des protozoaires, des spermatozoïdes ou des cellules épithéliales. Le développement des lentilles a également permis de construire les premiers télescopes dès le XVII<sup>ème</sup> siècle, ouvrant la voie à un développement important de l'astronomie et de l'astrophysique. L'invention du microscope électronique en 1931 par Knoll et Ruska a ensuite permis de nombreuses avancées dans la compréhension des matériaux et de la structure de la matière à l'échelle nanométrique et atomique. L'invention du microscope à effet tunnel [29] en 1981 par Gerd Binnig et Heinrich Rohrer, prix Nobel de physique en 1986, a également permis d'importantes avancées en nanotechnologies. Ce microscope peut être utilisé à la fois pour observer la surface d'échantillons conducteurs ou semi-conducteurs avec une résolution atomique mais aussi pour déplacer les atomes un à un [8].

L'importance de la caractérisation est particulièrement flagrante dans le cas des nanotechnologies. Comme nous avons pu le voir précédemment, des propriétés nouvelles et extraordinaires, très dépendantes de la géométrie et de la taille des nano-objets et nanostructures, apparaissent à cette échelle. Mettre en évidence les liens entre structures 3D des nanomatériaux et propriétés engendrées est donc crucial pour le développement des nanotechnologies. Si l'imagerie 3D est un premier pas nécessaire pour bien comprendre une nanostructure complexe, une information quantitative est souvent indispensable avant de tirer toute conclusion. Une étude statistique, la plus complète possible, faisant varier les paramètres d'un procédé de fabrication, peut même être nécessaire pour réellement comprendre toutes les possibilités et enjeux rendus possibles par certaines technologies de fabrication. Les nanotechnologies peuvent donc bénéficier très fortement de techniques de nano-caractérisations 3D robustes, faciles d'utilisation, rapides et fiables.

## 2) Méthodes de nano-caractérisation 3D

### I. 2. a. À chaque échelle sa méthode

Plusieurs techniques de nano-caractérisation 3D existent, chacune possédant des particularités, avantages et inconvénients. Nous allons présenter succinctement quatre techniques de nano-caractérisation 3D qui peuvent être classées par ordre croissant de résolution comme suit : (i) la sonde atomique tomographique, (ii) la tomographie électronique, (iii) le FIB-SEM 3D et (iv) la tomographie rayons-X. Les résolutions ainsi que les volumes d'analyse de ces quatre techniques sont détaillés dans le tableau suivant :

<i>Technique</i>	<i>Résolution</i>	<i>Volume analysé</i>
Sonde atomique tomographique	Atomique	100 x 100 x 2000 (nm <sup>3</sup> )
Tomographie électronique	≈ 1 nm	300 x 300 x 2000 (nm <sup>3</sup> )
FIB/SEM 3D	≈ 10 nm	10 x 10 x 10 (μm <sup>3</sup> )
Tomographie rayons-X	≈ 20 nm	50 x 50 x 50 (μm <sup>3</sup> )

Parmi ces quatre techniques de nano-caractérisation 3D, la tomographie électronique et la tomographie rayons-X sont assez proches. En effet, elles utilisent toutes les deux des projections 2D réalisées tout autour de l'objet pour ensuite reconstruire numériquement le volume 3D de l'échantillon. Les projections d'un objet sont formalisées mathématiquement au moyen de la transformée de Radon. Ce sont des intégrales linéaires dans différentes directions de l'espace. La transformée de Radon, ainsi que les algorithmes d'inversion qui permettent de passer d'un ensemble de projections 2D au volume 3D de l'objet à caractériser seront détaillés dans la partie II.1.

Nous parlerons de tomographie basée sur des projections pour se référer aux tomographies électronique et rayons-X qui utilisent la même théorie mathématique de reconstruction 3D. Bien qu'elles puissent endommager l'échantillon à observer, ces techniques sont non-destructives en principe. La sonde atomique et le FIB/SEM 3D quant à elles sont des techniques destructives différentes.

## I. 2. b. La tomographie basée sur des projections

### I. 2. b. (i) Une projection n'est pas toujours suffisante

Une radiographie X ou une image en microscopie électronique en transmission donnent accès à une projection 2D d'un objet tridimensionnel. Il est fréquent qu'une telle image soit suffisante pour caractériser un objet. Néanmoins, une image en projection ne contient aucune information sur la profondeur de l'objet. Dans le cas où cette information manquante est importante, Il convient alors de réaliser plusieurs projections tout autour d'un objet afin d'acquérir le plus d'information possible. La Figure 6 présente 2 objets 2D très différents qui possèdent néanmoins exactement les mêmes projections à  $0^\circ$  en géométrie parallèle. Il est alors nécessaire pour lever l'ambiguïté entre ces 2 objets de faire au moins une autre projection dans une direction différente.

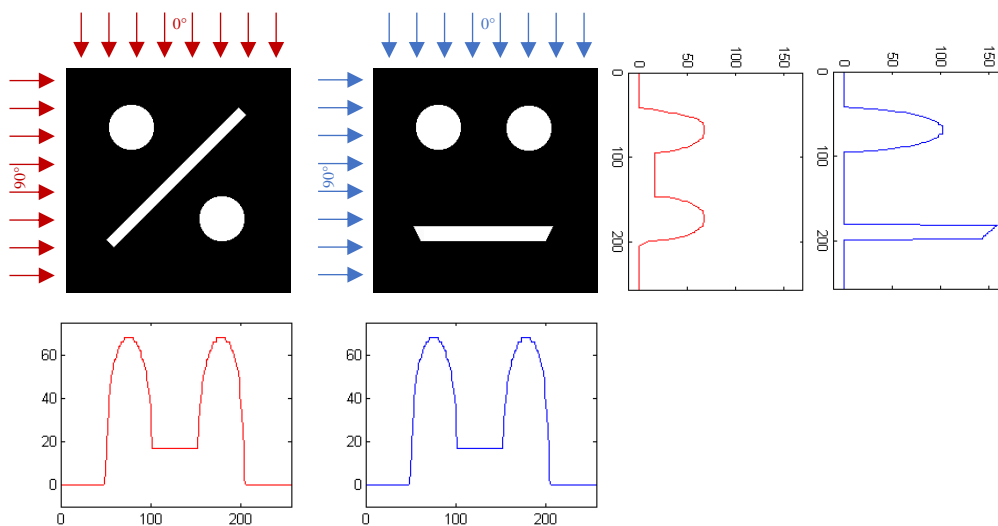


Figure 6 : Deux objets 2D très différents qui pourtant présentent les mêmes projections à  $0^\circ$  en géométrie parallèle. Au moins une autre projection à  $90^\circ$  est nécessaire pour lever l'ambiguïté entre ces 2 objets.

### I. 2. b. (ii) Plusieurs projections ne sont pas toujours suffisantes

Dans certains cas, même en faisant beaucoup d'images tout autour d'un objet 3D, l'ensemble des projections 2D n'est pas suffisant pour caractériser cet objet. C'est notamment le cas d'un objet poreux. L'effet de superposition de tout le volume sur chaque projection 2D empêche alors de remonter aux informations sur la structure 3D de l'objet. Ainsi dans l'exemple de la Figure 7, malgré plusieurs projections 2D obtenues sur  $180^\circ$  autour de l'échantillon, les informations sur la structure de l'échantillon (taille des pores, interconnexion, taux de porosité) restent inaccessibles. Il est alors nécessaire de reconstruire le volume de l'objet. Il est ensuite possible d'afficher des coupes à l'intérieur du volume reconstruit et ainsi extraire de l'information qualitative et quantitative sur l'objet sans

souffrir de l'effet de superposition dû aux projections. Les axes qui sont utilisés pour cette figure sont ceux qui seront utilisés tout au long de cette thèse<sup>1</sup>.

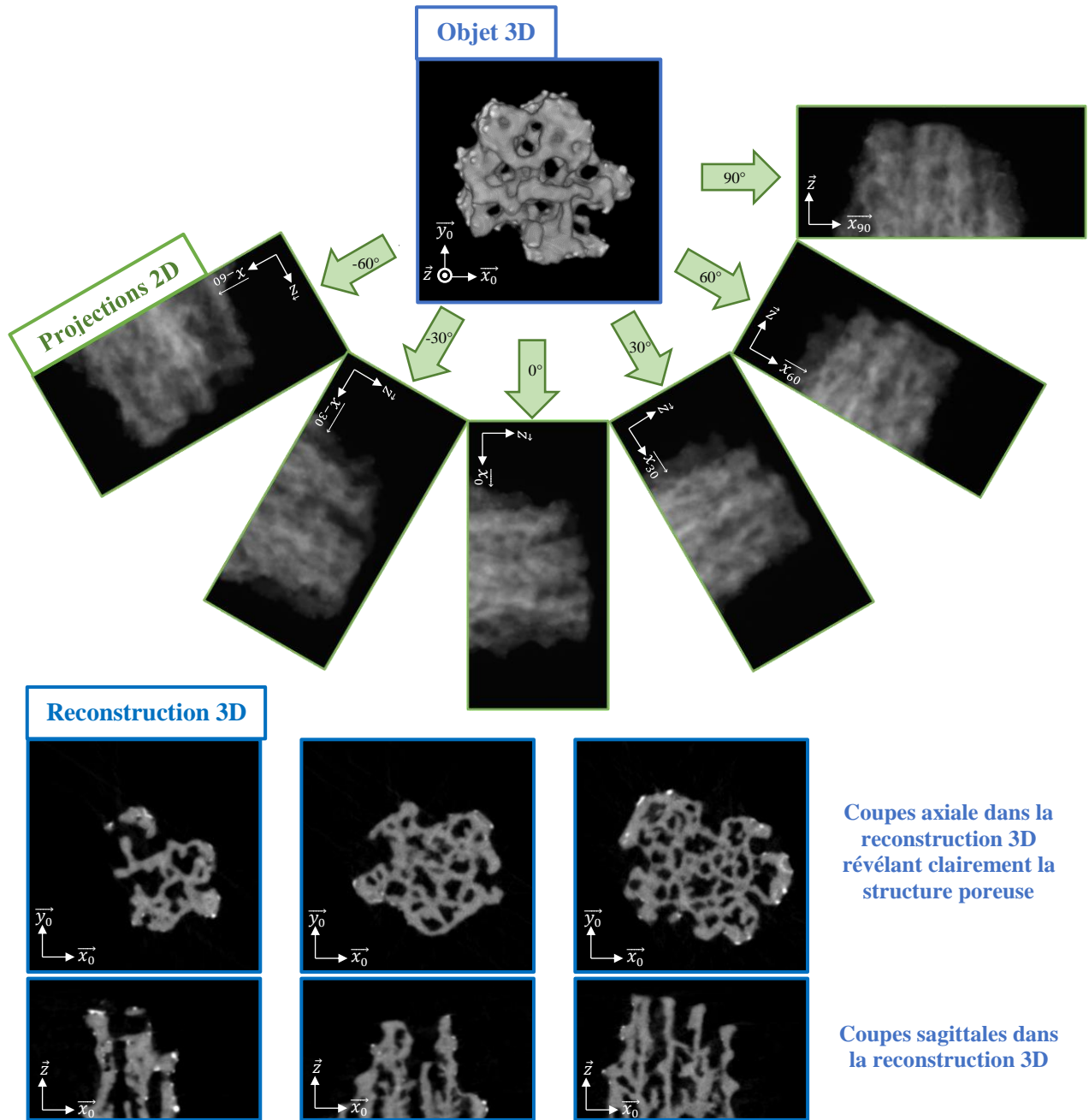


Figure 7 : Cas d'un objet 3D de silicium poreux. Plusieurs projections obtenues en microscopie électronique à transmission (Titan Ultimate - PFNC Grenoble) tout autour de cet objet ne sont pas suffisantes pour obtenir les informations sur la structure des pores telles que leur taille, leur interconnexion ou encore la porosité. Dans ce cas une reconstruction 3D de l'échantillon est indispensable. Des coupes dans cette reconstruction 3D permettent de distinguer les pores du silicium.

<sup>1</sup> Nous notons  $\vec{z}$  la direction de l'axe de rotation,  $\vec{y}_\theta$  la direction du faisceau d'électrons lors de l'acquisition pour une rotation d'angle  $\theta$  et  $\vec{x}_\theta$  la direction perpendiculaire aux deux autres. La direction  $\vec{z}$  est indépendante de l'orientation de la projection, c'est pourquoi elle ne présente pas d'indice  $\theta$ . Les reconstructions seront représentées avec les directions  $\vec{x}_0, \vec{y}_0$  et  $\vec{z}$  qui correspondent à la projection d'angle de rotation  $\theta = 0^\circ$ .



### ***I. 2. b. (iii) La tomographie rayons-X***

Il est possible d'utiliser des rayons-X pour réaliser les projections. Plusieurs types de tomographie rayons-X existent, la plus courante étant la tomographie d'absorption qui reconstruit en 3D les différents coefficients d'absorption de l'échantillon, eux-mêmes dépendants des matériaux présents. La tomographie rayons-X est utilisée dans des domaines très vastes allant de la médecine aux sciences de la matière condensée. On peut classer quelques-unes de ces tomographies en fonction de la source de rayons-X utilisée :

#### ***La tomographie synchrotron***

Utiliser un synchrotron comme source de rayons-X présente de nombreux avantages et notamment un flux extrêmement important de l'ordre de  $10^{20}$  photons/s/mm<sup>2</sup>. Ce flux permet d'avoir une durée d'acquisition réduite et/ou une statistique très confortable pour limiter le bruit dans l'acquisition. Un flux si important permet également de sélectionner les photons utilisés pour avoir un faisceau monochromatique sur une large gamme d'énergie située au choix entre 1 et 500 keV [30]. La résolution en synchrotron a déjà atteint les 50 nm [31], ce qui en fait un instrument de choix. Néanmoins les coûts financiers importants ainsi que la difficulté d'obtention d'un temps de faisceau limitent l'utilisation massive de cette technique.

#### ***Le micro-scanner***

Les scanners sont utilisés en laboratoire et en industrie et utilisent des photons produits par un tube à rayons-X. Les faisceaux produits sont polychromatiques et beaucoup moins intenses que les faisceaux synchrotrons ( $\approx 10^6$  photons/s/mm<sup>2</sup>) [32]. Néanmoins le micro-scanner permet d'obtenir des reconstructions avec une résolution d'environ 1  $\mu$ m sans avoir recours à de grands instruments, c'est la raison pour laquelle ces instruments sont encore très utilisés.

#### ***La tomographie rayons-X dans un MEB***

Il est possible d'utiliser le faisceau d'électrons d'un microscope électronique à balayage (MEB) pour exciter localement la matière et produire un faisceau de rayons-X qui peut ensuite être utilisé pour réaliser la tomographie rayons-X d'un échantillon présentant dans la machine, Figure 8. Des reconstructions 3D avec une résolution inférieure au micron sont possibles avec cette technique [33].

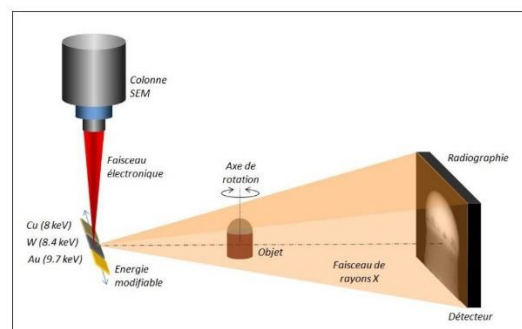


Figure 8 : Principe de la tomographie rayons-X dans un MEB, image issue de la référence [30].

### I. 2. b. (iv) La tomographie électronique

La tomographie électronique est le sujet de cette thèse, c'est pourquoi une partie entière de ce manuscrit sera consacrée à la présentation et à l'état de l'art de cette technique. Le nom de tomographie électronique vient du fait qu'on utilise des électrons pour réaliser les projections. Plus précisément, les images 2D sont faites avec un microscope électronique en transmission (MET ou TEM pour "*Transmission Electron Microscope*"). Utiliser des électrons entraîne des difficultés en raison de la forte interaction électron-matière. Il est difficile d'imager des objets épais en microscopie électronique en transmission puisqu'il faut que l'objet soit transparent aux électrons. L'épaisseur d'un échantillon est donc limitée à quelques centaines de nanomètres maximum [34], sachant que la résolution est d'autant meilleure que l'épaisseur est faible en général. Il est donc indispensable de préparer des échantillons de tailles adaptées avant de réaliser une quelconque caractérisation en microscopie électronique. L'interaction électron-matière conduit également à un endommagement de l'échantillon [35] qui peut être très important pour certains échantillons, comme c'est souvent le cas en biologie [36]–[38].

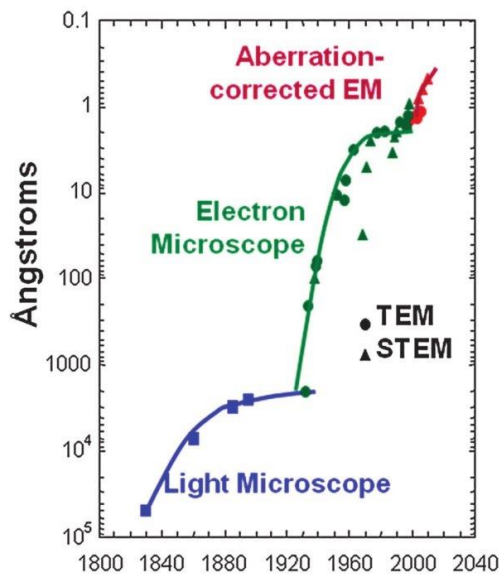


Figure 9: Résolutions atteintes en microscopie depuis les premiers microscopes optiques jusqu'à nos jours. Deux révolutions, à savoir le développement de la microscopie électronique et des correcteurs d'aberrations, ont permis de nettes améliorations de la résolution, [39].

La microscopie électronique en transmission possède cependant l'avantage majeur de permettre une excellente résolution. En effet, les TEM ont permis de faire des images à l'échelle atomique dès les années 70 [40]. Il a fallu néanmoins attendre la fin des années 90 et les premiers correcteurs d'aberrations [41] pour que l'imagerie haute résolution se développe réellement avec une amélioration significative de la résolution qui est passée sous l'angström, cf. Figure 9.

Néanmoins les reconstructions 3D avec une résolution atomique sont encore très rares à l'échelle mondiale. Pour l'instant, ces reconstructions 3D atomiques ne se font que dans des cas simples avec des hypothèses fortes sur les objets observés [42]. La raison de cette perte de résolution lors du passage à la 3D vient de plusieurs facteurs dont les principaux sont :

- 1) La quasi-impossibilité actuellement de réaliser un mouvement de rotation pur de l'échantillon avec une dérive inférieure à la résolution atomique, c'est-à-dire de l'ordre de l'Angström.
- 2) Les contraintes de temps d'acquisition et d'endommagement de l'échantillon fortes, qui limitent fortement le nombre de projections.
- 3) L'interaction électron-matière qui peut entraîner un endommagement important de l'objet au cours de l'acquisition, ce qui est incompatible avec la théorie de la reconstruction.
- 4) Le bruit présent dans les projections en raison du nombre limité d'électrons détectés lors de l'acquisition.

La tomographie électronique reste cependant une technique incontournable pour caractériser de nombreux échantillons puisque sa résolution 3D de 1 nm environ et son champ de vue de quelques centaines de nanomètres la positionne idéalement pour la caractérisation des nanomatériaux. C'est donc une technique de caractérisation charnière pour les nanotechnologies. De plus, nous verrons par la suite que la tomographie électronique permet une reconstruction morphologique 3D mais également une reconstruction chimique grâce aux modes analytiques disponibles avec un TEM.

## I. 2. c. Les méthodes de tomographie destructives

### I. 2. c. (i) *Le FIB-SEM 3D*

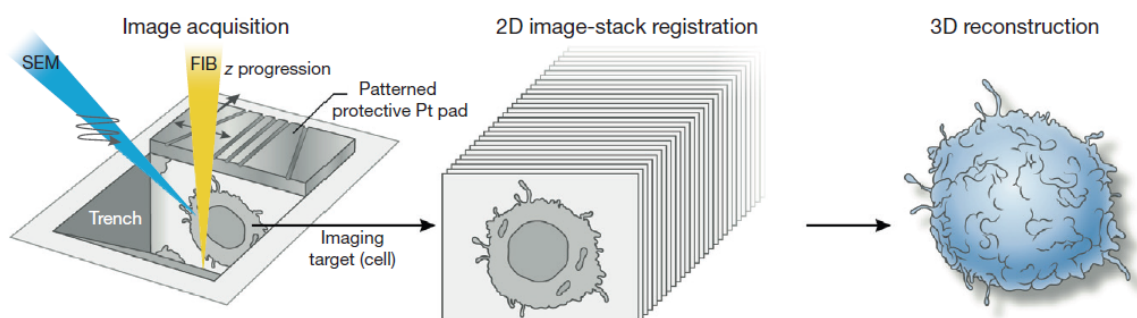


Figure 10 : Représentation schématique du FIB-SEM 3D. Figure provenant de la référence [43]

Un microscope électronique à balayage (MEB ou SEM pour "*Scanning Electron Microscopy*") permet d'avoir accès à une image de la surface d'un échantillon. Une sonde ionique focalisée (FIB pour "*Focus Ion Beam*") est une machine permettant de réaliser localement de l'abrasion, du dépôt, ainsi que de l'observation de surface. Un FIB peut être couplé à un MEB pour pouvoir caractériser un échantillon à l'aide du faisceau d'électrons tout en faisant de l'abrasion ou du dépôt à l'aide du faisceau ionique. Il est alors possible de caractériser en 3D un échantillon en alternant coupes FIB et images

MEB, cf. Figure 10. Le FIB-SEM 3D [43] est donc une technique destructive qui permet de caractériser le volume d'un échantillon avec la résolution latérale d'un MEB.

Le FIB-SEM 3D permet d'analyser des objets en 3D sans avoir recours à une théorie mathématique complexe puisque la technique consiste simplement à afficher les coupes les unes après les autres. Certains artéfacts existent néanmoins, en particulier lorsque l'objet à analyser possède des structures poreuses. En effet, les matériaux présents au fond des pores restent visibles sur les images MEB. La visualisation 3D est alors faussée par le fait qu'on distingue la matière présente dans le fond des pores là où il n'y a que du vide. Certains travaux tentent de corriger ces artéfacts à l'aide de techniques itératives ayant recours à des simulations sur l'imagerie MEB [44], [45].

**I. 2. c. (ii) La sonde atomique tomographique**

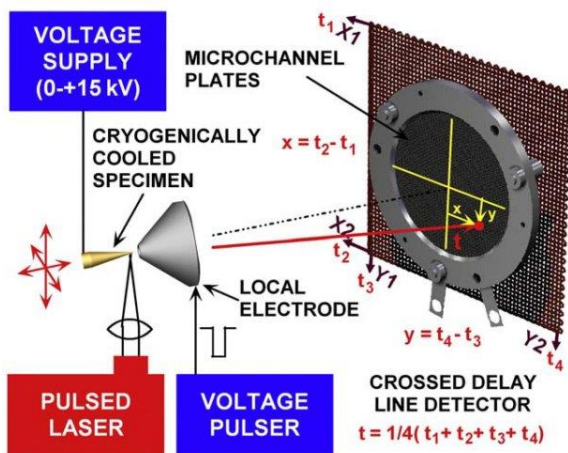


Figure 11 : Principe de la sonde atomique tomographique, [46]. L'échantillon en forme de pointe est soumis à un fort champ électrique. Des pulses laser ou des pulses en tension sont appliqués pour déclencher l'évaporation des atomes à un instant donné. Un détecteur 2D permet de définir la position initiale de l'ion détecté ainsi que sa nature chimique au moyen d'une spectrométrie à temps de vol.

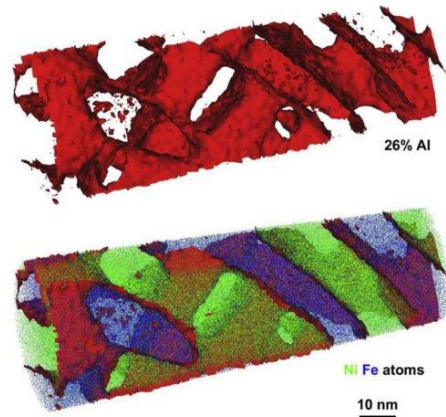


Figure 12 : Exemple d'une reconstruction de sonde atomique tomographique, [46]. Représentation d'une iso-surface de concentration en atomes d'aluminium (en haut), et de la même iso-surface avec une partie des atomes de fer et de nickel (en bas).

La sonde atomique tomographique est une technique d'imagerie haute résolution permettant d'identifier et de localiser les atomes en 3 dimensions [46]. La sonde atomique repose sur l'évaporation par effet de champ des atomes situés à l'extrême surface d'un échantillon en forme de pointe. Des pointes très fines, avec un diamètre inférieur à la centaine de nanomètres, doivent être utilisées pour pouvoir atteindre un champ électrique très intense d'environ 10 V/nm par effet de pointe en bout d'échantillon [47]. Un champ électrique si intense permet d'ioniser et d'évaporer les atomes de surface et de projeter les ions correspondants sur un détecteur 2D, Figure 11. L'espèce chimique des ions est définie par spectrométrie à temps de vol. Des pulses laser ou des pulses en tension sont utilisés pour

déclencher l'évaporation des atomes de surface à un instant donné et ainsi obtenir le temps de vol des ions évaporés.

La sonde atomique tomographique permet également de localiser en 3D les ions détectés. Pour cela, des algorithmes de reconstruction permettent de reconstruire l'échantillon en 3D à partir des positions successives des ions détectés sur le capteur 2D. Il est à noter qu'une information supplémentaire est nécessaire pour positionner les ions en 3D, cette information peut être la connaissance de la forme initiale de la pointe.

Ainsi la sonde atomique est une technique ultime permettant la visualisation 3D des atomes ainsi que la détermination de leur nature chimique. Néanmoins, la sonde atomique possède encore de nombreuses limitations dont les principales sont :

**1) Des contraintes sur les types d'échantillon pouvant être analysés en sonde atomique.** Les échantillons doivent pouvoir être préparés en forme de pointe avec un diamètre inférieur à la centaine de nanomètres. La sonde atomique qui utilise des pulses en tension ne peut être utilisée qu'avec des échantillons conducteurs [48]. Néanmoins, le développement de la sonde atomique à pulses laser [49] a permis d'évaporer d'autres types d'échantillons tels que des semi-conducteurs [50] ou des céramiques [48].

**2) De nombreux artefacts de reconstruction peuvent déformer le volume.** Notamment en présence de plusieurs éléments avec des champs d'évaporation différents, un effet de grandissement local peut fortement déformer la reconstruction 3D [51].

**3) Le rendement de détection des atomes n'est pas de 100%.** Ceci limite les informations quantitatives que l'on peut extraire de la technique.

**4) La morphologie 3D de l'échantillon reconstruit est très dépendante des paramètres choisis.** Les ions sont détectés sur un capteur 2D. La 3D est souvent obtenue en faisant l'hypothèse d'une symétrie centrale de l'échantillon et d'un angle de cône connu. Ces hypothèses sont fortes et les paramètres utilisés pour la reconstruction peuvent avoir un impact important sur la morphologie de la reconstruction.

**5) Enfin, une proportion non négligeable de pointes casse** à cause du fort champ électrique, avant même d'avoir pu obtenir des informations exploitables.

Ces limitations sont les raisons pour lesquelles différents travaux essaient de corrélérer tomographie électronique et sonde atomique [50], [52], Figure 13. Ces techniques s'avèrent très complémentaires et permettent d'obtenir des informations uniques. La tomographie électronique apportant une information précise sur la morphologie de l'échantillon et la sonde atomique une information précise sur la nature des espèces chimiques présentes. Néanmoins, le taux important d'échantillons cassés en sonde atomique ainsi que la lourdeur du processus complet de tomographie électronique limitent aujourd'hui la faisabilité à grande échelle de ces études croisées. Une automatisation et simplification de la technique de tomographie électronique alliée à une amélioration du taux de réussite en sonde atomique seront nécessaires pour aller vers une utilisation plus fréquente de ces caractérisations multi techniques si avantageuses.

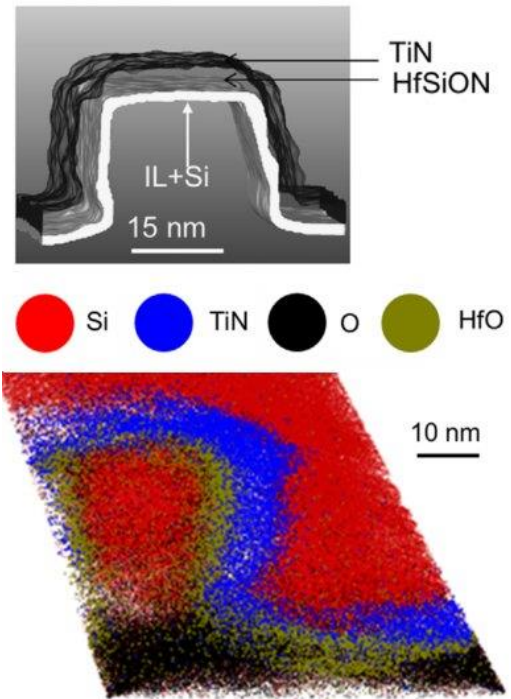


Figure 13 : En haut, visualisation 3D de la segmentation d'une reconstruction de tomographie électronique d'un transistor triple grilles mettant en évidence la morphologie des différents composants. En bas, reconstruction en sonde atomique tomographique du même dispositif, mettant en évidence les différents éléments chimiques présents. Figure modifiée à partir de la référence [50].

## 3) Traitement du signal appliqué à l'imagerie 2D et 3D

---

### I. 3. a. Nécessité du traitement du signal

Les méthodes d'imagerie 2D et 3D permettent d'avoir accès rapidement à une information qualitative. Il est souvent très intéressant, voire indispensable, d'extraire également des données quantitatives des images. C'est le cas en médecine [53], en biologie [54], ou en sciences de la matière [55]. L'obtention de données quantitatives n'est pas triviale et nécessite souvent plusieurs étapes difficilement automatisables qui peuvent être regroupées comme suit :

- (ii) Un prétraitement des images
- (iii) Une segmentation
- (iv) Des opérations morphologiques sur la segmentation
- (v) Une extraction des informations quantitatives intéressantes

#### *I. 1. a. (i) Prétraitement des images*

Le prétraitement des images vise en général à corriger la présence de bruit, les différents types d'artéfacts qui peuvent être présents, ou encore un contraste insuffisant. Le prétraitement doit réellement s'adapter à chaque technique d'imagerie et aux artéfacts et problèmes qui lui sont propres. Néanmoins certaines limitations se rencontrent dans beaucoup de domaines et des techniques génériques peuvent s'appliquer. C'est le cas pour le bruit qui est classiquement un bruit blanc gaussien dans beaucoup de domaines de la physique. Des techniques génériques de débruitage peuvent alors s'appliquer [56]–[58]. Il est également possible de modifier un peu des techniques existantes pour s'adapter au problème spécifique qui nous concerne. Dans le cas d'un bruit de Poisson par exemple, une transformée de Anscombe [59] permet de se ramener au cas plus classique du bruit gaussien et d'utiliser des techniques existantes pour ce type de bruit.

#### *I. 3. a. (i) Segmentation*

Une fois les images traitées, il est possible de réaliser une segmentation [60] pour séparer les différentes zones d'intérêt. De très nombreux types de segmentation existent, la plus simple étant un seuillage global des niveaux de gris. La valeur du seuil peut être choisie manuellement ou automatiquement [61]. De nombreuses autres techniques peuvent également être utilisées [60], allant

d'un seuillage local des niveaux de gris à des méthodes plus complexes prenant en compte les pixels voisins comme les méthodes basées sur les lignes de partage des eaux [62].

### I. 3. a. (ii) Opérations morphologiques

Une fois les images segmentées, il faut très souvent avoir recours à des opérations morphologiques pour corriger certains résultats de la segmentation ou séparer certaines zones segmentées. Les opérations de base sont notamment l'érosion et la dilatation qui sont définies dans la référence [63] et qui visent respectivement à réduire et à étendre la zone segmentée. Ces opérations sont représentés sur la Figure 14 à l'aide de l'image « rice.png » provenant de l'image toolbox du logiciel Matlab®. En combinant ces deux opérations morphologiques il est possible de réaliser des fermetures ou des ouvertures pour respectivement combler les trous au milieu d'un volume segmenté ou supprimer certaines zones segmentées au milieu du vide, cf. Figure 14.

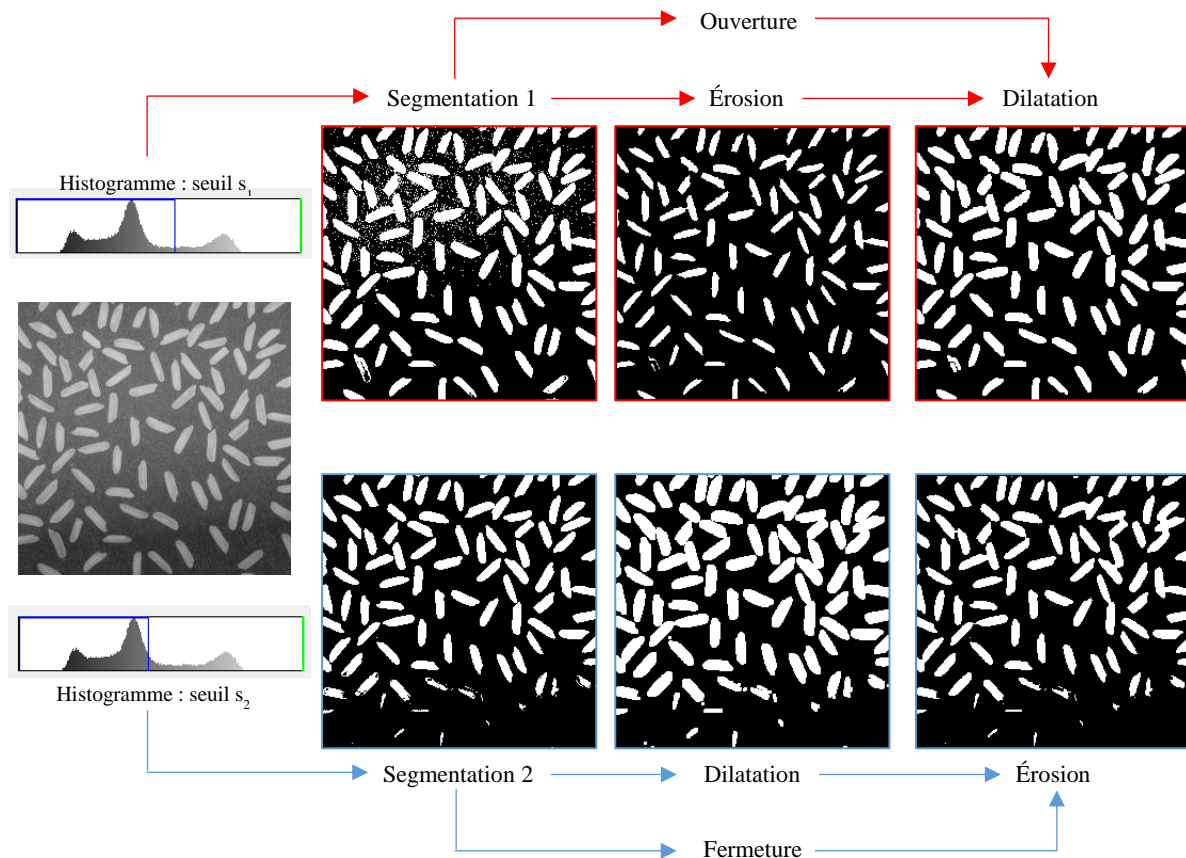


Figure 14 : Exemple de segmentation et d'utilisation d'opérations morphologiques élémentaires (érosion, dilatation, ouverture et fermeture) pour corriger des « erreurs » de segmentation. La segmentation 1 possède beaucoup de petites zones segmentées en haut de l'image qui ne sont pas des grains de riz. A l'inverse la segmentation 2 possède des trous dans certains grains de riz en bas de l'image qui n'ont pas lieu d'exister. Après utilisation des opérations morphologiques d'érosion ou de dilatation, ces « erreurs » peuvent être corrigées. L'image utilisée, « rice.png » provient de l'image toolbox du logiciel Matlab.



### ***I. 3. a. (iii) Extraction d'informations quantitatives***

De nombreuses informations quantitatives peuvent ensuite être extraites du volume correctement segmenté. Les informations utiles dépendent du contexte mais on retrouve fréquemment l'aire ou le volume des objets segmentés, un taux de porosité, une élongation, une granulométrie, etc... [53], [64].

## **I. 3. b. La parcimonie**

### ***I. 3. b. (i) Définition mathématique***

On dit qu'un vecteur de  $\mathbb{R}^N$  est K-parcimonieux dans une certaine base ("K-sparse" en anglais) s'il ne possède que K éléments non nuls [65]. La parcimonie d'un signal dépend donc de la base dans lequel il est exprimé. Ainsi, un sinus pur n'est absolument pas parcimonieux dans l'espace réel, mais dès qu'il est exprimé dans le domaine fréquentiel il devient totalement parcimonieux (1-parcimonieux) puisqu'il n'est alors constitué que d'un seul élément non nul. On peut alors parler de représentation parcimonieuse du signal.

### ***I. 3. b. (ii) La parcimonie et le sens physique***

La parcimonie d'un signal peut être vue comme une faible quantité d'information puisqu'un signal K-parcimonieux peut être totalement défini avec K coefficients non nuls. Cette notion de faible quantité d'information présente dans un signal est à prendre au sens mathématique du terme, sans aucun jugement sur la valeur de cette information. Ainsi une image composée de bruit gaussien uniquement n'a aucune représentation parcimonieuse évidente et contient de ce fait énormément d'information. A l'inverse une image telle que le fantôme de Shepp & Logan (Figure 15) peut être définie comme un ensemble de quelques ellipses de différents niveaux de gris et contient ainsi très peu d'information. Cette définition de la parcimonie amène donc à dire quelque chose de contraire au sens physique qui laisse penser de prime abord que l'image du bruit de la Figure 15 ne contient pas d'information alors que celle du fantôme en contient beaucoup.

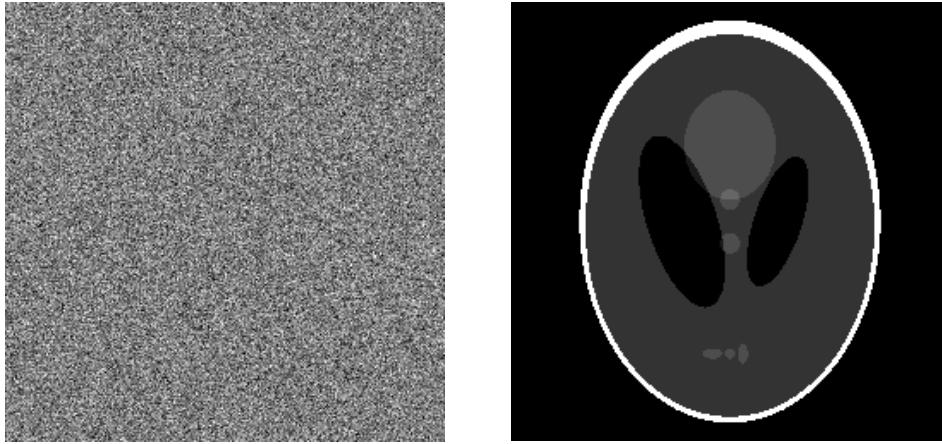


Figure 15 : La parcimonie, un sens mathématique et physique bien différent. L'image de gauche est une image de bruit gaussien, elle n'est pas du tout parcimonieuse puisqu'elle ne peut être définie facilement avec peu de coefficients non nuls. Le fantôme de Shepp & Logan, à droite, peut-être défini avec quelques dizaines de coefficients non nuls sachant qu'il est composé de plusieurs ellipses avec des niveaux de gris différents.

### ***I. 1. a. (i) Définition relaxée***

En pratique les signaux strictement parcimonieux sont extrêmement rares. Une définition relaxée de la parcimonie revient à considérer les signaux qu'on appellera faiblement parcimonieux. Un signal faiblement parcimonieux (ou compressible) est un signal dont les coefficients ordonnés décroissent très rapidement [65]. De tels signaux peuvent donc être très bien définis en ne gardant que les quelques coefficients les plus importants du signal. Nous verrons par la suite qu'une telle définition permet de prendre en compte une immense majorité des signaux physiques.

### ***I. 3. b. (iii) Que permet la parcimonie ?***

La parcimonie permet beaucoup de choses. La première qui vient à l'esprit est la compression de données. En effet, un signal exprimé dans sa base originale peut-être très lourd en quantité d'information. Utiliser une représentation parcimonieuse de ce signal, et ne garder que quelques coefficients non nuls, permet de diminuer drastiquement la quantité d'information nécessaire pour stocker ce signal. Ce genre de phénomènes est omniprésent dans notre société de l'information ultra-connectée. La compression est en effet utilisée en permanence pour les fichiers multimédias qu'ils soient audio, photo, ou vidéo. Prenons par exemple le cas d'un film couleur Full HD de 1h30. En données brutes cela donne une quantité d'information énorme qui est le produit des termes suivants :

- Le nombre d'images (25 images par seconde, pendant 1h30 = 5400 s) =  $1,4 \cdot 10^5$
- Le nombre de pixels (1080 x 1920) =  $2,1 \cdot 10^3$
- Le nombre d'octets par pixel (3 canaux de couleurs, chacun codé sur 1 octet) = 3

Autrement dit, un seul film d'1h30 contient une information d'environ 800 Giga-octets, et cela sans même parler de la bande son. Utiliser une compression du signal permet d'obtenir un film dont la taille se situe 2 à 3 ordres de grandeurs en dessous !

La parcimonie permet également de réaliser des opérations de débruitage. En effet, avec une représentation parcimonieuse, on peut ne garder que quelques coefficients et bien conserver le signal original. Le bruit quant à lui n'étant pas compressible, ne conserver que quelques coefficients permet de se débarrasser de la majeure partie du bruit.

La parcimonie permet enfin l'acquisition comprimée (CS = "*Compressed Sensing*" en anglais) [66]. Puisqu'il est inutile d'acquérir une quantité énorme d'informations pour ensuite n'en garder qu'une infime partie, l'idée du CS est de limiter l'acquisition de données au minimum en gardant toute l'information utile du signal. Le CS sera succinctement présenté à la fin de ce chapitre.

### ***I. 3. b. (iv) Représentations parcimonieuses adaptées***

La parcimonie n'a un intérêt que s'il existe facilement une représentation parcimonieuse pour un signal donné. Il est possible de faire de l'apprentissage de dictionnaires et ainsi automatiquement chercher une expression parcimonieuse adaptée au signal à traiter [67], [68]. Mais sans aller jusque-là, certaines représentations du signal, et notamment les représentations multi-échelles (succinctement introduites dans la partie suivante) présentent des propriétés de fortes parcimonie pour beaucoup de types d'image [65]. C'est le cas en particulier des ondelettes [69] ou des curvelettes [70], cf. Figure 16. Les transformées multi-échelles sont avantageuses en temps de calculs par rapport aux techniques d'apprentissage de dictionnaires.

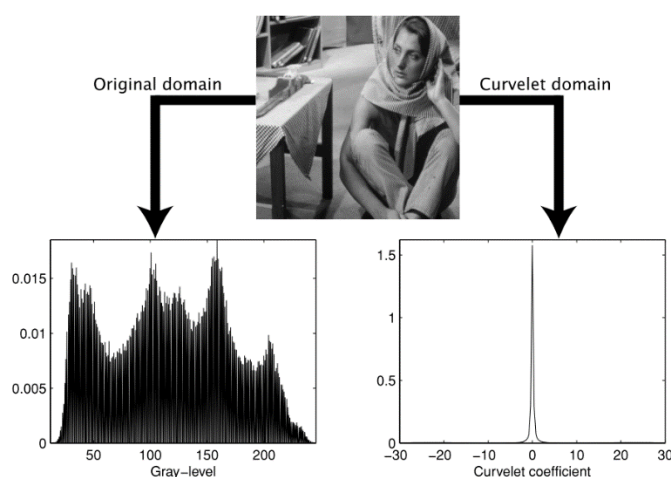


Figure 16 : Représentation de la forte parcimonie de l'image « barbara » dans le domaine des curvelettes, figure provenant de la référence [65]. L'histogramme dans le domaine des pixels (à gauche) ne présente pas de parcimonie, alors que l'histogramme dans le domaine des curvelettes (à droite) montre une forte parcimonie.

### I. 3. c. Transformées multi-échelles

Les transformées multi-échelles se reconnaissent généralement à leur nom par l'utilisation du suffixe « -ette » en français ("et" en anglais). Les premières transformées de ce type ont été les ondelettes [71] qui sont caractérisées par des éléments à peu près isotropes à différentes échelles et positions, la Figure 17 représente quelques éléments d'une transformée de Haar. Nous n'entrerons pas dans les détails mathématiques des transformées multi-échelles qui ne constituent pas le travail de cette thèse. Nous expliquerons simplement le principe de fonctionnement et ce qu'il est possible de tirer en pratique de ces transformées.

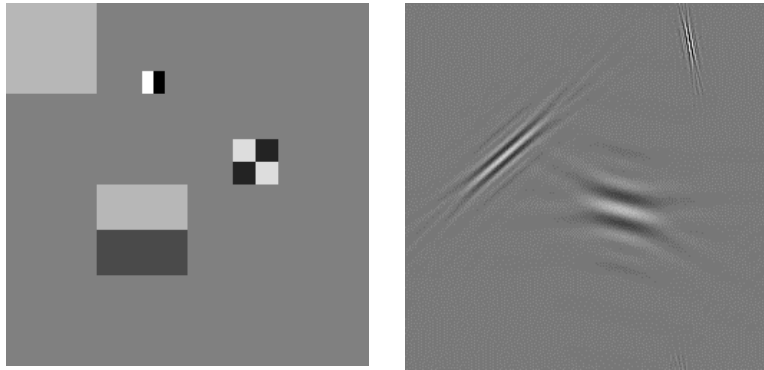


Figure 17 : (Gauche) quatre éléments d'une transformée en ondelettes de Haar, relativement isotropes à différentes échelles. (Droite) trois éléments d'une transformée en curvelettes à différentes échelles et orientations représentant des éléments fortement anisotropes de plus en plus allongés au fur et à mesure que la résolution diminue.

La transformée en ondelettes 2D d'une image permet de mieux comprendre le caractère multi-échelle des ondelettes. Une image 2D peut ainsi être décomposée en une image avec une résolution 2 fois plus petite, c'est-à-dire une échelle 2 fois plus grande, et des détails verticaux  $\mathcal{W}^V$ , horizontaux  $\mathcal{W}^H$  et diagonaux  $\mathcal{W}^D$  qui dépendent du type d'ondelettes choisi [71]. Itérer cette opération permet d'obtenir un certain nombre  $J$  d'échelles qui décomposent l'image originale  $\mathcal{C}^0$  en plusieurs approximations successives  $\mathcal{C}^j$  avec une échelle  $2^j$  et des niveaux de détails  $\mathcal{W}_j^V$ ,  $\mathcal{W}_j^H$  et  $\mathcal{W}_j^D$  de plus en plus fins. Le principe est visible dans la Figure 18 qui représente une image originale et les transformées en ondelettes avec 1 et 2 niveaux d'échelles. La transformée en ondelettes décimées étant inversible, il est possible de revenir d'une image basse résolution à l'échelle  $2^j$  à celle de l'échelle  $2^{j-1}$  en connaissant les niveaux de détails de cette échelle ( $\mathcal{W}_j^V$ ,  $\mathcal{W}_j^H$  et  $\mathcal{W}_j^D$ ).

Image originale

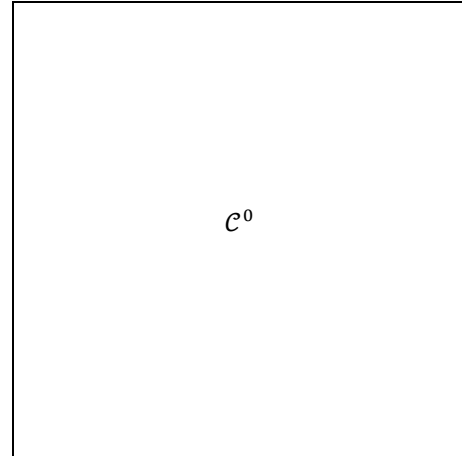


Image correspondant à 1 niveau de décomposition

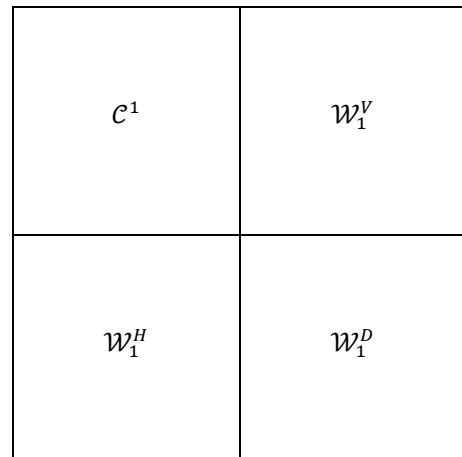
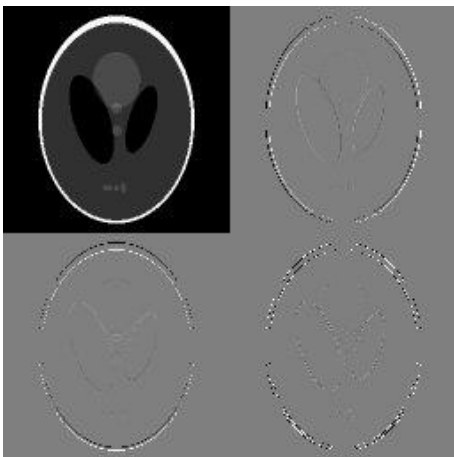


Image correspondant à 2 niveaux de décompositions

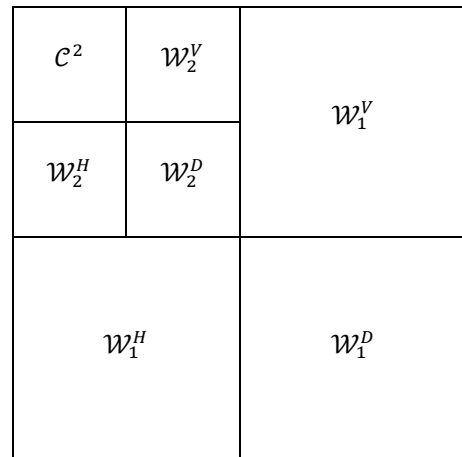
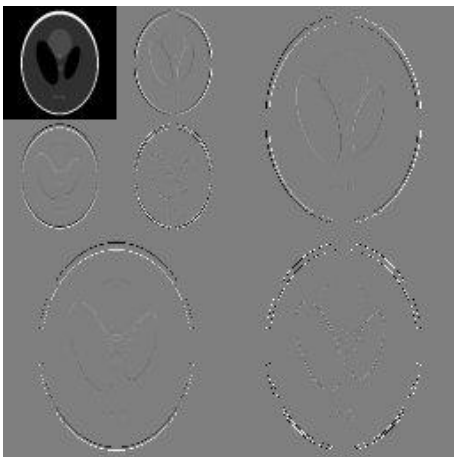


Figure 18: Exemples de décompositions en ondelettes décimées (Haar) de l'image du fantôme de Shepp & Logan pour différentes échelles de décompositions ( $J = 0, 1$  et  $2$ ). (Gauche) Image représentant la valeur des coefficients de la transformée en ondelettes et (droite) position des différentes sous-parties.  $c^j$  est l'approximation à l'échelle  $j$  et  $w_j^H, w_j^V, w_j^D$  contiennent respectivement les détails horizontaux, verticaux et diagonaux de l'échelle  $j$ .

D'autres transformées multi-échelles ont ensuite été développées pour corriger certaines limitations des ondelettes à représenter des objets fortement anisotropes. Parmi ces transformées

multi-échelles sont citées dans la référence [65], les ridglettes, les curvelettes, les contourlettes, les "directionlets", les "bandlets" et les "grouplets". La Figure 17 montre quelques éléments d'une transformée en curvelettes à différentes échelles et orientations. Une autre limitation des ondelettes est leur dépendance à la translation. Les transformées en ondelettes d'une image et de la même image décalée de quelques pixels peuvent être complètement différentes, cf. Figure 19. Ainsi de nombreux travaux ont cherché à corriger les artéfacts qui peuvent être engendrés par cette dépendance à la translation [57], [72], [73]. Les ondelettes non décimées [57], qui sont caractérisées par des niveaux de détails qui ont tous autant d'éléments que l'image originale sont un exemple de transformée indépendante à la translation.

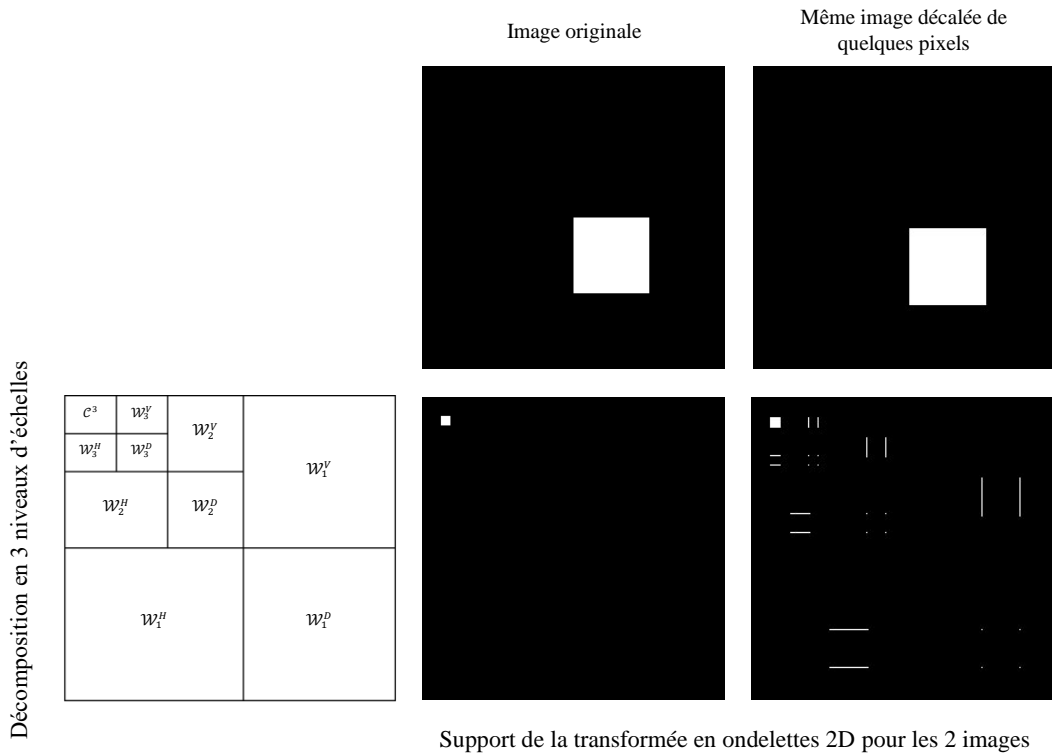


Figure 19 : Transformée de Haar et dépendance à la translation. Comparaison des transformée en ondelettes obtenues avant et après translation d'une image de quelques pixels. La première transformée en ondelettes n'a des coefficients non nuls que pour l'image approximée de l'échelle  $2^3$ . Après translation de l'image originale de quelques pixels, la transformée en ondelettes de Haar possède en plus des coefficients non-nuls sur tous les niveaux de détails.

Enfin, les dictionnaires redondants, c'est-à-dire ayant plus d'éléments de décomposition que le signal original, présentent des propriétés de fortes parcimonies [74]. C'est le cas notamment des ondelettes non décimées [57] ou des curvelettes [70], qui sont des représentations redondantes et qui peuvent en plus être associées pour définir de façon toujours plus parcimonieuse des images composées d'éléments à la fois isotropes et anisotropes [75], [76].

## I. 3. d. Débruitage

### I. 3. d. (i) *Introduction et critères pour choisir une technique de débruitage*

Dans beaucoup de domaines physiques le signal mesuré  $\mathbf{p}$  est la somme du signal d'intérêt  $\mathbf{p}_i$  et d'un signal parasite aléatoire  $\mathbf{b}$  appelé bruit selon l'expression suivante :

$$\mathbf{p} = \mathbf{p}_i + \mathbf{b} \quad (1)$$

Le débruitage est un domaine mathématique qui a suscité de nombreux travaux dernièrement et qui vise à retrouver le signal  $\mathbf{p}_i$  à partir du signal mesuré  $\mathbf{p}$ . De très nombreuses techniques existent aujourd'hui et permettent de débruiter une image ou un volume. Il est intéressant de pouvoir choisir une technique de débruitage en fonction des données, des besoins et des moyens matériels disponibles. Parmi les critères qui permettent de choisir une technique de débruitage plutôt qu'une autre, on retrouve :

#### ➤ Le type de bruit

Plusieurs types de bruit existent tels que le bruit blanc gaussien, le bruit de Poisson ou encore le bruit impulsionnel.

Le bruit blanc gaussien : Le terme de « bruit blanc » est utilisé par analogie avec le spectre de la lumière blanche qui est composé de toutes les couleurs visibles. Un bruit blanc est ainsi un bruit dont la densité spectrale de puissance est constante. On parle de bruit blanc gaussien lorsque le bruit suit une loi normale  $\mathcal{N}(\mu, \sigma)$ , autrement dit lorsque la densité de probabilité est une gaussienne d'espérance  $\mu$  et d'écart-type  $\sigma$  :

$$G_{\mu, \sigma}(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{x-\mu}{\sigma}\right)^2} \quad (2)$$

C'est un bruit qui est totalement indépendant de la position spatiale, c'est-à-dire que la valeur du bruit en un pixel est totalement indépendante de la valeur du bruit des pixels alentour. C'est un bruit particulièrement pertinent en raison du théorème central limite qui stipule que toute somme de variables aléatoires indépendantes et identiquement distribuées tend vers une loi normale.

Le bruit de Poisson : Ce bruit existe lors du comptage d'un nombre d'évènements indépendants les uns des autres dans un certain laps de temps. Si le nombre moyen d'évènements est  $\mu$ , alors la probabilité de mesurer  $k$  évènements est donnée par la loi de Poisson de paramètre  $\mu \in \mathbb{R}^{+*}$ , dont l'équation est :

$$P_{\mu}(k) = \frac{\mu^k}{k!} e^{-\mu} \quad (3)$$

La loi de Poisson est stable par la somme,  $P_{\mu_1} + P_{\mu_2} = P_{\mu_1+\mu_2}$ , ce qui est cohérent avec le fait que cette loi définit des événements indépendants entre eux. Compter le nombre d'évènements pendant 1 minute puis pendant 2 minutes et sommer les valeurs obtenues revient à compter les évènements pendant 3 minutes directement. Une loi de Poisson de paramètre  $\mu$  a une espérance de  $\mu$  et un écart-type de  $\mu^{1/2}$ . Le décompte d'un nombre de photons sur un détecteur peut définir une loi de Poisson. Compter plus longtemps les photons arrivant revient à augmenter le paramètre  $\mu$ . Le bruit, d'écart-type  $\mu^{1/2}$ , augmente alors mais moins rapidement que le signal  $\mu$ . C'est pour cela que le rapport signal sur bruit augmente en  $\mu^{1/2}$  avec le temps de comptage et qu'il est intéressant de compter plus longtemps en pratique.

Le bruit impulsionnel : Le bruit impulsionnel est un type de bruit qui peut être dû aux pixels défectueux d'une caméra, ou à des erreurs de transmission de données [77]. Certains pixels ont alors des valeurs aberrantes. Ces valeurs peuvent être les valeurs maximales et minimales possibles correspondant au blanc et au noir, auquel cas le bruit impulsionnel est qualifié de bruit « poivre et sel ».

➤ **La qualité du débruitage**

C'est la capacité à se rapprocher le plus possible du signal d'intérêt  $p_i$ . Autrement dit c'est la possibilité d'enlever un maximum de bruit avec le moins de perte de signal utile. Plusieurs moyens d'évaluation de la qualité du débruitage peuvent être pris. On peut prendre par exemple le PSNR ("Peak-Signal to Noise Ratio") qui est défini pour un signal  $p$  par rapport au signal d'intérêt  $p_i$  comme suit :

$$PSNR(p) = 10 \log_{10} \left( \frac{N d^2}{\sum_{k=1}^N (p_i(k) - p(k))^2} \right) \quad (4)$$

où  $d$  est la dynamique du signal ( $d = 255$  dans le cas d'une image classique codée sur 1 octet) et  $N$  est le nombre de pixels

Un débruitage est d'autant plus efficace que le PSNR est élevé. Il faut noter néanmoins que la notion de PSNR peut être inadaptée dans certains cas. En effet, il peut arriver qu'une image avec un moins bon PSNR qu'une autre se retrouve meilleure selon un critère visuel. D'autres critères d'évaluation existent donc comme le SSIM ("**Structural SIMilarity**") [78] qui vise à mesurer la différence de structures entre deux images plutôt que les différences pixels à pixels pour une plus grande fidélité à la sensibilité de l'œil humain. Mais le PSNR reste un bon moyen d'évaluation, simple à utiliser en pratique.



➤ **Les Coûts de calculs**

Les coûts en calculs nécessaires pour réaliser une opération de débruitage sont très variables d'une technique à l'autre. Certaines techniques demandent plus de mémoire que d'autres et des temps de calculs bien plus importants. Les applications qui nécessitent un débruitage en temps réel sur de grands jeux de données ne pourront utiliser des techniques trop exigeantes en calculs.

➤ **La simplicité d'implémentation**

Pouvoir implémenter en quelques lignes de codes une technique de débruitage peut s'avérer important dans certaines situations. Par exemple pour faciliter la maintenance logicielle où rechercher des optimisations possibles à moindre coût en exploitant les particularités du domaine dans lequel le débruitage est réalisé.

➤ **La simplicité d'utilisation**

La présence de trop nombreux paramètres en entrée peut-entraîner une difficulté d'utilisation préjudiciable.

Nous allons maintenant présenter succinctement quelques techniques de débruitage : (i) le filtrage linéaire, (ii) le filtrage non-linéaire, (iii) le seuillage de transformées multi-échelles, (iv) la diffusion anisotrope et (v) le filtrage non-local.

***I. 3. d. (ii) Filtres linéaires***

L'utilisation de filtres linéaires pour débruiter est classique. Il s'agit d'utiliser un filtre passe-bas pour limiter les variations hautes fréquences souvent porteuses de beaucoup de bruit. Le filtre passe-bas utilisé est fréquemment une gaussienne. Utiliser un filtre gaussien dans le domaine fréquentiel revient à réaliser la convolution par une gaussienne dans le domaine réel, la transformée de Fourier d'une gaussienne étant elle-même une gaussienne. Le débruitage par un filtre gaussien consiste donc à modifier la valeur d'un pixel par la somme des pixels environnants affectés d'un coefficient décroissant en fonction de la distance selon une gaussienne.

Cette technique de débruitage a le mérite d'être très simple. Elle est de plus rapide car la convolution peut être réalisée dans le domaine de Fourier par une multiplication termes à termes des transformées de Fourier. Elle peut donc s'étendre à des signaux 3D, voire en dimension quelconque, facilement. Néanmoins, elle présente le gros inconvénient de flouter les transitions rapides en supprimant les hautes fréquences partout dans l'image.

**I. 3. d. (iii) Filtres non-linéaires**

Il est également possible d'appliquer un filtre non-linéaire. Le filtre médian est un très bon exemple de filtre non-linéaire. Il s'agit de remplacer la valeur d'un pixel par la valeur médiane des pixels alentours. La taille du cœur utilisé pour prendre la valeur médiane peut varier et doit s'adapter au type et à l'intensité du bruit au même titre qu'aux données à débruiter.

Le filtre médian présente la propriété reconnue de moins lisser les données et par conséquent de moins perdre en résolution qu'un filtre gaussien, en particulier lorsqu'il y a des bords francs dans une image. Le filtre médian est reconnu particulièrement efficace en présence d'un bruit impulsionnel [77] car les valeurs aberrantes n'interviennent que peu dans le calcul de la médiane.

**I. 3. d. (iv) Seuillage de transformées multi-échelles**

Il est possible d'utiliser une transformée multi-échelle et de réaliser un seuillage pour supprimer (ou diminuer), les coefficients qui contiennent du bruit et pas (ou peu) de signal utile. Ce genre de technique de débruitage exploite donc la parcimonie du signal pour conserver la majorité du signal utile en gardant un minimum de coefficients non nuls. Il est souvent avantageux d'utiliser des transformées redondantes grâce à leur représentation fortement parcimonieuse. Dans le cas d'un bruit blanc gaussien, il est possible d'évaluer la quantité de bruit  $\sigma$  en utilisant les détails fins diagonaux [65], [79] qui sont constitués de bruit en majeure partie. Connaissant la transformée multi-échelle utilisée, il est ensuite possible d'extrapoler le niveau de bruit à toutes les échelles et niveaux de détails [65]. Effectuer un seuillage sur les coefficients qui sont susceptibles de ne contenir que du bruit permet alors d'en retirer une grande partie. La limite pour le seuillage est souvent fixé à  $k\sigma$  avec  $k$  compris entre 3 et 5 [80]. Dans le cas d'un bruit blanc gaussien pur sans signal supplémentaire, se limiter à 3 fois l'écart type  $\sigma$  permet déjà de supprimer 99,7% du bruit. Prendre 5 fois l'écart type permet de supprimer 99,9994% du bruit.

Plusieurs types de seuillage peuvent être utilisés, en particulier le seuillage dur qui supprime toutes les valeurs situées sous le seuil  $k\sigma$ , et le seuillage mou qui diminue de  $k\sigma$  tous les coefficients.

$$S_{dur}(x) = \begin{cases} 0 & \text{si } |x| \leq k\sigma \\ x & \text{si } |x| > k\sigma \end{cases} \quad (5)$$

$$S_{mou}(x) = \begin{cases} 0 & \text{si } |x| \leq k\sigma \\ x \left(1 - \frac{k\sigma}{|x|}\right) & \text{si } |x| > k\sigma \end{cases} \quad (6)$$

Utiliser ce type de débruitage permet de limiter les interventions de l'utilisateur puisqu'un critère dépendant du niveau de bruit présent et évalué directement avec l'image bruitée peut être pris dans

le cas d'un bruit blanc gaussien. Ce type de débruitage est relativement efficace et rapide mais nécessite une parcimonie importante de l'image dans la transformée multi-échelle choisie.

### ***I. 3. d. (v) Diffusion anisotrope***

L'idée du débruitage par diffusion anisotrope remonte à Malik et Perona [81]. La diffusion anisotrope copie les équations aux dérivées partielles qui définissent la diffusion thermique mais avec des coefficients de diffusion dépendant de l'image à débruiter. En particulier, les coefficients sont choisis moins importants à proximité des variations franches présentes dans l'image. Le but est de conserver les détails porteurs d'informations et de lisser, donc débruiter, principalement les zones avec un gradient plus faible. Ainsi, la diffusion anisotrope vise à conserver les variations présentes dans une image et à diffuser le signal dans les zones plus lisses. Elle permet ainsi de corriger la principale limitation du filtre gaussien qui a tendance à lisser les bords d'une image.

La diffusion anisotrope possède de très nombreux paramètres, il faut en effet définir la fonction donnant les coefficients de diffusion par rapport au gradient de l'image, la conduction thermique, un nombre d'itérations. C'est un filtre qui s'avère performant en particulier en présence d'images constantes par partie, comme c'est le cas du fantôme de Shepp & Logan.

### ***I. 3. d. (vi) Le filtrage non-local – "non-local means"***

Le filtrage non-local (NLM pour "Non-Local Means") [82] utilise les similarités présentes en différentes zones d'une image pour réaliser le débruitage. Contrairement au filtre gaussien qui moyenne les pixels alentour avec une pondération décroissante en fonction de la distance, le filtrage non-local moyenne tous les pixels de l'image avec une pondération décroissante en fonction de la similarité de leur voisinage. Ce type de filtre exploite donc les similarités qui existent au sein d'une image pour réaliser un débruitage efficace, ce qui produit de très bons résultats en termes de PSNR. Plusieurs paramètres existent pour ce filtrage avec notamment un paramètre ajustant la force du filtre, la taille des fenêtres utilisées pour le voisinage des pixels, et la taille de la fenêtre de recherche. En effet, pour des raisons de rapidité de calculs, tous les pixels de l'image ne sont pas toujours utilisés et une limitation aux pixels alentour est imposée. Puisque les similitudes se trouvent en général à peu près dans la même zone de l'image, cette limitation n'a que peu d'influence sur les résultats et accélère significativement l'algorithme.

### 1.3.d. (vii) Comparaison des techniques de débruitage présentées

Les 5 techniques<sup>2</sup> de débruitage qui viennent juste d'être présentées ont été comparées en utilisant le fantôme de Shepp & Logan et son sinogramme (voir chapitre suivant pour la définition d'un sinogramme). Ainsi nous avons utilisé une image n'ayant que quelques niveaux de gris et des bords très francs, et une image avec des niveaux de gris plus équitablement répartis et des bords plus progressifs. Un bruit blanc gaussien d'écart-type  $\sigma = 10 \times \frac{\max}{255}$  a été ajouté aux 2 images, où max est la valeur maximale de l'image. Les images bruitées ont des PSNR de 28,1. Le choix des paramètres pour comparer les résultats des différentes techniques de débruitage est épineux. Nous avons choisi de balayer les différents paramètres de chaque technique et de choisir le jeu de paramètre donnant le meilleur PSNR. La Figure 20 et la Figure 21 représentent les images débruitées et le résidu, c'est-à-dire la différence entre l'image débruitée et l'image parfaite, pour le fantôme et son sinogramme.

Toutes les techniques de débruitage améliorent le PSNR par rapport aux images bruitées. On peut noter néanmoins que le filtre gaussien n'enlève que très peu de bruit. Les paramètres choisis automatiquement sont très faibles. Des paramètres plus importants peuvent enlever plus de bruit, mais cela se fait au détriment du signal utile  $p_i$  et des bords de l'image notamment. Finalement un compromis est à trouver entre la conservation du signal utile et la suppression du bruit  $b$ . La détermination automatique des meilleurs paramètres en termes de PSNR a favorisé un faible retrait de bruit et une meilleure conservation de l'image, en particulier pour le fantôme.

Le filtre gaussien et le seuillage de transformées multi-échelles obtiennent un meilleur PSNR pour l'image la plus lisse (le sinogramme), c'est l'inverse pour la diffusion anisotrope et le filtre médian qui obtienne un meilleur PSNR pour l'image plus abrupte (le fantôme). Le filtrage non-local obtient les meilleurs PSNR des 5 techniques pour les deux images. Il est à noter que le filtre médian et le seuillage multi-échelle ne possèdent qu'un paramètre dans nos implémentations, même si les résultats ne sont pas aussi bons que pour le filtrage non-local, l'utilisation de ces techniques en pratique est donc plus facile.

---

<sup>2</sup> Les filtres gaussien et médian ont été implémentés avec les fonctions Matlab® *imfilter()* et *medfilt2()*. Le seuillage de transformées multi-échelles a été implémenté sur Matlab, la transformée choisie et une transformée en ondelettes non décimées [57], le seuillage utilisé est un seuillage dur. La diffusion anisotrope a été implémentée sur Matlab. Le filtrage non-local a été réalisé à l'aide des fonctions Matlab écrites par Dr. Kroon, disponibles ici : <http://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/27395-fast-non-local-means-1d--2d-color-and-3d>

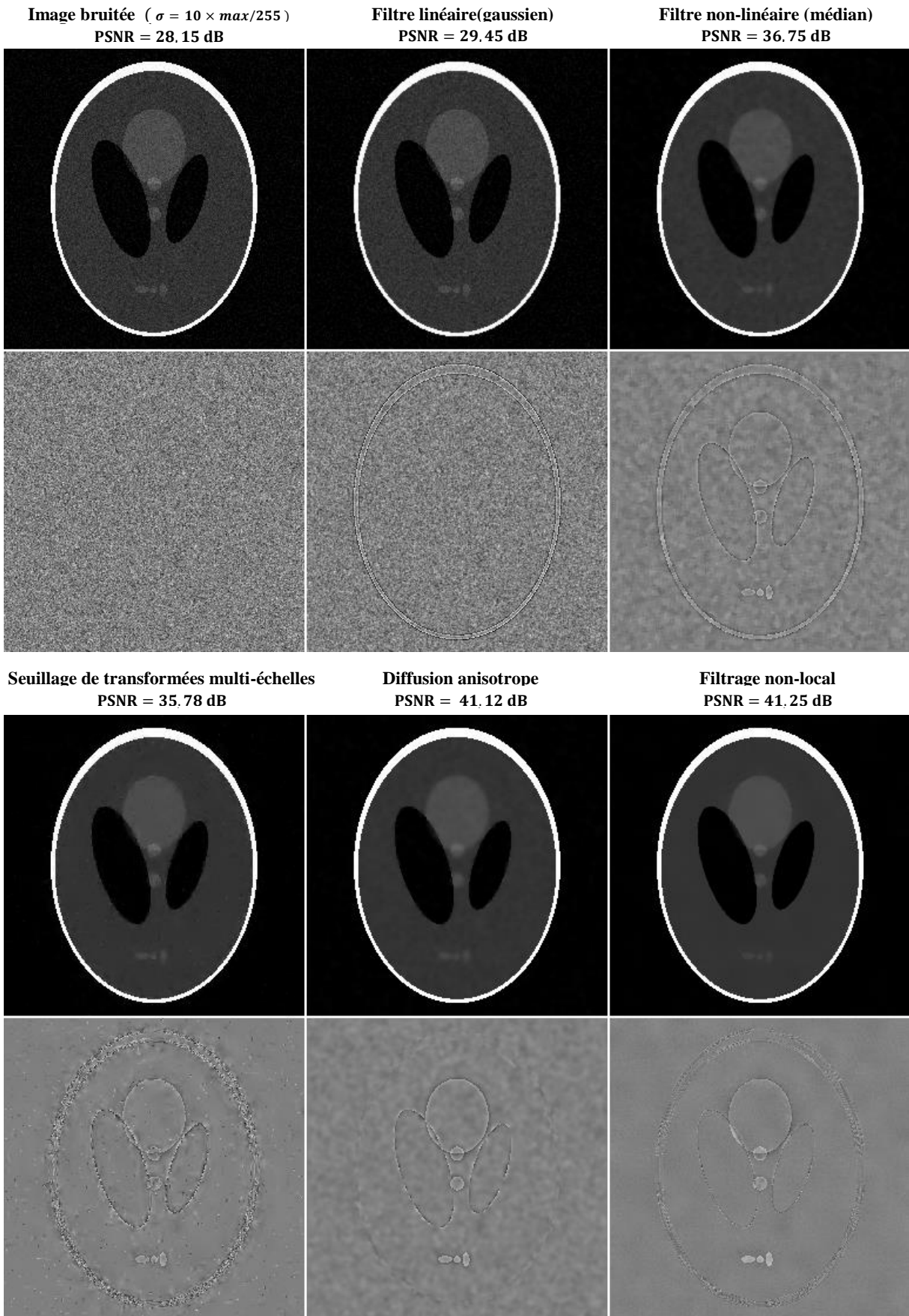


Figure 20 : Comparaison des techniques de débruitage sur le fantôme de Shepp & Logan. (En haut) image considérée du fantôme et (en bas) résidu correspondant. Le résidu est la différence entre l'image considérée et l'image originale sans bruit. Les PSNR sont indiqués pour chaque technique et pour l'image originale bruitée.

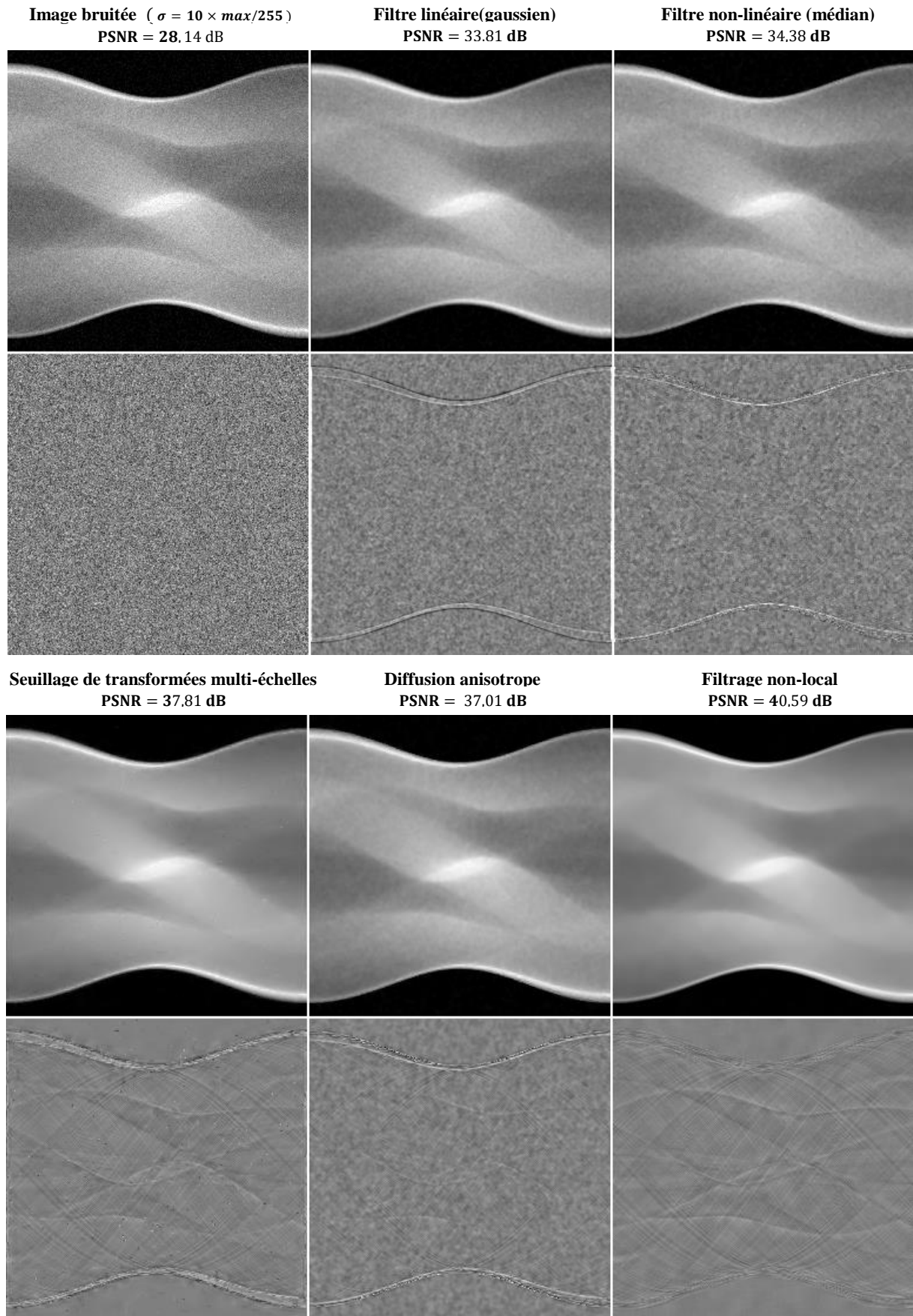


Figure 21 : Comparaison des techniques de débruitage sur le sinogramme du fantôme de Shepp & Logan. (En haut) image considérée du sinogramme et (en bas) résidu correspondant. Le résidu est la différence entre l'image considérée et l'image originale sans bruit. Les PSNR sont affichés pour chaque technique et pour l'image originale bruitée.

### I. 3. e. Acquisition comprimée (Compressed Sensing - CS)

L'idée du CS est qu'il est inutile d'acquérir 100% de l'information pour se rendre compte *a posteriori* que le signal est très bien défini avec une infime partie de coefficients non nuls. Tout mesurer pour se débarrasser dans un second temps de la majorité des coefficients semble donc inapproprié. David Donoho a ainsi formalisé en 2006 [66] un ensemble de critères justifiant la possibilité de ne pas acquérir tout le signal et pourtant d'obtenir rigoureusement le signal recherché. Il y a notamment 2 critères pour garantir ce résultat, le premier concerne la parcimonie du signal dans une certaine représentation, et le deuxième concerne l'incohérence entre l'acquisition des données et la représentation prétendument parcimonieuse. Si ces deux critères sont remplis, le CS permet de retrouver un objet de taille  $N$  présentant une  $K$ -parcimonie avec uniquement un nombre  $N_m$  de mesures vérifiant :

$$N_m = O(K \times \log(N)) \quad (7)$$

C'est le logarithme de cette expression qui permet de faire chûter grandement le nombre de mesures nécessaires et ce d'autant plus que l'objet cherché présente une forte parcimonie  $K$ . Le succès du CS tient au fait que les hypothèses ne sont pas très restrictives. En effet, nous avons vu précédemment que l'immense majorité des signaux physiques ont une représentation parcimonieuse (ou au moins faiblement parcimonieuse), de plus l'incohérence entre la mesure et la représentation parcimonieuse peut être obtenue simplement en réalisant une acquisition aléatoire.

Il est possible de retrouver le signal de plusieurs façons, en utilisant des algorithmes « gloutons » par exemple qui recherchent les éléments 1 à 1 comme l'algorithme *Matching Pursuit* [83]. Ceci revient à minimiser la « norme 0 » comptant le nombre d'éléments non-nuls ( $\|f\|_0 = \text{card}(\{f_i \neq 0\})$ ). Il est également possible de chercher la reconstruction minimisant la norme 1 du signal dans sa représentation parcimonieuse [84]. La norme 1 ( $\|f\|_1 = \sum(|f_i|)$ ) favorise les signaux parcimonieux. C'est une norme au sens strict contrairement à la « norme 0 ».

Le CS, en apportant une preuve théorique à l'importance de la parcimonie dès l'acquisition des données, a d'ores et déjà suscité un intérêt fort dans de très nombreux domaines de la physique et des mathématiques. Parmi les exemples de CS, on peut nommer l'utilisation d'une caméra à pixel unique [85], l'imagerie par résonance magnétique [86] ou la tomographie [87]. Cette nouvelle façon de penser permet de dépasser le théorème d'échantillonnage de Shannon-Nyquist qui requiert une fréquence d'échantillonnage au moins 2 fois supérieure à la fréquence maximale d'un signal, ce qui est une condition suffisante mais souvent bien plus forte que nécessaire pour l'acquisition d'un signal.







## *Chapitre II*

# ***TOMOGRAPHIE ELECTRONIQUE ET PROBLEMES INVERSES***

### ***Contenu du chapitre II***

La 1<sup>ère</sup> partie de ce chapitre présente différents algorithmes de reconstructions permettant d'obtenir la structure 3D d'un objet à partir d'un ensemble de projection 2D.

La 2<sup>ème</sup> partie aborde le caractère sous-déterminé du problème d'inversion en tomographie électronique. Plusieurs techniques d'inversion sous contraintes permettant de pallier ce problème sont également introduites dans cette partie.

La 3<sup>ème</sup> partie de ce chapitre présente succinctement le principe de fonctionnement de la microscopie électronique en transmission.

Enfin, la 4<sup>ème</sup> partie détaille les modes de contrastes de microscopie électronique en transmission compatibles avec la théorie mathématique de reconstruction 3D.





## 1) Reconstructions analytiques et algébriques

Pour simplifier les notations et les formulations mathématiques, nous nous limiterons dans ce chapitre aux notions de projections, rétroprojections et reconstructions d'un objet 2D à partir de ses projections 1D. Cette restriction est pertinente puisque qu'avec des projections parallèles, comme c'est le cas en tomographie électronique, il est possible de reconstruire un objet 3D coupe par coupe en traitant indépendamment les lignes des projections et ainsi se ramener au cas d'un objet 2D.

### II. 1. a. Projections et transformée de Radon

#### II. 1. a. (i) Transformée de Radon 2D

L'opération élémentaire de projection en tomographie est formulée mathématiquement par la « transformée de Radon », du nom de son inventeur qui fût le premier à publier sur cette transformée en 1917 [88]. La transformée de Radon permet d'exprimer un objet 2D en un ensemble de projections 1D au moyen d'intégrales linéaires dans toutes les directions de l'espace. La Figure 22 représente un objet  $f$  et une droite quelconque  $L$ . La transformée de radon de  $f$  est la fonction  $\mathcal{R}f$  qui à chaque droite  $L$  fait correspondre l'intégrale linéaire de  $f$  le long de  $L$  :

$$\mathcal{R}f(L) = \int_L f(x, y) ds \quad (8)$$

On peut définir une droite  $L$  quelconque du plan par une équation paramétrique. Sachant que  $\vec{d}$  est un vecteur directeur unitaire et que le point  $A$  appartient à la droite (cf. schéma ci-contre), on obtient l'équation suivante :

$$L(\theta, t) = \left\{ (x, y) \in \mathbb{R}^2 / \exists s \in \mathbb{R}, \begin{array}{l} x = t \cos \theta - s \sin \theta \\ y = t \sin \theta + s \cos \theta \end{array} \right\}$$

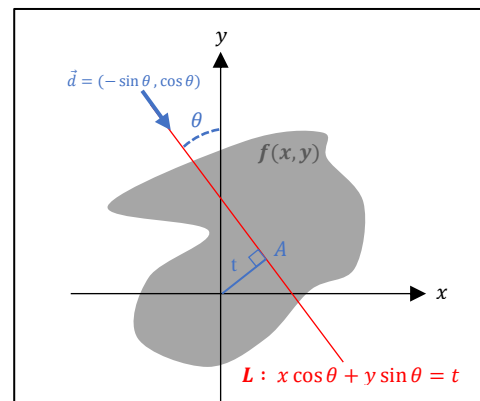


Figure 22 : Objet 2D  $f(x, y)$  et droite du plan de paramètres  $(\theta, t)$ .

En utilisant l'équation paramétrique dans la définition de l'équation (8), il vient :

$$\mathcal{R}f(\theta, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t \cos \theta - s \sin \theta, t \sin \theta + s \cos \theta) ds \quad (9)$$

À partir de l'équation (9), ou à partir de considérations géométriques, on remarque que la transformée de Radon est  $2\pi$ -périodique. On peut également tirer de l'équation (9) un lien entre les projections selon la direction  $\theta$  et selon la direction  $\theta + \pi$  :

Sachant que  $\cos(\theta + \pi) = -\cos \theta$  et que  $\sin(\theta + \pi) = -\sin \theta$  :

$$\mathcal{R}f(\theta + \pi, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(-t \cos \theta + s \sin \theta, -t \sin \theta - s \cos \theta) ds$$

En procédant au changement de variable  $s \rightarrow -s$  ; il vient :

$$= \int_{+\infty}^{-\infty} -f(-t \cos \theta - s \sin \theta, -t \sin \theta + s \cos \theta) ds$$

En inversant les bornes dans l'intégrale :

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} f(-t \cos \theta - s \sin \theta, -t \sin \theta + s \cos \theta) ds$$

On en déduit donc l'équation suivante :

$$\mathcal{R}f(\theta + \pi, t) = \mathcal{R}f(\theta, -t) \quad (10)$$

L'équation (10) peut également se voir géométriquement en remarquant qu'une projection à l'angle  $\theta$  est aussi la symétrie centrale de la projection à l'angle  $\theta + \pi$ . La  $2\pi$ -périodicité alliée à l'équation (10) permet ainsi de restreindre le paramètre  $\theta$  à un intervalle de longueur  $\pi$ . Ainsi, sans pertes de généralités on peut définir la transformée Radon de la fonction  $f$  comme la fonction  $\mathcal{R}f$  définie sur l'espace  $[-\pi/2, \pi/2[ \times \mathbb{R}$  à valeurs dans  $\mathbb{R}$ .

En affichant la fonction  $\mathcal{R}f : [-\pi/2, \pi/2[ \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}$ ; on obtient un sinogramme. Un sinogramme représente ainsi l'ensemble des projections 1D selon les directions  $\theta$  comprises entre  $-\pi/2$  et  $+\pi/2$ . La Figure 23 représente une carte de France en tant qu'objet 2D ainsi que le sinogramme correspondant. Le nom de sinogramme provient du fait qu'un point dans l'image originale devient un sinus lorsqu'on regarde son sinogramme, ceci est mis en évidence dans la Figure 24. On remarque également qu'il est possible à partir du sinogramme d'un point de remonter à la position du point dans l'objet 2D.

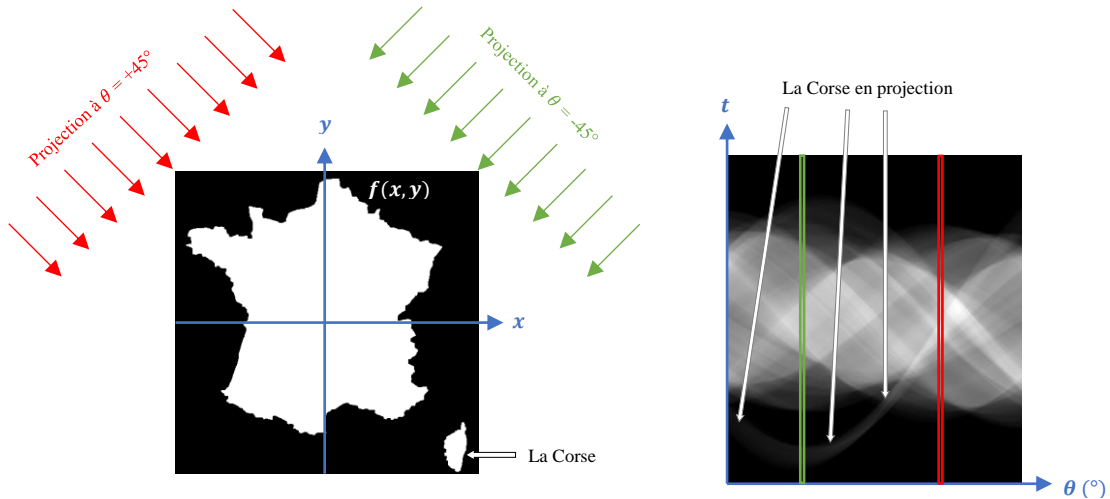


Figure 23 : Transformée de radon d'une carte de France. L'image de gauche représente un objet 2D, celle de droite le sinogramme correspondant. Sur la projection à 45° (en vert), la Corse est décalée de la France métropolitaine. Sur celle à +45° (en rouge) elle est en superposition avec la France métropolitaine.

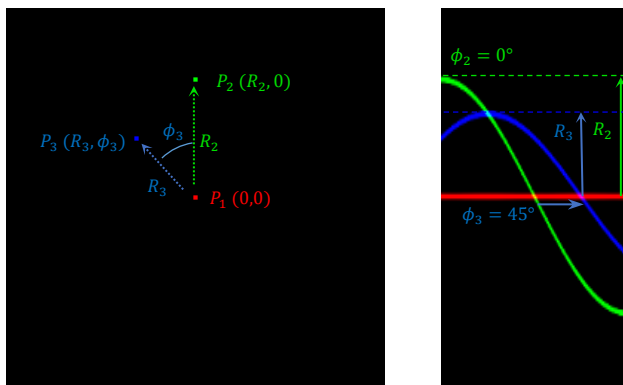


Figure 24: (gauche) Objet 2D constitué de 3 points ( $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$ ) respectivement en rouge, vert et bleu, et (droite) sinogramme correspondant. La position de chaque point  $P_i$  est définie en coordonnées polaires par 2 scalaires (la distance au centre  $R_i$  et l'angle  $\phi_i$ ). La position de chaque point peut être retrouvée à partir du sinogramme. Les points donnent un sinus dans le sinogramme dont l'amplitude est  $R_i$  et le déphasage est  $\phi_i$ .

### II. 1. a. (ii) Modèle linéaire, opérations de projection et rétroprojection

On se place dans le cas discret avec un objet 2D  $f$  présentant un nombre fini de pixels  $N$ . L'objet  $f$  est ainsi un vecteur de  $N$  éléments appartenant à  $\mathcal{M}_{N,1}(\mathbb{R})$ . Les projections 1D selon un ensemble fini de directions connues, sont quant à elles un vecteur  $p$  de  $P$  éléments appartenant à  $\mathcal{M}_{P,1}(\mathbb{R})$ . L'opération de projection peut alors être définie comme une opération linéaire en faisant intervenir la matrice de projection  $\mathbb{A} \in \mathcal{M}_{P,N}(\mathbb{R})$ . Au cours de cette thèse nous avons utilisé pour la matrice  $\mathbb{A}$  l'implémentation Matlab de la boîte à outils ASTRA<sup>3</sup>, proposée par l'université d'Anvers en Belgique. La matrice  $\mathbb{A}$  vérifie l'équation suivante :

$$\mathbb{A} f = p \tag{11}$$

<sup>3</sup> ASTRA est disponible à l'adresse suivante : <https://sourceforge.net/p/astra-toolbox/wiki/Home/>

La matrice  $\mathbb{A}$  est définie à l'aide des données géométriques du problème et notamment le nombre et l'orientation  $\theta_l$  des projections (voir schéma ci-contre).  $\mathbb{A}$  peut être appliquée à un objet 2D  $f$  de  $N$  éléments pour réaliser la projection de cet objet. On peut également définir l'opération de rétroprojection comme étant la multiplication d'un vecteur contenant des projections par la matrice transposée  ${}^t\mathbb{A}$ . D'un point de vue géométrique la rétroprojection est alors la somme des rétroprojections de tous les pixels de chacune des projections. Rétroprojeter un pixel  $p_j$  c'est ajouter sa valeur à tous les voxels de l'objet en la pondérant par la contribution de chaque voxel. Une rétroprojection est ainsi visible sur le schéma de la Figure 26, ci-dessous.

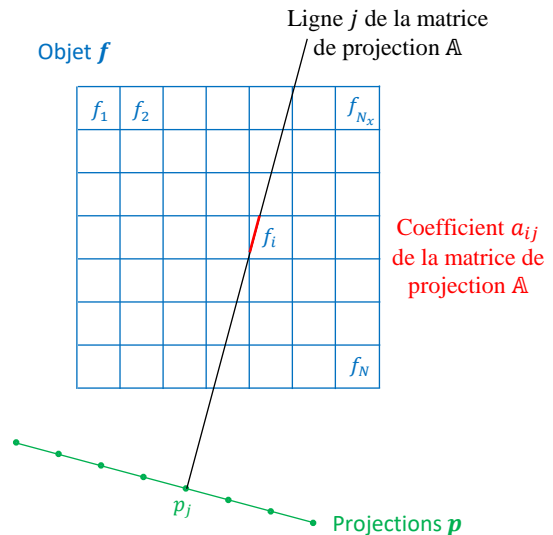


Figure 25 : Représentation de la matrice de projection  $\mathbb{A}$  liant projections mesurées  $p$  et objet à reconstruire  $f$ . La ligne  $j$  de la matrice  $\mathbb{A}$  définit le pixel  $j$  des projections. Le coefficient  $a_{ij}$  de la matrice correspond à la contribution du voxel  $i$  de l'objet dans l'intensité mesurée au pixel  $j$  des projections. La valeur de  $a_{ij}$  peut être définie comme la longueur de l'intersection entre le segment arrivant en  $p_j$  et le voxel  $f_i$ .

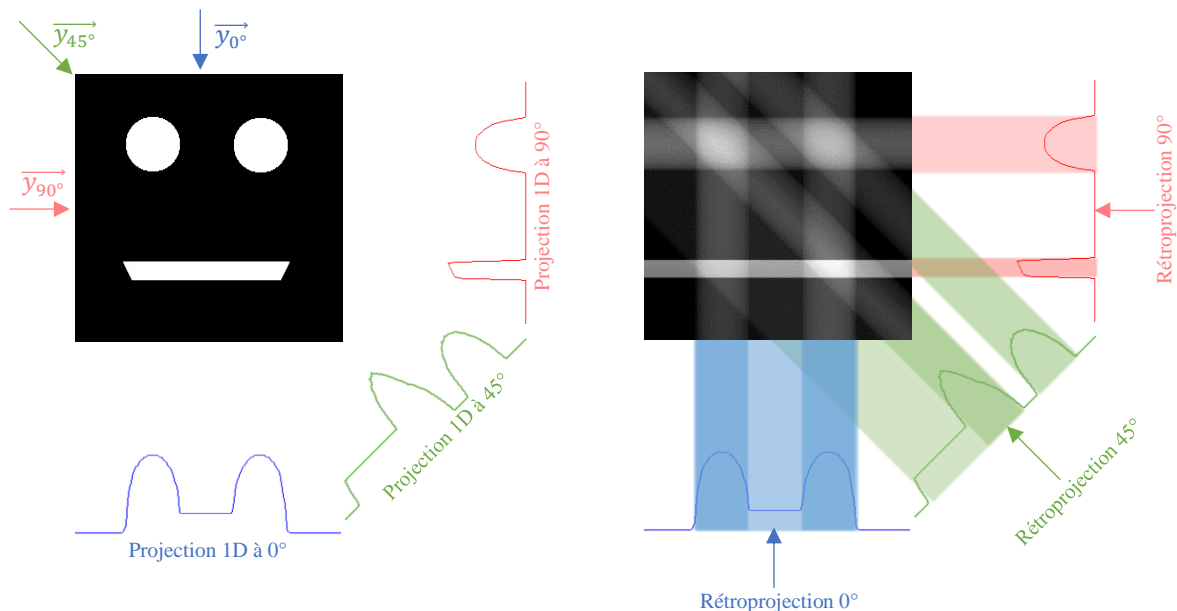


Figure 26: (Gauche) Projections d'un objet 2D selon 3 directions à  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$ . (Droite) Rétroprojection de ces 3 projections. La valeur de chaque pixel des projections est ajoutée à l'objet 2D sur tous les pixels de l'objet qui ont été traversés par les rayons pour réaliser la projection.

**II. 1. a. (iii) Théorème coupe-projection**

Il existe un lien entre la transformée de Radon  $\mathcal{R}f$  d'un objet 2D et la transformée de Fourier  $\mathcal{F}[f]$  de cet objet. Ce lien est donné par le théorème coupe-projection suivant. Ce théorème est synthétisé par l'équation (12) et une représentation géométrique de ce théorème est visible sur la Figure 27.

**Théorème coupe-projection :** La transformée de Fourier d'une projection 1D en géométrie parallèle d'un objet 2D selon la direction  $\theta$  est égale aux valeurs de la transformée de Fourier 2D de cet objet selon une coupe centrale du plan d'orientation  $\theta$  :

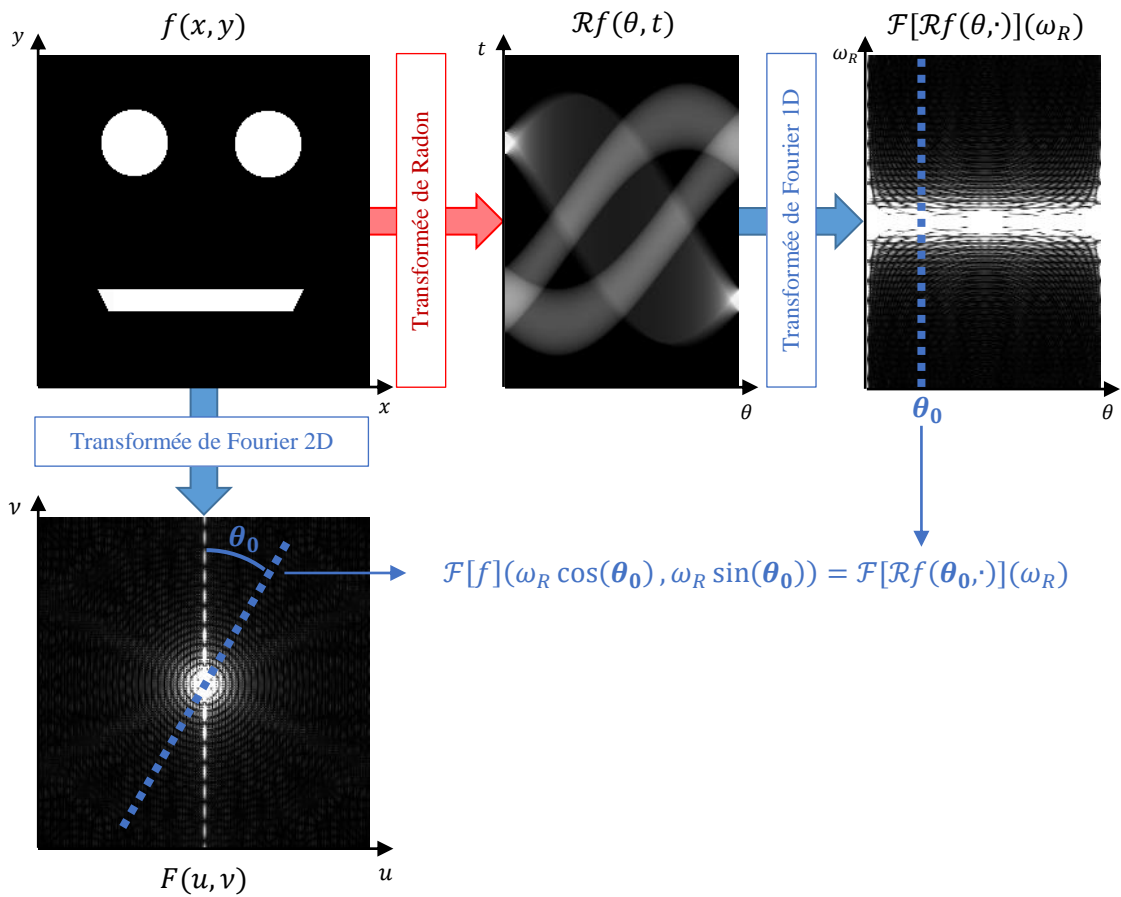
$$\mathcal{F}[\mathcal{R}f(\theta, \cdot)](\omega_R) = \mathcal{F}[f](\omega_R \cos(\theta), \omega_R \sin(\theta)) \tag{12}$$


Figure 27 : Représentation du théorème coupe-projection. (En haut) Un objet 2D  $f$  avec le sinogramme correspondant et la transformée de Fourier 1D du sinogramme pour les différentes directions  $\vartheta$ . (En bas) La transformée de Fourier 2D de  $f$ . En prenant suffisamment de projections 1D, on obtient ainsi toute l'information présente dans la transformée de Fourier 2D de  $f$ .

On voit à partir de la Figure 27 qu'en prenant suffisamment de projections 1D sur 180 degrés il est possible d'obtenir toute l'information présente dans la transformée de Fourier 2D de l'objet. Sachant que la transformée de Fourier est bijective, on obtient alors toute l'information de l'objet.



## II. 1. b. Les reconstructions analytiques

### II. 1. b. (i) *Reconstruction par inversion directe*

Les reconstructions analytiques se basent sur le théorème coupe-projection pour reconstruire l'objet à partir des projections. L'idée la plus évidente pour reconstruire est de placer dans le domaine de Fourier les coefficients des transformées de Fourier 1D des projections. Une simple transformée de Fourier 2D inverse permet ensuite d'obtenir l'objet 2D qui nous intéresse. Cette technique d'inversion directe est néanmoins très peu utilisée car elle nécessite une étape d'interpolation. En effet les valeurs des transformées de Fourier 1D des projections sont connues en des points qui ne coïncident pas nécessairement avec ceux de la transformée de Fourier 2D en coordonnées cartésiennes. Cette étape d'interpolation entraîne des approximations importantes qui peuvent limiter la précision de cette méthode.

### II. 1. b. (ii) *Reconstruction par rétroprojection filtrée (FBP)*

Une technique bien plus utilisée est la rétroprojection filtrée, que l'on appellera FBP en raison du terme anglais "*Filtered-BackProjection*". Cette technique effectue non plus la reconstruction dans l'espace de Fourier mais dans l'espace réel. Elle consiste à filtrer les projections 1D avec le filtre rampe  $H(\omega_R) = |\omega_R|$  théorique puis rétroprojeter les projections filtrées pour obtenir directement la reconstruction de l'objet. L'utilisation d'un filtre rampe est en fait dû au passage des coordonnées polaires aux coordonnées cartésiennes et permet de compenser la surreprésentation des basses fréquences par rapport aux hautes fréquences, Figure 27. Le filtre rampe  $H$  provient du Jacobien  $|\omega_R|$  du changement de variables. Autrement dit, en notation différentielle, c'est le passage des coordonnées cartésiennes aux coordonnées polaires en passant de  $dudv$  à  $|\omega_R|d\omega_R d\theta$  qui est responsable de l'utilisation du filtre  $H$ . En pratique, différents types de filtres peuvent être utilisés avec un fenêtrage plus ou moins brutal pour limiter l'influence des trop hautes fréquences qui peuvent être contaminées par du bruit [89] et nuire à la qualité de la reconstruction.

### II. 1. b. (iii) Reconstruction par transformée de Fourier pseudo-polaire

Pour pallier le problème d'interpolation dans le domaine de Fourier de la technique d'inversion directe, il a été proposé récemment de reconstruire l'objet à partir de la transformée de Fourier pseudo-polaire [90]. Une grille pseudo-polaire est une grille formée de lignes approximativement horizontales et verticales créant des carrés concentriques, comme sur la Figure 28 ci-contre. C'est l'écart entre les pentes de 2 lignes consécutives qui est constant et non plus le pas angulaire. La transformée de Fourier pseudo-polaire avec  $(2N)^2 + 1$  points permet de retrouver la transformée de Fourier cartésienne sur une grille de taille  $N^2$ , [91]. Il a ainsi été proposé d'adapter l'acquisition de tomographie en utilisant les angles de projections adéquats, pour ensuite réaliser la reconstruction par transformée de Fourier pseudo-polaire inverse [90]. Cette technique appelée EST (pour "*Equally-Sloped Tomography*") a été appliquée avec succès en tomographie électronique [92].

Grille pseudo-polaire

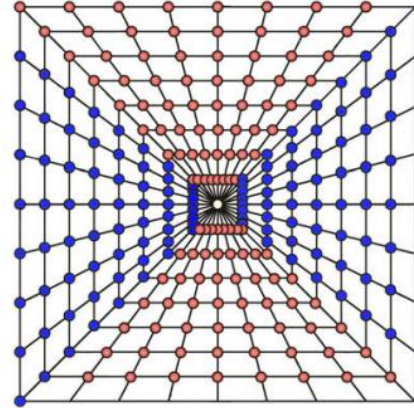


Figure 28 : Représentation d'une grille pseudo-polaire, avec les lignes approximativement horizontales (rouges) et les lignes approximativement verticales (bleues). Le pas angulaire n'est pas constant, c'est l'incrément de la pente qui est constant.

### II. 1. c. Les reconstructions algébriques

Il est possible de reconstruire l'objet 2D sans avoir recours au théorème coupe-projection, mais en utilisant des algorithmes itératifs visant à inverser le système linéaire d'équations (11) :  $A\mathbf{f} = \mathbf{p}$ . Un tel système est courant dans de nombreux domaines scientifiques et a déjà fait l'objet de nombreuses recherches. Nous allons présenter 3 types d'algorithmes qui permettent d'inverser ce genre de systèmes linéaires [93] : la descente de gradient qui est appelée SIRT en tomographie ("*Simultaneous Iterative Reconstruction Technique*"), l'algorithme de Kaczmarz qui est appelé ART en tomographie ("*Algebraic Reconstruction Technique*") et l'algorithme SART ("*Simultaneous Algebraic Reconstruction Technique*"). Parmi ces 3 techniques, le SART est la seule technique qui utilise des propriétés particulières de l'acquisition de tomographie et qui est pour cela moins générale que les 2 autres.

### II. 1. c. (i) La descente de gradient (SIRT)

La descente de gradient est un algorithme général qui ne se limite pas à la tomographie, ni même à l'inversion du système linéaire d'équations (11). C'est un algorithme qui cherche à minimiser une fonction à valeurs dans  $\mathbb{R}$  que l'on appelle fonctionnelle. Dans le cas de la tomographie et du SIRT, cette fonctionnelle  $g$  est définie comme le carré de la norme 2 des projections résiduelles. Les projections résiduelles sont définies comme la différence entre les projections de la reconstruction et les projections mesurées :

$$g(\mathbf{f}) = \frac{1}{2} \|\mathbb{A}\mathbf{f} - \mathbf{p}\|_2^2 \quad (13)$$

La valeur minimale de cette fonctionnelle est 0, elle est atteinte pour un objet  $\mathbf{f}$  dont les projections  $\mathbb{A}\mathbf{f}$  sont égales aux projections mesurées  $\mathbf{p}$ . Choisir une telle fonctionnelle en utilisant la norme 2 revient à rechercher une solution par minimisation des moindres carrés.

Une descente de gradient est une technique itérative qui s'initialise souvent par le vecteur nul  $\mathbf{f}^{(0)} = \mathbf{0}$ . Pour passer de l'itération  $k$  à l'itération  $k + 1$ , l'algorithme déplace la reconstruction  $\mathbf{f}^{(k)}$  dans la direction de plus forte pente de la fonctionnelle  $g$ . Dans le cas d'une fonction dérivable cette direction est l'opposé du gradient :  $-\nabla g(\mathbf{f}^{(k)})$ . Dans le cas plus particulier de la fonctionnelle  $g$  de l'équation (13) cette pente vaut  $-{}^t\mathbb{A}(\mathbb{A}\mathbf{f}^{(k)} - \mathbf{p})$ .

Ainsi une itération de l'algorithme est réalisée avec l'équation (14). Dans cette équation, le coefficient de relaxation  $\lambda \in \mathbb{R}^{+*}$  peut-être constant ou varier à chaque itération  $k$ .

$$\mathbf{f}^{(k+1)} = \mathbf{f}^{(k)} + \lambda^{(k)} {}^t\mathbb{A}(\mathbf{p} - \mathbb{A}\mathbf{f}^{(k)}) \quad (14)$$

Des critères de convergence sur les valeurs des coefficients de relaxation  $\lambda^{(k)}$  existent [94]. En notant  $\rho({}^t\mathbb{A}\mathbb{A})$  le rayon spectral de  ${}^t\mathbb{A}\mathbb{A}$ , et en supposant que  $0 \leq \epsilon \leq \lambda^{(k)} \leq (2 - \epsilon)/\rho({}^t\mathbb{A}\mathbb{A})$ , la convergence est garantie si  $\epsilon > 0$  ou si  $\sum_{k=0}^{\infty} \min(\lambda^{(k)}\rho({}^t\mathbb{A}\mathbb{A}), 2 - \lambda^{(k)}\rho({}^t\mathbb{A}\mathbb{A})) = +\infty$ . Autrement dit, il faut que les coefficients de relaxations  $\lambda^{(k)}$  soient compris entre 0 et  $2/\rho({}^t\mathbb{A}\mathbb{A})$  sans trop s'approcher des bornes, ou en s'en approchant suffisamment lentement. Dans le cas d'un coefficient constant  $\lambda$ , la convergence est donc garantie pour  $\lambda \in ]0, 2/\rho({}^t\mathbb{A}\mathbb{A}) [$ .

En pratique, il est très difficile de déterminer le rayon spectral pour des matrices aussi grandes. Nous avons tout de même réalisé le calcul de quelques-unes des valeurs propres les plus importantes et des vecteurs propres associés en utilisant la fonction *eigs()* de Matlab. Pour des gains de temps évidents nous nous sommes limités à des objets de taille  $N = N_x^2 = 65 \times 65$  pixels avec  $N_{proj} = 90$  projections et un pas angulaire de  $2^\circ$ . La matrice creuse  $\mathbb{A}$  a été générée avec les fonctions de la boîte

à outils ASTRA. La plus grande valeur propre obtenue dans ce cas a pour valeur  $5,51.10^3 \approx N_x N_{proj}$ .

Quelques-uns des vecteurs propres de  ${}^t\mathbb{A}\mathbb{A}$  obtenus sont représentés dans la Figure 29 :

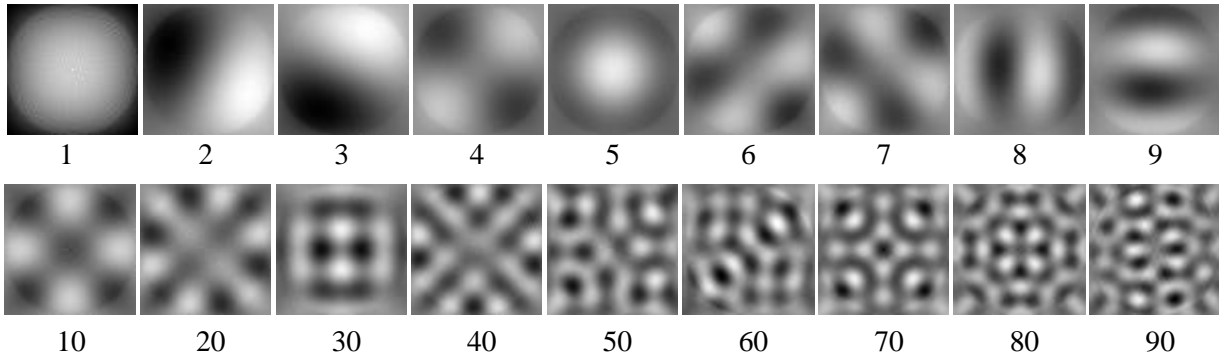


Figure 29 : 18 vecteurs propres de la matrice  ${}^t\mathbb{A}\mathbb{A}$ . Les vecteurs propres de  ${}^t\mathbb{A}\mathbb{A}$  sont les objets qui une fois projetés et rétroprojetés redonnent le même objet à un facteur multiplicatif près. Les nombres inscrits correspondent aux numéros des valeurs propres rangées par ordre décroissant.

Choisir un coefficient de relaxation trop faible peut conduire à une convergence très lente. À l'inverse un coefficient de relaxation trop élevé ne garantit pas de convergence. La valeur qui est prise en pratique est souvent  $N_x N_{proj}$ . Il est possible de déterminer automatiquement les coefficients de relaxation  $\lambda^{(k)}$  permettant de faire décroître au maximum la fonctionnelle  $g$  entre 2 itérations. Puisque la direction  ${}^t\mathbb{A}(\mathbb{A}\mathbf{f}^{(k)} - \mathbf{p})$  est connue, il suffit pour cela de chercher la valeur du scalaire  $\lambda^{(k)}$  par une recherche linéaire [95] qui minimise la valeur de  $g(\mathbf{f}^{(k+1)})$ . Cette technique garantie une décroissance de la fonctionnelle  $g$  au fur et à mesures des itérations.

L'algorithme SIRT a un sens particulier en tomographie puisque les multiplications par  $\mathbb{A}$  ou  ${}^t\mathbb{A}$  ont un sens physique qui est la projection et la rétroprojection. Ainsi cet algorithme procède par itérations au cours desquelles il ajoute à la reconstruction  $\mathbf{f}^{(k)}$ , la rétroprojection des projections résiduelles. Ce sens est représenté dans la Figure 30. Par définition, les vecteurs propres visibles sur la Figure 29 de la matrice  ${}^t\mathbb{A}\mathbb{A}$  sont donc les objets qui sont invariants, à un facteur multiplicatif près, par projection et rétroprojection successives. Le lecteur pourra noter que la matrice  $\mathbb{A}$  est souvent gigantesque en tomographie. C'est pourquoi, les opérations de projection et rétroprojection, respectivement les multiplications par  $\mathbb{A}$  et  ${}^t\mathbb{A}$ , sont en général implémentées directement au moyen de fonctions sans avoir recours à la matrice  $\mathbb{A}$ . La boite à outils ASTRA permet au choix d'obtenir la matrice creuse  $\mathbb{A}$  ou de définir les opérations de projection et rétroprojection.

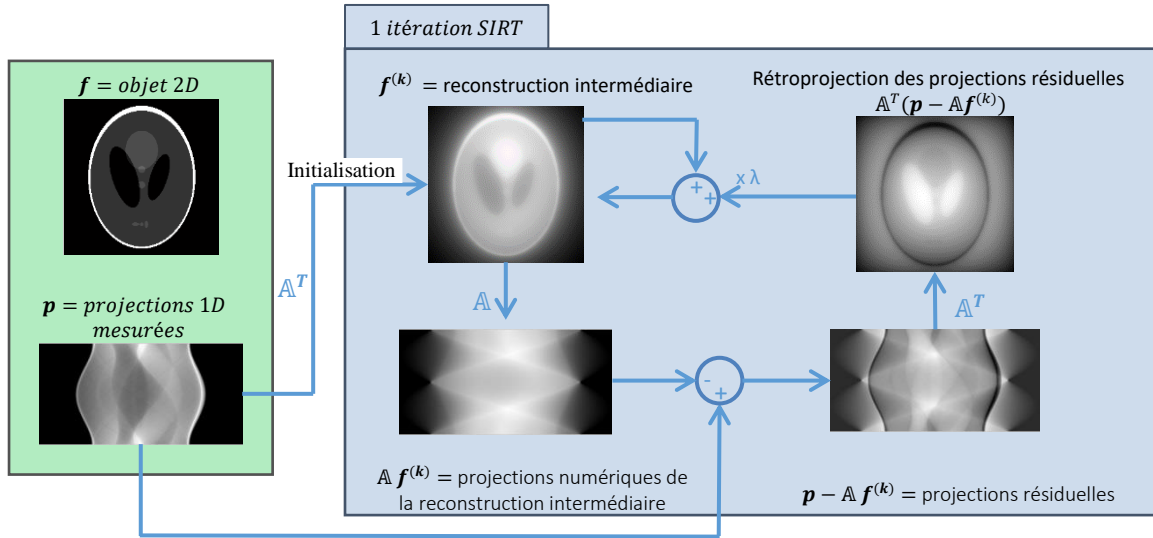


Figure 30 : Schéma de principe de l'algorithme de reconstruction SIRT. L'algorithme est basé sur des projections et rétroprojections successives pour se rapprocher de l'objet  $f$  qui vérifie l'équation  $\mathbb{A}f = p$

Plutôt que de minimiser la fonctionnelle  $g(f) = \|\mathbb{A}f - p\|_2^2$  avec la norme 2 utilisant le produit scalaire canonique, il est possible d'utiliser un produit scalaire quelconque, c'est-à-dire faisant intervenir n'importe quelle matrice symétrique définie positive  $\mathbb{M} \in \mathcal{M}_{N,N}(\mathbb{R})$ . Le produit scalaire défini à l'aide de cette matrice  $\mathbb{M}$ , noté  $\|f\|_{\mathbb{M}}$ , est défini par  $\|f\|_{\mathbb{M}} = \sqrt{{}^t f \mathbb{M} f}$ . Le cas du produit scalaire canonique est le cas particulier où  $\mathbb{M}$  est la matrice identité. La fonctionnelle devient alors :

$$g_{\mathbb{M}}(f) = \|\mathbb{A}f - p\|_{\mathbb{M}}^2$$

C'est fréquemment une telle fonctionnelle qui est utilisée en tomographie en prenant pour matrice  $\mathbb{M}$  la matrice diagonale dont les éléments sont définis par l'inverse de la somme des lignes de  $\mathbb{A}$ . Autrement dit, le produit scalaire des projections résiduelles est pondéré par le nombre de voxels qui ont contribué aux projections.

### II. 1. c. (ii) L'algorithme de Kaczmarz (ART)

L'algorithme de Kaczmarz ne se limite pas à la tomographie puisqu'il peut être utilisé pour n'importe quel système linéaire d'équations du type  $\mathbb{A}f = p$ . C'est un algorithme itératif initialisé par le vecteur nul  $f^{(0)} = \mathbf{0}$ , dont une itération est définie par l'équation suivante :

$$f^{(k+1)} = f^{(k)} + \lambda^{(k)} \frac{{}^t(A_i) (p_i - (A f^{(k)})_i)}{\|A_i\|_2^2} \quad (15)$$

Dans le cas où le coefficient de relaxation  $\lambda^{(k)}$  vaut 1, cela revient à rendre juste l'une après l'autre chaque équation  $i$  du système  $\mathbb{A}f = p$ . L'équation  $i$  considérée peut être une répétition périodique,

de période  $N$ , de n'importe quelle permutation de l'ensemble  $\{1, \dots, N\}$ . L'ensemble des  $N$  équations du système est alors balayé périodiquement dans un certain ordre. L'algorithme de Kaczmarz est un algorithme itératif qui procède alors par projections successives de la reconstruction intermédiaire  $f^{(k)}$  sur les différents hyperplans définis par les lignes du système d'équations prises indépendamment. Cet algorithme modifie donc la reconstruction intermédiaire pour qu'elle corresponde à un pixel des projections à la fois. En pratique, l'ART converge plus rapidement que le SIRT, mais peut s'avérer moins robuste au bruit [93] puisqu'il modifie la reconstruction à l'aide d'un seul pixel des projections à la fois alors que le SIRT utilise tous les pixels pour chaque itération.

### ***II. 1. c. (iii) L'algorithme SART***

L'algorithme SART n'est pas aussi général que le SIRT ou l'ART et utilise une information particulière sur la tomographie. Dans un algorithme ART, chaque pixel est rétroprojeté indépendamment des autres et la reconstruction intermédiaire est ainsi modifiée pour chaque pixel des projections les uns après les autres. Le SIRT modifie la reconstruction après rétroprojection de tous les pixels à la fois. Le SART se situe entre les deux en modifiant la reconstruction après rétroprojection de tous les pixels d'une seule projection. Le SART effectue donc une rétroprojection d'un bloc de pixels particuliers puisqu'ils sont tous obtenus avec le même angle de projection. L'algorithme SART bénéficie ainsi des avantages de rapidité de l'algorithme ART et de stabilité de l'algorithme SIRT.

### ***II. 1. c. (iv) Prédominance de l'algorithme SIRT en tomographie électronique***

Nous pouvons observer une prédominance importante de l'algorithme SIRT dans les travaux récents de tomographie électronique en science des matériaux. Ceci peut s'expliquer par le fait que les ordinateurs d'aujourd'hui sont bien plus puissants qu'autrefois et le temps de calcul nécessaire pour réaliser un SIRT n'est plus aussi limitant qu'auparavant. De plus, l'utilisation de cartes graphiques permet de réaliser des calculs hautement parallèles et d'accélérer significativement le temps de calcul de tels algorithmes [96]. Nous pensons que l'algorithme SART est moins utilisé en tomographie électronique en raison du contraste de diffraction résiduel qui donne des valeurs aberrantes pour les projections acquises avec certains angles. Un algorithme qui utilise toutes les projections à la fois comme le SIRT est ainsi moins sensible à ce genre d'imperfections dans l'acquisition alors qu'un algorithme comme le SART ou l'ART, en modifiant la reconstruction pour chaque projection indépendamment des autres, y est plus sensible.

## 2) Système sous-déterminé et inversion sous contraintes

### II. 2. a. Un système extrêmement sous-déterminé

#### II. 2. a. (i) *Beaucoup de projections nécessaires*

Typiquement, les données de tomographie sont souvent constituées de 90 ou 180 projections de  $1024 \times 1024$  pixels. Le nombre de mesures, qui est le nombre d'équations du système  $\mathbb{A}\mathbf{f} = \mathbf{p}$ , est donc de  $1024 \times 1024 \times 180 \approx 2 \cdot 10^8$ . Le nombre d'inconnues quant à lui est le nombre de voxels présents dans la reconstruction. Il sera dans ce cas de  $1024^3 \approx 1 \cdot 10^9$ . Il y a donc classiquement entre 5 et 10 fois plus d'inconnues que d'équations en tomographie électronique !

De plus, les équations ne sont pas libres mais partiellement liées, ce qui ne fait qu'empirer cette sous-détermination. En effet, on s'aperçoit que la somme des pixels des projections est constante puisque c'est la somme des voxels de l'objet reconstruit, indépendamment de l'orientation de la projection. Cette remarque est même valable pour la somme d'une ligne des projections, qui est la somme des voxels du plan correspondant dans la reconstruction.

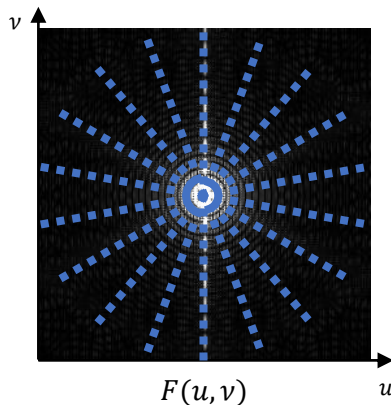


Figure 31 : Représentation de l'information connue pour un objet 2D dans le domaine fréquentielle à partir de projections 1D. On voit que la fréquence nulle, au centre, est connue autant de fois qu'il y a de projections.

D'un point de vue plus rigoureux, on peut représenter les informations connues dans le domaine fréquentiel à l'aide du théorème coupe-projections. On voit alors que le centre des projections est connu autant de fois qu'il y a de projections. Ceci exprime différemment ce qui vient d'être souligné dans le paragraphe précédent. On remarque aussi avec une telle représentation, que les basses fréquences sont surexprimées au détriment des hautes fréquences. En utilisant cette représentation on peut retrouver le critère de Crowther [97] qui lie résolution  $r$  et nombre de projections  $N_{proj}$  en fonction du diamètre de l'objet reconstruit  $D$  suivant l'équation (16).

$$r = \pi \times \frac{D}{N_{proj}} \quad (16)$$

La résolution correspond ici à la fréquence maximale qui peut être déterminée pour le signal, elle est au mieux de la moitié de la fréquence d'échantillonnage d'après le théorème de Nyquist-Shannon. Le facteur  $\pi$  étant supérieur à 2, le critère de Crowther fait ressortir le caractère lié des équations en montrant qu'il faut plus d'équations que d'inconnues pour que la reconstruction tomographique conserve la résolution spatiale des projections. En effet, pour obtenir la même résolution que celle des projections, avec un objet ayant un diamètre  $D = 1024$  pixels, le critère de Crowther donne un nombre de projections nécessaires de  $N_{proj} = \pi/2 \times 1024 = 1,6.10^3$ .

### II. 2. a. (ii) Cas d'une étendue angulaire inférieure à $180^\circ$

Le lien entre nombre de projections et résolution, qui est exprimé par le critère de Crowther de l'équation (16), n'est valable que dans le cas d'une acquisition réalisée sur une étendue angulaire idéale de  $180^\circ$ , en projections parallèles, et avec un pas angulaire constant. Dans le cas où l'étendue angulaire n'est pas de  $180^\circ$ , on parle d'acquisition à angle limité ("missing wedge" en anglais) en faisant référence à l'absence d'informations dans le domaine spectral le long d'un prisme triangulaire, cf. Figure 32. Ce manque d'information dans le domaine de Fourier entraîne une élongation de la reconstruction dans la direction correspondante. La résolution peut être estimée à l'aide d'un facteur d'élongation qui prend en compte la demi étendue angulaire  $\alpha$  [98]. Ce facteur d'élongation n'est ainsi pas le même dans les directions  $\vec{x}_0$  et  $\vec{y}_0$  (cf. Figure 7 pour la définition de ces directions). Dans la direction  $\vec{x}_0$  la résolution  $d_x$  est celle donnée par le critère de Crowther, alors que dans la direction  $\vec{y}_0$ , la résolution  $d_y$  est moins bonne et peut être estimée à l'aide du facteur d'élongation  $e_{xy} \geq 1$  suivant :

$$e_{xy} = \sqrt{\frac{\alpha + \sin \alpha \cos \alpha}{\alpha - \sin \alpha \cos \alpha}} \quad (17)$$

$$d_x = \pi \times \frac{D}{N_{proj}} \quad \text{et} \quad d_y = e_{xy} d_x$$

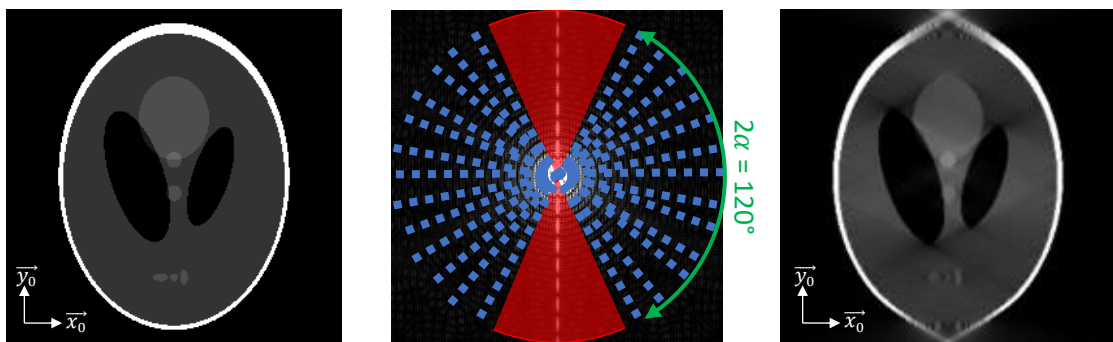


Figure 32 : Simulation d'une étendue angulaire limitée à  $\pm 60^\circ$ . (À gauche) fantôme de Shepp & Logan, (au milieu) informations connues dans le spectre de Fourier et (à droite) objet reconstruit à partir d'une acquisition simulée entre  $\pm 60^\circ$  mettant en avant l'élongation selon la direction  $\vec{y}_0$ .



## II. 2. b. Inversion sous contraintes

Nous avons vu que le système linéaire d'équations (11) est fortement sous-déterminé en tomographie électronique. Il est néanmoins possible d'aider la reconstruction en rajoutant des contraintes connues *a priori* sur l'objet à reconstruire. Plusieurs types de contraintes peuvent-être ajoutées telles que :

- Des contraintes de positivité
- Des contraintes de support
- Des contraintes de discrétisation des niveaux de gris
- Des contraintes de parcimonie de la reconstruction

Les contraintes peuvent être imposées lorsque la reconstruction est faite avec un algorithme itératif. C'est là tout l'intérêt de ces algorithmes qui sont plus lents que les algorithmes analytiques. En forçant la reconstruction à satisfaire les contraintes à la fin de chaque itération, il est ainsi possible d'améliorer la reconstruction. Ceci ne peut pas se faire avec les reconstructions analytiques qui donnent une reconstruction sans étapes intermédiaires.

### ***II. 2. b. (i) Contraintes de positivité***

Les contraintes de positivité sont très légères en termes de connaissances préalables sur l'objet. En effet, quel que soit l'échantillon analysé, il n'y a pas de raison d'obtenir des valeurs négatives dans le volume reconstruit qui ne correspondent pas à une réalité physique. Ainsi appliquer des contraintes de positivité consiste à forcer à 0 les voxels négatifs de la reconstruction à la fin de chaque itération. Dans un effort de limitation des abus de langage nous écrirons SIRT>0 pour faire référence à un SIRT avec des contraintes de positivité. Néanmoins nous avons toujours ajouté ce type de contraintes et nous ne réalisons jamais en pratique de SIRT sans contraintes de positivité. Étonnamment, ce type de contraintes ne semble pas être utilisé par tous les groupes de recherches travaillant sur la tomographie électronique à l'échelle mondiale, et beaucoup de publications proposent des reconstructions de type SIRT sans contraintes de positivité [87], [99]. Il n'en est du moins pas fait mention dans le texte et les reconstructions présentent de fortes variations de niveaux de gris dans les zones de vide qui sont habituellement très bien corrigées par l'utilisation d'un SIRT>0.

### **II. 2. b. (ii) Contraintes de support**

Ce type de contraintes peut être utile mais est légèrement moins facile à utiliser en pratique que les contraintes de positivité. Les contraintes de support consistent à prendre en compte les zones de vide connues de la reconstruction. L'implémentation de ce type de contraintes consiste à forcer à 0 les voxels qui se situent dans ces zones de vide connues.

Nous avons remarqué pendant cette thèse que les contraintes de support et les contraintes de positivité amenaient finalement à des résultats très similaires. Sachant que les contraintes de support sont plus compliquées à implémenter, nous préférons utiliser des contraintes de positivité et éviter les contraintes de support qui nécessitent à l'utilisateur d'indiquer les zones de vides dans la reconstruction. Nous pouvons grossièrement expliquer la similarité des résultats entre contraintes de positivité et de support. En effet, avec des contraintes de positivité, l'algorithme n'a pas d'autre choix pour obtenir une valeur moyenne nulle dans une zone de vide que de donner uniquement des valeurs nulles.

### **II. 2. b. (iii) Tomographie discrète, contraintes de discrétisation des niveaux de gris**

La tomographie discrète consiste à chercher des solutions non plus dans  $\mathcal{M}_{N,1}(\mathbb{R})$ , ni dans  $\mathcal{M}_{N,1}(\mathbb{R}^+)$  comme c'est le cas avec des contraintes de positivité, mais dans  $\mathcal{M}_{N,1}(E)$  avec  $E \subset \mathbb{R}^+$  un ensemble de cardinal fini, souvent très faible ( $\text{card}(E) \leq 4$ ). Autrement dit, la reconstruction  $\mathbf{f}$  ne peut pas avoir n'importe quelles valeurs réelles mais se limite à quelques niveaux de gris autorisés. L'intérêt de la tomographie discrète est qu'un objet n'est souvent constitué que de quelques matériaux, l'objet reconstruit ne peut donc avoir que quelques niveaux de gris possibles correspondant au nombre de matériaux présents en comptant le vide. Une condition si forte sur l'objet recherché permet de limiter drastiquement le nombre de projections nécessaires pour pouvoir reconstruire. Beaucoup de travaux ont été proposés sur la tomographie discrète, concernant le domaine de la tomographie électronique [100], [101] et de la tomographie rayons-X à visées industrielles [102] ou médicales [103].

Plusieurs types de reconstructions de tomographie discrète existent [103]. Nous allons simplement présenter très succinctement l'algorithme DART ("*Discrete Algebraic Reconstruction Technique*") [101] qui a été utilisé à plusieurs reprises en tomographie électronique [100], [104], [105]. L'algorithme DART adapte une méthode de reconstruction algébrique telle que SIRT, ART ou SART, en effectuant de nombreuses segmentations intermédiaires et en n'autorisant principalement que les pixels situés à l'interface du volume segmenté à changer de valeurs, Figure 33. Cette technique de

segmentation du volume et de modification uniquement des pixels présents sur les bords permet de pallier fortement le caractère sous-déterminé du système d'équations et ainsi d'améliorer grandement la précision de la technique. Il faut néanmoins que le nombre d'équations libres du système soit plus grand que le nombre de pixels situés à l'interface entre plusieurs niveaux de gris segmentés. Ce qui veut dire qu'il ne faut pas qu'il y ait beaucoup de bords dans l'objet recherché. De plus, lors de la segmentation, il faut que les pixels situés à l'intérieur d'une zone segmentée appartiennent bien à cette zone. Le doute n'est permis que pour les pixels situés sur les bords. En pratique, certains pixels n'étant pas sur les bords sont également ajoutés aléatoirement aux pixels modifiables pour compenser les erreurs de segmentation préalables.

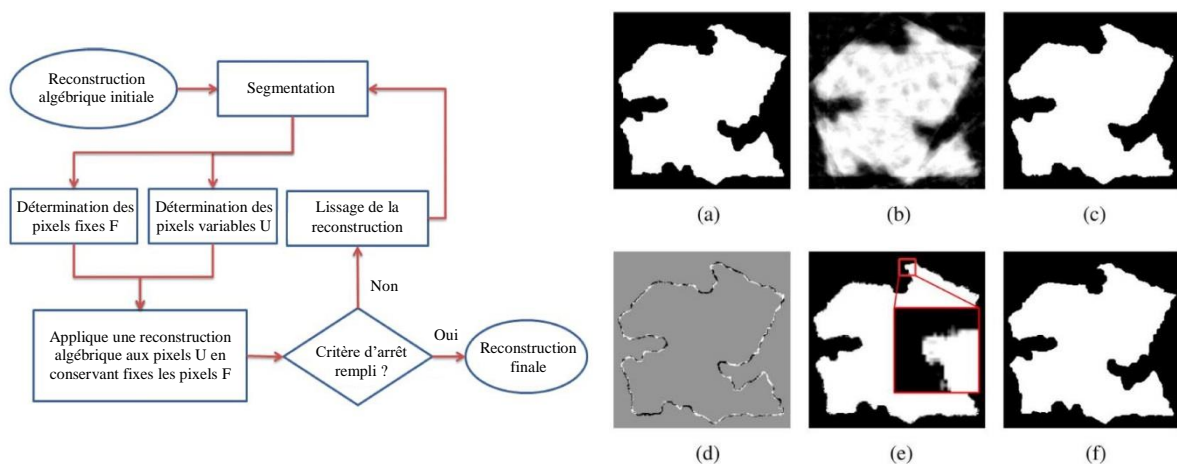


Figure 33: Schéma d'explication de l'algorithme DART et quelques étapes de l'algorithme représentées dans le cas d'une simulation, figure traduite à partir de la référence [101]. (a) fantôme utilisé pour les simulations, (b) reconstruction algébrique initiale, (c) segmentation de la reconstruction initiale, (d) pixels variables après une 2<sup>nd</sup>e étape de reconstruction algébrique, (e) reconstruction globale après la 2<sup>nd</sup>e étape de reconstruction algébrique, (f) reconstruction finale.

L'algorithme DART présente beaucoup de paramètres : les niveaux de gris et les seuils utilisés pour les segmentations, le type de reconstruction algébrique (SIRT, ART, SART) et le nombre d'itérations de ces techniques intermédiaires, le nombre d'itérations globales DART, la définition des pixels présents sur les bords, la probabilité d'inclure des pixels hors des bords, etc. L'algorithme DART fonctionne très bien en simulations avec des fantômes rigoureusement dans  $\mathcal{M}_{N,1}(E)$  avec un nombre très restreint de niveaux de gris ( $card(E) = 2$  ou  $3$  en général, *i.e.* 1 ou 2 matériaux présents en plus du vide), pas ou peu de bruit et des données parfaitement alignées. Dans ces conditions, des reconstructions de très bonne qualité peuvent être obtenues avec une dizaine de projections uniquement [101], ce qui fait de DART un algorithme à l'état de l'art mondial des techniques de reconstruction sous contraintes. Néanmoins, les données ne sont jamais parfaites en pratique, à cause notamment de la présence de bruit dans les projections, d'erreurs d'alignement, d'acquisition non parfaitement linéaire, de déformation de l'échantillon pendant l'acquisition, de zones de transition dans l'objet qui induisent plus de niveaux de gris que de nombre de matériaux. Toutes ces imperfections d'acquisition limitent

l'efficacité de cette technique en pratique dans les cas où une dizaine de projection uniquement sont disponibles.

Des travaux récents cherchent à pallier certains des facteurs limitants de l'algorithme DART, en déterminant automatiquement les paramètres [106], en essayant de prendre en compte le bruit [107] ou même très récemment en essayant à la fois d'automatiser la technique et d'augmenter la robustesse par rapport aux imperfections de l'acquisition [108].

### **II. 2. b. (iv) Tomographie et contraintes de parcimonie**

Il est possible d'imposer des contraintes de parcimonie sur l'objet pour aider la reconstruction de tomographie. Ceci rentre dans le domaine du CS et c'est ainsi qu'est qualifié ce type de reconstructions en tomographie électronique [87]. Différentes représentations parcimonieuses peuvent être choisies en tomographie. La recherche de parcimonie du gradient de l'objet est possible à l'aide d'un algorithme de minimisation de la variation totale (TVM pour "*Total Variation Minimization*") [109], [110]. La recherche de parcimonie a également été faite en tomographie électronique directement dans le domaine de l'objet à l'échelle atomique [111] ou à une échelle plus large en complément de TVM [99].

Nous utilisons la notation  $\Psi$  pour exprimer la représentation supposée parcimonieuse utilisée, en accord avec les notations de la référence [87]. Ainsi pour un objet  $f$ , la notation  $\Psi f$  exprime l'objet dans sa représentation supposée parcimonieuse. La reconstruction par un algorithme basé sur une approche de type CS recherche donc à la fois une fidélité aux mesures (la norme  $\|Af - p\|_2$  doit être petite) et une parcimonie de  $\Psi f$  (la norme 1 de  $\|\Psi f\|_1$  doit être faible). Les algorithmes de type CS recherche donc la solution aux problèmes d'optimisations convexes (18) ou (19) suivants :

$$f_{solution} = \arg \min_f \{ \|\Psi f\|_1, \text{ tel que } \|Af - p\|_2 \leq \epsilon \} \quad (18)$$

$$f_{solution} = \arg \min_f \{ \|Af - p\|_2 + \lambda \|\Psi f\|_1 \} \quad (19)$$

Où  $\epsilon$  et  $\lambda$  sont des paramètres dans  $\mathbb{R}^{+*}$  déterminant l'importance relative de la parcimonie par rapport à l'attache aux données

### 3) Microscopie électronique en transmission

---

Nous présentons dans cette partie le fonctionnement simplifié d'un microscope électronique en transmission (TEM), les nombreuses informations qui peuvent être extraites de cet instrument très versatile, ainsi que les modes qui peuvent être utilisés en tomographie électronique. Cette partie est inspirée en grande part de l'ouvrage de référence [112]. Le lecteur intéressé pourra y trouver beaucoup d'informations utiles que nous ne détaillerons pas dans cette thèse.

#### II. 3. a. Pourquoi utiliser des électrons ?

La microscopie optique, utilisant la lumière visible pour imager la matière, possède une résolution limitée par la longueur d'onde de la lumière visible (entre 400 et 800 nm). Suite aux travaux de De Broglie sur la dualité onde-corpuscule qui lui valurent le prix Nobel de physique en 1929, Ruska et Knoll développèrent le principe du TEM en 1932. En utilisant des électrons et des tensions d'accélération de l'ordre de la centaine de kV, la longueur d'onde ne devient plus un frein à la résolution du microscope puisqu'elle peut descendre de 1 à 2 ordres de grandeurs en dessous du diamètre d'un atome, cf. Tableau 2. Ce sont les aberrations des lentilles électromagnétiques qui sont limitantes pour la résolution. Un calcul relativiste est nécessaire pour ces tensions d'accélération puisque la vitesse des électrons dépasse alors la moitié de la vitesse de la lumière dans le vide ( $c = 3,00 \cdot 10^8$  m/s). Le lecteur intéressé trouvera les calculs nécessaires dans la référence [34].

Tension d'accélération (kV)	Longueur d'onde non-relativiste (pm)	Longueur d'onde relativiste (pm)	Vitesse ( $\times 10^8$ m/s)
100	3,86	3,70	1,644
120	3,52	3,35	1,759
200	2,73	2,51	2,086
300	2,23	1,97	2,330

Tableau 2 : Propriétés des électrons en fonction de la tension d'accélération utilisée. Tableau adapté de [112]

Outre la très bonne résolution potentielle, l'utilisation d'électrons à de telles tensions d'accélération présente un intérêt grâce à leurs nombreuses interactions avec la matière. En effet, le faisceau d'électrons après interaction avec la matière peut engendrer beaucoup de signaux différents qui sont tous susceptibles d'être utilisés pour caractériser l'échantillon [34]. En particulier, l'énergie

des électrons est suffisante pour ioniser la matière, ce qui conduit à des informations dépendant de la nature chimique des espèces présentes dans l'échantillon. Il est possible de distinguer les interactions élastiques (sans perte d'énergie des électrons incidents) et inélastiques (avec perte d'énergie des électrons incidents).

L'interaction électron-matière peut produire des photons (rayonnement-X par désexcitation de la matière, rayonnement-X continu de freinage ou Bremsstrahlung, lumière visible) ou des électrons (faisceau direct, électrons diffusés élastiquement ou inélastiquement, électrons secondaires, électrons rétrodiffusés et électrons Auger). Tous ces signaux sont représentés dans la figure ci-contre.

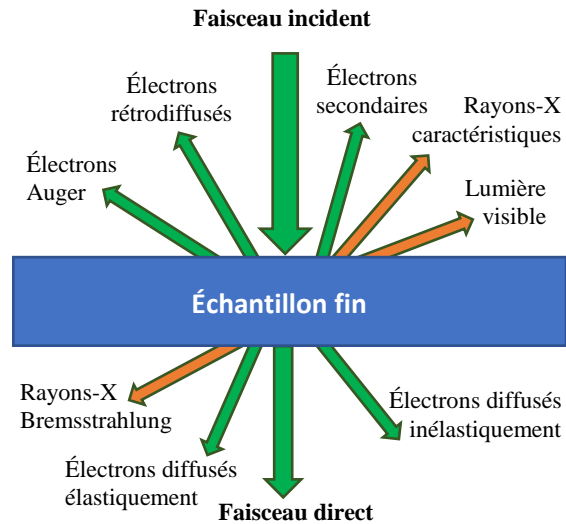


Figure 34 : Représentation des différentes interactions électron-matière à l'intérieur d'un TEM.

Certains signaux portent des informations sur les espèces chimiques présentes dans l'échantillon. C'est le cas des rayons-X caractéristiques ou des électrons diffusés inélastiquement dont les pertes énergétiques dépendent des éléments constituant l'échantillon.

## II. 3. b. Fonctionnement simplifié de la microscopie électronique en transmission

### II. 3. b. (i) Mode TEM

La dualité onde-corpuscule des électrons, au même titre que celle des photons, permet de réaliser un microscope électronique en transmission selon un principe similaire à celui du microscope optique. Ainsi des lentilles électromagnétiques sont utilisées pour réaliser l'image d'un objet traversé par un faisceau parallèle d'électrons. Ce mode d'imagerie TEM est le premier mode qui a été utilisé. Il est également possible d'utiliser un mode à balayage STEM "*Scanning Transmission Electron Microscopy*" en microscopie électronique en transmission.

### II. 3. b. (ii) Modes STEM HAADF et BF

En mode STEM un faisceau électronique très convergent, avec un diamètre de l'ordre de l'Angström, balaye l'échantillon pour réaliser une image en projection pixel après pixel. C'est la taille de la sonde électronique qui donne la résolution de la technique. En mode STEM, il est possible de détecter les électrons transmis diffusés avec des détecteurs en disque ou annulaires avec des demi-angles de collection  $\alpha$  plus ou moins importants, Figure 35. La détection des électrons diffusés aux grands angles (demi-angles de diffusion  $\geq 3^\circ$ , [113]) correspond en majorité à de la diffusion de Rutherford qui dépend principalement du numéro atomique Z des éléments traversés par le faisceau. On parle alors de STEM HAADF ("**H**igh **A**ngle **A**nnular **D**ark **F**ield") ou de STEM avec un contraste en Z. Les électrons transmis aux petits angles (demi-angles  $< 3^\circ$ , [113]) correspondent majoritairement aux électrons diffractés. Un détecteur en disque appelé BF ("**B**right **F**ield") permet de détecter ces électrons aux petits angles. Le contraste obtenu en mode STEM BF dépend donc de l'orientation relative du faisceau d'électrons par rapport aux cristaux présents dans l'échantillon.

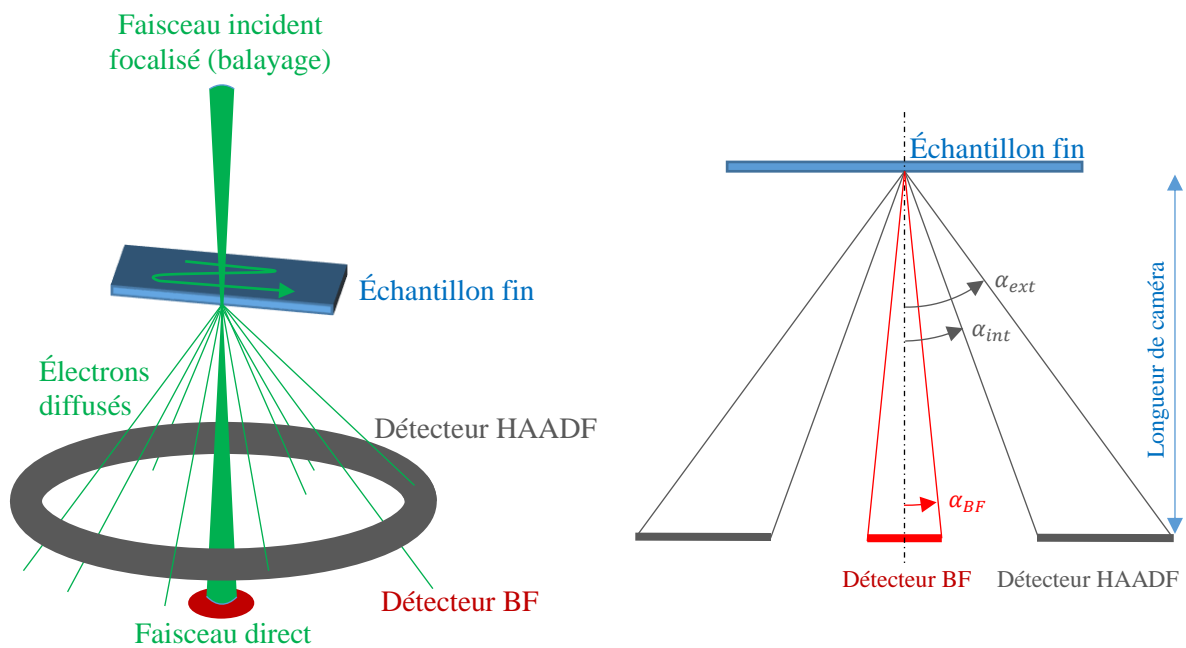


Figure 35 : (A gauche) Représentation en perspective du mode STEM avec les détecteurs en disque BF ("Bright Field") ou annulaires HAADF ("High Angle Annular Dark Field"). (À droite) représentation en coupe de l'échantillon et des détecteurs BF et HAADF avec le demi-angle de collection  $\alpha_{BF}$  pour le détecteur BF et les demi-angles de collection interne et externe  $\alpha_{int}$  et  $\alpha_{ext}$  pour le détecteur HAADF. La modification des angles de collection se fait en changeant la longueur de caméra.

### II. 3. b. (iii) Mode STEM EDX

En mode STEM il est également possible de détecter les rayons-X émis par l'échantillon. La matière traversée très localement par le faisceau convergent d'électrons est alors excitée et un rayonnement-X caractéristique des espèces chimiques présentes sur le chemin des électrons est émis. Ce mode est appelé STEM EDX ("*Energy Dispersive X-Ray spectroscopy* ») ou STEM EDS ("*Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* »). En balayant l'échantillon, des spectres de rayons-X sont alors obtenus pour chaque position du faisceau convergent correspondant aux pixels de l'image acquise. Il est ensuite possible d'afficher les rayons-X caractéristiques des différents éléments pour avoir des cartographies des différents éléments présents (Figure 36).

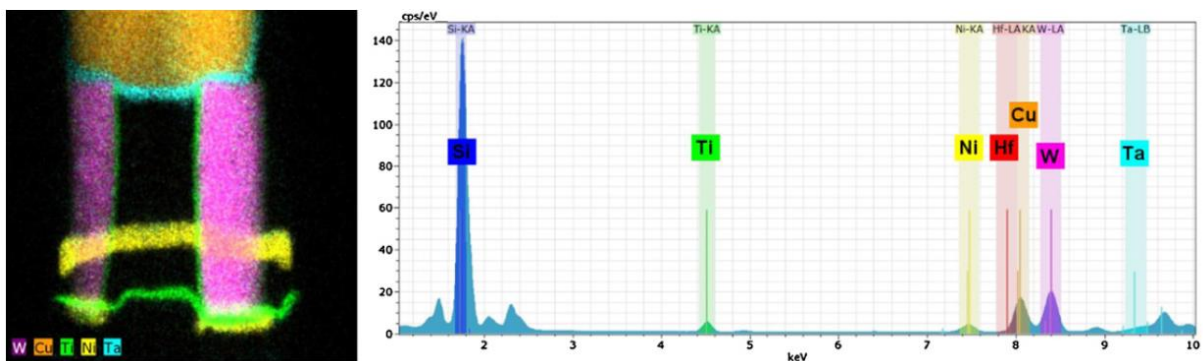


Figure 36 : Image d'une acquisition STEM EDS d'un transistor 28 nm, issue de la publication [114]. À gauche, la cartographie des différents éléments est représentée. À droite, le spectre global et les bandes utilisées pour définir les éléments, sont visibles.

### II. 3. b. (iv) Mode STEM EELS

En mode STEM, il est également possible d'utiliser un spectromètre pour séparer en énergies le faisceau direct d'électrons transmis. Les pertes d'énergies du faisceau d'électrons dépendent des éléments présents sur le chemin des électrons ainsi que de leur environnement chimique. Ce mode appelé STEM EELS ("*Energy Electron Loss Spectroscopy*") produit donc, comme le mode STEM EDX, des spectres pour chaque pixel de l'image acquise.

### II. 3. b. (v) Utilisation parallèle des modes STEM

Il est possible d'utiliser en parallèle les détecteurs BF et HAADF. Il est également possible d'utiliser le détecteur HAADF et en même temps d'enregistrer les spectres EELS et EDX. Ces modes d'acquisitions parallèles sont très utiles puisqu'ils permettent d'exploiter un plus grand nombre d'électrons ayant interagis sans pour autant que la dose électronique reçue par l'échantillon soit plus importante. Néanmoins les données à enregistrer peuvent rapidement être très importante. En effet enregistrer



un spectre complet EDX, un spectre complet EELS et des images BF et HAADF peut représenter des volumes de données de plusieurs giga-octets. Enfin, les paramètres du microscope sont souvent optimisés pour un mode d'imagerie. Il est utile, par exemple, d'avoir un courant de sonde électronique important en STEM EDX pour que l'acquisition ne dépasse pas la dizaine de minutes, alors qu'en STEM HAADF un courant bien moins important permet d'avoir une meilleure résolution et une durée d'acquisition convenable de l'ordre de la dizaine de secondes.

### II. 3. b. (vi) Résolution en mode STEM

La résolution en STEM dépend de plusieurs facteurs. Il est difficile d'évaluer la résolution en général, mais il est possible d'extraire 3 des composantes principales de la résolution [115] :

- (i) un diamètre gaussien initial du faisceau à la sortie du canon à électrons
- (ii) une dilatation du faisceau venant des aberrations sphériques des lentilles électromagnétiques
- (iii) la limite de diffraction qui correspond au critère de Rayleigh

Ces 3 paramètres sont reliés au demi-angle de convergence  $\alpha$  de la sonde électronique. L'influence de ces 3 paramètres en fonction de l'angle de convergence est visible sur la figure suivante extraite de la référence [115]. Les 3 contributions sont mises en équations sur cette figure.

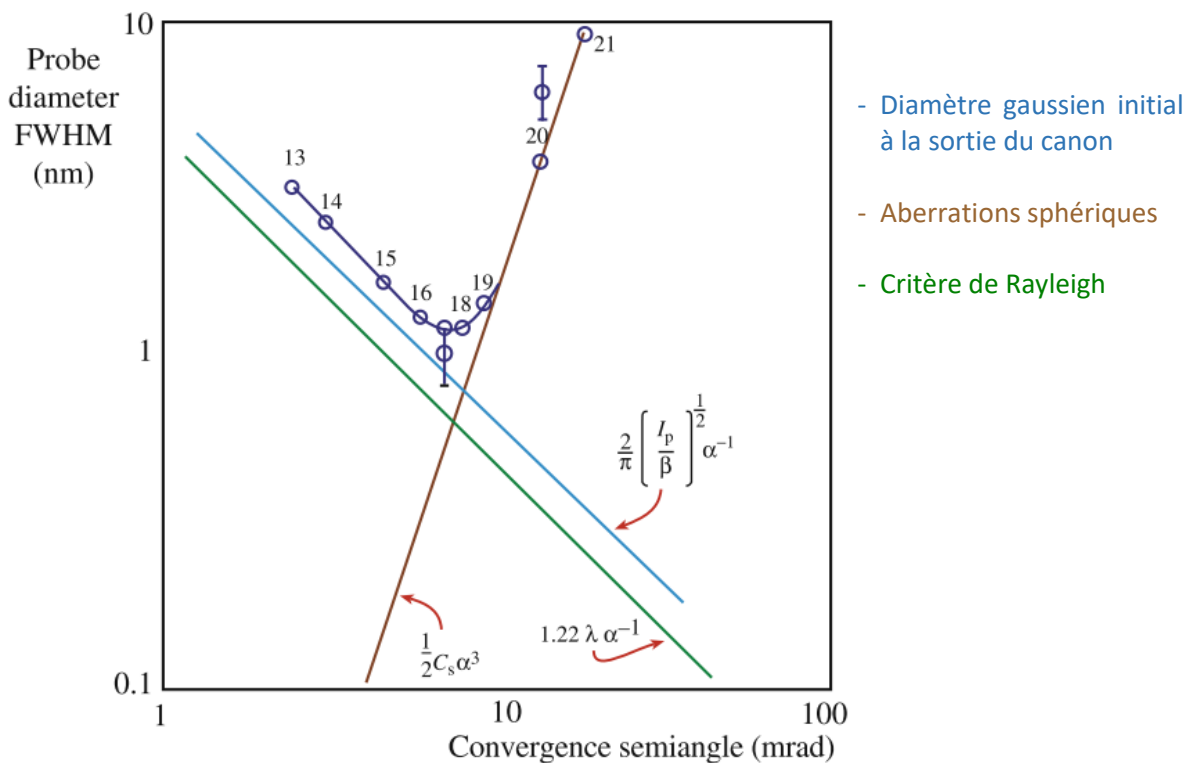


Figure 37 : Figure extraite de la référence [115]. Les points sont les mesures expérimentales réalisées sur un microscope VG HB501 STEM avec un courant de sonde  $I_p$  de 85 pA.

Il est possible de négliger la contribution des aberrations sphériques dans le cas d'un microscope avec correcteur d'aberrations, comme ceux qui ont été utilisés au cours de cette thèse, et dans le cas de faibles angles de convergence, comme c'est le cas lors d'une acquisition de tomographie électronique classique. Un ordre de grandeur de la résolution en STEM peut être obtenu facilement en prenant le critère de Rayleigh. Ce critère est valable en utilisant de faibles courants de sonde  $I_p$  et des angles de convergence faibles.

Finalement, nous pouvons utiliser le critère de Rayleigh comme approximation de la meilleure résolution qui peut être obtenue en STEM. Plus l'angle de convergence  $\alpha$  est grand, plus le faisceau est convergent, et par suite la taille de sonde est petite. D'un autre côté, un grand angle de convergence entraîne aussi une petite profondeur de champ. Le lien entre profondeur de champ  $d_z$  et résolution  $d_{res}$  peut être estimé avec les formules suivantes faisant intervenir le critère de Rayleigh et la longueur d'onde  $\lambda_e$  des électrons [116] :

$$d_{res} \approx 1,22 \frac{\lambda_e}{\alpha} \quad (20)$$

$$d_z \approx 2 \frac{d_{res}^2}{\lambda_e} \quad (21)$$

Ces équations montrent que la résolution et la profondeur de champ sont respectivement inversement proportionnelles au sinus de l'angle de convergence et à son carré. En STEM, améliorer la résolution en diminuant l'angle de convergence entraîne donc une détérioration de la profondeur de champ. Pour la tomographie électronique en particulier, un compromis doit être fait si les échantillons ne sont pas extrêmement fins, puisqu'il est nécessaire d'avoir tout l'échantillon au focus.

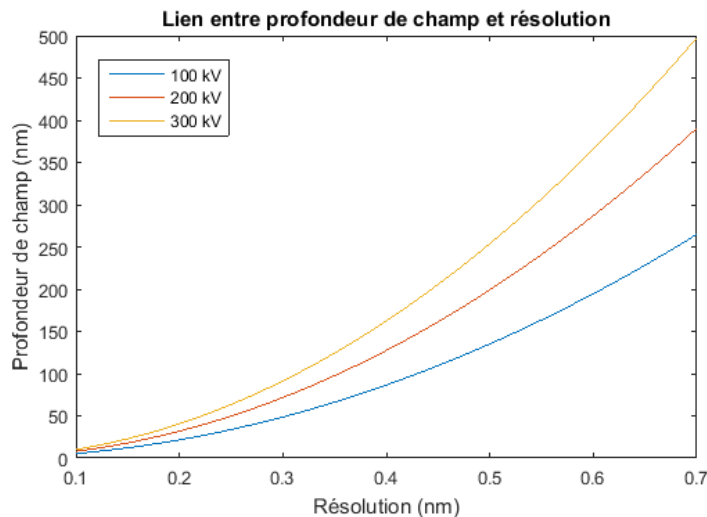


Figure 38 : Lien entre profondeur de champ et résolution pour différentes tensions d'accélération

## II. 3. c. La préparation d'échantillon

### II. 3. c. (i) *Intérêt des échantillons fins*

L'interaction électron matière étant très forte, il est nécessaire d'avoir des échantillons très fins en TEM pour qu'ils soient transparents aux électrons. En outre, l'image acquise est en général de meilleure qualité pour des échantillons plus fins. Nous avons déjà parlé du lien entre profondeur de champ et résolution en STEM qui montre bien qu'un échantillon fin est préférable. De plus, il est parfois possible de modéliser une interaction unique entre un électron incident et l'échantillon, mais dès que plusieurs interactions successives entrent en jeu cela devient de plus en plus compliqué. En mode STEM HAADF par exemple une approximation courante est de se placer dans le cas où les électrons incidents ont au plus une interaction avec l'échantillon. Il faut donc que l'échantillon soit plus fin que le libre parcours moyen des électrons. Le libre parcours moyen dépend de la nature de l'échantillon. Plus l'échantillon est dense et composé de matériaux à numéros atomiques élevés, plus le libre parcours moyen est petit. Il dépend également de la tension d'accélération du microscope, plus les électrons sont accélérés plus le libre parcours moyen est grand [113]. Les valeurs de la Figure 39 nous apprennent que pour des éléments lourds, quelques dizaines de nanomètres, voire quelques nanomètres représentent déjà la limite d'épaisseur des échantillons.

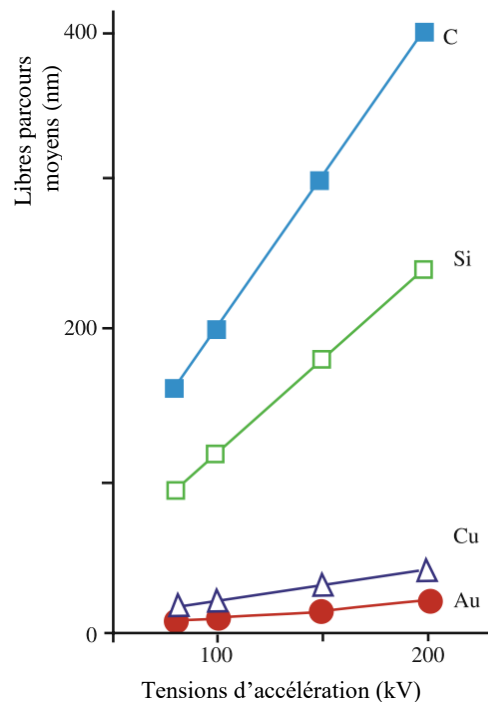


Figure 39 : Libres parcours moyens pour différents éléments chimiques et tensions d'accélération, [113]

### ***II. 3. c. (ii) Types d'échantillons***

Plusieurs types d'échantillons peuvent être préparés de façon à être suffisamment fins pour une acquisition TEM. Il est possible de classer les échantillons en deux catégories [117] :

- **Les grilles de support.** Des nano-objets tels que des nanofils ou des nanoparticules sont déposés sur une fine grille en carbone par exemple.
- **Les échantillons amincis.** Un échantillon est aminci à son extrémité par différentes techniques pour obtenir une lamelle ou une pointe suffisamment fine.

Plusieurs techniques de préparation existent pour obtenir des échantillons de taille et de forme adaptées à l'acquisition TEM. Ces techniques présentent des avantages et inconvénients très différents. La durée de préparation d'un échantillon peut aller de quelques minutes, dans le cas de dépôt de nanoparticules sur une grille, à quelques heures pour une préparation FIB et jusqu'à quelques jours pour la préparation d'un échantillon par polissage. Une seule technique ne permet pas de préparer tous les types d'échantillon. De plus, en fonction de ce qui doit être observé, certaines techniques peuvent être proscrites en raison de l'endommagement engendré au niveau des échantillons.

### ***II. 3. c. (iii) Préparation FIB de pointes pour la tomographie électronique***

Nous avons vu qu'il est grandement préférable de réaliser une acquisition sur une étendue angulaire de 180° en tomographie électronique. Pour cela, les échantillons en forme de pointe avec un diamètre à l'échelle nanométrique sont nécessaires. C'est pourquoi nous nous sommes uniquement intéressés à ce genre de préparation au cours de cette thèse. Ce type de préparation est connu et se fait à l'aide d'un FIB. Le lecteur intéressé pourra trouver les informations nécessaires dans la référence [118]. Les étapes sont synthétisées dans la Figure 40 issue de la même référence.

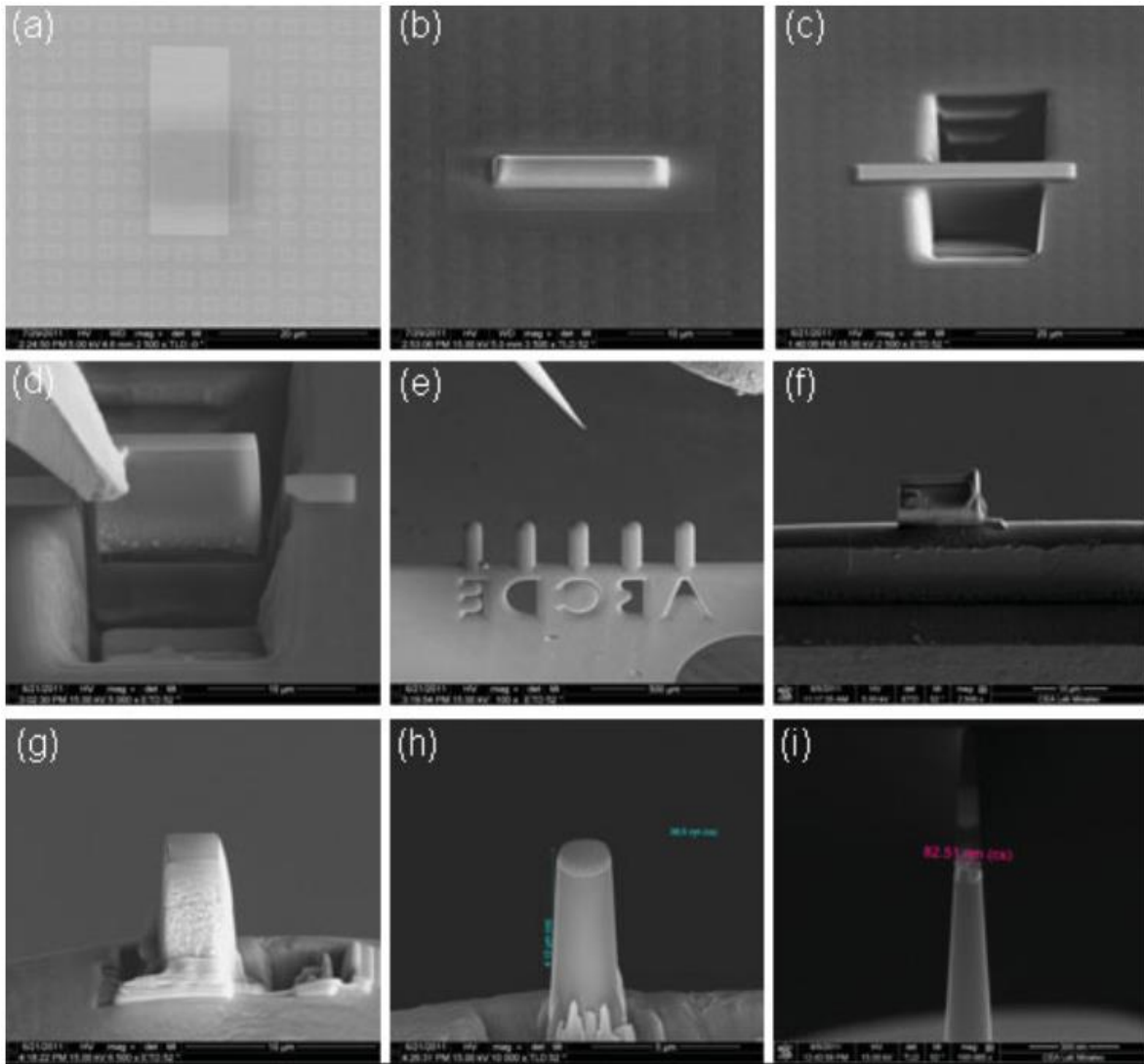


Figure 40 : Préparation d'un échantillon en forme de pointe au FIB [118]. Surface de l'échantillon (a) avant préparation, et (b) après dépôt d'une couche de protection de tungstène. (c) Gravure de trous au-dessus et en-dessous de la zone d'intérêt pour la dégager. (d) Extraction de la zone d'intérêt avec un micromanipulateur. (e) Déplacement de l'échantillon avec le micromanipulateur au-dessus du support TEM. (f) Collage sur le support TEM. (g) Amincissement de l'échantillon avec le faisceau ionique. (h , i) Amincissements successifs par gravures ioniques concentriques avec des diamètres de plus en plus fins.

## 4) Modes de contrastes compatibles avec la tomographie électronique

---

### II. 4. a. Exigence de projection

Pour réaliser une reconstruction de tomographie basée sur des projections, il suffit de se ramener au cas de la transformée de Radon, c'est-à-dire au cas de projections linéaires  $\mathcal{R}f$  d'une certaine quantité physique  $f$ . Ainsi, dans la référence [119], les auteurs parlent de "projection requirement" que l'on peut traduire par exigence de projection. Selon ces auteurs la condition nécessaire est au moins que l'acquisition présente un contraste qui soit une fonction monotone de l'épaisseur traversée. Une telle hypothèse ne semble pas très forte, néanmoins, elle n'est pas remplie pour tous les modes d'imagerie TEM, notamment à cause du contraste de diffraction qui dépend alors de l'orientation du réseau cristallin par rapport au faisceau d'électrons. Cette exigence de projection se comprend facilement puisqu'elle découle immédiatement du théorème de la bijection qui stipule que toute fonction continue strictement monotone définit une bijection entre son intervalle de définition et son image. La bijection réciproque est la fonction qui donne l'unique antécédent pour chaque valeur de l'espace image. On considère la fonction d'acquisition  $\Phi$  qui donne l'intensité mesurée en fonction de la projection  $\mathcal{R}f$  d'une certaine quantité physique  $f$ . Appliquer la bijection réciproque  $\Phi^{-1}$  aux projections mesurées  $\Phi(\mathcal{R}f)$  permet alors de revenir au cas de la transformée de Radon.

Nous souhaitons ici préciser que l'exigence de projection n'est en fait pas une condition nécessaire mais seulement suffisante. Si on s'autorise à avoir une fonction non continue par exemple, il est tout à fait possible d'avoir une fonction  $\Phi$  non strictement monotone qui soit bijective et permette ainsi de se ramener au cas de la transformée de Radon par la bijection réciproque  $\Phi^{-1}$ .

D'autre part, il est important de noter que même en présence d'une fonction strictement monotone, il n'est pas toujours possible en pratique d'effectuer une reconstruction fiable. Prenons le cas où  $\Phi$  suit une loi de Beer-Lambert, comme c'est le cas en tomographie rayons-X, avec des épaisseurs traversées  $d$  allant jusqu'à 10 fois le libre parcours moyen  $\delta$ . Nous supposons, pour une simplification de l'écriture, qu'il n'y a qu'un seul matériau et donc un seul libre parcours moyen, mais il est possible de généraliser au cas de plusieurs matériaux en remplaçant  $d/\delta$  par l'intégrale sur l'épaisseur traversée :  $\int_t 1/\delta(t) dt$ .

$$\text{Loi de Beer-Lambert : } \mathbf{p}_i = P_0 \exp\left(-\frac{d}{\delta}\right) \quad (22)$$

Simulons une acquisition avec un bruit blanc gaussien d'écart type  $\sigma = 10^{-3}/P_0$ . Le bruit est donc pris volontairement faible par rapport à l'intensité du signal.

$$\mathbf{p} = \mathbf{p}_i + \mathbf{b} = P_0 \exp\left(-\frac{d}{\delta}\right) + \mathcal{N}\left(0, \frac{10^{-3}}{P_0}\right) \quad (23)$$

Même si les mesures semblent très proches de la courbe théorique dans ce cas, (Figure 41, gauche), après application de la bijection réciproque  $\Phi^{-1}: \mathbf{p} \rightarrow -\ln\left(\frac{\mathbf{p}}{P_0}\right)$ , on obtient de très grosses erreurs dans l'estimation de l'épaisseur traversée, (Figure 41, droite). Bien que la courbe soit strictement monotone, sa pente devient hélas trop petite à partir de quelques libres parcours moyens. Une erreur même infime entraîne alors de grosses erreurs lors de l'inversion. Le problème est ainsi mal conditionné et la reconstruction de tomographie avec de telles données n'est pas fiable.

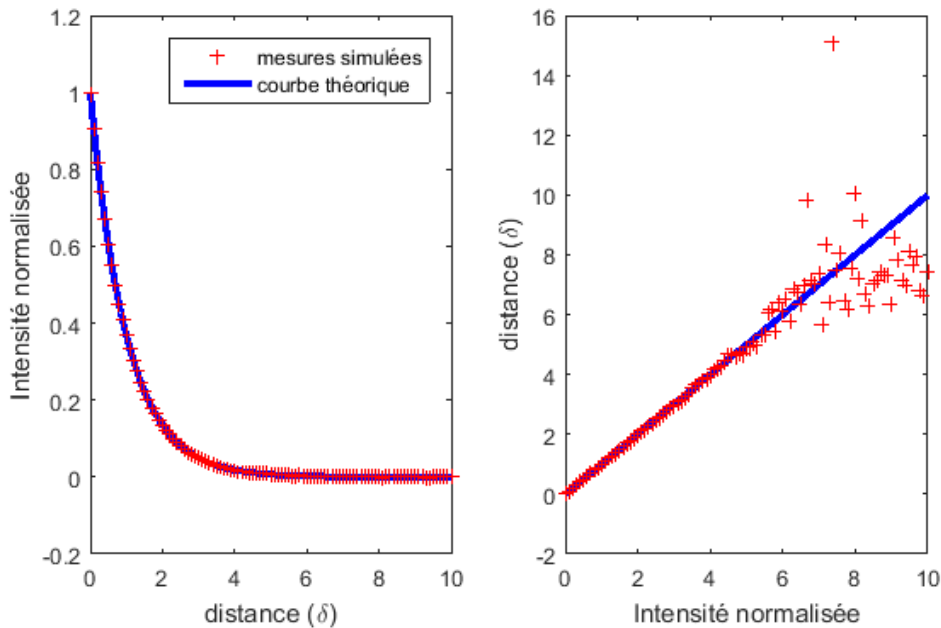


Figure 41 : Cas d'une fonction strictement monotone de type Beer-Lambert (à gauche) ne pouvant conduire à une inversion fiable (à droite) pourtant nécessaire pour réaliser une reconstruction de tomographie. En effet pour des épaisseurs traversées un peu trop importantes par rapport au libre parcours moyen, de faibles erreurs dans l'acquisition entraînent de grosses erreurs après inversion de la courbe.

## II. 4. b. La tomographie HAADF

### II. 4. b. (i) *Cas des échantillons très fins*

L'imagerie STEM HAADF donne un contraste en  $Z$  qui peut être utilisé tel quel pour une reconstruction de tomographie [120] à condition de se situer dans l'intervalle de linéarité. Cet intervalle est celui pour lequel il est possible de faire l'approximation que très peu d'électrons ont une interaction avec l'échantillon [113]. Il faut pour cela que l'épaisseur traversée de l'échantillon  $d$  soit très faible devant le libre parcours moyens  $\delta$  des électrons. La fonction d'acquisition est alors :

$$\Phi_{HAADF} \approx P_0 \frac{d}{\delta} \quad (24)$$

Nous nous sommes de nouveau placés dans le cas où il n'y a qu'un seul matériau présent. Plus généralement, il est possible de remplacer le rapport  $d/\delta$  par l'intégrale  $\int \frac{1}{\delta(t)} dt$ , où les  $\delta(t)$  sont les libres parcours moyens des électrons pour différentes profondeurs traversées  $t$ . Cette généralisation peut être faite partout par la suite et ne sera plus mentionnée.

### II. 4. b. (ii) *Cas des échantillons d'épaisseur intermédiaire*

Dans le cas où l'épaisseur traversée  $d$  est de l'ordre du libre parcours moyen  $\delta$ , la fonction d'acquisition peut être approximée grâce à une loi de Beer-Lambert. La loi de Beer-Lambert s'applique au faisceau n'ayant pas interagi avec l'échantillon [121]. Puisque les électrons détectés sont ceux qui ont interagi, la fonction d'acquisition est alors la différence entre l'intensité  $P_0$  du faisceau incident et une loi de Beer-Lambert :

$$\Phi_{HAADF} \approx P_0 \left( 1 - \exp\left(-\frac{d}{\delta}\right) \right) \quad (25)$$

Le développement limité à l'ordre 1 de cette fonction d'acquisition permet de retrouver la fonction d'acquisition de l'équation (24). Cette fonction peut être inversée simplement dans le cas où l'intensité  $P_0$  du faisceau incident est connue. La fonction d'inversion est alors :

$$\Phi_{HAADF}^{-1}(\mathbf{p}) = \ln\left(1 - \frac{\mathbf{p}}{P_0}\right) \quad (26)$$



### II. 4. b. (iii) Cas des échantillons épais

Dans le cas où l'épaisseur traversée est grande devant le libre parcours moyen, une inversion de contraste peut survenir. Cette inversion de contraste vient du fait que les électrons, après plusieurs diffusions, peuvent être diffusés au-delà de l'angle de collection externe du détecteur HAADF [121], cf. Figure 35. Ils peuvent même être rétrodiffusés ou absorbés par l'échantillon. Dans ces cas, les électrons ne sont plus vus par le détecteur HAADF alors qu'ils devraient être pris en compte en théorie, ce qui peut entraîner une inversion de contraste pour les échantillons trop épais. Ceci conduit donc à une fonction d'acquisition  $\Phi$  qui n'est plus monotone pour des épaisseurs importantes. Un autre mode doit être utilisé dans ce cas pour pouvoir réaliser une reconstruction de tomographie électronique.

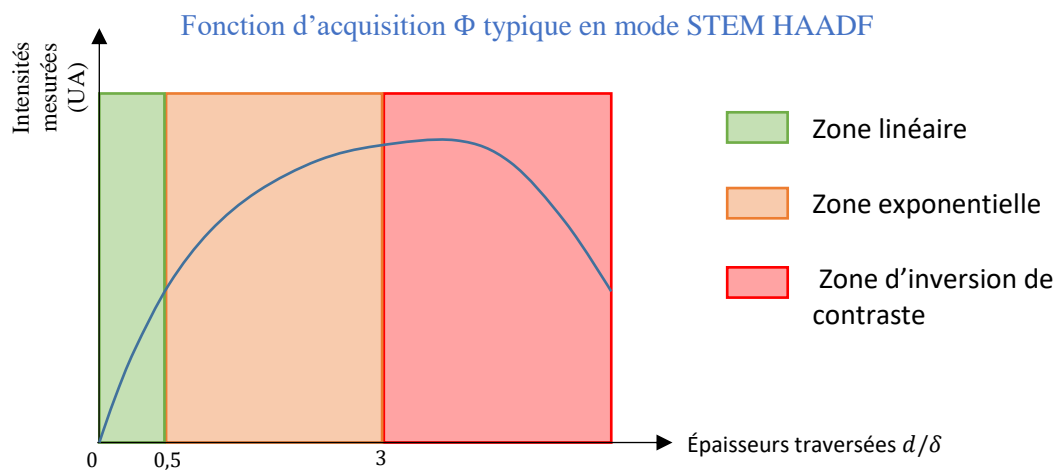


Figure 42 : Fonction d'acquisition  $\Phi$  en mode STEM HAADF faisant ressortir plusieurs zones en fonction de l'épaisseur d'échantillon traversée.

### II. 4. c. La tomographie IBF

Le mode IBF ("*Incoherent Bright Field*") vise à corriger l'inversion de contraste qui existe dans le cas d'épaisseurs traversées trop élevées [122]. Il faut idéalement détecter tous les électrons qui ont interagi au moins une fois avec l'échantillon. Il est donc avantageux que le demi-angle de collection externe du détecteur HAADF soit le plus grand possible, cf. Figure 43. Aller jusqu'à un demi-angle de collection externe de  $180^\circ$  n'est pas possible en pratique, de plus les électrons absorbés par l'échantillon ne seraient toujours pas pris en compte. Il est possible néanmoins d'utiliser un détecteur BF avec un angle de collection externe similaire à l'angle de collection interne d'un détecteur HAADF, donc bien plus grand que l'angle de collection classique du mode BF. Pour cela il suffit de choisir une longueur de caméra très petite comme on peut le voir sur le schéma de la Figure 43. Sur ce schéma,

sont aussi représentées les étendues de détection des modes IBF et HAADF. Ainsi, en mode IBF la fonction d'acquisition est :

$$\Phi_{IBF} = P_0 \exp\left(-\frac{d}{\delta}\right) \quad (27)$$

Et la fonction d'inversion correspondante est alors :

$$\Phi_{IBF}^{-1}(p) = -\ln\left(\frac{p}{P_0}\right) \quad (28)$$

Dans le cas du mode IBF, l'intensité du faisceau incident  $P_0$  est celle présente dans une zone vide de l'image ( $d = 0$ ). L'accès à  $P_0$  est donc plus facile dans ce cas que dans celui du mode HAADF pour l'équation (26).

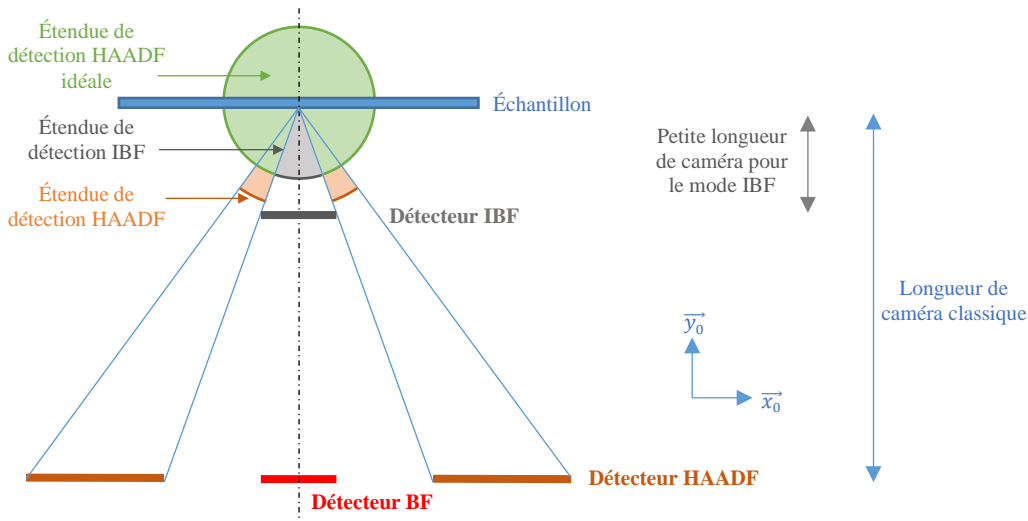


Figure 43 : Schéma représentant les modes HAADF, BF et IBF ainsi que les étendues de détection

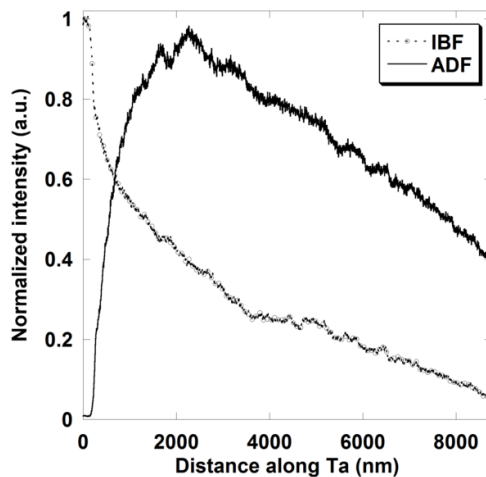


Figure 44 : Fonctions d'acquisition expérimentales des modes HAADF et IBF, issue de la référence [122]. Un échantillon en forme de biseau garantissant une épaisseur traversée proportionnelle à la distance au bord a été utilisé pour obtenir ces courbes.

La figure ci-contre représente les intensités mesurées en mode ADF et en mode IBF dans le cas d'un échantillon en biseau présentant ainsi des épaisseurs traversées augmentant proportionnellement [122]. Une inversion de contraste existe dans le cas de l'acquisition ADF alors que la fonction d'acquisition du mode IBF est quant à elle strictement décroissante.

## II. 4. d. La tomographie analytique

La tomographie analytique (ou tomographie chimique) peut également être réalisée en exploitant les modes d'imagerie analytiques STEM EELS et STEM EDX ainsi que le mode d'imagerie EFTEM ("Energy Filtered TEM") [120].

### II. 4. d. (i) STEM EDX et STEM EELS

En mode STEM EDX ou en mode STEM EELS, un spectre caractéristique de l'échantillon est obtenu localement à l'emplacement de la sonde électronique. Il est ainsi possible d'acquérir des spectres en chaque pixel des projections 2D. Réaliser plusieurs projections pour différents angles de rotation permet alors d'avoir des spectres selon une série de projections 2D. La reconstruction des voxels 3D des spectres d'émission de l'échantillon est alors possible [123]. Néanmoins, le nombre de photons détectés (ou nombre de coups) pour un canal d'énergie donné est très faible en STEM EDX, il est de l'ordre de quelques coups à quelques dizaines de coups. De plus il n'est pas possible de faire une acquisition « classique » d'une centaine de projections comme en STEM HAADF parce que le temps d'acquisition d'une seule projection spectrale est de l'ordre de quelques minutes, même avec des courants de sonde élevés. Tout cela rend la reconstruction 4D (ensemble de spectres en 3D) très délicate en tomographie STEM EDX ou STEM EELS.

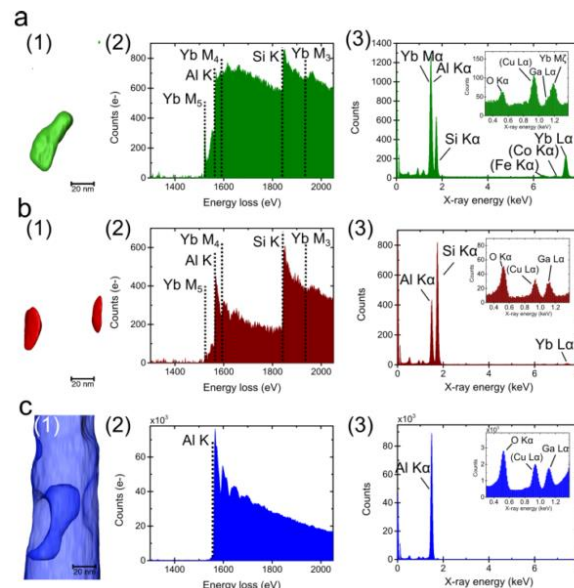


Figure 45 : Reconnstructions 3,5D et 4D en tomographies STEM EDX et STEM EELS simultanées, [123]. (a), (b) et (c) représentent les différentes parties présentes dans l'échantillon reconstruit. (1) Les volumes 3D segmentés correspondants, (2) les spectres EELS 4D sommés sur toute la zone segmentée correspondante et (3) les spectres EDX 4D sommés sur les mêmes zones.

En pratique, à la place d'une reconstruction 4D, c'est souvent un ensemble de quelques reconstructions 3D qui est réalisé ; nous parlerons alors de reconstructions 3,5D. Ces quelques reconstructions peuvent correspondre aux éléments chimiques présents. Pour cela, les coups enregistrés des raies caractéristiques de chaque élément sont sommés pour obtenir les projections élémentaires. Ce sont ces projections qui sont ensuite reconstruites indépendamment [114]. Il est également possible de reconstruire, non plus les éléments, mais les phases présentes qui correspondent à des spectres caractéristiques d'un ou plusieurs éléments. Pour cela une analyse multivariée telle que la PCA ("*Principal Component Analysis*") est utilisée pour obtenir des projections qui correspondent à une phase présente dans l'échantillon [124].

#### II. 4. d. (ii) EFTEM

Le mode EFTEM correspond à un mode d'imagerie TEM avec un filtrage en énergie. Ce mode permet donc d'obtenir des projections 2D correspondant à une certaine fenêtre de perte d'énergie des électrons. En jouant sur les fenêtres de pertes d'énergie, il est possible d'obtenir plusieurs séries de projections 2D qui peuvent ensuite être reconstruites indépendamment. C'est un cas de reconstruction 3,5D qui est possible en tomographie électronique [120]. La figure suivante représente une coupe similaire dans un échantillon reconstruit pour différentes énergies. Il est alors possible de séparer les différents éléments présents dans l'objet à l'aide des informations fournies par les différentes reconstructions.

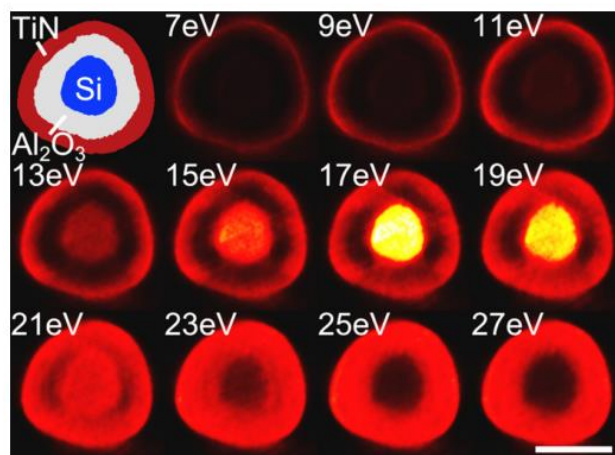


Figure 46 : Exemple de reconstruction 3,5D de tomographie EFTEM issue de la référence [125]. La même vue en coupe dans la reconstruction est représentée pour différentes énergies perdues. En utilisant toutes ces reconstructions, il est possible de séparer efficacement les différentes zones dans la reconstruction 3D représentées en haut à gauche. La barre d'échelle mesure ici 100 nm.



## ***Chapitre III***

# ***VERS UNE AUTOMATISATION DE LA TECHNIQUE***

### ***Contenu du chapitre III***

La 1<sup>ère</sup> partie de ce chapitre, issue quasiment dans son intégralité d'un article publié au cours de cette thèse, présente une technique complète d'alignement, de débruitage et de reconstruction 3D utilisable en tomographie électronique. Cette technique est particulièrement adaptée aux échantillons en forme de pointe. Elle a été testée sur plusieurs jeux de données réels ainsi que sur des simulations.

La 2<sup>ème</sup> partie de ce chapitre est une présentation très succincte du logiciel GUIDAR développé pendant cette thèse. Ce logiciel repose en grande partie sur la procédure proposée dans la 1<sup>ère</sup> partie. Un guide pratique d'utilisation de ce logiciel est disponible en annexes.





## 1) Débruitage adaptatif, alignement et reconstruction en tomographie électronique en science des matériaux

---

Toute cette partie est issue de l'article [126] qui a été publié au cours de cette thèse dans le journal *Ultramicroscopy*. Cet article présente une procédure complète de traitement des données en tomographie électronique, composée de débruitage adaptatif pour un bruit mixte Poisson-Gaussien, d'une nouvelle méthode d'alignement, ainsi que d'une reconstruction de type SIRT>0. Le but de cette procédure est de rendre la technique moins dépendante de l'utilisateur, plus rapide d'utilisation et plus robuste dans une optique d'automatisation voire d'industrialisation de la tomographie électronique. Le débruitage des projections n'est pas quelque chose de courant en tomographie électronique alors qu'une amélioration significative de la reconstruction peut être obtenue. La nouvelle méthode d'alignement proposée exploite pleinement le mouvement de rotation de l'objet, ce qui permet un alignement bien plus robuste et avec moins d'intervention de l'utilisateur que les techniques d'alignement basées sur des corrélations croisées entre projections successives. Enfin, la reconstruction est un SIRT>0 de 100 itérations avec une détermination des coefficients de relaxation par une recherche linéaire, ce qui permet de limiter les paramètres et l'influence de l'utilisateur tout en garantissant une bonne reconstruction. Les reconstructions obtenues présentent suffisamment peu de bruit et d'artéfacts pour qu'une segmentation par seuillage global des niveaux de gris puisse être faite. Ceci permet un important gain de temps par rapport à d'autres segmentations, bien plus compliquées, qui nécessitent souvent des étapes manuelles délicates de la part de l'utilisateur.

La partie suivante est l'article [126] original, en anglais, avec quelques changements mineurs dans les notations de façon à conserver une cohérence globale dans l'écriture de cette thèse.



### III. 1. a. Abstract

An automatic procedure for electron tomography is presented. This procedure is adapted for specimens that can be fashioned into a needle-shaped sample and has been evaluated on inorganic samples. It consists of self-adapting denoising, automatic and accurate alignment including detection and correction of tilt axis, and 3D reconstruction. We propose the exploitation of a large amount of information of an electron tomography acquisition to achieve robust and automatic mixed Poisson-Gaussian noise parameter estimation and denoising using undecimated wavelet transforms. The alignment is made by mixing three techniques, namely (i) cross-correlations between neighboring projections, (ii) common line algorithm to get a precise shift correction in the direction of the tilt axis and (iii) intermediate reconstructions to precisely determine the tilt axis and shift correction in the direction perpendicular to that axis. Mixing alignment techniques turns out to be very efficient and fast. Significant improvements are highlighted in both simulations and real data reconstructions of porous silicon in high angle annular dark field mode and agglomerated silver nanoparticles in incoherent bright field mode. 3D reconstructions obtained with minimal user-intervention present fewer artefacts and less noise, which permits easier and more reliable segmentation and quantitative analysis. After careful sample preparation and data acquisition, the denoising procedure, alignment and reconstruction can be achieved within an hour for a 3D volume of about a hundred million voxels, which is a step toward a more routine use of electron tomography.

### III. 1. b. Introduction

Electron Tomography (ET) is a non-invasive technique to perform 3D imaging of objects of a few hundred nanometers in size with a spatial resolution of about one nanometer [120], [127], [128]. A Scanning Transmission Electron Microscope (STEM) is used to acquire images or projections of the object at different tilt angles. Ideally a great number of projections should be acquired over a 180° angular range. After careful alignment of all the projections, a mathematical algorithm is used to reconstruct the 3D object from its 2D projections.

In ET, the direct model can be formulated as:

$$\mathbb{A}\mathbf{f} = \mathbf{p} \tag{1}$$

Here  $\mathbb{A}$  is the projection matrix,  $\mathbf{f}$  is the vector containing the voxels of the 3D object and  $\mathbf{p}$  is the vector containing the pixels of the 2D projections. To reconstruct  $\mathbf{f}$ , an algebraic reconstruction such as Simultaneous Iterative Reconstruction Technique (SIRT) is often used in ET due to its reliability [129]. A SIRT is actually a classical steepest descent algorithm minimizing the residual error  $\|\mathbb{A}\mathbf{f} - \mathbf{p}\|_2^2$ . The initialization of this well-known algorithm starts with  $\mathbf{f}^{(0)} = \mathbf{0}$ . At each iteration  $k$ , the solution  $\mathbf{f}^{(k)}$  is updated according to the formula:

$$\mathbf{f}^{(k+1)} = \mathbf{f}^{(k)} - \lambda^{(k)} {}^t\mathbb{A} (\mathbb{A}\mathbf{f}^{(k)} - \mathbf{p}) \quad (2)$$

In equation (2),  $\mathbb{A}$  is applied to a volume  $\mathbf{f}^{(k)}$  and is equivalent to a forward projection while  ${}^t\mathbb{A}$  is applied to a set of projections and is equivalent to a back-projection. The relaxation parameter  $\lambda^{(k)}$  can be fixed or changed at every iteration.

Due to damage under electron beam and limited acquisition time, the number of projections is often limited to roughly one projection per degree. This subsequently leads to an infinite number of possible solutions for equation (1). Regularization by the application of *a priori* knowledge can be used to counterbalance this lack of information. This could be the application of a positivity constraint for SIRT, or by dedicated algorithms such as Discrete tomography (DT) [130] or Total Variation Minimization (TVM) [87] which apply further constraints, *e.g.* piecewise constant object for TVM, a finite number of known grey levels corresponding to the number of materials present in the object for DT.

In Compressed Sensing (CS) theory, a sparsity of the solution of an ill-posed inverse problem is searched in a particular dictionary such as Fourier space, wavelet dictionary, or even the gradient or finite differences – in which case it's called TVM. TVM has been used lately for ET [104], [109], [131] because it largely improves the quality of 3D reconstructions, particularly when an angular range of 180° cannot be reached, resulting in a missing wedge. Still, CS suffers severe drawbacks: Many influential parameters must be fixed by the user to get “the best” reconstruction, making the results highly user dependent. Moreover, experimentally finding the correct parameters can be time-consuming and tricky. In addition to this, solving a CS problem needs far more calculations and thus a reconstruction may be four times longer than a SIRT reconstruction [109] even with an efficient solver like TVAL3 [132].

SIRT with positivity constraints is relatively liberal in terms of constraints on the solution yet still yields high quality reconstructions in simulations without noise, with perfect alignment and without missing wedge and with only one projection per degree. Finally, in the case of a needle-shaped sample allowing for 180° angular range, noise and misalignment are often the most critical issues that limit

the reconstruction quality. Denoising projections before the reconstruction can therefore be useful for both the alignment and the algorithm reliability. After careful alignment, a SIRT with positivity constraints can be applied to reconstruct the object with high accuracy.

In this paper, we introduce a complete methodology composed of self-adapting projection denoising, automatic and accurate alignment and reconstruction, particularly suited for needle-shaped samples in ET in materials science. In section III.1.c the denoising method using Undecimated Wavelet Transform (UWT), the alignment and the SIRT reconstruction are introduced. Three-dimensional simulations and real data acquisitions of a porous silicon sample and agglomerated silver nanoparticles – used for inkjet printing technology – are presented. Section III.1.d compares reconstructions obtained with the complete pre-processing of the projections to reconstructions obtained without denoising and with a simpler alignment made with cross-correlations.

### III. 1. c. Materials and methods

#### *III. 1. c. (i) Porous silicon*

##### *Porous silicon sample*

Porous silicon [25] has attracted a lot of interest since its discovery in 1956 [26] thanks to many applications ranging from electronics and optoelectronics [133], photonics [134], [135] and to chemical and biomedical applications [136]. All of these applications take advantage of the different geometry and morphology of porous silicon [137] that can be obtained by varying the fabrication parameters and substrate doping level and type. ET is useful to locally determine the empty to full ratio, the distribution, size and shape of the porous structure as it is not possible to extract all of this information from a single 2D STEM projection. The porous silicon sample characterized here is prepared by electrochemical etching of (100) –  $p^+$  oriented crystalline silicon wafer with a resistivity in the range 3 to 7  $m\Omega \cdot cm$ . The etching solution used is a HF:H<sub>2</sub>O:Ethanol in a ratio of 30:30:40. Porous empty to full ratio is 55% [20].

##### *Sample preparation for ET*

The sample was prepared with a FEI™ Strata dual-beam Focused Ion Beam (FIB) instrument. A classical method to prepare needle-shaped sample in ET has been used [118]. First, protective layers were locally deposited on the surface of the sample to protect it from damage from incident gallium ions. Layers deposited on the surface consist first of an electron-deposited silicon-dioxide layer, then

of an electron-deposited tungsten layer and finally, an ion-deposited tungsten layer. Once the region of interest is protected, a chunk is extracted using an Omniprobe®. The chunk is glued to a tip holder. It is then milled to get a needle shape using gallium ions of the FIB. Size of the annular milling is progressively decreased as well as the current of the gallium beam to get a needle-shaped sample with a diameter of around 100 nm at the top of the needle and a diameter of around 300 nm after one micron.

### ***STEM HAADF tilt series acquisition***

Tilt series is acquired with a FEI Titan Ultimate using an accelerating voltage of 80 kV. A convergence angle of 8 mrad is used as a compromise between resolution and depth of focus. The current of the probe was set approximately to 0.1 nA. The camera length used is 145 mm. 177 images of 2048x1248 pixels with a pixel size of 0.41 nm and an exposure time of 10 seconds are acquired between  $-88^\circ$  and  $+88^\circ$  using the FEI software Xplore3D™.

### ***III. 1. c. (ii) Agglomerated silver nanoparticles***

#### ***Silver nanoparticle sample***

Since the beginning of the twenty first century, inkjet printing technology has been extensively explored for printed flexible electronics applications. Its capability to deposit and pattern without contact and solid masks drastically reduces the process complexity for low cost electronics [138]. Advances in ink formulation have led to a large range of printable materials that were developed for several types of possible applications such as photovoltaic cells [139], light-emitting diodes, sensors [140], [141], Radio-Frequency devices [142] and even smart clothing [143]. Colloidal suspensions of metallic nanoparticles are really good candidates for printing conductive patterns because of their high electrical conductivity

The sample studied here was made using SunChemical EMD5714 ink; a silver nanoparticle ink with 40% wt silver in an ethanol and ethylene glycol solvent [141], [142]. According to the supplier, the mean nanoparticle size is 70 nm. A layer of about one micron thickness is printed on a 500 nm thick thermal oxide on a silicon substrate using a Dimatix DMP2831 printer. Characterization is important to better understand the properties of this sample. Because of the size of the nanoparticles used, ET is adapted to obtain the 3D morphological parameters such as roughness, grain size and porosity.

### ***Sample preparation for ET***

Just like for the porous silicon sample, the agglomerated silver nanoparticle sample was prepared with an annular milling process using a FEI Strata dual-beam FIB instrument. This time, the annular milling is made to get a constant diameter of around 300 nm in the region of interest of one micron height.

### ***STEM IBF tilt series acquisition***

Tilt series have been acquired with a FEI Titan using an accelerating voltage of 200 kV in Incoherent Bright-Field (IBF) mode [122]. Classical tomography reconstruction in STEM HAADF mode is not possible with this sample due to intensity reversal that occurs with high mass-thickness samples [122], [131]. A convergence angle of 8 mrad is used as a compromise between resolution and depth of focus. The current of the probe was set approximately to 0.1 nA. Images of 2048x1024 pixels with a pixel size of 0.75 nm and an exposure time of 20 seconds are acquired using the FEI software Xplore3D.

### ***Simulations***

Simulations have been performed to test the accuracy of the procedure. Since the user-defined object and geometry are available, it is possible to evaluate the denoising algorithm and the tilt axis alignment method. The chosen simulation parameters are compatible with ET acquisition in terms of contrast, tilt axis misalignment and signal-to-noise ratio.

Simulations are made on the modified 3D Shepp-Logan phantom. In order to match the needle-shaped samples, only half of the 3D phantom is used here and elongated with a factor 2 in the Z-direction, Figure 47. 180 projections with a constant tilt angle of 1° are simulated on a 512x512x512 voxel phantom. A random misalignment in the range  $[-10; +10]$  pixels is applied and a misalignment of the tilt axis of +0.63° is added. To finish, Poisson noise is added to projections considering a maximum intensity of 500 counts – corresponding to a detector gain  $g_0 = 0.3042 e^-/\text{Analog-to-Digital Unit (ADU)}$ . This Poisson noise is combined with an additive white Gaussian noise of standard deviation  $\sigma = 1$ .

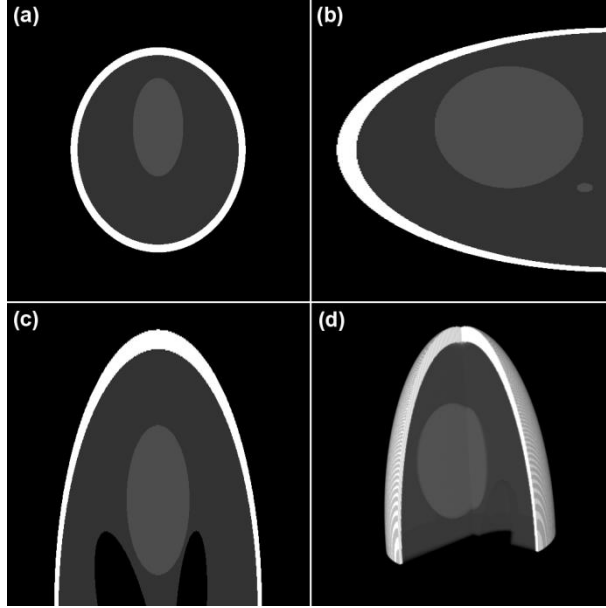


Figure 47 : 3D elongated Shepp-Logan phantom. (a-b-c) represent respectively an xy-slice, an xz-slice and a yz-slice of the simulated phantom (d) a 3D open view of the simulated phantom.

Three different reconstruction procedures have been set up, as shown in Table 1, and will be tested throughout the rest of the paper. Determination of tilt axis for procedure A is done by testing different tilt axes until the reconstructions of slices located at one and three quarters are visually optimized.

Procedure	Projection denoising	Alignment method
A	No denoising	Cross-correlations + visual determination of the best tilt axis
B	No denoising	Automatic alignment method proposed in this article
C	Denoising with UWT	Automatic alignment method proposed in this article

Table 1: Reconstruction procedures used. The reconstruction algorithm is a SIRT of 100 iterations with positivity constraints

### III. 1. c. (iii) Self-adapting denoising, alignment and reconstruction

#### Projection denoising

Projection denoising is done using a wavelet dictionary, in this case, UWT with the  $B_3$  spline wavelet as proposed in reference [57]. The UWT is done in 2D on each projection image. UWT is a redundant dictionary, which is an important advantage for efficient performance of denoising. The UWT has a redundancy factor of  $3J + 1$  in 2D where  $J$  is the number of scales used in the wavelet decomposition. Furthermore, for each scale  $j$ , there are subband images corresponding to the vertical, horizontal and diagonal orientations ( $\mathcal{W}_j^H$ ,  $\mathcal{W}_j^V$ ,  $\mathcal{W}_j^D$  respectively). The final subband is the complete smoothed image  $\mathcal{C}_0$ . All of these are undecimated and therefore of the same size as the initial image, leading to a redundancy factor of  $3J + 1$ . The reconstruction of the original image is obtained simply, by summing all subbands including the final smoothed image. Typical UWT is shown in Figure 48 using

a projection of the porous silicon sample, see subsection II.1. As opposed to UWT, isotropic UWT also called “starlet transform” has a redundancy factor of  $J + 1$  since it has only one detail subband for each scale,  $j$ . The starlet transform is therefore computationally simpler than UWT but should be used with images composed of isotropic objects only, as is often the case in astronomy. However, samples in materials science are seldom isotropic and denoising based on UWT performs better than denoising based on starlet transform. Starlet transforms have already been used with STEM images for segmentation of gold nanoparticles [144] that are isotropic.

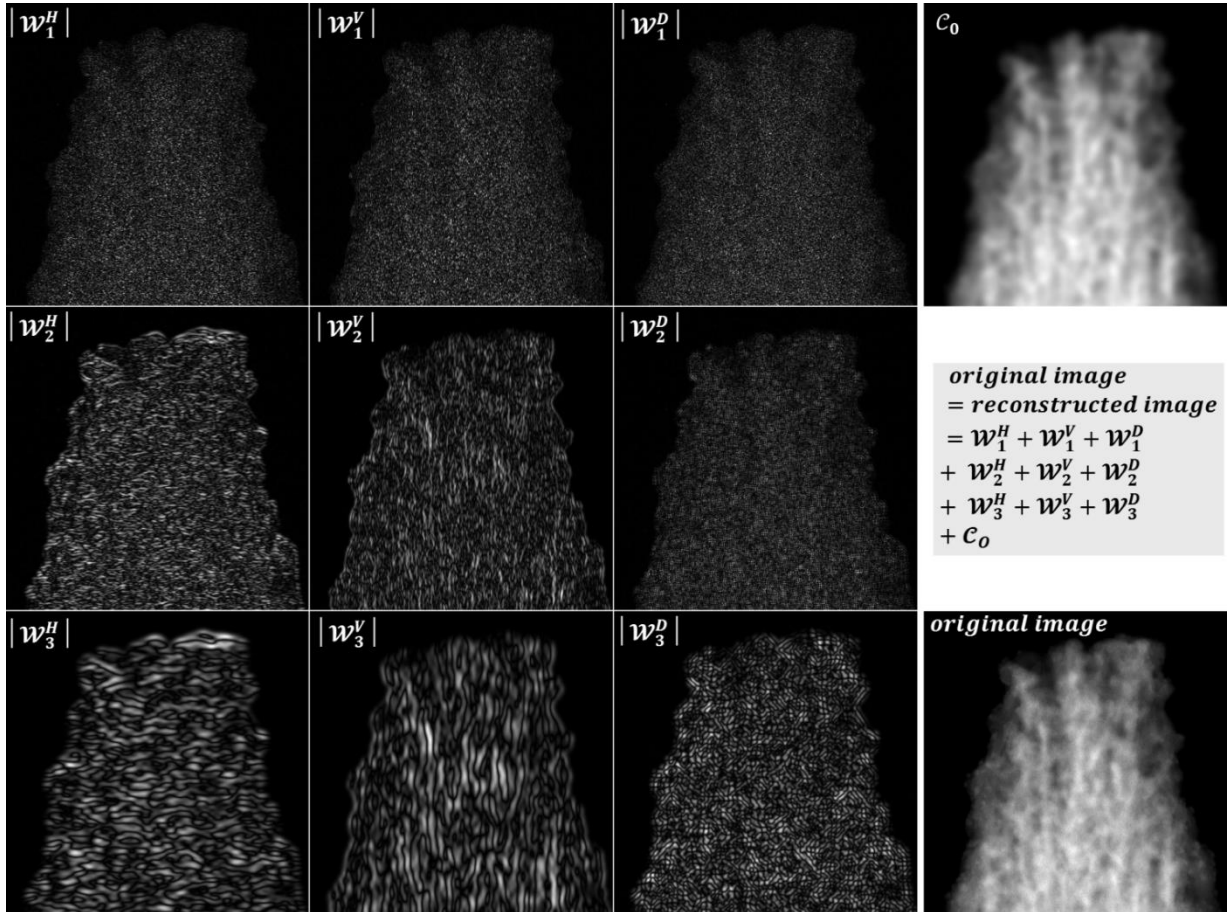


Figure 48: Undecimated wavelet transform of a projection of the porous silicon sample with  $J = 3$  scales. The reconstruction of the image is obtained with the sum of the  $3J$  detail images (Horizontal H, Vertical V and Diagonal D for every scale) plus the final smooth image  $C_0$ .

The denoising technique presented hereafter is well-known but it is designed to suppress signal-independent Gaussian noise. In practice electron dose is limited in STEM imaging, resulting in the dominance of intensity-dependent Poisson noise. To correct Poisson noise, many existing techniques transform the original image to one with a signal-independent Gaussian noise distribution. After applying classical denoising techniques for Gaussian noise on the transformed image, an inverse transform is applied to get the denoised image in its original form. Those variance-stabilizing transforms and particularly the generalized Anscombe transform [59], [145] are quite simple to

implement but require the knowledge of the noise distribution parameters. We propose the exploitation of the large statistical information from all the projections to get a stable, signal-dependent noise evaluation. In practice all pixels of all projections are ordered relative to their intensity and bins of close intensities corresponding to groups of 100,000 pixels are made. A total of 100,000 pixels is sufficient to get a stable noise estimation and is sufficiently low regarding the number of pixels in all the projections to have a precise binning of the intensity. Indeed, 180 images of 2048x2048 pixels with a bin size of 100,000 gives a number of around 7,500 bins. That way it's possible to simply take into account the signal-dependent noise distribution.

Denosing is done with a hard thresholding scheme, setting to 0 coefficients of the wavelet transform that have an absolute value lower than a threshold. The threshold value depends on the wavelet subband and the intensity of the pixels in the original images using bins as explained before. The threshold is  $k\sigma_{jl}^{B_i}$ , with  $\sigma_{jl}^{B_i}$  the estimated noise level of the projections in the subband of scale  $j$  and direction  $l$  for pixel intensities in the bin  $B_i$ .  $k$  is generally chosen between 3 and 5 [80]. We chose here, as proposed in references [65], [146],  $k = 4$  for the finest resolution of the wavelet transform and  $k = 3$  for all other resolutions.

The noise level  $\sigma_{jl}^{B_i}$  in the subband  $(j, l)$  for an intensity bin  $B_i$  is equal to  $\widetilde{\sigma}_{jl}\sigma^{B_i}$ ; where  $\sigma^{B_i}$  is the noise level of images for pixels in the intensity bin  $B_i$  and  $\widetilde{\sigma}_{jl}$  are calibration coefficients to adapt the noise level to every subband of the UWT. In practice, the noise level  $\sigma^{B_i}$  of projections is determined with the Median Absolute Deviation (MAD) of the diagonal subband of the finest scale of the UWT  $\mathcal{W}_1^{D B_i}$ , equation (3), as proposed by Donoho and Johnstone [79]. This is justified by the fact that the finest scale of the UWT is primarily composed of noise. Equation (3) is justified because for a normal distribution  $\mathcal{N}$ , the standard deviation is equal to  $1.4826 \cdot MAD(\mathcal{N})$ . By definition, white Gaussian noise follows a normal distribution. The central limit theorem states that a Poisson distribution is well approximated by a normal distribution whose standard deviation is the square root of the mean number of occurrences. The mean number of occurrences means the true signal, *i.e* the signal without noise.

$$\begin{aligned} \sigma^{B_i} &= 1.4826 \cdot MAD(\mathcal{W}_1^{D B_i}) \\ MAD(\mathbf{X}) &= \text{median}(|\mathbf{X} - \text{median}(\mathbf{X})|) \end{aligned} \quad (3)$$

Calibration coefficients  $\widetilde{\sigma}_{jl}$  of subbands  $(j, l)$  are calculated once because they only depend on the kind of wavelet used. The UWT of a Dirac image is realized and calibration coefficients  $\widetilde{\sigma}_{jl}$  are defined as the  $L2$  norm of each subband [65].



After hard thresholding on the wavelet transform, reconstruction of the first denoised image is generated by summing all subbands and final smoothed images. The use of different pixel intensity bins gives the link between the noise and the signal intensity. As explained before, the Poisson distribution can be well-approximated – for number of occurrences bigger than twenty – as a normal distribution whose standard deviation is the square root of the mean number of occurrences. In practice, it's not the true signal values that are used to make bins but intensity of pixels corrupted with noise, as a result a bias in the estimation of the noise level can be observed, Figure 49. To overcome this issue, two consecutive hard thresholding schemes are made. A first noise evaluation with a corresponding hard thresholding scheme is done using bins made with the pixel intensities of the original images as explained before. A second noise evaluation is realized with the UWT of original images but with bins made using the pixel intensities of the denoised images. Because pixels of denoised images are closer to the true signal than pixels of the original images, bins are made with a better approximation of the mean value. A square root approximation of the standard deviation of the noise of the form  $\sigma_{MPG} = \sqrt{I_{denoised}/g_0 + \sigma^2}$  is realized, Figure 49. In this equation MPG stands for Mixed Poisson-Gaussian noise,  $\sigma$  represents the standard deviation of the additive white Gaussian noise and  $g_0$  represents the detector gain of images. Finally, hard thresholding is performed on the UWT of the original images, with a pixel dependent threshold  $k\sigma_{MPG}$  using the values of the corresponding pixels of the first denoised images to evaluate  $\sigma_{MPG}$ . The final denoised images are obtained with the sum of all the subbands and the final smoothed images of this second hard thresholding scheme.

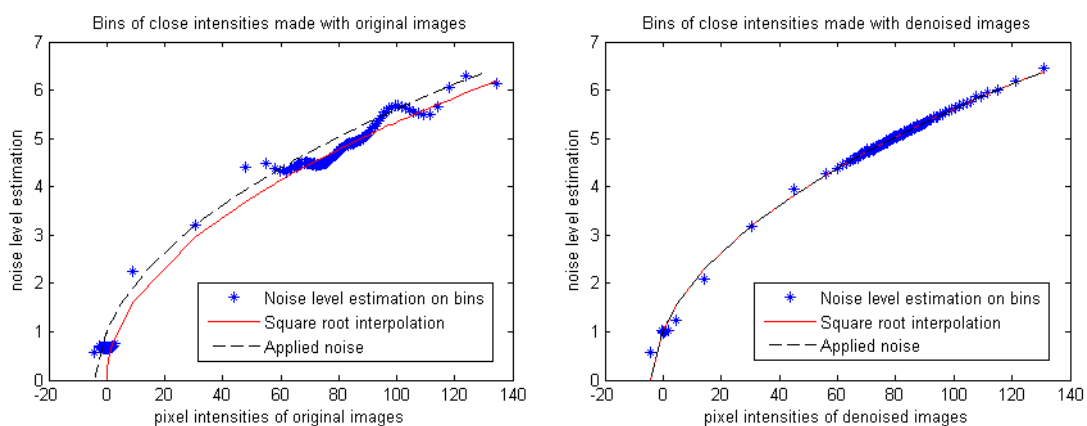


Figure 49 : Estimation of the noise level using bins of pixels intensity in the case of the phantom simulations, paragraph II.3. On the left, the estimation of the noise level using bins made from the pixel intensities of the original noisy images. On the right, the estimation of the noise level using bins made from the 1<sup>st</sup> denoised images. The bias of the first estimation is absent from the second estimation and the parameters of the mixed Poisson-Gaussian noise applied are found with excellent accuracy.

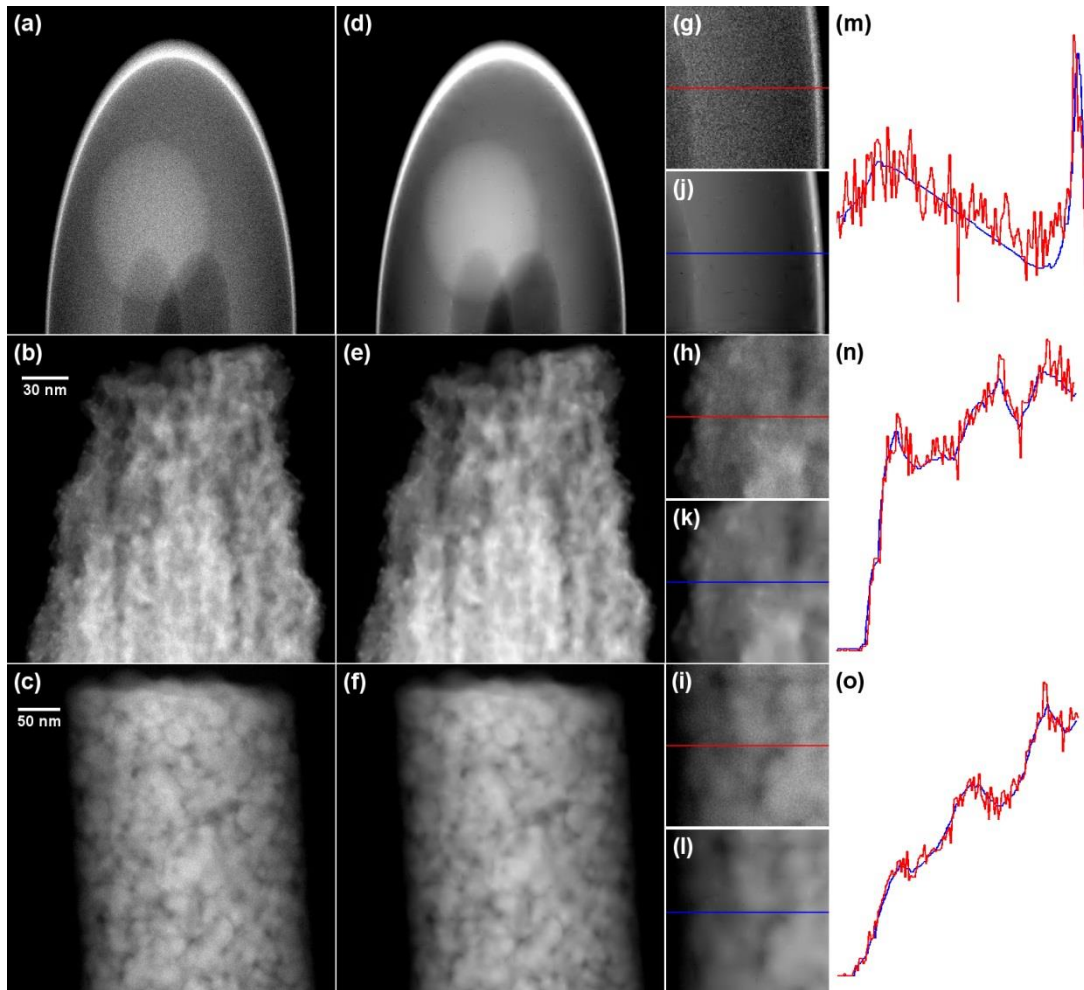


Figure 50: Results of the denoising process. From top to bottom, a projection of the simulated phantom, a projection of the porous silicon sample and a projection of the agglomerated nanoparticles sample. (a,b,c) a noisy projection, (d,e,f) the equivalent denoised projection, (g,h,i) a zoom in a part of the noisy projection, (j,k,l) the equivalent part of the denoised projection, (m,n,o) arbitrary unit profiles in the middle of the zooms for the noisy (red) and denoised (blue) projections.

### Projection alignment

A first rough alignment is made with a combination of cross-correlations between neighboring projections and determination of the centroid of the projections. Cross-correlations are used to align the projections in the direction of the tilt axis (z-axis). Subpixel accuracy can be obtained between neighboring projections but accumulation of errors can lead to a misalignment of many pixels between the first and last projections. Centroids of the projections are used to align the projections in the x-axis, which is particularly efficient for needle-shaped samples under linear acquisition.

A more precise alignment is then made using both the common line [147] and intermediate reconstructions [148], [149]. Directly applying the projection-slice theorem, the common line is used for the projection alignment in the direction of the tilt axis. It uses the fact that the 1D projections – in the direction perpendicular to the tilt axis – of all 2D measured projections are equal, Figure 51. A 1D cross-correlation is used to determine the z-misalignment of every measured projection. To reduce

the noise level, improve the robustness of this alignment and get rid of accumulation of errors, the 1D cross-correlation is realized between the profile of the measured projection to align and the mean of the profiles of all other projections. Each projection is iterated upon until all the z-misalignments determined for each projection are smaller than one-tenth of a pixel.

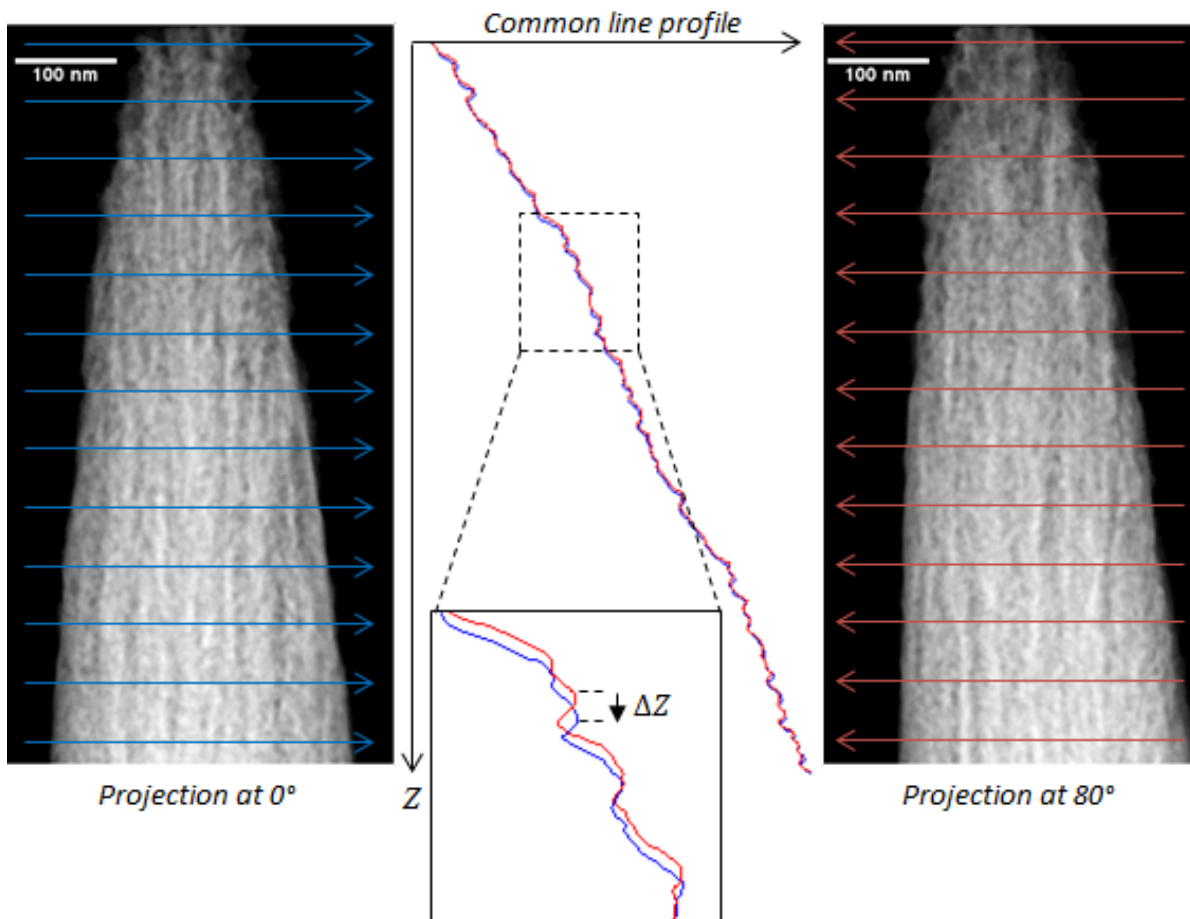


Figure 51 : Representation of the fine alignment along z-axis using the common line with a porous silicon sample. The profile of the projection at  $0^\circ$  is similar to the profile of the projection at  $80^\circ$  but with a shift of  $\Delta z$ . The shift is determined for each projection by a 1D cross-correlation between its profile and the mean of the profiles of all other projections for robustness.

After the shift correction in the z-direction, intermediate reconstructions are used to get a precise alignment in the direction perpendicular to the tilt axis. Five lines across the middle of the projections are used; a binning of two is made to speed up the calculations. Restricting the intermediate reconstructions to only a few slices is possible because a fine shift alignment is already done in the direction of the tilt axis using the common line. Reconstructing a small number of slices makes possible the use of an efficient algorithm such as SIRT, greatly improving the quality of the reconstruction compared to a weighted back projection, and thus the quality of the reprojections. High quality ensures a precise and more reliable projection alignment. In practice, a SIRT reconstruction with positivity constraints of 100 iterations of the selected slices is used. Reprojections of this intermediate

reconstruction are constructed and cross-correlated with the original projections for fine x-axis alignment. This process is iterated until shift corrections are smaller than one tenth of a pixel.

After fine shift alignment, tilt axis is determined using intermediate 2D reconstructed slices located at seven z-positions, see Figure 53. For each of the seven z-positions, a common shift to all the projections is computed following the pseudo-code in Figure 52. The tilt axis is then determined by linear approximation of the seven common shifts; see Figure 52 and Figure 53. The projections are shifted and rotated to get a vertical tilt axis in the center of the projections. Finally, fine shift alignments in z and x are refined with the precisely determined tilt axis.

**Task: Determine the tilt axis misalignment**

**Inputs** = (proj, N, z) where *proj* is the matrix containing the aligned projections; **N** is the number of projections and **z** is the vector containing the 7 z-positions

**Outputs** = ( $\alpha$ ,  $x_0$ , *projA*) where  $\alpha$  is the tilt axis misalignment angle;  $x_0$  is the shift of the tilt axis and *projA* is the matrix containing the shifted and rotated projections such that the tilt axis is vertical and centered

<pre> Initialize the common shifts <math>\Delta x</math> for the 7 positions: <math>\Delta x(i) \leftarrow 0</math> for <math>i = 1</math> to 7 For <math>i = 1</math> to 7   Initialize <math>p \leftarrow</math> <i>proj</i> restricted to 5 lines around <math>z(i)</math>   <math>S \leftarrow +\infty</math>   While <math> S  &gt; 0.1</math> pixel     <math>rec \leftarrow</math> SIRT100(<math>p</math>)     <math>reproj \leftarrow</math> reproject (<math>rec</math>)     For <math>\theta = 1</math> to <math>N</math>       <math>\sigma(\theta) \leftarrow</math> calculateShift (<math>p</math>, <math>reproj</math>, <math>\theta</math>)     end     <math>S \leftarrow \frac{1}{2}(\min(\sigma) + \max(\sigma))</math>     <math>\Delta x(i) \leftarrow \Delta x(i) + S</math>     <math>p =</math> shiftProjections (<math>p</math>, <math>S</math>)   end end Compute (<math>\alpha</math>, <math>x_0</math>) such that <math>\min \ \Delta x - \tan(\alpha) \cdot z - x_0\ _2^2</math> <math>projA \leftarrow</math> shiftProjections (<math>proj</math>, <math>-x_0</math>) <math>projA \leftarrow</math> rotateProjections (<math>projA</math>, <math>-\alpha</math>) </pre>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- <b>SIRT100 (p)</b> Performs a 100 iterations SIRT with positivity constraints from the projections p</li> <li>- <b>reproject (r)</b> Performs the projection of the volume r</li> <li>- <b>calculateShift (p1, p2, <math>\theta</math>)</b> determine the x-shift between the image number <math>\theta</math> in stack p1 and stack p2 by cross-correlation</li> <li>- <b>shiftProjections (p, S)</b> Shift each image in stack p in x-direction of S pixels</li> <li>- <b>rotateProjections (p, <math>\alpha</math>)</b> Rotate each image in stack p of an angle <math>\alpha</math> using the image center as the rotation center</li> </ul>
--	---

Figure 52 : Pseudo-code for determination of tilt axis misalignment

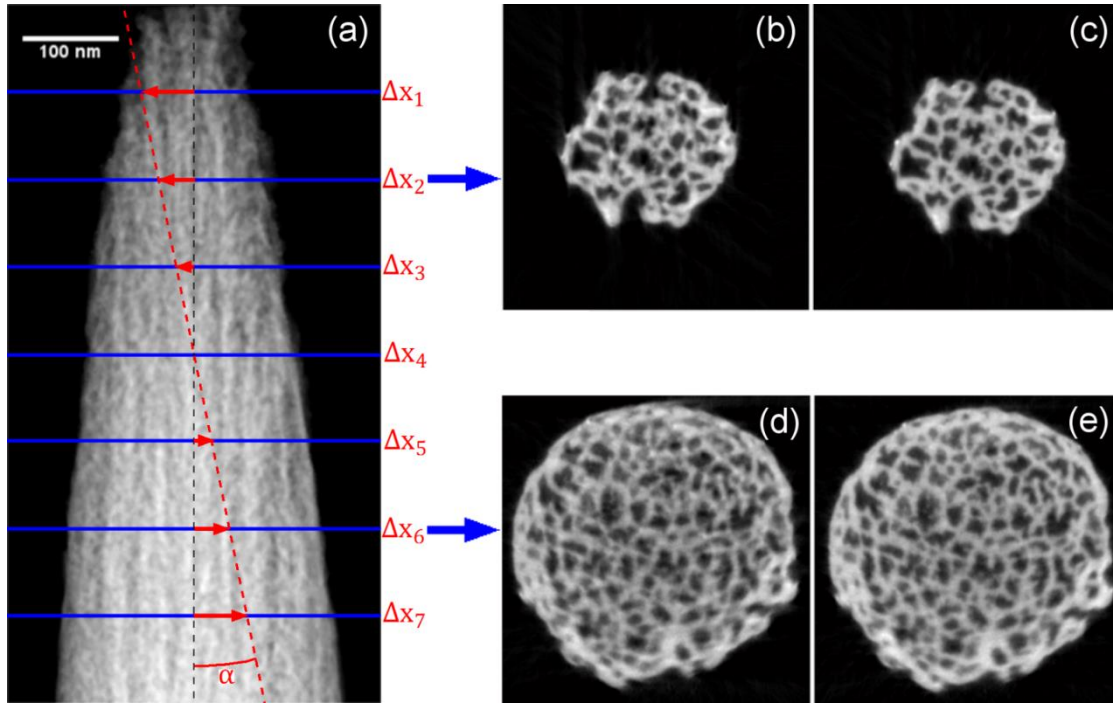


Figure 53 : Determination of the tilt axis using intermediate reconstructions of slices located at seven equidistant locations of the projections. (a) A projection of the porous silicon sample. The determined tilt axis, in red in the figure, has been exaggerated on the diagram for a better representation of the method. (b) Reconstruction of the slice at one quarter of the projection before and (c) after the determination of the common shift  $\Delta x_2$ . (d) Reconstruction of the slice at three quarters of the projection before and (e) after the determination of the common shift  $\Delta x_6$ . The angle  $\alpha$  is determined with a linear interpolation of the seven common shifts.

### SIRT with line search and positivity constraints

SIRT with positivity constraints is an algebraic reconstruction starting with  $\mathbf{f}^{(k)} = \mathbf{0}$ . An update is made at each iteration  $k$ , following equation (2). For each iteration,  $k$ , any negatively valued voxel in the intermediate reconstruction,  $\mathbf{f}^{(k)}$ , is forced to zero [129].

The relaxation parameter  $\lambda^{(k)}$  of the SIRT is determined with a line search method [95] in order to accelerate the convergence of the algorithm and minimize subjective user choice. A line search method means that the relaxation parameter is chosen at each iteration  $k$  by solving formula (4). In other words the coefficient  $\lambda^{(k)}$  is the one that minimizes the next residual error.

$$\lambda^{(k)} = \lambda \quad \text{such that} \quad \min_{\lambda} \left\| \mathbb{A}(\mathbf{f}^{(k)} - \lambda \mathbb{A}^t(\mathbb{A} \cdot \mathbf{f}^{(k)} - \mathbf{p})) - \mathbf{p} \right\|_2 \quad (4)$$

$$\min_{\lambda} \left\| \mathbb{A} \mathbf{f}^{(k+1)} - \mathbf{p} \right\|_2$$

Notice that linearity should be used for obvious gain in calculation simplicity. The function to minimize can thus be  $\left\| -\lambda \mathbb{A}^t \mathbb{A}(\mathbf{f}^{(k)} - \mathbf{p}) + \mathbf{f}^{(k)} - \mathbf{p} \right\|_2$ , which means that it's not necessary to apply  $\mathbb{A}$  every time the norm is evaluated.

### ***Implementation***

The procedure presented here aims toward achieving a parameter-less reconstruction that self-adapts to noise. A remaining parameter is the number of iterations of the SIRT. We propose that SIRT reconstructions are always based on 100 iterations, this choice is justified in the discussion part.

The algorithm is implemented on Matlab® ; UWT is made with an “à trous” algorithm as proposed in reference [57]. Projections and back-projections, respectively multiplication by  $\mathbb{A}$  and  ${}^t\mathbb{A}$  are realized on the whole volume with the Astra Toolbox using the GPU to decrease processing time [150]. Sub-volumes can be taken if the size of the volume is too big for the available GPU memory. The line search to find the best local relaxation parameter  $\lambda^{(k)}$  is made with the Matlab® function *fminsearch* which uses a Nelder-Mead simplex method.

## **III. 1. d. Results**

### ***III. 1. d. (i) Simulations on the 3D elongated Shepp – Logan phantom***

The denoising efficiency can be analyzed quantitatively with the phantom simulations since we have the original projections simulated without noise as well as the noise parameters. The denoising technique proposed evaluates the noise parameters with excellent accuracy as  $g_0$  is calculated with a relative error of  $3.3 \times 10^{-5}$  and  $\sigma$  with a relative error of  $2.3 \times 10^{-3}$ . Figure 54 shows the profiles of the middle line of the projection presented in Figure 50 for the original projection (without noise), the noisy projection and the denoised projection. The advantage of the denoising technique to fit the reality with a higher accuracy seems evident on these profiles. We proceeded to calculate the Root Mean Square Error (RMSE), Equation (5), to obtain a quantitative analysis of the denoising technique accuracy. Compared to the original projections, the noisy projections have a RMSE of 3.75 while the denoised projections have a RMSE of 0.81. Projection accuracy is thus 4½ times better with denoising.

$$RMSE(x, y) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - y_i)^2}{n}} \quad (5)$$

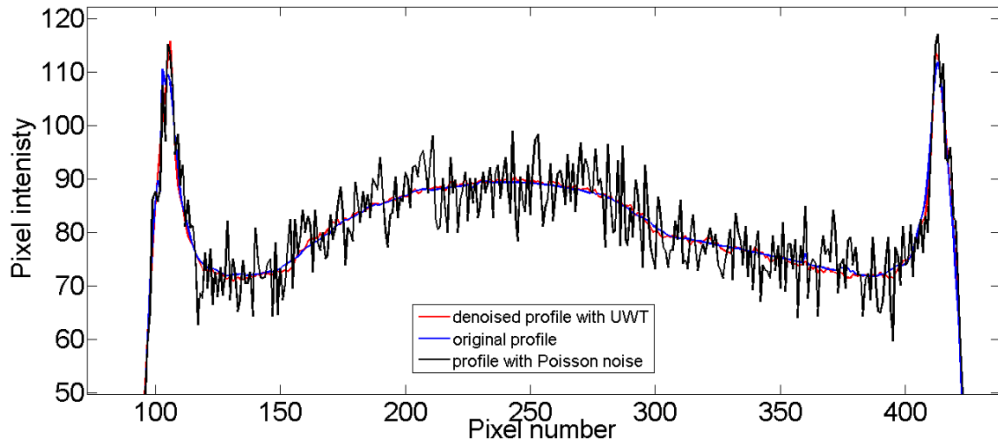


Figure 54 : Profiles in the middle of the phantom projection presented in Figure 50. The blue, black and red profiles correspond respectively to the original projection without noise, to the projection with mixed Poisson-Gaussian noise and to the denoised projection.

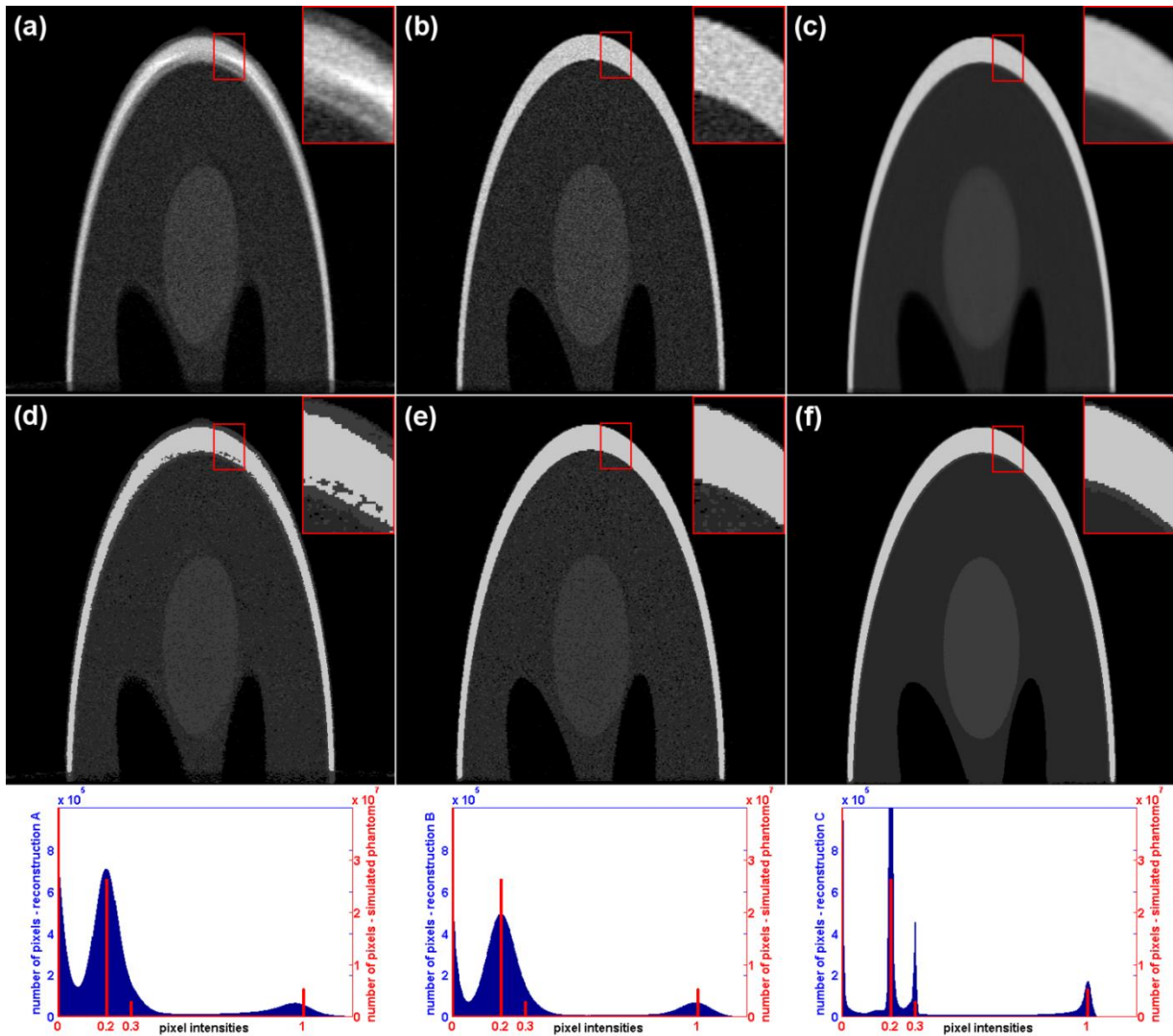


Figure 55 : Comparison of the three reconstructions of the simulated phantom. (a-b-c) represent respectively a slice of the reconstructions A (cross-correlation-based alignment), B (proposed alignment) and C (proposed alignment and projection denoising). (d-e-f) represent the results of a multi-threshold segmentation for the reconstructions A, B and C respectively. Grey level histograms of all the voxels of each reconstruction are represented for reconstructions A, B and C from left to right.

Reconstruction C is visually the best and its histogram is closer to the histogram of the original phantom, Figure 55. Noise can be seen in reconstruction A and B but reconstruction C is noiseless thanks to projection denoising. A near edge artefact can be seen in the zoom in Figure 55 (a). It is due to the misalignment of the projections of procedure A.

Segmentations of the three reconstructions are obtained with multi-thresholding, Figure 55 (d-e-f). Threshold values are the same for the three reconstructions [0.1; 0.25; 0.65]; they are determined as the average of two consecutive grey levels of the original phantom. Well-separated modes in the histogram of reconstruction C lead to accurate segmentation, Figure 55. On the other hand, modes 0.2 and 0.3 are undistinguishable in histograms of reconstructions A and B resulting in numerous segmentation errors for these grey levels. The brightest part of the phantom, corresponding to grey level 1, is well-segmented with procedure B thanks to sufficiently high contrast and better signal to noise ratio, but misalignment artefacts are still visible in segmentation A even for the brightest part, see zoom Figure 55 (d).

Not only does reconstruction C appear to be much better than the other two reconstructions, but it seems possible to distinguish grey levels with smaller contrast since the resultant histogram of procedure C shows very narrow peaks. Good segmentation could thus be possible with the procedure C even with a smaller gap between the grey levels 0.2 and 0.3.

### ***III. 1. d. (ii) Porous silicon reconstructions***

Three reconstructions A, B and C of the porous silicon sample are made using the procedures of Table 1. A projection with and without denoising can be seen in Figure 50. Axial and sagittal slices of reconstructions A, B and C are visible in Figure 56. Reconstruction A presents a lot of reconstruction artefacts such as residual grey levels outside the porous silicon sample or inconstant grey level within the porous silicon. Reconstructions B and C are fairly similar but it can be seen in the zoom in Figure 56 that reconstruction C presents less noise than reconstruction B. Segmentation is done with a simple thresholding using an Otsu method [61] to determine the value of the threshold, Figure 57. Segmentations B and C are similar but there are single-pixel segmentation artefacts due to noise on segmentation B that are absent from segmentation C. Segmentation A is found to be of much lower quality.



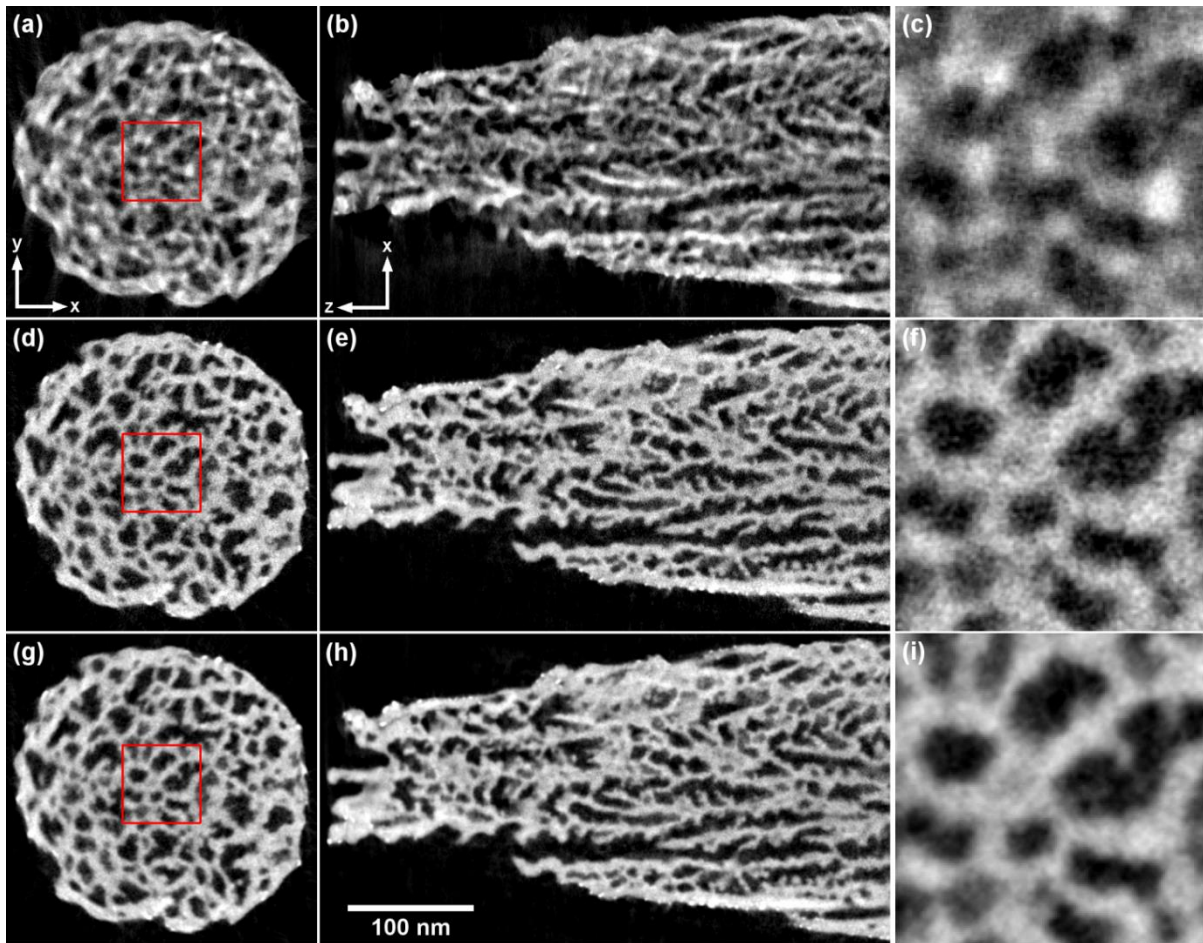


Figure 56 : Reconstructions of the porous silicon. (a,b,c) Represent respectively an axial slice, a sagittal slice and a zoom in the axial slice of reconstruction A. (d,e,f) Represent the same parts of reconstruction B and (g,h,i) represent the same parts of reconstruction C. The biggest differences are between reconstruction A and the others.

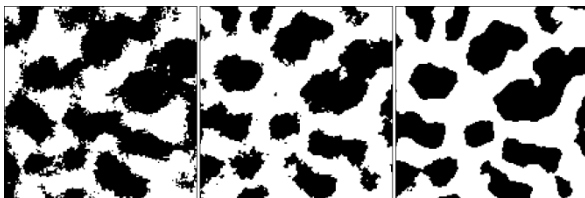


Figure 57 : Segmentations of the zooms of Figure 9 of reconstructions of the porous silicon sample. From left to right, segmentations of reconstructions A, B and C.

Quantitative analysis has been done on segmentations A, B and C to get the porous ratio and the mean and median equivalent diameter of the pores. Equivalent diameter is the length of the diameter of a circle of the same area. Every pore is separated for every axial slice of the 3D segmentation with the Matlab® function *regionprops*. All the pores of all the slices are used to calculate the equivalent diameters.

	Porous ratio	Mean equivalent diameter (nm)	Median equivalent diameter (nm)
<b>Segmentation A</b>	0.24	4.6	0.7
<b>Segmentation B</b>	0.41	8.4	0.9
<b>Segmentation C</b>	0.40	12.7	9.4

Table 2: Quantitative analysis for the three reconstructions of the porous silicon sample.

As can be seen in Table 2, segmentation A gives completely different quantitative results than segmentations B and C. The porous ratios determined with segmentations B and C are equivalent but the median equivalent diameters differ by one order of magnitude. This is due to thresholding errors in segmentation B that are incorrectly interpreted as small pores.

Finally, reconstruction C is the only one that can lead to quantitative analysis directly after simple thresholding. Reconstruction B could give similar results than those obtained with reconstruction C if a more complex segmentation process is used. Particularly, corrections using morphological operators such as opening and closing on the segmented volume [63] are necessary to get a good evaluation of the median equivalent diameters. As can be seen both on the reconstructions and the segmentations, reconstruction A is too dissimilar to give similar quantitative results.

### ***III. 1. d. (iii) Agglomerated silver nanoparticle reconstructions***

As before, three reconstructions A, B and C (Table 1) are made for the agglomerated silver nanoparticles. A part of a projection with and without denoising is visible in Figure 50 and slices of the three reconstructions are visible in Figure 58. As for the porous silicon sample, huge differences exist between reconstruction A and the other two. The axial slice of reconstruction A presents a lot of misalignment artefacts, and particularly “banana-shaped” artefacts that are due to a progressive shift of many pixels between the first and the last projection. Reconstructions B and C present fewer differences but projection denoising gives a smoother reconstruction C. This smoothing effect is achieved without resolution loss. Indeed sharp transitions between silver nanoparticles and voids on reconstruction B stay just as sharp on reconstruction C as can be seen in the zoom of the sagittal slice in Figure 58.

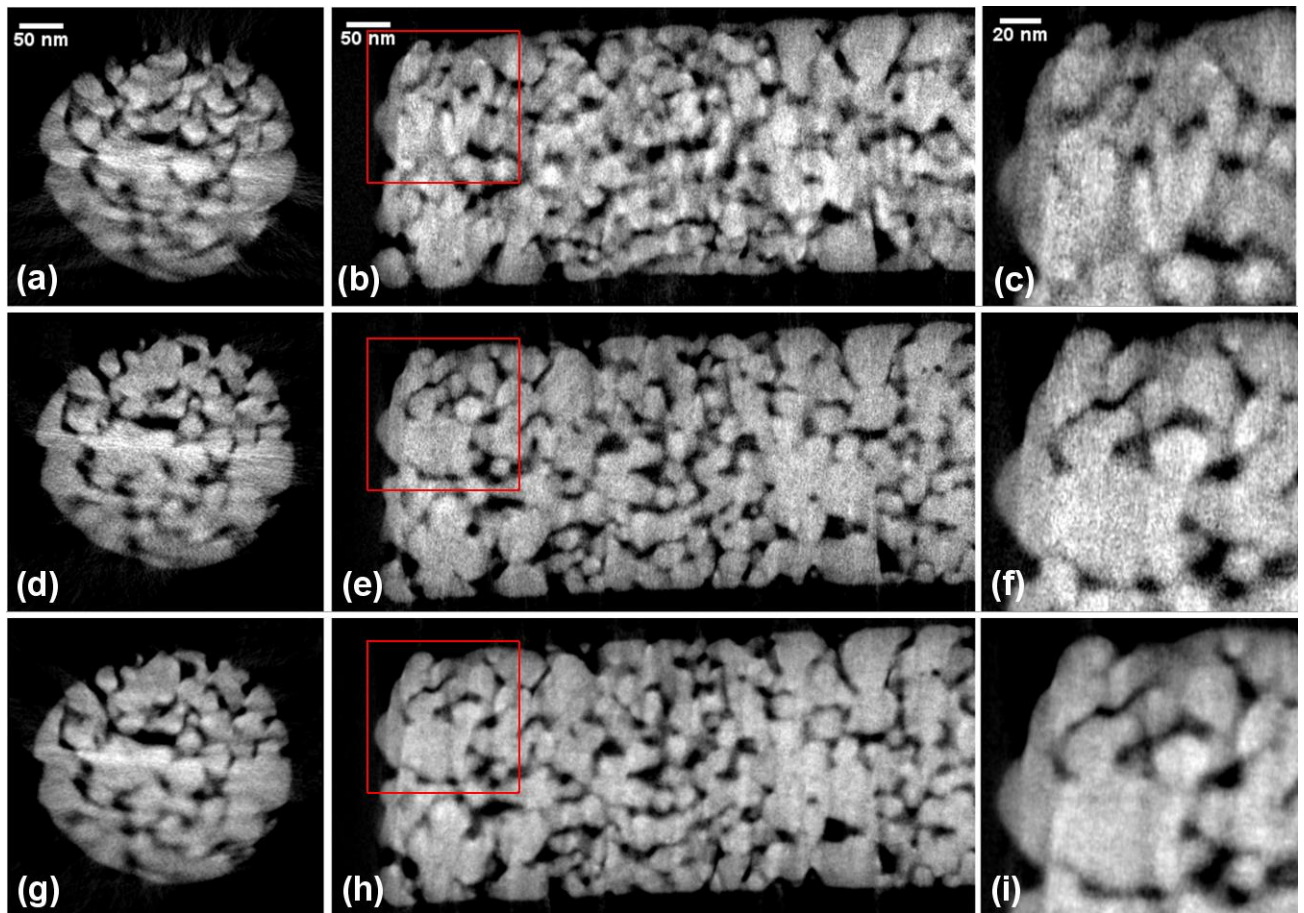


Figure 58 : Reconstructions of the agglomerated silver nanoparticles sample. (a,b,c) Represent respectively an axial slice, a sagittal slice and a zoom in the sagittal slice of reconstruction A. (d,e,f) Represent the same parts of reconstruction B and (g,h,i) represent the same parts of reconstruction C.

### III. 1. e. Discussion

The procedure presented here aims towards achieving a parameter-less reconstruction that self-adapts to noise. Still, the number of SIRT iterations is a remaining parameter that is usually crucial with noisy projections. During a SIRT, the correspondence between the measured projections and the reconstruction is increased at each iteration. Therefore, with noisy projections, the noise is progressively transferred to the reconstruction. As a result, a compromise between quality and signal-to-noise ratio of the reconstruction has to be found and the number of iterations is often limited to about 30 [109], [128]. With our approach, thanks to denoising, it is observed that increasing the number of iterations does not introduce noise on the reconstruction but only improves the image quality. Moreover, the line-search accelerates the convergence of the algorithm and after 50 iterations any improvements are no longer perceptible, although a standard of 100 iterations is proposed here

as a safety measure and further elimination of user input. This has been found to be a good compromise between image quality and speed.

The procedure of denoising, alignment and reconstruction proposed here aims to improve the reconstruction quality with minimal prior knowledge of the sample. User-defined parameters present in regularization algorithms such as CS or DT can produce completely different results from the same dataset. For this reason, our algorithm aims to eliminate sources of user-dependency. An additional benefit to this is time efficiency for the operator as they are no longer forced to carry out manual trial and error iterations. Nevertheless, the method proposed here is not suitable for any sample since SIRT has been proven less effective than CS or DT in the case of missing wedge or few projections [104], [109]. CS and DT should therefore remain better with specimens that cannot be fashioned into needle-shaped samples due to missing wedge as well as with beam-sensitive samples, e.g in biology, because of the limited number of projections available.

To our knowledge, previous use of wavelet denoising in ET has only been carried out on 3D reconstructed volumes [151]. Here we propose 2D denoising of the projections for the following reasons: (i) noisy projections can lead to instability during reconstruction and (ii) as demonstrated in this paper, it's relatively easy to model the Poisson-Gaussian noise of 2D STEM projections while the noise modelling of a 3D reconstruction is more complex. Projection denoising in ET has already been carried out [152]. It uses anisotropic diffusion filters with user-defined parameters. Our UWT approach results in automatic noise parameters estimation for minimal signal loss and minimal user intervention.

A robust marker-free alignment method in ET was recently proposed [149]. It uses similar intermediate reconstructions to iteratively refine the alignment. For that purpose a search algorithm maximizes the contrast in the reconstruction. At medium resolution, it has been proven competitive with fiducial marker alignment. A big advantage of this method is that it does not depend on user assisted motif recognition. However the search algorithm needs many parameters such as a limited search grid for the displacement. We tried to go further on the way of user-independency of the alignment process by removing those parameters. Method [149] exploits intrinsic object features and preferably sharp edges of high contrast as a prior knowledge. Since the complete methodology we propose is meant to use very limited prior knowledge on the object to reconstruct, method [149] is not adapted. However, if one wants to make a TVM based reconstruction, prior knowledge of the object is already necessary for the reconstruction algorithm and the alignment process [149] is therefore well adapted.

### III. 1. f. Conclusions

The robustness of the procedure has been tested on simulations and two sets of real data of needle-shaped inorganic samples. It adapts well to various data even across a high range of noise ratios. Not only does it improve visually the quality of the reconstruction but it also simplifies the segmentation step. Simulations showed that the denoising step can make the peaks of the histogram narrower leading to a possibility to distinguish elements with reduced contrast. In the case of reconstructions that need to be segmented to extract information of interest, projection denoising can be extremely useful. By improving the quality of the reconstruction the segmentation step is simplified and can finally lead to a better quantitative analysis and a gain in time compared to a SIRT without projection denoising which is harder to segment.

## 2) Le logiciel

L'intérêt majeur de la technique présentée dans l'article [126] est sa rapidité et sa bonne qualité de reconstruction pour une faible intervention de l'utilisateur. Le logiciel GUIDAR a été développé au cours de cette thèse pour réaliser facilement les différentes étapes décrites dans l'article [126]. Le nom de GUIDAR signifie "*Graphical User Interface for Denoising Alignment and Reconstruction*". Ce logiciel est même plus complet que ce qui est décrit dans l'article [126] puisqu'il incorpore également l'alignement non-rigide [153], décrit dans le chapitre suivant, une autre technique de débruitage basée sur le filtrage non-local [82] et une reconstruction analytique rapide (FBP).

Il est ainsi possible en quelques minutes, alors que l'échantillon est toujours dans le microscope de réaliser une reconstruction du volume. Certains logiciels commerciaux requièrent souvent beaucoup plus de temps sans produire des reconstructions d'aussi bonne qualité. À plusieurs reprises au cours de cette thèse des reconstructions ont été faites à l'aide de GUIDAR alors que l'échantillon était toujours dans le microscope. Cela permet par exemple de faire une acquisition avec peu de projections, de tester une reconstruction et si besoin d'acquérir plus de projections pour augmenter la résolution de la reconstruction en fonction de ce qui est recherché.

L'implémentation de GUIDAR a été faite sous Matlab. Un exécutable est généré de façon à pouvoir utiliser GUIDAR sans licence Matlab. Une capture d'écran de GUIDAR est visible ci-dessous et le guide d'utilisateur est disponible en annexes.

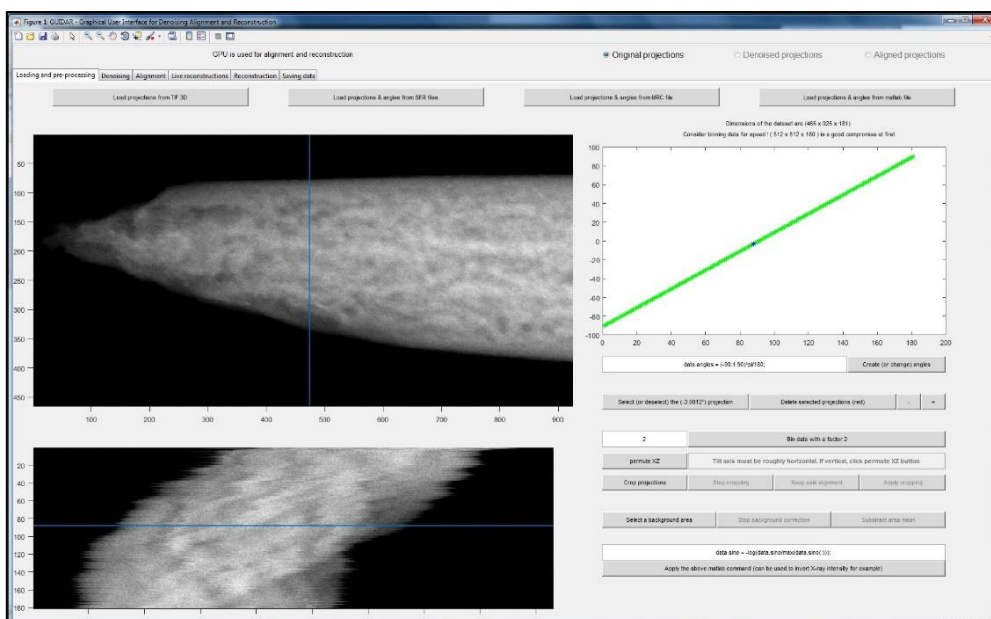


Figure 59 : Capture d'écran du logiciel GUIDAR



## ***Chapitre IV***

# ***ÉLARGISSEMENT DE LA TECHNIQUE***

### ***Contenu du chapitre IV***

La 1<sup>ère</sup> partie de ce chapitre commence par présenter de façon critique une façon de déterminer la résolution en tomographie électronique. Une comparaison des impacts de l'algorithme choisi sur la reconstruction obtenue dans le cas de simulations y est faite.

La 2<sup>ème</sup> partie de ce chapitre, propose différentes techniques pour étendre la tomographie électronique à des échantillons épais. L'épaisseur des échantillons peut en effet être limitante au niveau du contraste et de la résolution des projections 2D. Des solutions à ces deux problèmes sont proposées.

La 3<sup>ème</sup> partie de ce chapitre propose une technique d'alignement non-rigide des projections permettant de s'adapter aux échantillons présentant une faible tenue sous le faisceau électronique.







## 1) Estimation et amélioration de la résolution

### IV. 1. a. Estimation de la résolution

#### IV. 1. a. (i) *Utilisation de la corrélation des enveloppes de Fourier (FSC)*

Nous avons déjà parlé du critère de Crowther qui lie résolution de la reconstruction et nombre de projections acquises. Ce critère suppose une acquisition parfaite, sans bruit et sans désalignement des projections, ce qui n'est pas le cas en pratique. De plus ce critère n'est valable que pour une reconstruction analytique sans imposer de connaissances préalables sur l'objet. Une évaluation de la résolution d'une reconstruction est donc nécessaire pour avoir un critère plus pertinent.

L'idée de la corrélation des enveloppes de Fourier (FSC pour "*Fourier Shell Correlation*") [154] est d'utiliser 2 volumes et de mesurer la corrélation entre ces 2 volumes pour différentes fréquences. La fréquence à partir de laquelle la corrélation chute sert alors de critère de résolution. Ce principe est schématisé sur la Figure 60. Les valeurs de corrélation sont déterminées à partir de l'équation (29).

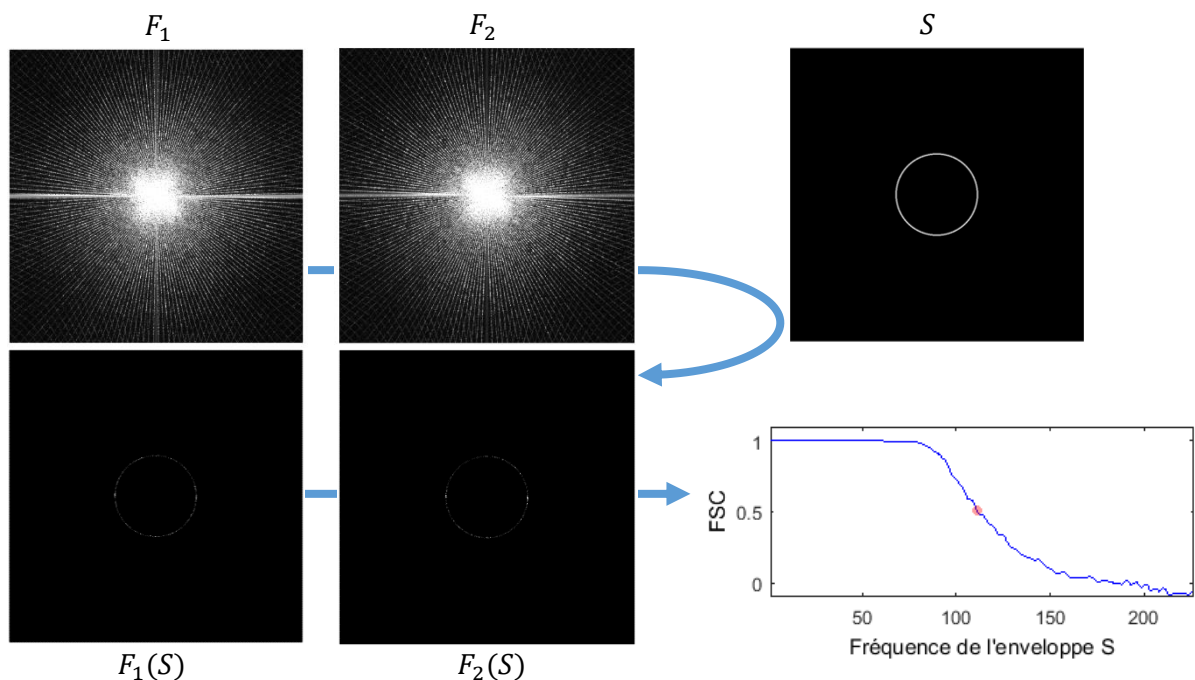


Figure 60 : Exemple d'application de la FSC.  $F_1$  et  $F_2$  représentent les transformées de Fourier de 2 reconstructions  $f_1$  et  $f_2$  supposées indépendantes. Par souci de simplification de la représentation, nous avons illustré le cas 2D pour lequel l'enveloppe  $S$  est un cercle. Le calcul de la FSC se fait en utilisant les spectres  $F_1(S)$  et  $F_2(S)$  restreints à l'enveloppe  $S$ . Déterminer la corrélation pour toutes les fréquences d'enveloppe permet d'obtenir le graphe en bas à droite. Le cas 3D est identique en utilisant une sphère pour enveloppe.

$$FSC_{F_1|F_2}(S) = \frac{\sum_{R \in S} \text{Re}\{F_1(R) F_2^*(R)\}}{\sqrt{\sum_{R \in S} |F_1(R)|^2 \sum_{R \in S} |F_2(R)|^2}} \quad (29)$$

$S$  représente l'enveloppe dans l'espace de Fourier correspondant à une fréquence donnée, cf. Figure 60.

Idéalement, dans le cas de simulations par exemple, il faut utiliser le fantôme et la reconstruction dont la résolution est recherchée. En pratique, pour des données réelles, il est possible d'utiliser 2 reconstructions réalisées avec les projections paires pour l'une et les projections impaires pour l'autre [128]. Cela dans le but d'obtenir 2 reconstructions « indépendantes » et de réaliser la FSC sans avoir accès à l'objet réel.

Il est crucial d'utiliser des reconstructions indépendantes pour que le calcul de la FSC ait un sens. Prendre les projections paires d'un côté et impaires de l'autre semble être suffisant pour imposer cette indépendance puisque chaque projection est utilisée par une et seulement une des 2 reconstructions. Néanmoins, l'alignement est réalisé avec le jeu complet des projections. Les 2 jeux de projections ne sont donc pas indépendants puisque certaines erreurs d'alignement peuvent être communes aux deux. La FSC peut alors donner une corrélation importante entre les deux volumes pour des fréquences élevées qui est en fait une corrélation des artéfacts dus aux erreurs communes d'alignement. Si cela est vrai dans une trop grande mesure, l'emploi de la FSC pour estimer la résolution en tomographie électronique n'est alors pas justifiable. Des simulations ont été réalisées pour vérifier cela.

La résolution est déterminée à l'aide de la FSC en prenant la fréquence à partir de laquelle la corrélation descend en dessous de 0,5. Un fantôme 2D a été utilisé pour simuler des jeux de projections avec un pas angulaire constant et une étendue angulaire idéale de 180°. Les 2 reconstructions analytiques FBP utilisées pour le calcul de la FSC sont obtenues respectivement avec les projections paires et impaires. Les projections sont simulées sans bruit, et sans erreurs d'alignement pour le 1<sup>er</sup> cas. Les sinogrammes sont décalés de 10 pixels de façon à simuler une erreur dans la position de l'axe de rotation pour le second cas. Les résultats sont visibles sur la Figure 61. Les résolutions ainsi obtenues s'avèrent proches du critère de Crowther, mais elles restent identiquement proches pour les projections qui contiennent une erreur dans la détermination de l'axe de rotation. Les artéfacts dus à cette erreur d'alignement sont pourtant très nets et devraient ressortir dans le calcul de la résolution.

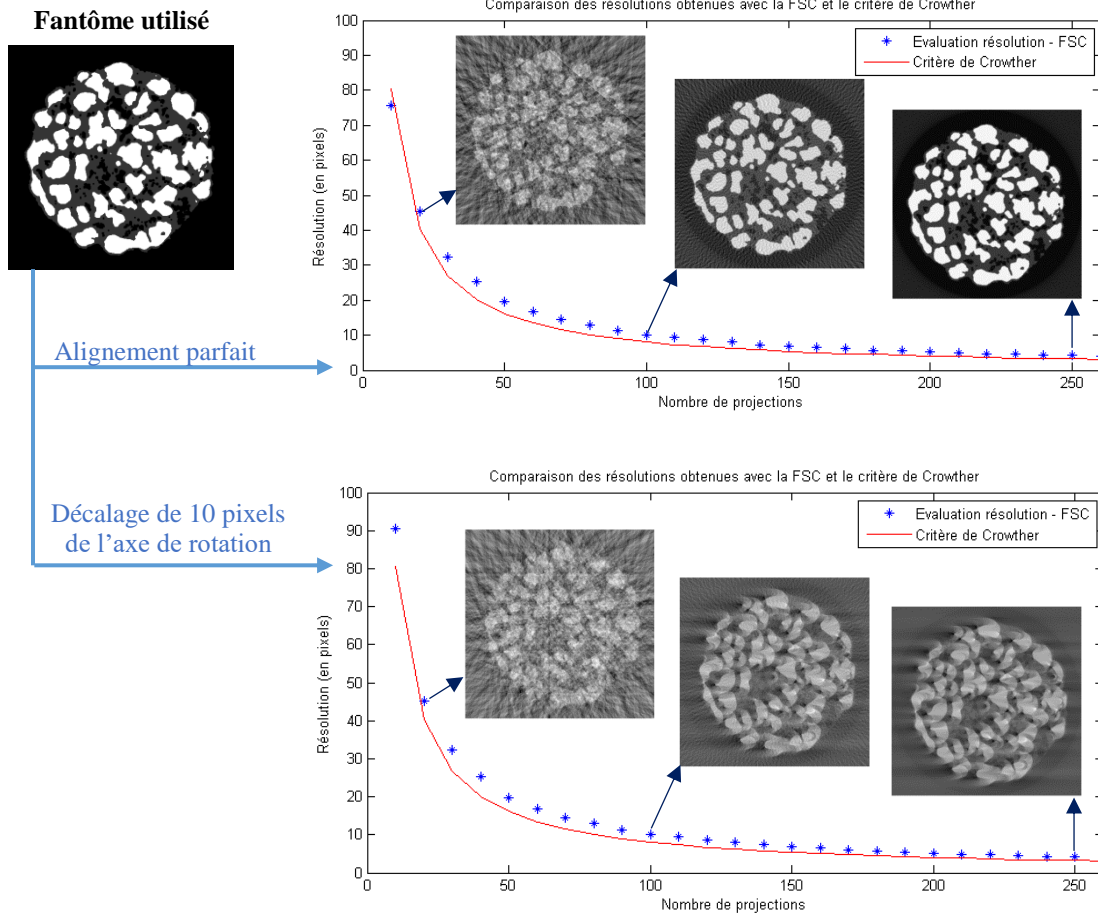


Figure 61 : Comparaison de la résolution obtenue par la méthode FSC et le critère de Crowther dans le cas d'un alignement parfait et dans le cas d'un alignement avec une erreur dans la position de l'axe de rotation de 10 pixels. On peut voir que les mesures de la résolution par FSC sont les mêmes alors que les artéfacts présents dans le 2<sup>nd</sup> cas sont très importants. Le nombre de projections indiqué est celui d'un seul jeu de projections. Le total des projections utilisées est donc le double. Trois reconstructions correspondant à 20, 100 et 250 projections sont représentées pour les 2 cas. Ces reconstructions mettent en avant des artéfacts importants dus à une erreur dans la position de l'axe de rotation de 10 pixels, qui ne sont pourtant pas mis en avant dans le calcul de la résolution par FSC.

L'évaluation de la résolution par la technique de FSC est donc délicate et ne peut être pertinente que si les données sont très bien alignées, sinon les volumes ne sont plus indépendants puisque des erreurs d'alignement sont communes aux 2 reconstructions. Il est possible d'aligner séparément les 2 jeux de données, mais une étape d'alignement des 2 volumes l'un par rapport à l'autre est alors nécessaire pour réaliser un calcul de FSC. Dans ce cas également, l'utilisation de la FSC est délicate pour déterminer la résolution puisque les résultats sont biaisés par l'imprécision de l'alignement 3D.

#### IV. 1. a. (ii) Utilisation d'un fantôme adapté

Puisque nous venons de montrer que l'utilisation de la FSC pouvait être fortement biaisée par des erreurs d'alignement par exemple, nous proposons un nouveau fantôme qui est composé d'un disque avec une rugosité de surface, percé de 12 trous circulaires de différentes tailles. Ce fantôme permet

d'évaluer la limite de détectabilité des reconstructions en simulations en cherchant quel est le diamètre minimal des trous bien reconstruits. Le fantôme que nous proposons est visible sur la Figure 62 suivante. Le script Matlab permettant de le créer est disponible en annexe. Il est possible de créer le fantôme 3D correspondant en réalisant une extrusion selon l'axe  $\vec{z}$  de la forme originale sans les trous et en remplaçant les trous circulaires par des trous sphériques situés au milieu de l'objet 3D. Ainsi le fantôme 2D est une vue en coupe au milieu du fantôme 3D.

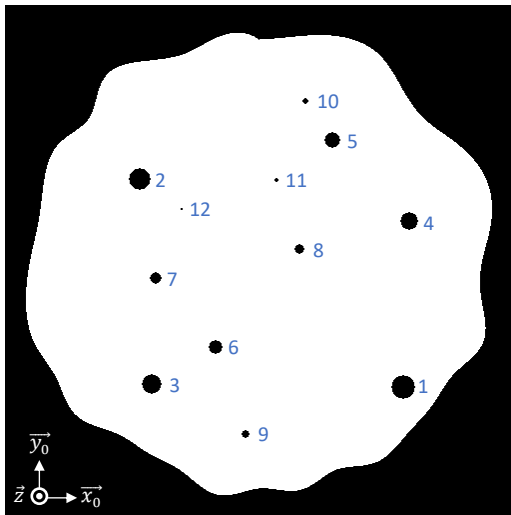


Figure 62 : Fantôme proposé. Ce fantôme est composé d'un disque, avec une rugosité de surface, percé de 12 trous de diamètres différents. Dans le cas présenté, le fantôme fait  $512 \times 512$  pixels et les trous ont des diamètres allant de 2 à 24 pixels avec un pas régulier de 2 pixels. Les trous sont ici numérotés dans l'ordre décroissant de diamètres.

## IV. 1. b. Impact des algorithmes sur la reconstruction

### I. 1. a. (i) *Algorithmes testés au cours de cette thèse*

Plusieurs algorithmes ont été testés au cours de cette thèse avec notamment les algorithmes FBP, SIRT, TVM et DART.

#### *Algorithmes FBP et SIRT*

Nous ne détaillons pas une nouvelle fois ces algorithmes qui ont déjà été présentés dans cette thèse dans les chapitre II et III.

#### *Algorithme de type TVM*

Les reconstructions basées sur la TVM ont été réalisées à l'aide de l'implémentation TVAL3<sup>4</sup> proposée par l'université Rice, Houston, Texas. Cette implémentation de TVM permet de fournir soit la matrice de projection  $\mathbb{A}$ , soit les fonctions de projection et rétroprojection correspondant à la

<sup>4</sup> TVAL3 est disponible à l'adresse <http://www.caam.rice.edu/~optimization/L1/TVAL3/>

multiplication par  $\mathbb{A}$  et  ${}^t\mathbb{A}$ . Nous avons utilisé les fonctions de projections et rétroprojections fournies par la boîte à outils ASTRA proposée par l'université d'Anvers en Belgique<sup>5</sup>.

Deux publications utilisant des reconstructions de type TVM ont été réalisées au cours de cette thèse. La 1<sup>ère</sup> est une publication dans le journal *Nature Communication* dans laquelle la TVM est utilisée pour améliorer la précision de mesure d'une couche nanométrique, [155], cf. Figure 63. La 2<sup>nde</sup> est un article publié dans *Journal of Microscopy* qui propose d'utiliser la TVM pour réduire le temps d'acquisition nécessaire pour la tomographie rayons-X dans un MEB [110], cf. Figure 64.

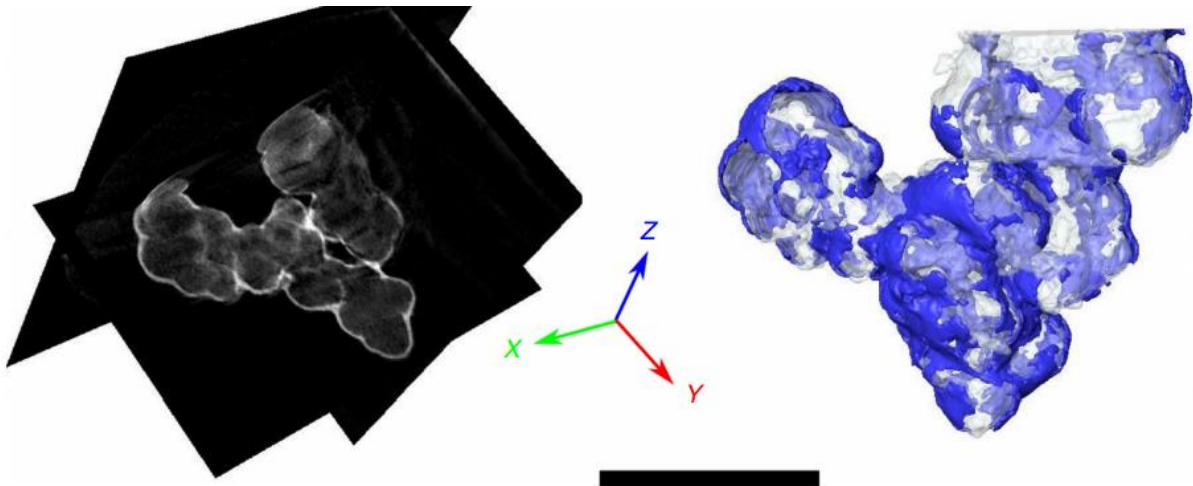


Figure 63 : Image extraite de la publication [155]. (À gauche) Triple vue en coupe du volume reconstruit à l'aide d'un algorithme de type TVM. (À droite) Vue en perspective de la segmentation de la couche nanométrique de Nafion déposée en surface.

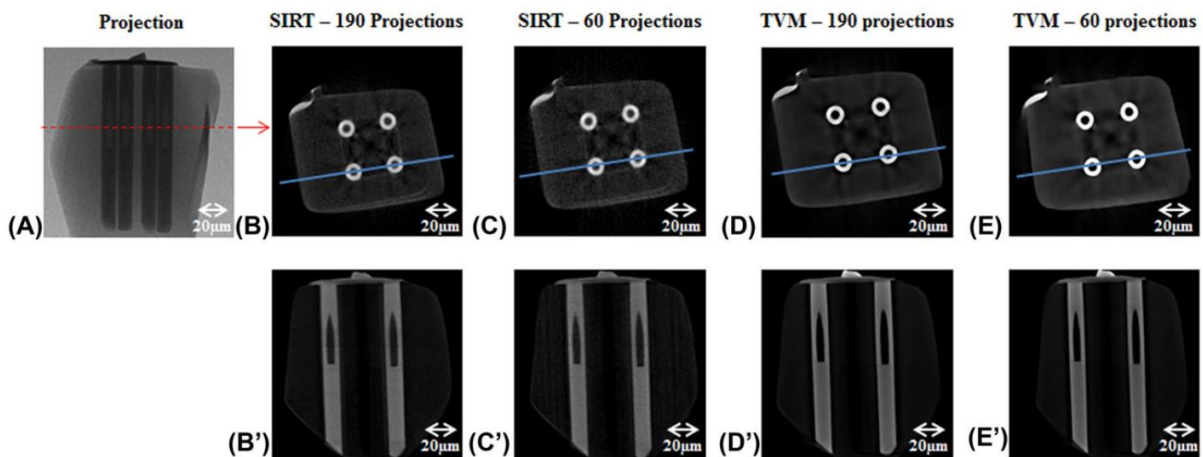


Figure 64 : Figure extraite de la publication [110]. (A) une projection rayons-X de l'objet à reconstruire. Vues axiales et sagittales des reconstructions (B et B') SIRT>0 utilisant 190 projections, (C et C') SIRT>0 utilisant 60 projections, (D et D') TVM utilisant 190 projections et (E et E') TVM utilisant 60 projections. La reconstruction TVM avec 60 projections est plus nette que celle du SIRT>0 avec 190 projections montrant la possibilité d'utiliser la TVM pour limiter le nombre de projections à acquérir et donc gagner en temps d'acquisition.

<sup>5</sup> ASTRA est disponible à l'adresse <https://sourceforge.net/p/astra-toolbox/wiki/Home/>

L'utilisation d'un algorithme basé sur la TVM peut donner de très bons résultats, mais beaucoup de paramètres déterminants doivent être choisis par l'utilisateur. Finalement un algorithme de ce type est très efficace mais également délicat et chronophage pour l'utilisateur.

### ***Algorithme de tomographie discrète (DART)***

Nous avons implémenté au début de cette thèse l'algorithme DART proposé dans la référence [101] qui permet de réaliser une reconstruction de tomographie discrète (cf. chapitre II). L'implémentation DART proposée par l'université d'Anvers est maintenant directement disponible dans la boîte à outils ASTRA. La difficulté d'utilisation de l'algorithme DART dans les cas pratiques, avec du bruit, des erreurs d'alignement et de la non-linéarité d'acquisition, ne nous a néanmoins pas permis d'avoir des résultats probants méritant d'être présentés ici.

#### ***IV. 1. b. (i) Comparaisons de quelques algorithmes***

Nous présentons dans cette partie une comparaison de certains des algorithmes testés et de leur impact sur la reconstruction en utilisant le fantôme proposé (Figure 62). Les algorithmes qui sont comparés sont le FBP, le SIRT>0 et la TVM. Nous comparons également les versions de ces algorithmes utilisant les projections préalablement débruitées à l'aide des ondelettes non-décimées ainsi que décrit dans le chapitre III issu de la référence [126]. Nous notons ces algorithmes FBP<sub>UWT</sub>, SIRT>0<sub>UWT</sub> et TVM<sub>UWT</sub>. De même nous utilisons les versions de ces algorithmes utilisant un débruitage préalable des projections par filtrage non-local (NLM). Nous notons ces algorithmes FBP<sub>NLM</sub>, SIRT>0<sub>NLM</sub> et TVM<sub>NLM</sub>. Nous utilisons donc le fantôme 3D pour pouvoir débruiter les projections 2D obtenues. Néanmoins, nous ne reconstruisons et ne comparons que la coupe centrale du fantôme qui nous intéresse.

Concernant les paramètres, le SIRT>0 est réalisé avec 100 itérations et une recherche linéaire pour déterminer les coefficients de relaxation (cet algorithme est décrit dans la référence [126]). L'implémentation TVAL3 de la TVM possède de nombreux paramètres, c'est pourquoi de très nombreuses reconstructions ont été réalisées pour choisir le jeu de paramètres produisant la meilleure reconstruction visuelle. Les paramètres choisis sont ceux permettant de voir un maximum de trous du fantôme et de lisser au maximum la reconstruction dans les zones de niveaux de gris constants.

Les paramètres des opérations de débruitage sont fixés à l'aide de l'évaluation du bruit de la référence [126]. Une transformée de Anscombe généralisée est utilisée [145] à partir de ces paramètres pour se ramener au cas d'un bruit blanc gaussien d'écart type  $\sigma = 1$ . Un seuillage dur avec une valeur de seuil de  $4\sigma$  à l'échelle la plus fine et de  $3\sigma$  pour les autres échelles est réalisé pour le débruitage UWT. Les paramètres du filtrage non-local (NLM) sont ceux existant par défaut dans

l'implémentation utilisée<sup>6</sup> en modifiant uniquement la force du filtre que nous prenons égal au niveau de bruit  $\sigma$ . Finalement les seuls paramètres que nous déterminons manuellement, que ce soit pour le débruitage ou les reconstructions, sont ceux de la TVM.

#### IV. 1. b. (ii) Simulations réalisées

Nous réalisons ici deux types de simulations,  $S_{HAADF}$  et  $S_{EDX}$ , avec des paramètres typiques d'une acquisition STEM HAADF et STEM EDX respectivement. Les paramètres utilisés sont visibles dans le Tableau 4. Le bruit appliqué est un bruit de Poisson avec un paramètre  $\mu$  allant de 0 à 4000 coups pour  $S_{HAADF}$  et de 0 à 200 coups pour  $S_{EDX}$ , il y a donc un rapport 20 entre les nombres de coups détectés par pixel dans les 2 acquisitions. Néanmoins, il y a moins de pixels pour la simulation  $S_{EDX}$  (Tableau 3), donc globalement 125 fois moins de coups enregistrés pour  $S_{EDX}$  que pour  $S_{HAADF}$ .

Simulation	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$
Nombre de projections	90 (pas angulaire de 2°)	36 (pas angulaire de 5°)
Nombre de pixels des projections	500 x 100	200 x 40
Bruit de Poisson appliqué	de 0 à 4000 coups	de 0 à 200 coups

Tableau 3 : Paramètres utilisés pour les 2 types de simulations réalisés avec le fantôme proposé (Figure 62).

La qualité des 18 reconstructions (2 simulations pour chacun des 9 algorithmes testés) est évaluée selon 3 critères :

- (C1) La séparabilité des pics des histogrammes
- (C2) La proportion de pixels mal segmentés
- (C3) La limite de détectabilité de la reconstruction

Le critère (C1) est évalué à l'aide de la distance algébrique  $C_1 \in \mathbb{R}$  définie à partir de l'intensité des voxels reconstruits. C'est la différence entre le 1<sup>er</sup> centile de l'intensité des voxels reconstruits au niveau de la matière et le 99<sup>ème</sup> centile de l'intensité des voxels reconstruits au niveau du vide, voir Figure 65. Cette définition fait intervenir le fantôme original pour séparer les voxels appartenant à la matière de ceux appartenant au vide. Une distance  $C_1$  nulle signifie que 1% des voxels du vide et 1% des voxels de la matière sont mal segmentés par un seuillage global des niveaux de gris. Plus la distance  $C_1$  est grande plus il y a de marge pour rester en dessous des 1% d'erreur. La distance algébrique  $C_1$  peut même être négative, auquel cas une segmentation globale des niveaux de gris engendre plus de 1% d'erreur pour au moins un des deux éléments constituants (vide et matière).

<sup>6</sup> Le filtrage non-local a été réalisé à l'aide des fonctions Matlab écrites par Dr. Kroon, disponibles ici : <http://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/27395-fast-non-local-means-1d--2d-color-and-3d>



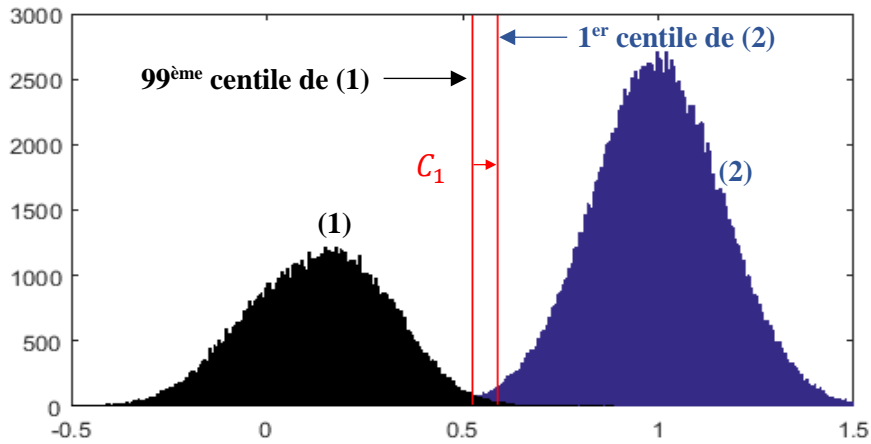


Figure 65 : Représentation de la distance algébrique  $C_1$  qui permet d'évaluer le critère de séparabilité des pics des histogrammes. Dans le cas représenté  $C_1$  est positif, c'est-à-dire que la segmentation permet de faire moins de 1% d'erreur.

Le critère (C2) est évalué à l'aide de la proportion  $C_2 \in [0,1]$  de pixels mal segmentés.  $C_2$  est défini à l'aide de l'équation (30). La segmentation est obtenue par seuillage global des niveaux de gris en choisissant le seuil optimal au sens de la minimisation de  $C_2$ .

$$C_2 = 1 - \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \delta_{S(f)_i}^{F_i} \quad (30)$$

avec  $\delta$  le symbole de Kronecker ( $\delta_i^j = 1$  si  $i = j$ ;  $\delta_i^j = 0$  sinon)

$S(f)$  la segmentation de la reconstruction  $f$

$F$  le fantôme original

$N$  le nombre de voxels du fantôme et de la reconstruction

Le critère (C3) est évalué à l'aide de la limite de détectabilité  $C_3$  des reconstructions considérées. Nous définissons pour une segmentation  $S$  donnée les termes suivants :

- Un « trou » est un ensemble de pixels noirs liés entre eux et entourés de pixels blancs,
- Un « agrégat » est un ensemble de pixels blancs liés entre eux,
- Un « vrai trou » est un « trou » pour lequel l'intersection avec les trous originaux du fantôme est non nulle et est incluse dans l'un des trous du fantôme. C'est donc un trou de la segmentation qui correspond à un et un seul des trous originaux.
- Un « trou détecté » est un des trous originaux du fantôme pour lequel l'intersection avec les « trous » de la segmentation est non nulle.

**Remarque :** le fantôme original est donc composé d'un agrégat et de 12 trous avec ces définitions.

La limite de détectabilité d'une segmentation  $S$  est considérée comme infinie si tous les trous ne sont pas des « vrais trous » ou s'il n'existe pas un et un seul « agrégat ». Si tous les trous sont des « vrais trous » et qu'il existe un et un seul « agrégat », la limite de détectabilité de la segmentation est le diamètre du plus petit « trou détecté » à partir duquel tous les trous du fantôme de diamètre supérieur sont détectés. Nous définissons la limite de détectabilité  $C_3$  d'une reconstruction comme la plus petite limite de détectabilité qu'il est possible d'obtenir avec une segmentation globale des niveaux de gris et des opérations d'ouverture et de fermeture (cf. partie I.3.a).

En pratique, des segmentations sont réalisées pour cent valeurs de seuils de niveaux de gris équiréparties entre le vide (0) et la matière (1). Pour chacune de ces cent segmentations, des ouvertures de diamètre de plus en plus grands jusqu'à ce qu'il n'y ait qu'un seul agrégat sont réalisées. Des fermetures de diamètres de plus en plus grands sont ensuite appliquées jusqu'à ce qu'il n'y ait plus que des « vrais trous » dans la segmentation considérée. La limite de détectabilité  $C_3$  est obtenue en prenant la meilleure des limites de détectabilité des cents segmentations ainsi traitées.

#### ***IV. 1. b. (iii) Résultats***

Les reconstructions obtenues pour les 9 algorithmes sont visibles dans la Figure 66 pour les simulations  $S_{HAADF}$  et dans la Figure 67 pour les simulations  $S_{EDX}$ . Dans le cas des simulations  $S_{HAADF}$  moins sévères, la meilleure reconstruction est visuellement celle de l'algorithme TVM sans débruitage préalable des projections. Le débruitage est utile pour les reconstructions FBP et SIRT>0, pour lesquelles les variations de niveaux de gris dans la matière sont importantes sans débruitage. Le débruitage UWT engendre néanmoins quelques artéfacts d'élongation des trous dans certaines directions. Ces artéfacts ne sont pas visibles après débruitage NLM.

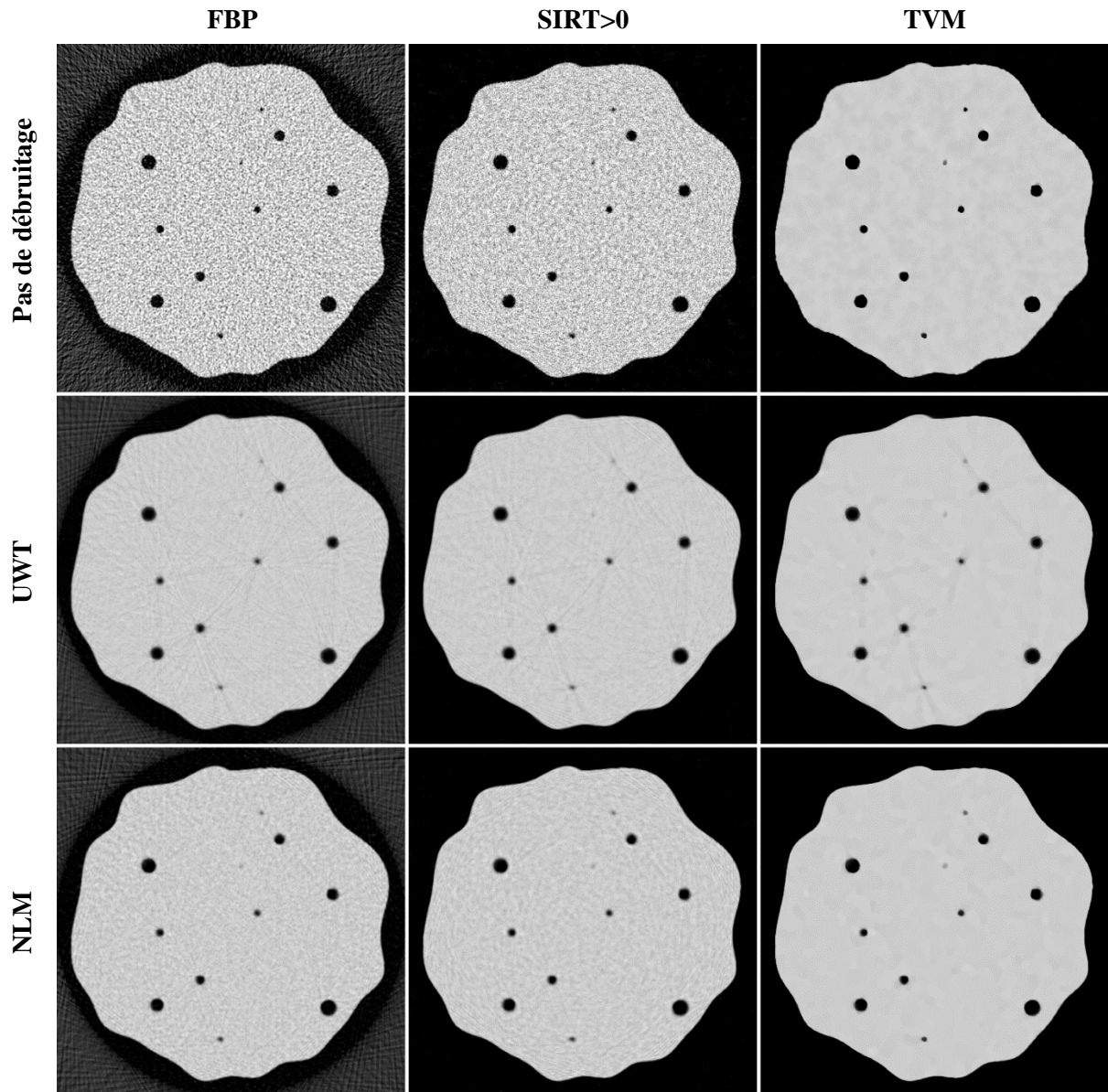


Figure 66 : Comparaison visuelle des reconstructions obtenues pour les 9 algorithmes dans le cas des simulations  $S_{HAADF}$ . La meilleure reconstruction est obtenue avec la TVM sans débruitage préalable des projections.

Dans le cas des simulations très sévères  $S_{EDX}$ , la meilleure reconstruction est visuellement celle de l'algorithme  $TVM_{NLM}$ . Le débruitage préalable des projections permet de bien reconstruire les bords du fantôme dans tous les cas ( $FBP_{UWT}$ ,  $SIRT>0_{UWT}$ ,  $TVM_{UWT}$ ,  $FBP_{NLM}$ ,  $SIRT>0_{NLM}$  et  $TVM_{NLM}$ ). 5 trous sont visibles dans le cas du débruitage UWT pour les 3 algorithmes et jusqu'à 7 trous sont visibles dans le cas du débruitage NLM. Utiliser à la fois un débruitage NLM et une reconstruction TVM permet d'obtenir visuellement la meilleure reconstruction, néanmoins la difficulté de choix des paramètres et le temps de calcul supplémentaire de la reconstruction TVM rend le  $SIRT>0_{NLM}$  très compétitif en termes de facilités d'utilisation. Les résultats du  $SIRT>0_{NLM}$  sont bons puisque 5, voire 7, trous sont visibles pour cette reconstruction.

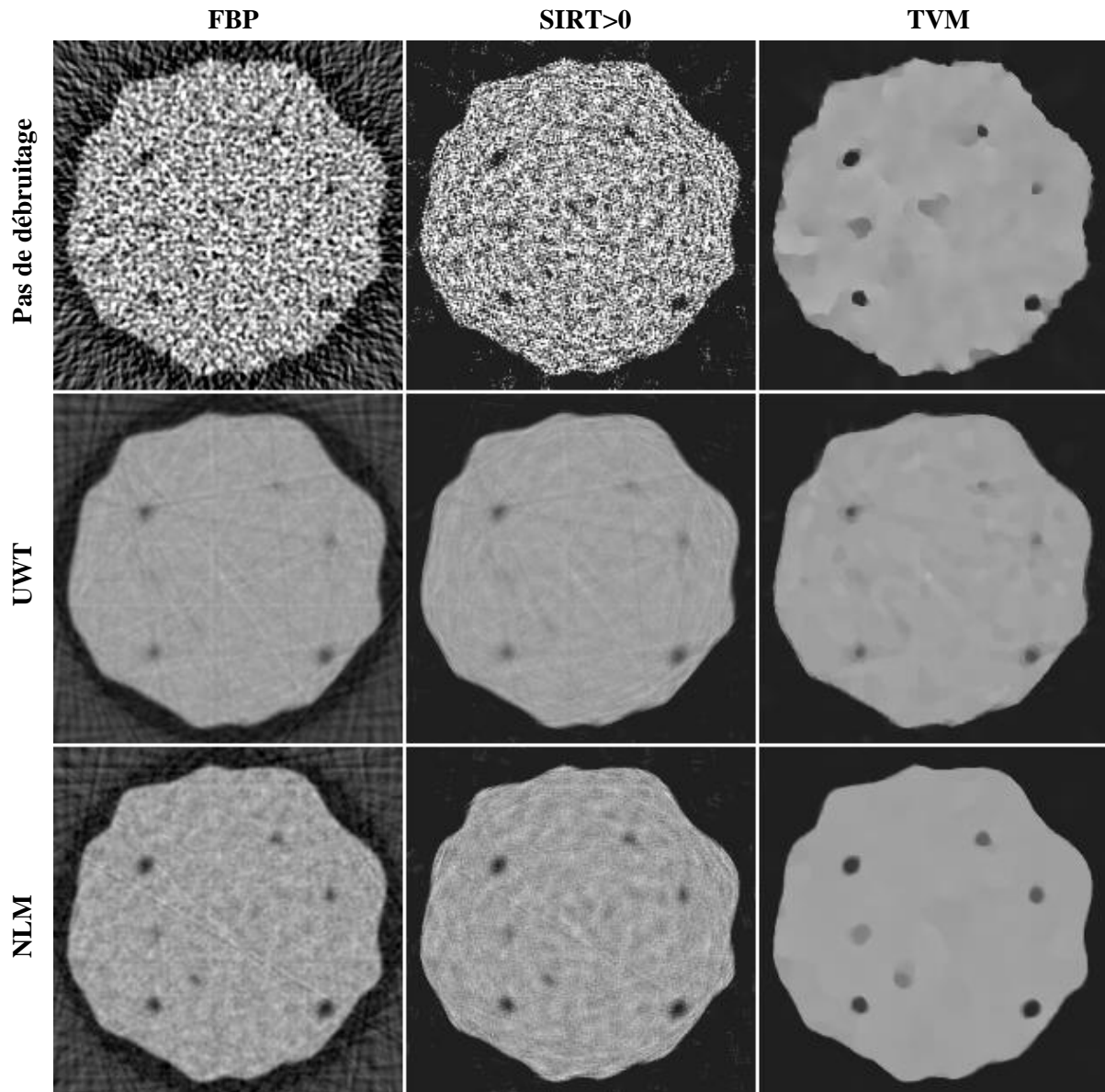


Figure 67 : Comparaison visuelle des reconstructions obtenues pour les 9 algorithmes dans le cas des simulations  $S_{EDX}$ . Visuellement, la meilleure reconstruction est obtenue avec la TVM et le débruitage préalable des projections par filtrage non-local (NLM). Le débruitage (UWT ou NLM) permet de bien reconstruire les bords de l'échantillon.

Les Figures 80 et 81 représentent respectivement les histogrammes des 9 algorithmes testés des simulations  $S_{HAADF}$  et  $S_{EDX}$ . On voit sur ces histogrammes que les pics sont bien séparés, dans le cas très sévère (EDX) et moins sévère (HAADF), avec l'utilisation d'un débruitage préalable des projections. La TVM permet de mieux isoler les pics même dans le cas où aucun débruitage préalable n'est réalisé. Les 2 pics sont visibles pour les 9 algorithmes comparés dans le cas des simulations  $S_{HAADF}$ . Ils ne sont pas visibles dans le cas des simulations  $S_{EDX}$  pour l'algorithme FBP et ils ne le sont que très légèrement dans le cas de l'algorithme SIRT>0. On note également que le débruitage UWT produit des pics plus fins que le débruitage NLM pour les 3 types d'algorithmes testés et les 2 simulations.

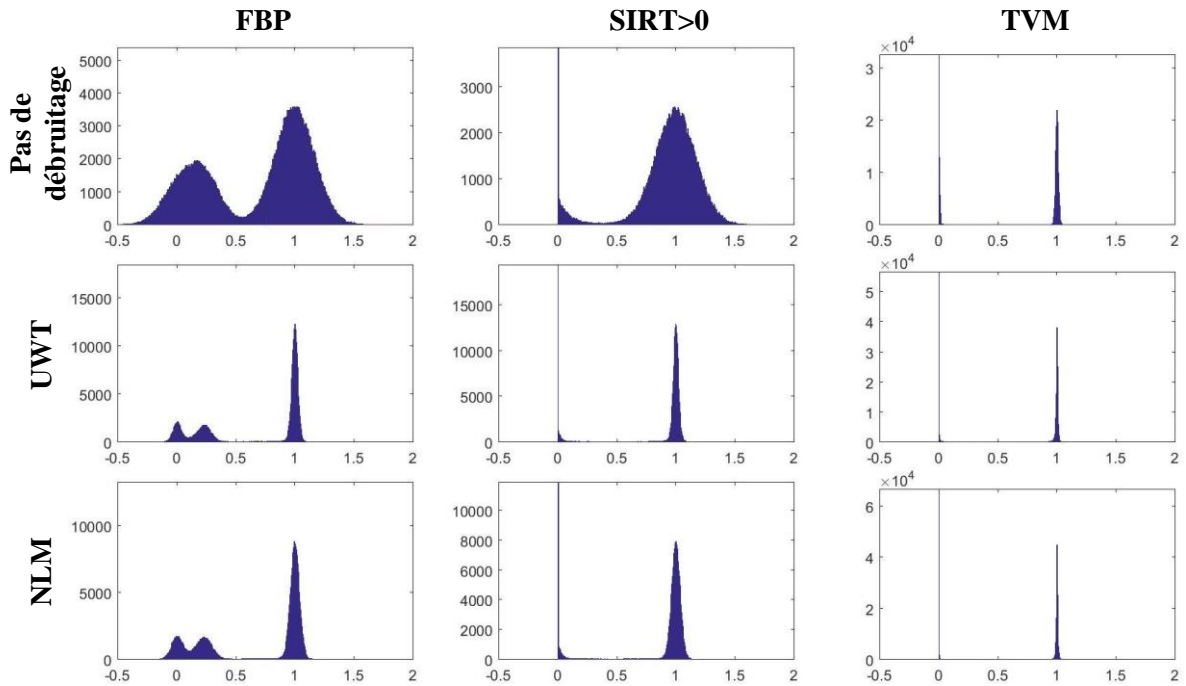


Figure 68 : Histogrammes dans le cas des simulations  $S_{HAADF}$ . Ces simulations, moins sévères que les simulations  $S_{EDX}$  produisent des histogrammes dont les pics peuvent être séparés dans tous les cas, même si dans le cas FBP sans débruitage il commence à y avoir un recouvrement notable des pics. Pour les algorithmes  $FBP_{UWT}$  et  $FBP_{NLM}$  le pic correspondant au vide (0) se duplique, cela est dû à un artefact de halo qui est visible sur les reconstructions de la Figure 66.

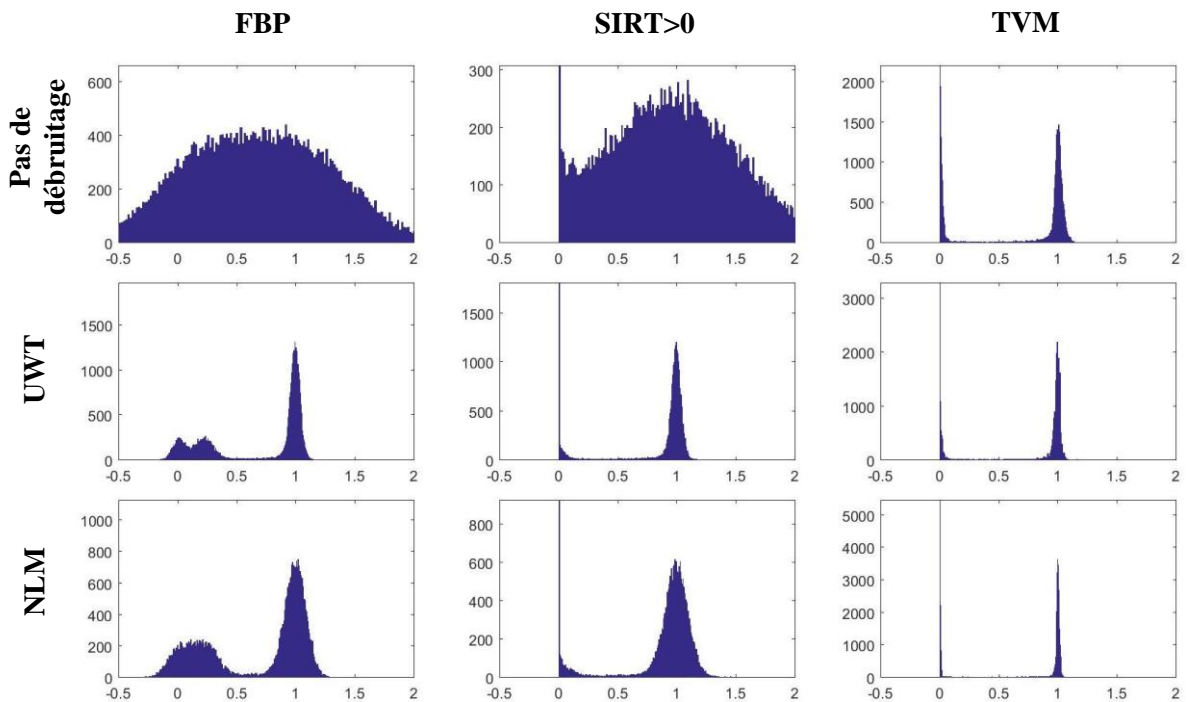


Figure 69 : Histogrammes dans le cas des simulations  $S_{EDX}$ . Les 2 pics correspondant au vide et à la matière ne sont pas visible sur les reconstructions FBP et SIRT>0 sans débruitage préalable. Ces 2 pics sont visibles sur toutes les autres reconstructions. Le pic correspondant au vide se duplique pour la reconstruction  $FBP_{UWT}$  à cause de l'artefact de halo qui est visible sur la Figure 67.

La Figure 70 et la Figure 71 affichent les segmentations qui minimisent  $C_2$  parmi celles obtenant la meilleure limite de détectabilité au sens du critère (C3) pour les simulations  $S_{HAADF}$  et  $S_{EDX}$ .

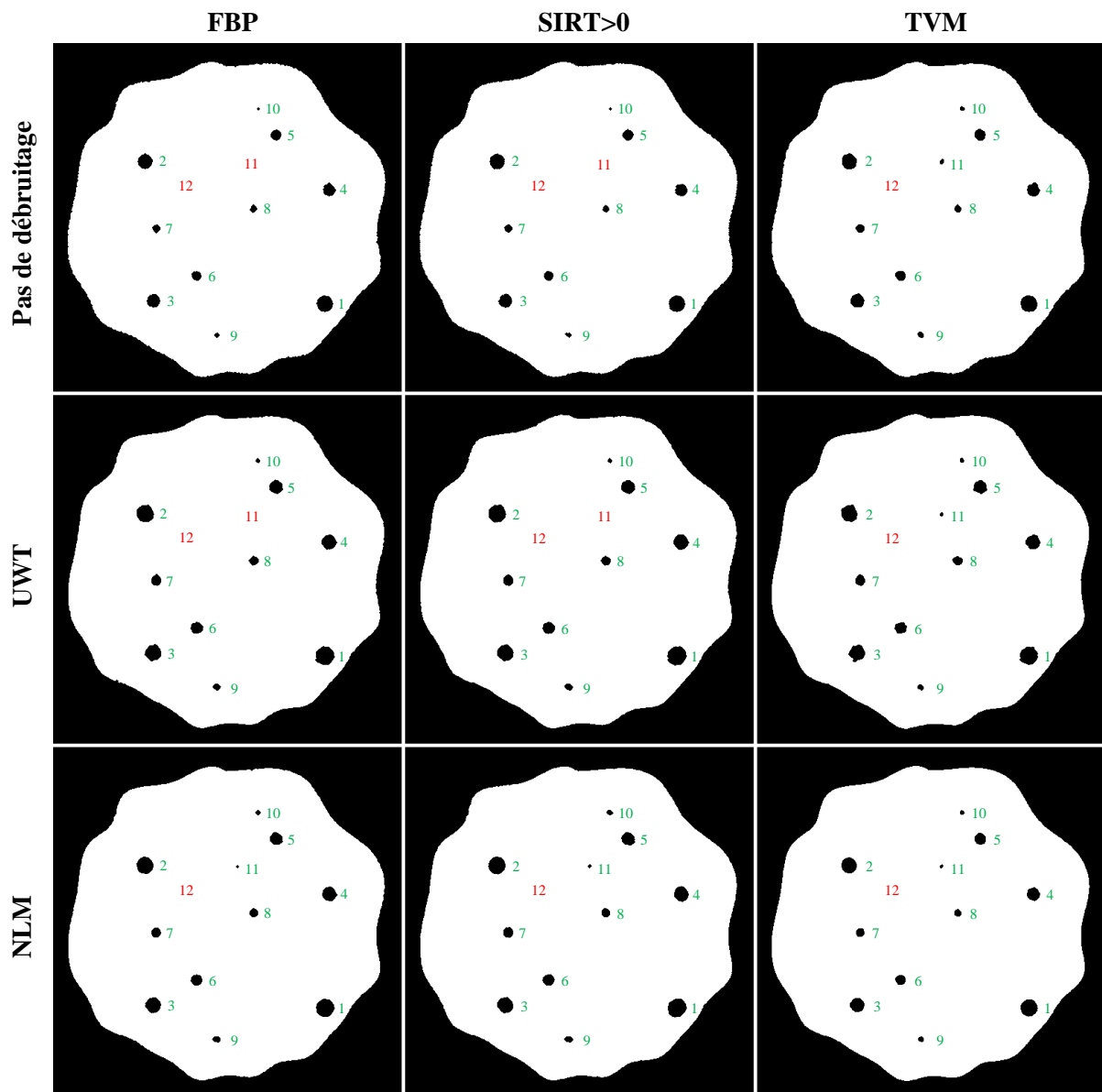


Figure 70 : Segmentations obtenant la meilleure limite de détectabilité au sens du critère (C3) pour les 9 algorithmes testés dans le cas des simulations  $S_{HAADF}$ . Les segmentations affichées sont celles qui minimisent  $C_2$  parmi celles obtenant les meilleures limites de détectabilité. Les trous originaux du fantôme sont numérotés dans l'ordre décroissant de diamètre, en vert pour ceux qui sont détectés et en rouge pour ceux qui ne le sont pas.

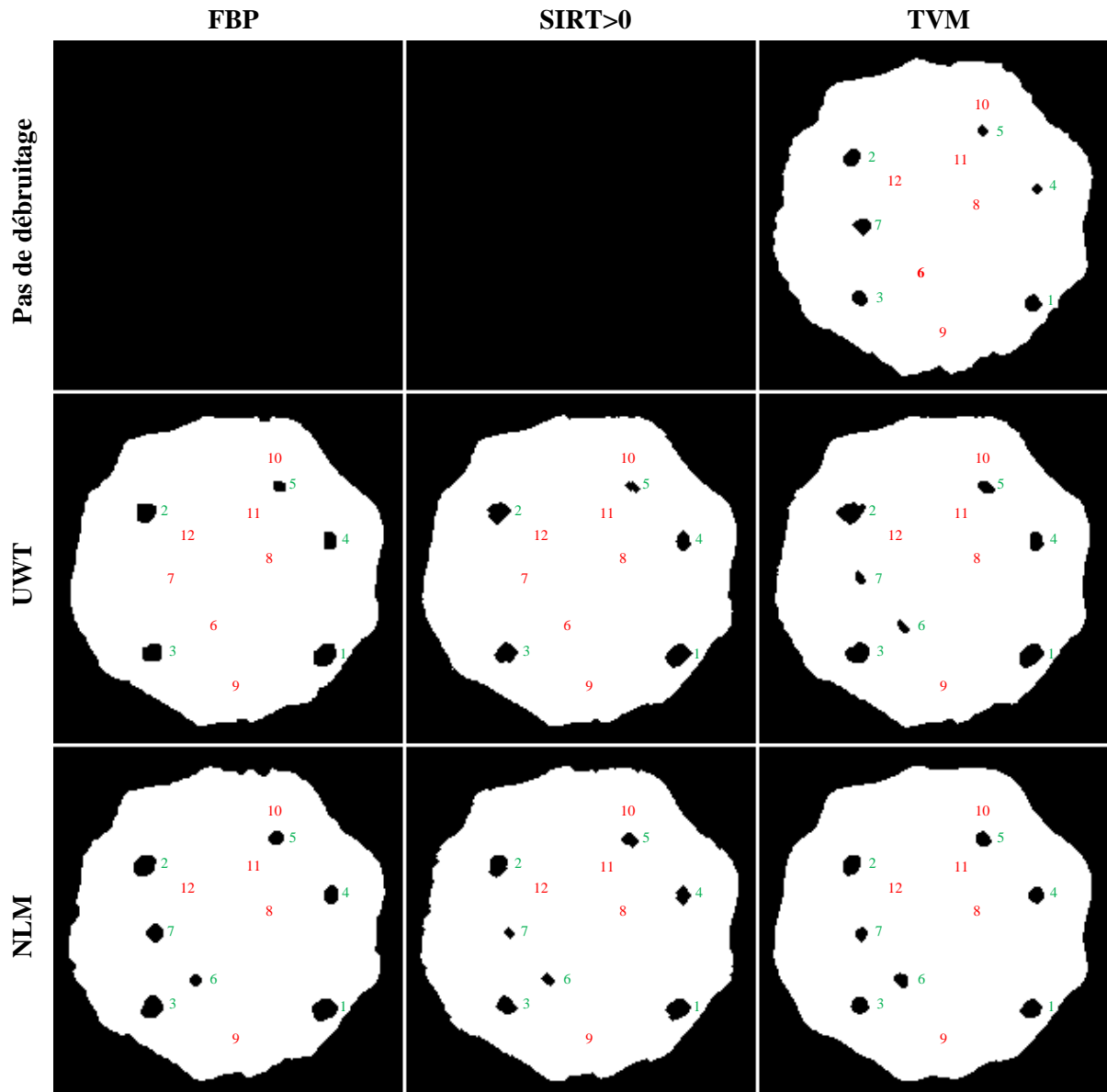


Figure 71 : Segmentations obtenant la meilleure limite de détectabilité au sens du critère (C3) pour les 9 algorithmes testés dans le cas des simulations  $S_{EDX}$ . Les segmentations affichées sont celles qui minimisent  $C_2$  parmi celles obtenant les meilleures limites de détectabilité. Les trous originaux du fantôme sont numérotés dans l'ordre décroissant de diamètre, en vert pour ceux qui sont détectés et en rouge pour ceux qui ne le sont pas. Les reconstructions FBP et SIRT>0 dans le cas où aucun débruitage préalable n'est réalisé ne permettent pas d'obtenir une segmentation avec un seul « agrégat » et uniquement des « vrais trous ». La limite de détectabilité dans ce cas est supérieure au diamètre du plus gros trou.

Les résultats pour chacun des 3 critères introduits précédemment sont récapitulés dans les tableaux suivants :

**(C<sub>1</sub>) Séparabilité des pics des histogrammes**

$C_1$	FBP		SIRT>0		TVM	
	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$
Pas de débruitage	0.06	-1.09	0.32	-0.66	0.77	-0.03
UWT	0.38	-0.13	0.42	-0.08	0.56	-0.05
NLM	0.40	0.08	0.50	0.12	0.69	0.16

La distance  $C_1$  augmente lors du passage des algorithmes FBP à SIRT>0 et à TVM. Elle augmente également lors du passage de l'absence de débruitage à un débruitage de type UWT et de type NLM, sauf pour la TVM dans le cas des simulations  $S_{HAADF}$ . Dans les 3 cas de TVM avec les simulations  $S_{HAADF}$ , les données initiales sont suffisamment peu bruitées, et la TVM est suffisamment efficace pour qu'un débruitage préalable des projections ne soit pas avantageux. Néanmoins la valeur de  $C_1$  est suffisamment grande dans ces 3 cas pour qu'une segmentation soit facile. Dans le cas plus compliqué ou  $C_1$  est proche de 0 pour les simulations  $S_{EDX}$ , le débruitage est utile même avec la TVM.  $C_1$  augmente et devient positive, c'est-à-dire qu'il est possible avec le débruitage NLM de faire moins de 1% d'erreurs sur les 2 éléments (vide et matière) avec une segmentation obtenue par seuillage global des niveaux de gris alors que ce n'était pas possible avec la TVM sans débruitage.

**(C<sub>2</sub>) Proportion de pixels mal segmentés**

$C_2$ (en %)	FBP		SIRT>0		TVM	
	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$
Pas de débruitage	0.62	15.8	0.18	6.5	0.11	0.92
UWT	0.15	1.0	0.15	1.0	0.12	0.95
NLM	0.09	0.6	0.08	0.6	0.07	0.53

La proportion de pixels mal segmentés s'améliore lors du passage des algorithmes FBP à SIRT>0 et à TVM dans tous les cas. Il convient de noter que les résultats sont quasiment constants pour le passage d'un algorithme FBP à SIRT>0 dans le cas d'un débruitage préalable des projections, qu'il soit UWT ou NLM. La proportion  $C_2$  de pixels mal segmentés diminue lors de l'utilisation préalable d'un débruitage NLM, quel que soit l'algorithme utilisé. Cette proportion s'améliore également lors d'un débruitage préalable de type UWT, mais uniquement pour les algorithmes FBP et SIRT>0. Dans le cas d'un algorithme de type TVM, il y a peu d'écart, mais le débruitage préalable UWT est pénalisant. Cependant, le débruitage est réalisé sans modifier les paramètres, diminuer légèrement la force du



débruitage UWT, sachant que l'algorithme TVM permet déjà de s'adapter à un certain niveau de bruit, permettrait probablement de rendre plus efficace l'algorithme TVM<sub>UWT</sub> par rapport à l'algorithme TVM en termes de pixels mal segmentés.

**(C<sub>3</sub>) Limite de détectabilité de la reconstruction**

(C <sub>3</sub> ) numéro du trou	FBP		SIRT>0		TVM	
	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$	$S_{HAADF}$	$S_{EDX}$
Pas de débruitage	10	0	10	0	11	5
UWT	10	5	10	5	11	7
NLM	11	7	11	7	11	7

La limite de détectabilité obtenue est identique pour les algorithmes FBP et SIRT>0, elle s'améliore avec l'utilisation de la TVM. La limite de détectabilité s'améliore nettement lors de l'utilisation d'un débruitage et en particulier pour le débruitage de type NLM. Ce débruitage produit la meilleure limite de détectabilité (11 trous détecté sur 12 pour  $S_{HAADF}$  et 7 sur 12 pour  $S_{EDX}$ ) pour tous les algorithmes testés. La TVM sans débruitage obtient des résultats moins bons que le SIRT>0<sub>NLM</sub>, alors que ce dernier avec moins de paramètres et une plus grande rapidité est bien plus facile d'utilisation que la TVM.

**IV. 1. b. (iv) Conclusions sur l'utilisation des algorithmes testés**

À la lumière des résultats obtenus pour les 9 d'algorithmes testés et les 2 types de simulations  $S_{HAADF}$  et  $S_{EDX}$ , il ressort une forte utilité de débruiter préalablement les projections. Le débruitage est particulièrement efficace pour la limite de détectabilité, mais aussi pour augmenter la proportion de pixels bien segmentés ( $1 - C_2$ ), ou la séparabilité des pics des histogrammes. Finalement, l'algorithme SIRT>0<sub>NLM</sub> obtient de meilleurs résultats que l'algorithme TVM pour les 3 critères que nous proposons, sauf dans le cas de la séparabilité des pics des histogrammes pour les simulations  $S_{HAADF}$  où la TVM obtient une distance  $C_1$  plus grande. Néanmoins dans ce cas les pics sont facilement séparables et le critère (C<sub>3</sub>) est surtout pertinent pour des distances  $C_3$  proches de zéros.

## 2) Vers une extension de la taille des échantillons

---

Nous allons présenter dans cette partie quelques pistes visant à limiter les impacts négatifs d'une épaisseur trop importante des échantillons pour chercher à étendre l'applicabilité de la tomographie électronique.

### IV. 2. a. Les limites au niveau de la taille de l'échantillon

#### *IV. 2. a. (i) Cas des échantillons avec un rapport $d/\delta$ trop grand*

La tomographie électronique permet de reconstruire en 3D la morphologie, voire la composition chimique, d'un échantillon avec une épaisseur  $d$  à l'échelle nanométrique. Comme nous l'avons vu précédemment, les échantillons denses et/ou constitués d'éléments à fort numéro atomique  $Z$  présentent de très petits libres parcours moyens  $\delta$  qui limitent directement l'épaisseur des échantillons analysables en tomographie STEM HAADF, Figure 39. Une épaisseur de quelques dizaines de nanomètres peut déjà être trop importante pour certains échantillons. Des artefacts typiques, donnant un contraste plus sombre au centre d'un échantillon pourtant homogène, sont ainsi présents pour des nanoparticules d'or dès 30 nm de diamètre [121]. Ceci représente un facteur limitant conséquent de la tomographie STEM HAADF.

#### *IV. 2. a. (ii) Cas des échantillons dont l'épaisseur limite la résolution des projections*

Nous avons abordé dans le chapitre II le compromis existant entre profondeur de champ et résolution pour une acquisition STEM. La profondeur de champ étant imposée par l'épaisseur de l'échantillon, il n'est pas possible d'augmenter l'angle de convergence à volonté pour obtenir la résolution désirée tout en gardant l'intégralité de l'échantillon au focus. Ce facteur, limitant la résolution des projections, peut à son tour limiter la résolution de la reconstruction 3D. Néanmoins il convient de le comparer à la résolution que l'on peut effectivement obtenir en tomographie électronique. Comme nous en avons déjà parlé, cette résolution n'est pas celle des projections 2D à cause du nombre limité de projections, des imperfections dans l'acquisition, des déformations de l'échantillon sous le faisceau, etc.

Nous proposons d'utiliser le critère de Crowther comme condition pour s'avoir à partir de quand la résolution des projections 2D devient plus limitante que la reconstruction 3D. Cela revient à chercher à partir de quand la résolution des projections donnée par l'équation (21) est égale à la résolution fournie par le critère de Crowther de l'équation (16). En cherchant le cas limite fourni par l'égalité des résolutions 2D et 3D, nous obtenons simplement l'équation suivante :

$$d_z = \frac{\lambda_e}{2\pi^2} N_{proj}^2 \quad (31)$$

Avec  $d_z$  la profondeur de champ qui est aussi l'épaisseur de l'échantillon,  $\lambda_e$  la longueur d'onde des électrons, qui dépend de la tension d'accélération et  $N_{proj}$  le nombre de projections nécessaires. En affichant ces cas limites pour différentes tensions d'accélération typiques (Figure 72), on s'aperçoit que la résolution des projections 2D ne devient le facteur limitant que pour un nombre très important de projections ou pour des échantillons extrêmement fins. La figure suivante justifie donc le fait que beaucoup de travaux en tomographie électronique concernent les algorithmes de reconstruction pour améliorer la résolution 3D. Il conviendrait de reproduire cette figure en prenant en compte la résolution 3D qui peut être obtenue avec des algorithmes avancés de reconstruction. Le critère de Crowther n'est en effet pertinent que dans le cas de reconstructions analytiques sans connaissances *a priori* sur l'objet. L'utilisation d'algorithmes avancés améliorant la reconstruction pour un nombre de projections limité permet donc d'abaisser les courbes suivantes. Ceci pourrait *in fine* rendre limitante la résolution des projections 2D pour des nombres de projections typiquement utilisés en tomographie électronique (90 ou 180).

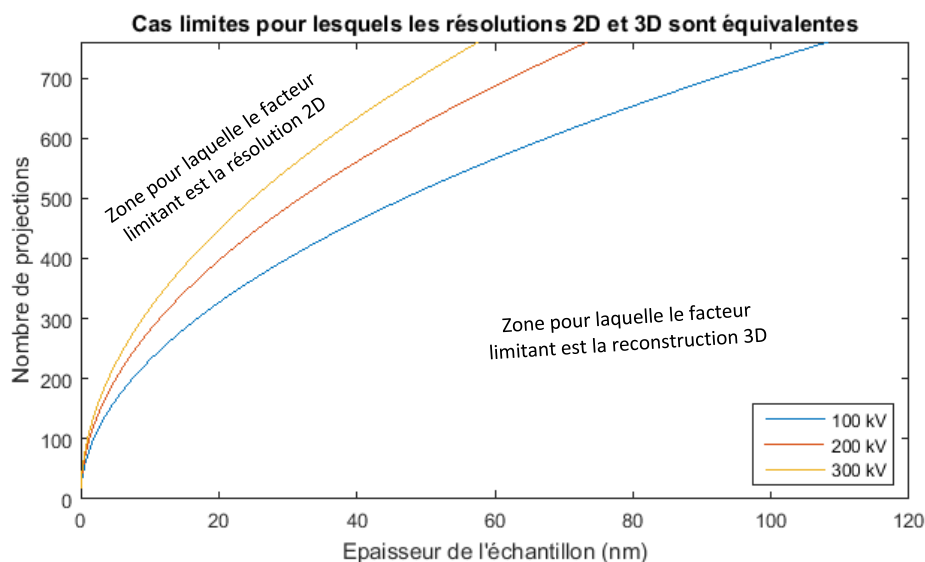


Figure 72 : Cas limites pour lesquels les résolutions 2D et 3D sont équivalentes pour 3 tensions d'accélération différentes. On s'aperçoit qu'il faut beaucoup de projections pour que le facteur limitant devienne la résolution des projections 2D. Ces courbes sont obtenues en utilisant le critère de Crowther qui n'est valable que pour une reconstruction sans contraintes. L'utilisation de reconstructions sous contraintes peut abaisser les courbes et rendre limitante la résolution des projections 2D pour des nombres de projections moins grands.

## IV. 2. b. Correction de la non-linéarité

Dans cette partie, nous allons présenter des résultats obtenus avec un échantillon de silicium poreux dont les pores ont été remplis de nickel par le docteur Guido Mula, de l'université de Cagliari. Le remplissage des pores a été réalisé par électrochimie. Une acquisition de tomographie électronique a été réalisée avec le microscope électronique Titan Thémis présent sur la plateforme de Nano-caractérisation du CEA Grenoble. Nous noterons cet échantillon PSi-Ni, (voir Figure 73).

### *IV. 2. b. (i) Correction par inversion d'une fonction d'acquisition théorique*

Nous avons déjà vu dans le chapitre II que des travaux ont été proposés afin de corriger la non-linéarité due à un rapport  $d/\delta$  trop important [121]. Dans ces travaux les auteurs précisent, à juste titre, que l'intensité du faisceau incident doit être connue pour pouvoir appliquer cette méthode. Ils proposent pour cela de faire du STEM quantitatif ainsi que décrit dans la référence [156]. Le STEM quantitatif nécessite une étape préalable à l'acquisition des données au microscope. Puisque nous n'avons pas réalisé cette étape, nous n'avons pas accès à la valeur de l'intensité du faisceau incident.

### *IV. 2. b. (ii) Correction par inversion de la fonction d'acquisition réelle*

La technique d'inversion de la fonction d'acquisition proposée dans la référence [121] n'est valable que pour des rapports  $d/\delta$  de l'ordre de 1, ceci à cause de l'approximation qui suppose qu'un électron diffusé plusieurs fois est détecté. Or un électron ayant subi plusieurs diffusions dans l'échantillon peut être diffusé en dehors du détecteur HAADF. De plus cette technique nécessite une étape supplémentaire lors de l'acquisition STEM pour se mettre dans les conditions du STEM quantitatif. Nous proposons une nouvelle méthode qui utilise directement les données mesurées pour réaliser une évaluation empirique de la fonction d'acquisition  $\Phi$ . Pour cela, nous proposons d'utiliser une partie  $P_z$  de l'échantillon située entre 2 côtes  $z_{min}$  et  $z_{max}$  vérifiant les 2 hypothèses suivantes :

**(H1)** La partie  $P_z$  considérée ne contient qu'un seul et même matériau

**(H2)** Le maximum d'intensité atteint dans les projections mesurées se situe au niveau de  $P_z$

Cela peut sembler très contraignant de prime abord mais il n'est pas si rare d'avoir un échantillon présentant une partie qui ne contient qu'un seul et même matériau. De plus, dans le cas d'un échantillon préparé au FIB [118], une couche de protection homogène (**H1** vraie) est souvent déposée en surface de l'échantillon. Ce dépôt peut être composé de tungstène ( $Z=74$ ) par exemple, c'est-à-dire d'un matériau lourd avec un libre parcours moyen souvent plus faible que ceux du reste de

l'échantillon (**H2** vraie). Finalement la partie de l'échantillon que nous proposons d'utiliser peut se retrouver facilement sur les échantillons préparés au FIB en prenant le dépôt métallique de protection. L'échantillon PSi-Ni que nous utilisons pour illustrer la technique possède intrinsèquement une zone  $P_z$  vérifiant les hypothèses (**H1**) et (**H2**), voir Figure 73.

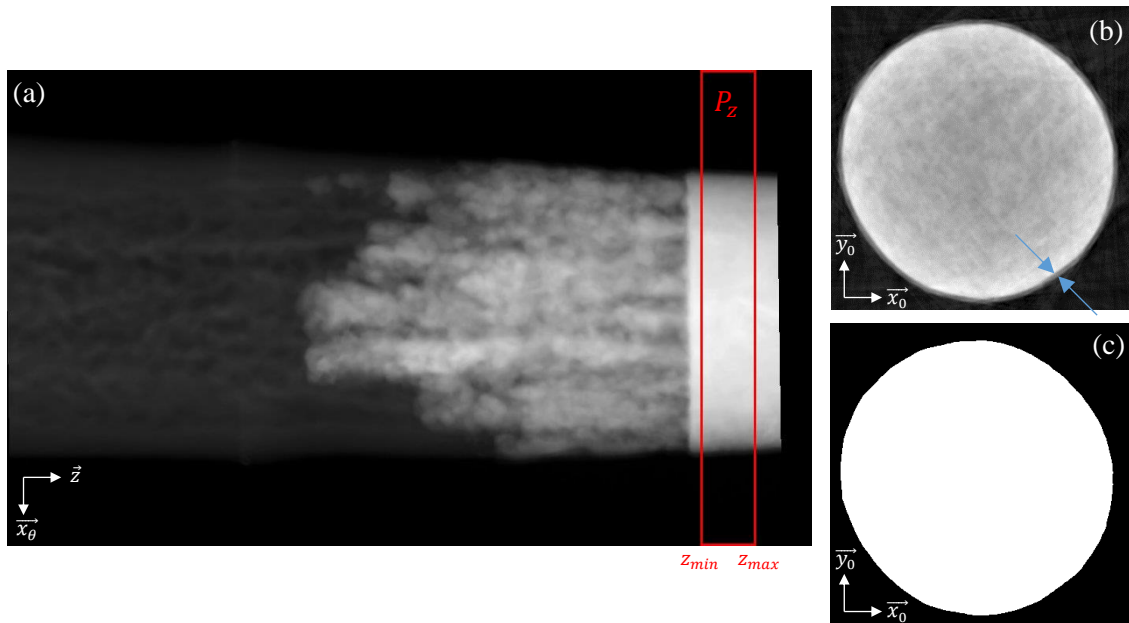


Figure 73: (a) Une projection de l'échantillon PSi-Ni avec la zone  $P_z$  représentée en rouge. (b) Vue en coupe dans la reconstruction FBP au milieu de la zone  $P_z$ , l'artéfact typique de non-linéarité qui est visible est une zone interne plus sombre que sur les bords pour le même matériau. Une très fine couche de contamination présente à la surface de l'échantillon est mise en avant par les deux flèches bleues. (c) Segmentation utilisée pour la méthode d'évaluation de la fonction d'acquisition  $\Phi$  que nous proposons.

Après avoir réalisé une reconstruction à l'aide, par exemple, du procédé global présenté dans le chapitre précédent [126], une segmentation du dépôt et une reprojexion numérique de cette segmentation sont réalisées. Des projections contenant les épaisseurs traversées par le faisceau électronique sont ainsi obtenues. Puisque  $P_z$  est homogène d'après l'hypothèse (**H1**), les projections  $\mathcal{R}f$  de la quantité physique  $f$  à reconstruire sont proportionnelles à ces épaisseurs traversées. En affichant les différentes valeurs des projections mesurées en fonction de ces épaisseurs traversées nous obtenons directement la courbe  $\Phi$  et par suite la courbe  $\Phi^{-1}$ . L'hypothèse (**H2**) permet d'obtenir la courbe  $\Phi$  sur toute la plage de valeurs présentes dans les projections, donc de généraliser la correction apportée par l'application de  $\Phi^{-1}$  à l'ensemble du volume et non pas uniquement à  $P_z$ .

Nous voyons sur les données obtenues (Figure 74) que l'approximation exponentielle est tout à fait justifiée puisqu'elle correspond très bien aux mesures, exception faite des épaisseurs très faibles. Nous pensons que cette différence pour les faibles épaisseurs traversées est due à la contamination de surface, visible sur la Figure 73 (b), qui contredit légèrement l'hypothèse (**H1**). Elle n'est pas prise en compte dans la segmentation donc dans la détermination des épaisseurs traversées. Elle reste tout

de même présente et engendre une intensité faible, qui devient non négligeable pour les très faibles épaisseurs traversées. Elle est plus importante pour les faibles épaisseurs traversées parce que les faisceaux sont alors rasants et traversent cette couche de contamination de surface sur une plus grande distance.

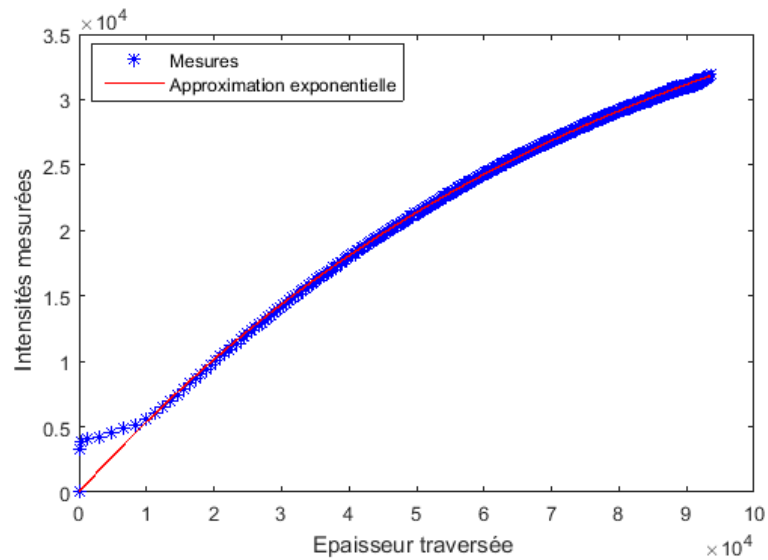


Figure 74 : Détermination expérimentale de la fonction d'acquisition  $\Phi$  et approximation exponentielle correspondante pour l'échantillon PSi-Ni.

Après correction de la non-linéarité des projections en appliquant la fonction  $\Phi^{-1}$  de l'approximation exponentielle, nous obtenons une reconstruction pour laquelle il n'y a plus de différences de niveaux de gris entre les bords et l'intérieur de l'échantillon comme c'était le cas avant, voir Figure 75. En affichant les histogrammes des reconstructions, on voit que la correction de non-linéarité permet de resserrer les pics, en particulier pour le nickel, ce qui peut permettre de réaliser une segmentation plus efficace par seuillage global des niveaux de gris, Figure 76. Dans le cas présenté, la correction de la non-linéarité permet de mieux distinguer un pore présent dans l'échantillon qui était moins facilement discernable avec les données non corrigées (Figure 76).

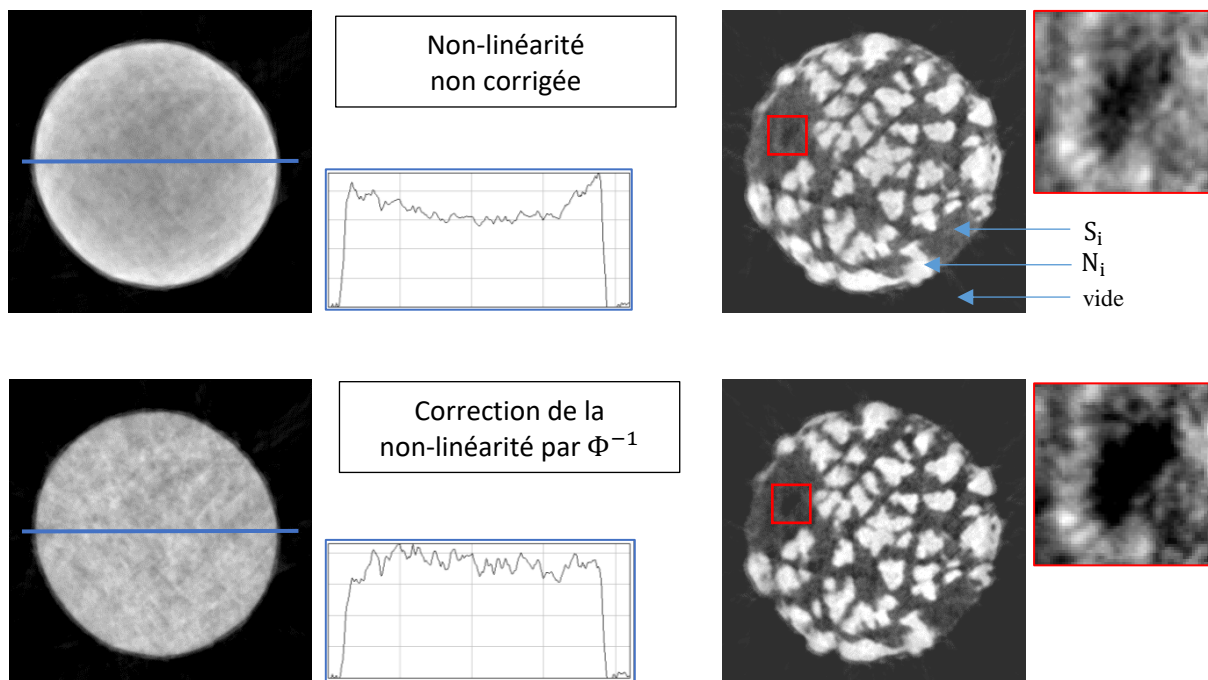


Figure 75 : Résultats obtenus pour l'échantillon Psi-Ni après reconstructions SIRT>0 de 100 itérations. Les résultats obtenus après correction de la non-linéarité sont comparés à ceux obtenus sans. Une vue en coupe au niveau de la zone  $P_z$  et le profil correspondant montrent que l'artéfact de non-linéarité donnant une intensité plus importante sur les bords a bien été corrigé. Une vue en coupe dans la partie d'intérêt montre que la correction de non linéarité sert à mieux distinguer un pore présent dans le silicium.

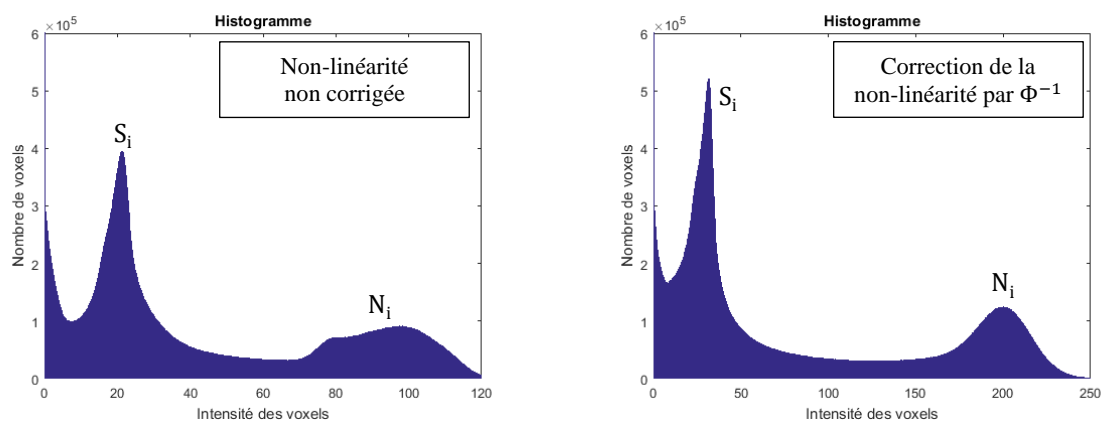


Figure 76 : Comparaison des histogrammes des reconstructions SIRT>0 de l'échantillon Psi-Ni dans les cas où la non-linéarité est et n'est pas corrigée.

### IV. 2. b. (iii) Changer le mode d'acquisition (IBF)

Il est également possible de changer le mode d'acquisition pour limiter la non-linéarité du mode STEM HAADF qui est engendrée par les interactions multiples du faisceau d'électrons. Ceci a déjà été présenté dans le chapitre II. Nous avons réalisé ce type d'acquisition pour un échantillon de nanoparticules d'argent agglomérées, les résultats et l'échantillon utilisé ont déjà été présentés dans le chapitre III issue de la publication [126]. La Figure 77 montre la différence entre une projection de l'acquisition IBF inversée et la projection HAADF correspondante. Des profils de niveaux de gris indiquent que l'on se situe dans la zone de saturation du contraste. Une acquisition IBF est ainsi indispensable pour cet échantillon.

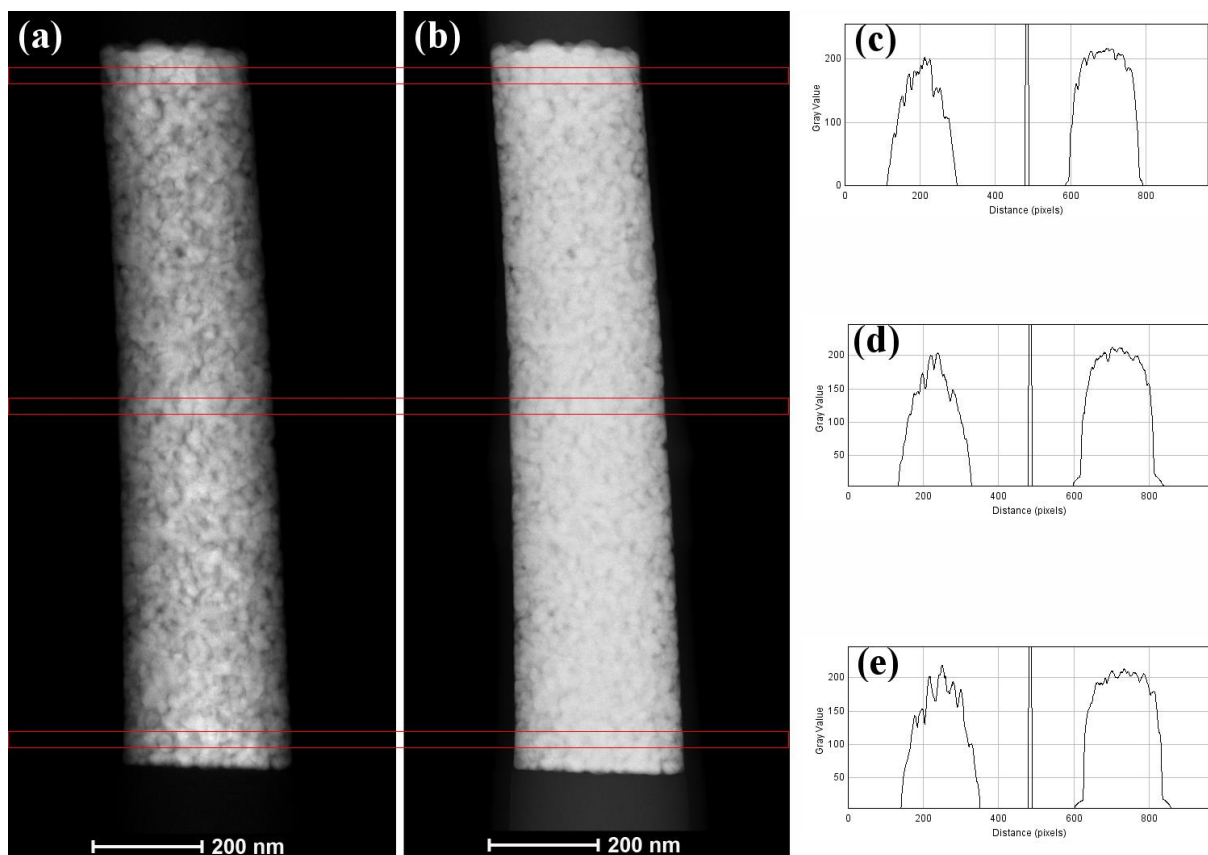


Figure 77 : Comparaison d'une projection STEM HAADF et de la projection STEM IBF correspondante. (a) image IBF inversée, (b) image HAADF, (c, d et e) profils moyennés sur plusieurs lignes (en rouge) à différentes hauteurs des projections. Les profils montrent clairement une saturation du contraste en mode HAADF (à droite) particulièrement visible par comparaison au mode IBF (à gauche).



## IV. 2. c. Amélioration de la résolution par focus multiple

### IV. 2. c. (i) *Étendre la profondeur de champ à l'aide de plusieurs acquisitions*

Nous avons vu que le facteur limitant pouvait être la résolution des projections 2D dans le cas d'un nombre élevé de projections ou d'échantillons très fins (Figure 72). Nous souhaitons montrer dans cette partie, à l'aide de simulations, qu'il est possible de passer outre cette limite de résolution en réalisant plusieurs acquisitions successives avec des focus réalisés volontairement non plus au centre de l'échantillon mais en différentes profondeurs.

Pour cela un angle de convergence important est utilisé, correspondant à une profondeur de champ plus petite que l'épaisseur de l'échantillon. Ainsi une meilleure résolution des projections 2D peut être obtenue. Le prix à payer est de ne pas avoir l'intégralité de l'échantillon au focus. Pour corriger ce problème, un certain nombre  $M \in \mathbb{N}^*$  d'acquisitions sont faites en changeant la profondeur à laquelle la sonde électronique est focalisée.

Nous définissons, pour un  $M \in \mathbb{N}^*$  donné, l'ensemble  $A_M$  des  $M$  profondeurs  $Z_m$  de focalisation de la sonde électronique. L'ensemble  $A_M$  est défini de façon à ce que pour un objet cylindrique d'épaisseur constante  $D$  et  $M$  acquisitions, une profondeur de champ de  $D/M$  permette d'avoir tous les points de l'objet au focus pour au moins une des  $M$  acquisitions. Si l'objet considéré n'est pas cylindrique, nous considérons le plus petit cylindre contenant tous les points de l'objet. Les valeurs de  $A_M$  pour  $M \in \mathbb{N}^*$  sont visibles dans le tableau suivant. Les ensembles  $A_1, A_2$  et  $A_3$  sont détaillés puisque ce sont les 3 ensembles que nous utilisons dans les simulations. Se placer dans la condition de l'ensemble  $A_1$  revient à faire une acquisition classique avec un focus réalisé au centre de l'objet.

Nombre $M \in \mathbb{N}^*$ d'acquisitions	$M = 1$	$M = 2$	$M = 3$
$A_M = \left\{ Z_m = \frac{(2m - 1 - M)D}{2M} \right\};$ $m = 1, \dots, M$	$A_1 = \{ 0 \}$	$A_2 = \left\{ -\frac{D}{4}; +\frac{D}{4} \right\}$	$A_3 = \left\{ -\frac{D}{3}; 0; +\frac{D}{3} \right\}$

Tableau 4 : Tableau présentant les ensembles  $A_M$  et détaillant les cas  $M = 1, 2$  ou  $3$ . Les doubles flèches représentent les zones qui sont au focus pour une acquisition donnée.

**IV. 2. c. (ii) Présentation des simulations**

Nous modélisons la sonde électronique comme un faisceau gaussien de profondeur de champ  $d_z$  et de largeur à mi-hauteur minimale  $d_{res}$ . La Figure 79 représente le diamètre de plusieurs faisceaux gaussiens en fonction de la profondeur pour une focalisation au centre de l'objet à  $Z = 0$ . Nous choisissons  $d_z = D/M$  de façon à avoir la zone de focus la plus petite qui permet d'avoir tout de même tous les points de l'échantillon au focus pour au moins une des  $M$  profondeurs de focalisation  $Z_m$  de  $A_M$ . Ce choix de la profondeur de champ fixe alors la résolution  $d_{res}$  d'après l'équation (21). Nous obtenons ainsi les profondeurs de champ et résolution suivantes :

$$d_z = \frac{D}{M} \tag{32}$$

$$d_{res} = \sqrt{\frac{\lambda_e D}{2M}} \tag{33}$$

Ce qui donne également l'angle de convergence à utiliser (exprimé en radian) :

$$\alpha \approx 1,22 \sqrt{\frac{2M\lambda_e}{D}} \tag{34}$$

Jusqu'ici les projections ont été réalisées à l'aide de la boîte à outil ASTRA. Il est possible avec les fonctions ASTRA de définir toutes sortes de géométries pour les projections (parallèles, coniques, etc), néanmoins, il n'est pas possible de définir des faisceaux avec une épaisseur non nulle et variable en fonction de la profondeur comme nous souhaitons le faire ici. Pour simplifier l'implémentation de telles projections, nous proposons de réaliser les projections en exploitant certaines des fonctions Matlab existantes. Les projections sont ainsi réalisées en 3 étapes, ne nécessitant que quelques lignes de codes, qui sont récapitulées dans le tableau suivant :

Opérations à réaliser	Implémentations
Projection dans différentes directions $\theta_l$	1) Rotation du fantôme utilisé de $\theta_l$
Simulation d'un faisceau gaussien	2) Convolution des lignes par une gaussienne dont l'écart-type dépend de la profondeur
Réalisation de la projection	3) Somme des colonnes

Tableau 5 : Procédé réalisé pour simuler l'acquisition d'une série de projections avec une sonde électronique ayant la forme d'un faisceau gaussien.

Plus précisément, l'objet à projeter est tourné en utilisant une interpolation bilinéaire à l'aide de la fonction Matlab *imrotate()*. La variation de diamètre du faisceau gaussien selon la profondeur est simulée en réalisant la convolution des lignes du fantôme tourné par une gaussienne d'écart-type variable en fonction de la profondeur, *i.e.* des lignes du fantôme. Les colonnes de l'objet sont alors

sommées pour réaliser des projections. Nous utilisons ici le fantôme 2D de la Figure 78, il s'agit du fantôme de la Figure 62 avec  $513 \times 513$  pixels pour lequel des trous équivalent au diamètre le plus fin ont été rajouté sur les bords pour mieux voir les artéfacts d'une focalisation en différentes profondeurs. 180 projections avec un pas de  $1^\circ$  sont simulées avec le procédé récapitulé dans le Tableau 5 pour des profondeurs de focalisation correspondant aux ensembles  $A_1$ ,  $A_2$  et  $A_3$ . Les sinogrammes obtenus, de taille  $513 \times 180$  ont une taille de pixel est de 0,1 nm, ce qui donne un diamètre d'environ 50 nm. Un tel diamètre est la limite basse d'une acquisition HAADF standard, néanmoins ce diamètre permet de se rapprocher du cas où la résolution des projections 2D devient limitante, cf. partie IV.2.a et Figure 72. Nous utilisons une longueur d'onde des électrons de 3,7 pm correspondant à une tension d'accélération de 100 kV.

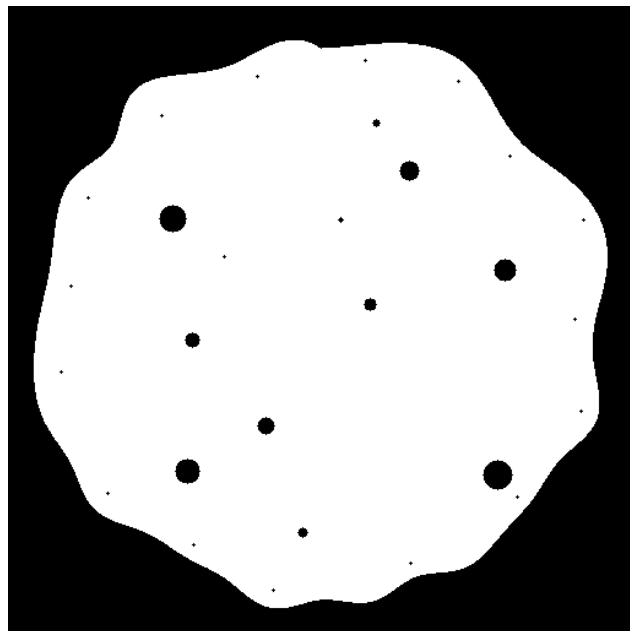


Figure 78 : Fantôme utilisé pour les simulations. Il s'agit du fantôme de la Figure 62 avec 16 trous de petits diamètres rajouté sur les bords pour mieux mettre en avant les artéfacts et l'amélioration de la reconstruction par l'utilisation de focus multiple.

La Figure 79 représente le diamètre de la sonde pour un objet de 50 nm d'épaisseur dans le cas où  $M = 1, 2$  ou  $3$  avec une focalisation au centre de l'objet ( $Z = 0$ ). Plus le nombre d'acquisitions  $M$  augmente, plus la profondeur se dégrade, mais plus la résolution au focus s'améliore.

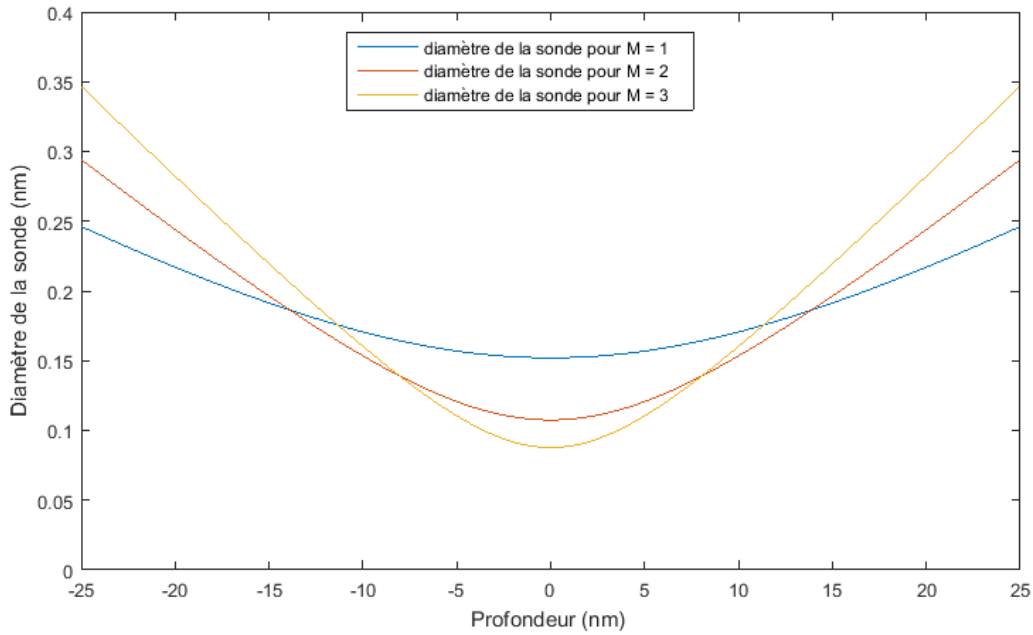


Figure 79 : Représentation du diamètre de la sonde électronique en fonction de la profondeur. La focalisation de la sonde est réalisée au centre (profondeur = 0 nm). Le cas  $M = 1$  correspondant à un objet de 50 nm au focus. Plus l'angle de convergence est important, plus la profondeur de champ est faible.

La Figure 80 représente la meilleure résolution des  $M$  acquisitions en fonction de la profondeur en prenant en compte les profondeurs de focalisation  $Z_m$ . On voit que la résolution est améliorée en toute profondeur de l'objet quand on passe de  $M = 1$  à  $M = 3$ . La résolution est améliorée pour toutes les profondeurs sauf quelques nanomètres au centre de l'objet en passant de l'acquisition avec  $M = 1$  à celle avec  $M = 2$ .

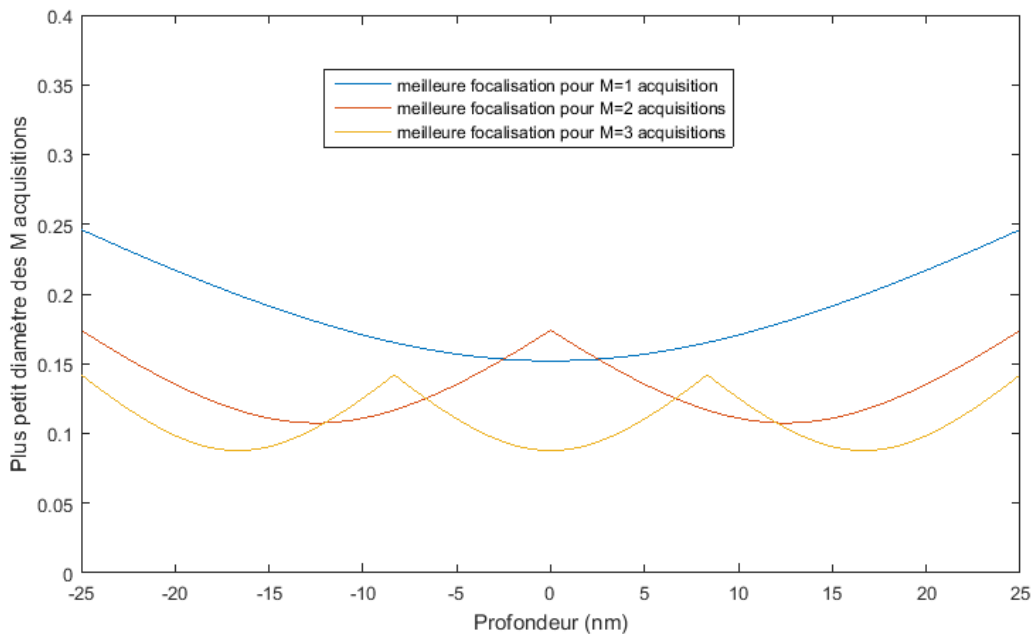


Figure 80 : Représentation du meilleur diamètre de la sonde en fonction de la profondeur dans le cas de  $M$  acquisitions réalisées à des profondeurs de focalisation différentes. On voit qu'avec  $M=3$  la résolution peut être améliorée pour toutes les profondeurs de l'objet par rapport à une acquisition classique avec  $M = 1$ .

#### IV. 2. c. (iii) Résultats

Les résultats sont visibles dans la figure suivante pour l'acquisition avec  $M = 3$  en utilisant les sinogrammes obtenus avec la focalisation à  $Z_1 = -D/4$ ;  $Z_2 = 0$  et  $Z_3 = +D/4$ . Les zones bien reconstruites, en rouge dans la figure, varient en fonction de la profondeur de focalisation utilisée.

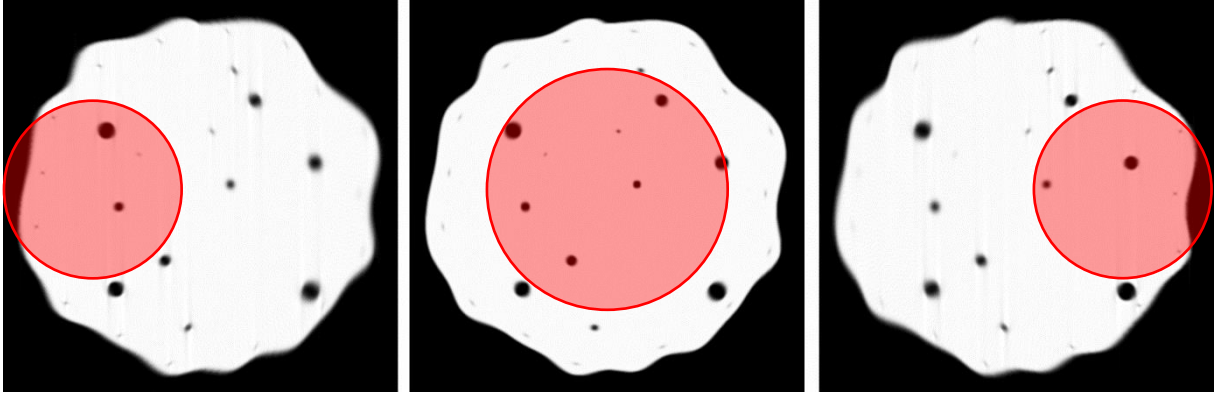


Figure 81 : Reconstructions SIRT>0 de 100 itérations obtenues dans le cas  $A_3$ . (De gauche à droite) reconstructions obtenues indépendamment avec les sinogrammes ayant une focalisation à  $Z_1 = -D/4$ ;  $Z_2 = 0$  et  $Z_3 = +D/4$ . Les zones bien reconstruites sont indiqués en rouge. Ces images montrent l'intérêt d'utiliser les projections des  $M$  acquisitions simultanément pour obtenir une reconstruction de bonne qualité pour tout l'échantillon.

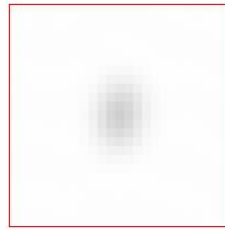
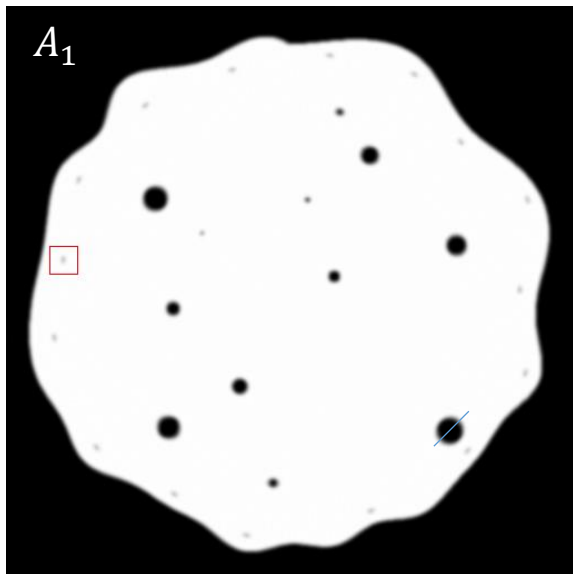
La Figure 81 montre qu'il est nécessaire de reconstruire l'objet en exploitant simultanément les  $M$  acquisitions faites à des profondeurs de focalisation variables  $Z_m$ . La figure montre en effet que des artéfacts sont clairement visibles sur les reconstructions lorsqu'une seule des acquisitions est utilisée à la fois, en particulier pour les profondeurs de focalisation extrêmes ( $Z_1$  et  $Z_3$ ). Ces artéfacts, qui sont des dilatations des trous dans certaines directions, sont dus au fait qu'une zone donnée de l'objet est parfois au focus mais pas toujours en fonction des directions de projections. Pour la focalisation au milieu de l'échantillon ( $Z_2 = 0$ ), puisque le centre est toujours au focus, il n'y a pas d'artéfacts à cet endroit. En s'éloignant du centre, le faisceau étant de moins en moins focalisé, des élongations axiales commencent à apparaître. Il est possible de choisir un point d'intérêt  $P$  de l'objet dont la reconstruction peut être prioritairement améliorée. Ainsi pour un point  $P$  quelconque de l'objet à reconstruire, pour chaque angle de projection, on choisit parmi les  $M$  acquisitions celle qui est au focus. Pour plus de simplicité d'expression, le point  $P$  est exprimé en coordonnées polaires  $(R_p, \Phi_p)$ . Pour un point  $P(R_p, \Phi_p)$ , un sinogramme  $s_p(t, \theta)$  est ainsi défini en fonction des  $M$  sinogrammes  $s_m(t, \theta)$  comme suit :

$$\forall \theta, \forall t, \quad s_p(t, \theta) = s_m(t, \theta) \quad \text{où } m = \arg \min_m |Z_m - R_p \sin(\theta + \Phi_p)| \quad (35)$$

Choisir un tel sinogramme revient à se positionner dans le cas de la Figure 80. Cela signifie que la meilleure des  $M$  projections est choisie pour chaque angle pour le point  $P$  considéré.

On propose de reconstruire l'objet en le découpant en  $8 \times 8$  carrés approximativement de même taille. 64 points  $P$  sont choisis au centre de chacun de ces 64 carrés. Une reconstruction de l'objet complet (SIRT>0 de 100 itérations) est faite pour ces 64 points. Comme les sinogrammes utilisés sont choisis de manière à ce que le point  $P$  sélectionné soit au focus, la reconstruction correspondante est nette pour le point  $P$  et ses alentours. Parmi les 64 reconstructions obtenues, seuls les carrés situés autour du point sélectionné sont conservés. Il faut donc réaliser 64 reconstructions pour obtenir l'objet reconstruit, mais cette reconstruction est nette pour tous les points de l'objet.

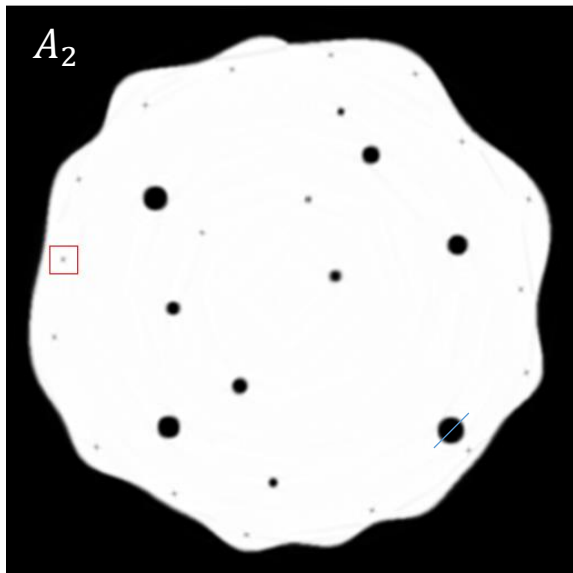
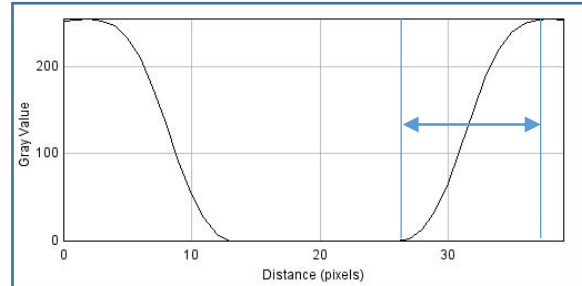
Les reconstructions obtenues en utilisant ces découpages en 64 carrés pour les 3 acquisitions  $A_1, A_2$  et  $A_3$  sont visibles sur la Figure 82. La reconstruction obtenue dans le cas  $A_1$  n'a pas besoin de ce découpage, c'est la reconstruction obtenue avec une seule acquisition focalisée au centre de l'objet. L'intérêt de la reconstruction avec un focus multiple est donc visible sur la Figure 82 par comparaison avec la reconstruction dans le cas  $A_1$  en tant que témoin d'une tomographie classique constituée d'une seule acquisition. Les reconstructions obtenues montrent que la résolution est améliorée avec des transitions plus abruptes pour  $M = 2$  et encore plus pour  $M = 3$ . Elles montrent également que la reconstruction est plus fidèle au fantôme original. Une élongation dans les directions transversales par rapport au centre de rotation est visible dans le cas de la reconstruction  $A_1$ . Ces élongations ont disparu pour les reconstructions dans les cas  $A_2$  et  $A_3$ . La valeur de niveau de gris au centre d'un petit trou du bord, qui est de 0 dans le fantôme original, s'améliore également avec le nombre d'acquisitions puisqu'elle passe respectivement de 0,82 à 0,71 à 0,64 pour  $M = 1, 2$  et 3.



Valeur au centre : 0.82

Élongation dans la direction verticale

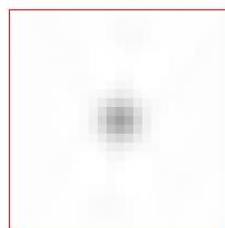
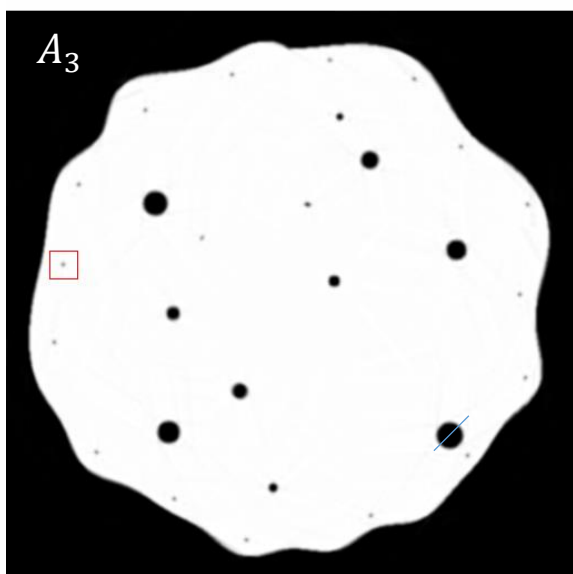
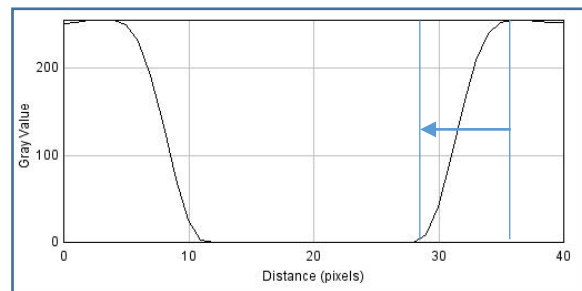
Transition de 10 pixels



Valeur au centre : 0.71

Reconstruction isotrope

Transition de 7 pixels



Valeur au centre : 0.64

Reconstruction isotrope

Transition de 6 pixels

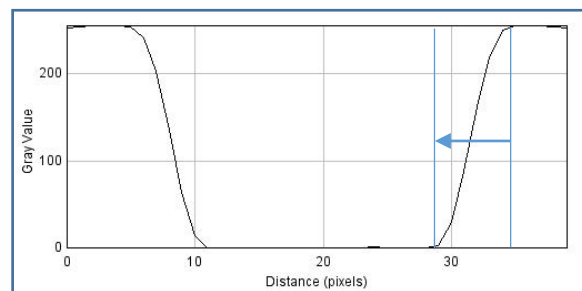


Figure 82 : Comparaison des résultats obtenus dans les cas  $A_1$ ,  $A_2$  et  $A_3$ . La qualité de la reconstruction est améliorée avec le nombre d'acquisition  $M$  qui augmente. Les transitions dans l'objet sont plus abruptes (profil bleu du trou numéro 1) et les valeurs de niveaux de gris et les formes sont plus fidèles (zoom en rouge sur un petit trou de valeur 0 dans le fantôme).

**IV. 2. c. (iv) Conclusions**

Les résultats obtenus en simulations pour l'utilisation de la reconstruction avec focus multiple sont prometteurs et pourraient permettre d'améliorer la résolution et même limiter certains artefacts d'élongation en tomographie comme nous avons pu le voir dans le cas du fantôme proposé. Comme il a été dit dans la partie IV.2.a, ce n'est néanmoins pas encore la résolution des projections 2D qui limite le plus la résolution en tomographie. Ultimement, la solution de focus multiple que nous proposons semble tout de même une solution relativement simple à mettre en œuvre et qui pourrait permettre *in fine* d'étendre à la 3D la meilleure résolution qu'il est possible d'obtenir en TEM. En pratique, il est tout de même difficile de focaliser la sonde électronique à un endroit précis et identique pour toutes les directions de projections utilisées si l'objet à observer ne s'y prête pas. En effet, la présence de détails fins dans l'objet à différentes profondeurs est importante pour pouvoir réaliser un focus précis à plusieurs endroits lors de l'acquisition.



### 3) S'adapter aux échantillons à faible tenue sous le faisceau d'électrons à l'aide d'un alignement non-rigide

---

La tomographie électronique peut être délicate si l'échantillon s'endommage au cours de l'acquisition. Un échantillon qui se modifie sous le faisceau électronique n'est alors pas compatible avec la reconstruction de tomographie. Certains échantillons présentent intrinsèquement une faible tenue sous le faisceau électronique. C'est le cas des échantillons faits à partir de matériaux légers comme les échantillons biologiques, ou des échantillons très fin. Des échantillons ne présentant pas *a priori* une faible tenue sous le faisceau peuvent tout de même subir de fortes déformations dans le cas d'une dose électronique élevée. La dose électronique est le nombre d'électrons traversant l'échantillon, c'est le produit du courant et du temps d'exposition global. Des doses électroniques élevées sont typiques pour la tomographie analytique en STEM EELS ou STEM EDX par exemple.

Toute cette partie est issue de l'article [153] qui a été publié au cours de cette thèse dans *Journal of Microscopy*. Cet article présente une technique de correction des déformations en tomographie électronique basée sur un alignement non-rigide. Cette technique est simple à implémenter à partir d'une technique d'alignement rigide existante. Elle fournit tout de même de bons résultats puisqu'elle permet de corriger la majeure partie des artéfacts existants dans les reconstructions présentées. L'alignement non-rigide proposé peut également servir à corriger les déformations apparentes des projections 2D qui sont dues à la dérive de l'échantillon au cours de l'acquisition d'une image STEM.

La partie suivante est l'article [153] original, en anglais, avec quelques changements mineurs dans les notations de façon à conserver une cohérence globale dans l'écriture de cette thèse.

### IV. 3. a. Abstract

Electron tomography is a key technique that enables the visualization of an object in 3 dimensions with a resolution of about a nanometer. High quality 3D reconstruction is possible thanks to the latest compressed sensing algorithms and/or better alignment and pre-processing of the 2D projections. Rigid alignment of 2D projections is routine in electron tomography. However, it cannot correct misalignments induced by (i) deformations of the sample due to radiation damage or (ii) drifting of the sample during the acquisition of an image in scanning transmission electron microscope mode. In both cases, those misalignments can give rise to artefacts in the reconstruction. We propose a simple-to-implement non-rigid alignment technique to correct those artefacts. This technique is particularly suited for needle-shaped samples in materials science. It is initiated by a rigid alignment of the projections and it is then followed by several rigid alignments of different parts of the projections. Piecewise linear deformations are applied to each projection to force them to simultaneously satisfy the rigid alignments of the different parts. The efficiency of this technique is demonstrated on three samples, an intermetallic sample with deformation misalignments due to a high electron dose typical to spectroscopic electron tomography, a porous silicon sample with an extremely thin end particularly sensitive to electron beam and another porous silicon sample that was drifting during image acquisitions.

### IV. 3. b. Introduction

Electron Tomography (ET) [120] is a key technique that allows the non-destructive 3D imaging with a spatial resolution of about a nanometer. 2D projections are acquired using a Scanning Transmission Electron Microscope (STEM). Depending on the resolution aimed, many projections [97] should be acquired while rotating the object on 180° ideally. Inversion algorithms are then used to reconstruct a 3D volume with Z-contrast sensitivity, in the particular case of High Angle Annular Dark Field (HAADF) STEM tomography. Reconstruction theory is not specific to ET and therefore benefits from strong mathematical background from X-ray tomography and medical applications [157], [158]. However ET has very specific issues such as (i) strong misalignments between the projections, (ii) imprecisely determined tilt axis, (iii) limited tilt range called missing wedge, (iv) small signal-to-noise ratios and (v) damage under electron beam. Recent developments aim at correcting those issues, *e.g.* by enhancing the alignment accuracy and performing denoising prior to reconstruction [126] or by

including *a priori* knowledge to compensate for the lack of information that is due to missing wedge and limited number of projections in ET [87], [100], [104], [105].

To our knowledge, a non-addressed problem is the Non-Rigid Misalignments (NRM) in ET in materials science. Yet, non-rigid registration has been widely used for medical applications [159]–[161]. Recent works even propose to use non-rigid registration for STEM images [162], [163]. NRM have at least two origins in ET. The first one is due to progressive damage of the sample under the electron beam [35]. As a consequence the set of 2D projections is inconsistent which leads to artefacts in the reconstruction. Another cause is the sample drift during the acquisition of a STEM image. To have a sufficiently good signal-to-noise ratio, time acquisition of a single STEM image is typically of a few tens of seconds. During this time, the sample can drift by a few nanometers which may generate a distorted image.

In our opinion, NRM has probably not been addressed yet in materials science because it is a second order effect compared to other issues such as rigid-misalignment, incorrectly determined tilt axis or missing wedge. However, those primary sources of artefacts are now well corrected using robust alignment techniques [126], [147], [164], [165]. Therefore, particularly with needle-shaped samples preventing from missing-wedge, NRM is now one of the main limiting factors. We propose a simple-to-implement technique that efficiently corrects most of the artefacts due to NRM. An intermetallic sample and two Porous Silicon (PSi) samples are used to test our technique in the rest of the paper.

### IV. 3. c. Materials and methods

#### *IV. 3. c. (i) PSi sample #1*

Erbium doped PSi has very interesting light emitting properties [166], [167]. PSi is thus a good candidate for Si-based optoelectronic devices. 3D characterization is necessary to better understand the geometry and size of the pores as well as the erbium distribution beside the pores. That information cannot be extracted from a 2D STEM image as can be seen in Figure 83 and Figure 88. We used an erbium doped PSi specimen prepared with a similar process than described in [168]. A needle shaped-sample has been prepared using a FEI® FIB Strata instrument. PSi sample #1 has a diameter of around 20 nm at the top and a diameter of around 200 nm after 700 nm, see Figure 83. Images are obtained using a FEI Titan Ultimate at 80 kV in STEM HAADF mode. Since a single acquisition produces

a progressive damage that is hard to observe, we acquired 2 tilt series. 181 projections with a constant tilt step of  $1^\circ$  are acquired first between  $-90^\circ$  and  $+90^\circ$ , then a 2<sup>nd</sup> second acquisition of 180 projections is made with the same tilt step between  $-89.5^\circ$  and  $89.5^\circ$ . A large difference in cumulative electron dose corresponding to 180 projections thus exists for neighboring projections. As a consequence, the radiation damage is easier to observe with 2 acquisitions than with a single acquisition that produces a progressive damage. Images are acquired using the FEI software Inspect3D<sup>®</sup>. Parameters for the acquisitions are: a resolution of 1296 x 4096 pixels, a pixel size of 0.29 nm, an acquisition time of 20 s per projection, a camera length of 115 mm and probe current of about 0.1 nA.

#### ***IV. 3. c. (ii) PSi sample #2***

Another PSi sample is used to show that the NRA we propose can be used to correct NRM due to sample drift. This second PSi sample has been prepared using a FEI FIB Strata instrument. PSi sample #2 has a diameter of around 200 nm, Figure 88. Projections are obtained using a FEI Titan Themis at 80 kV in STEM HAADF mode. 181 projections with a constant tilt step of  $1^\circ$  have been done with a resolution of 878 x 2041 pixels, a pixel size of 0.47 nm, an acquisition time of 10 s, a camera length of 110 mm and probe current of about 0.1 nA.

#### ***IV. 3. c. (iii) Intermetallic sample***

The intermetallic sample studied is a TiAl metallization on a nitrogen-rich substrate  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$  [169]. This metallization is a potential candidate for resistive ohmic contacts in AlGaIn/GaN high-electron-mobility transistor power devices. Different intermetallic phases are formed at the interface. ET is of interest to understand the shape, and composition of those intermetallic phases. A needle shaped-sample has been prepared using a FEI<sup>®</sup> FIB Strata instrument. The sample has a diameter of around 175 nm. Images are obtained using a FEI Titan Themis at 200 kV in STEM HAADF mode.

We realized a STEM HAADF tilt series acquisition between  $-90^\circ$  and  $+90^\circ$  using a tilt step of  $1^\circ$ . During this acquisition, Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy (EDS) maps have been acquired with a tilt step of  $5^\circ$ . Acquisition time was 6 s for the STEM HAADF images and around 4 min for the EDS maps. The EDS results are not presented in this paper but NRM are important for this sample because of the high electron dose typical to EDS tomography [123]. The probe current was about 0.2 nA, the camera length used was 110 mm, and the HAADF image resolution was 1024x1024 pixels.

#### ***IV. 3. c. (iv) Non-rigid alignment***

The Non-Rigid Alignment (NRA) technique we propose is an extension of the complete procedure of reference [126] that is based on Rigid Alignment (RA). In that work shift misalignments are calculated differently for the direction of the tilt axis ( $\vec{z}_0$ ) and the direction perpendicular to that axis ( $\vec{x}_\theta$ ). X-misalignments are calculated using intermediate reconstructions on a slice while Z-misalignments are calculated using 1D cross-correlation on the Common Line (CL). The CL is the 1D projection of a 2D image in the direction perpendicular to tilt axis. Assuming perfect rotation and acquisition, the CL is identical for all images. The NRA we propose starts with shift alignment and correction of tilt axis misalignment as described in [126]. Then the aligned projections are split into different parts. The projections could be divided in consecutive parts with the same size as was done using 6 parts for PSi sample #2, but more accurate results are often obtained optimizing the position of those parts depending on the sample. The smaller the parts, the finer the deformation correction can be. However, small parts can also lead to errors in shift determination. As a consequence an optimum must be found depending on the sample. For PSi sample #1, since the top of the sample is very thin, it is very sensitive to radiation damage. Therefore we used smaller parts in the top of the needle than in the rest of the sample which is thicker and as a consequence more resistant to beam damage, Figure 83. For samples giving small contrast in some parts of the projections it is useful to choose the parts carefully. The CL image can be used to determine parts with enough contrast for a reliable Z-shift determination. This has been done for the intermetallic sample, Figure 84. We chose 4 parts showing important variations in the CL. Once the parts are defined, the procedure of fine shift alignment of reference [126] is done for every part. With NRM, misalignments are not the same for the different parts of the projections. We propose to make piecewise linear interpolations of the calculated X and Z shifts to extend those shifts to every lines of the projections, Figure 83. To apply the non-integer shifts, new pixel values are obtained by bilinear interpolations of the original projections. The implementation of this interpolation is done using the Matlab® function *interp2*.

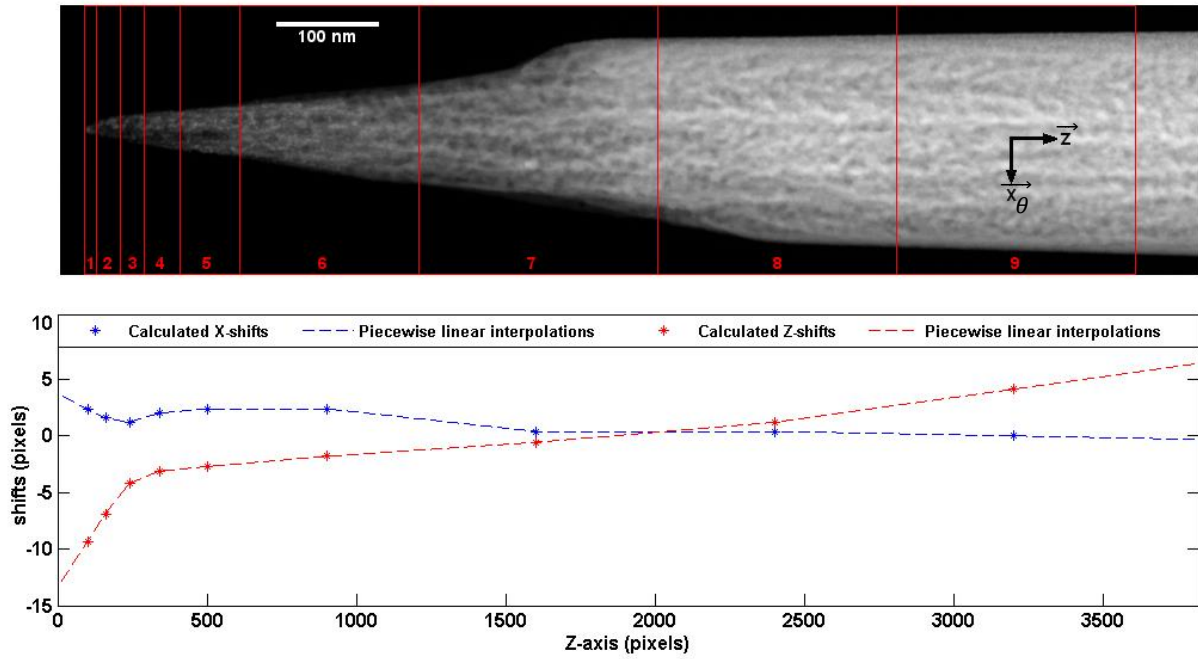


Figure 83 : A projection of PSI sample #1 with the 9 parts used for independent RA (top) and corresponding X and Z shifts with piecewise linear interpolations (bottom).

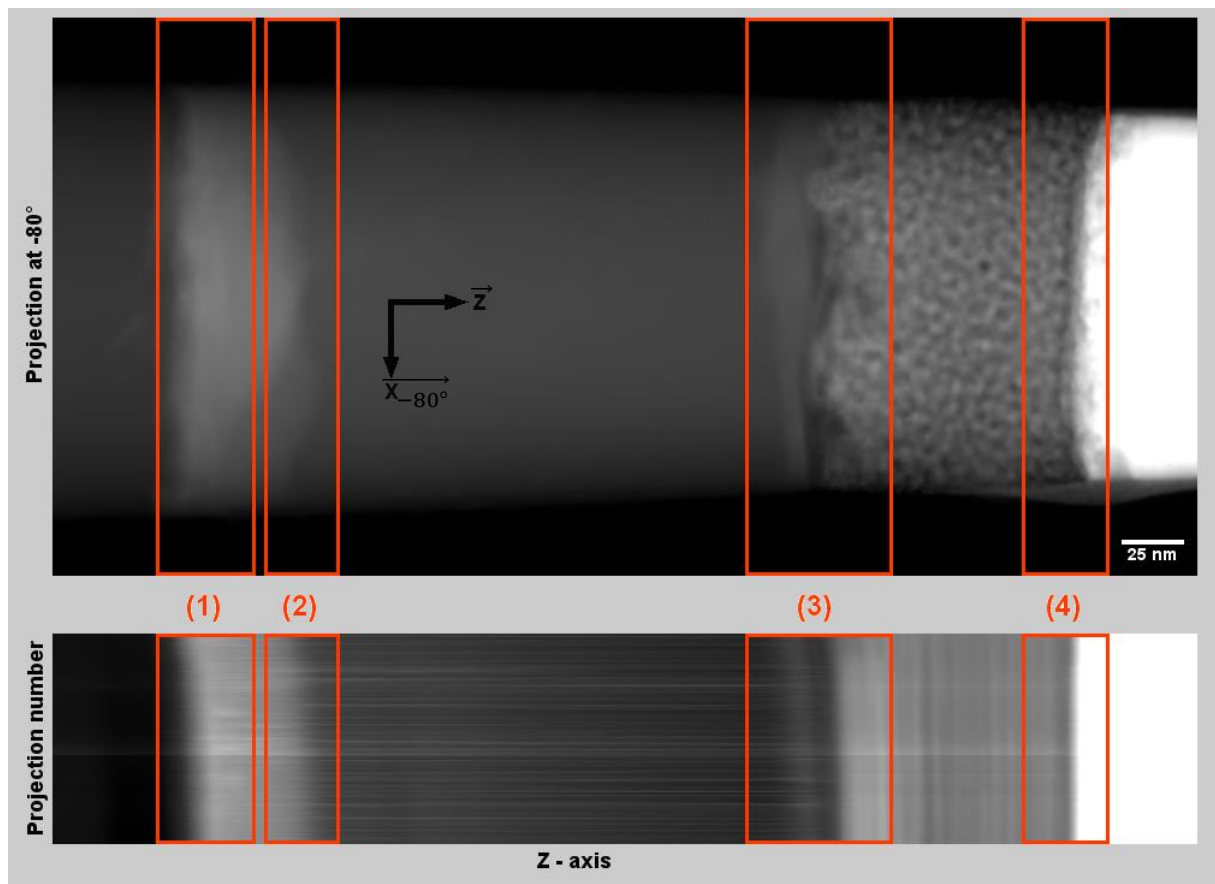
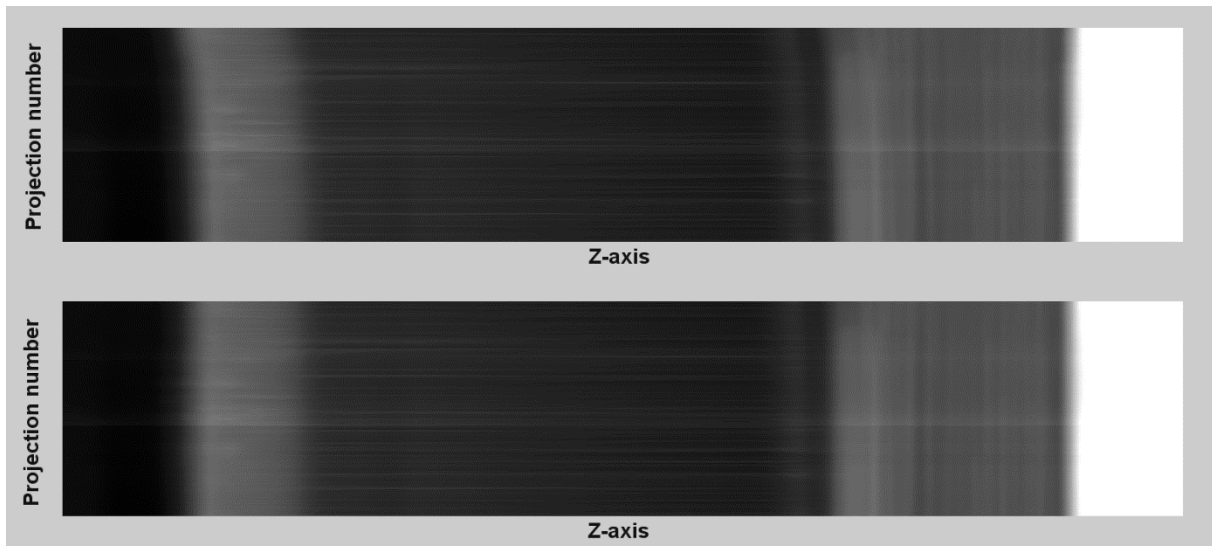


Figure 84 : A projection (top) and the CL representation (bottom) of the intermetallic sample and the 4 parts used for independent RA. The middle of the projections doesn't present enough contrast for a reliable Z-shift determination. We chose 4 parts of the projections with important variations in the CL.

## IV. 3. d. Results

### *IV. 3. d. (i) Alignment accuracy*

The X and Z alignment quality is visually assessed using sinograms and CL respectively. As explained before, with perfect rotation and acquisition, the CL is identical for all projections. As a consequence the image representing the CL for every projection should be composed of vertical lines only (Figure 85). Z rigid misalignments are visible in the CL image by the translation of a line compared to the others. NRM looks like a part of a line is well aligned while another part of the same line is misaligned. NRM can be seen in Figure 85 after the RA of the intermetallic sample. Indeed the right part of the CL image shows a good Z-alignment but on the left part misalignments are visible since lines are not completely vertical.



*Figure 85 : CL representation of the intermetallic sample for RA (top) and NRA (bottom). NRM are visible on the CL representation of the RA since lines on the right are vertical while they are not in the left part of the profiles. Residual diffraction contrast is responsible for horizontal lines.*

The X-alignment accuracy can be visually estimated using the sinograms, but a progressive deformation is difficult to see. This is why, for PSi sample #1, we made two acquisitions of 181 and 180 projections as explained before. By sorting the projections relative to their tilt angle, the deformations of the sample are not progressive anymore. Clear deformations between neighboring projections give discontinuities in the sinograms of PSi sample #1. As can be seen in Figure 86, the NRA we propose corrects most of those misalignments.

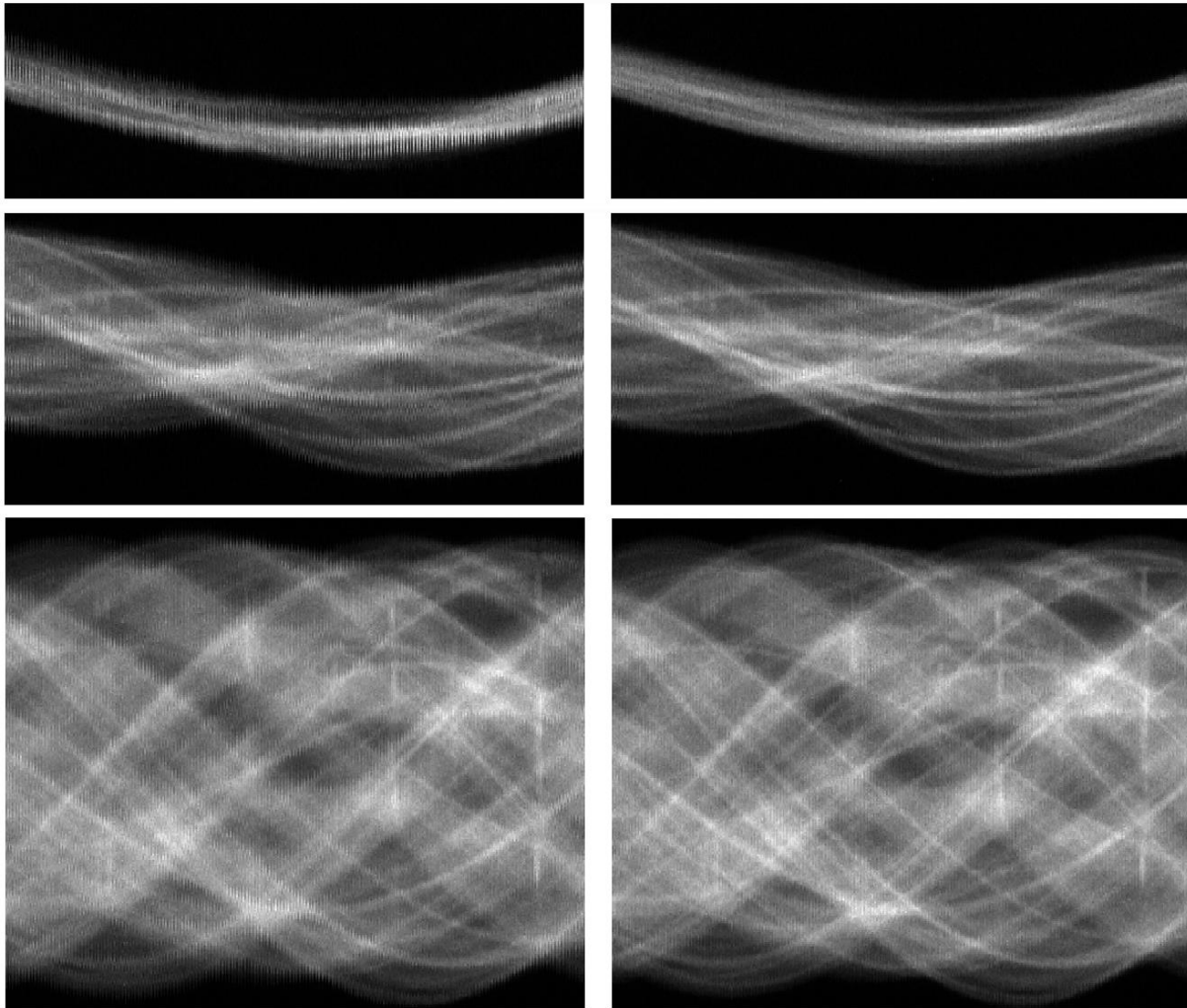


Figure 86 : Three sinograms of PSI sample #1 after RA (left) and corresponding sinograms after NRA (right).

Deformation is also visible in Figure 87 by superposition of projections at  $-90^\circ$  and  $-89.5^\circ$  of PSI sample #1. As seen in Figure 87, RA leads to strong misalignments while the NRA we propose produces a much better alignment.

PSi sample #2 is used to demonstrate the correction of NRM due to sample drift during the acquisition of a single STEM image. NRM of PSI sample #2 can be assessed by looking at the sinograms after RA, Figure 88. Misalignments are NRM since they are more important in sinogram (C3) than in (C1) or (C2). Moreover, those misalignments are not due to a progressive sample deformation but to drift distortions since they only concern a few isolated projections all along the acquisition. The NRA we propose clearly shows alignment improvements by looking at the zoom (D3) of Figure 88. Discontinuities in the borders of the sample are mainly corrected for the three sinograms after the NRA (D1, D2 and D3) while RA was unable to correct those discontinuities for all the sinograms simultaneously and particularly for (C3).



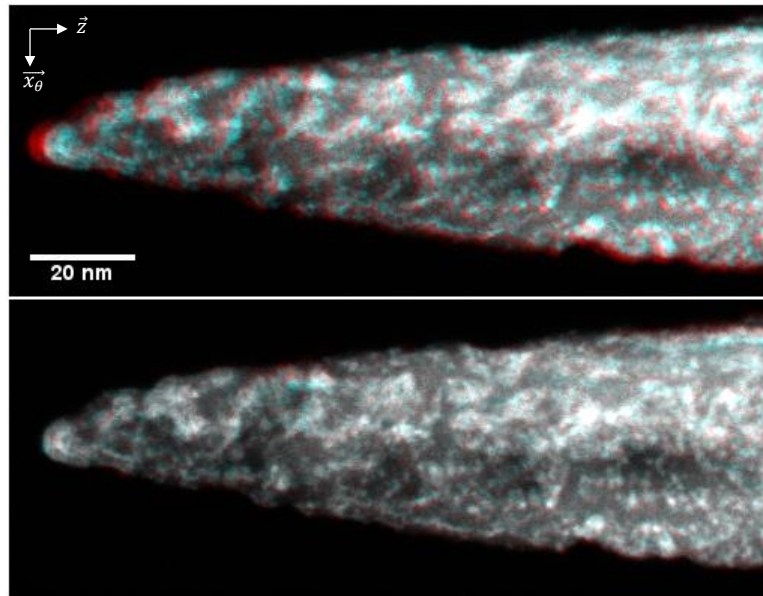


Figure 87 : Superposition of neighboring projections ( $-90^\circ$  and  $-89.5^\circ$ ) using colors for the RA (top) and the NRA (bottom). Red canal is used for the  $-90^\circ$  projection and green and blue canals are used for the projection at  $-89.5^\circ$ . Mismatch between the projections is clearly visible after the RA, this mismatch is mostly corrected after the NRA we propose.

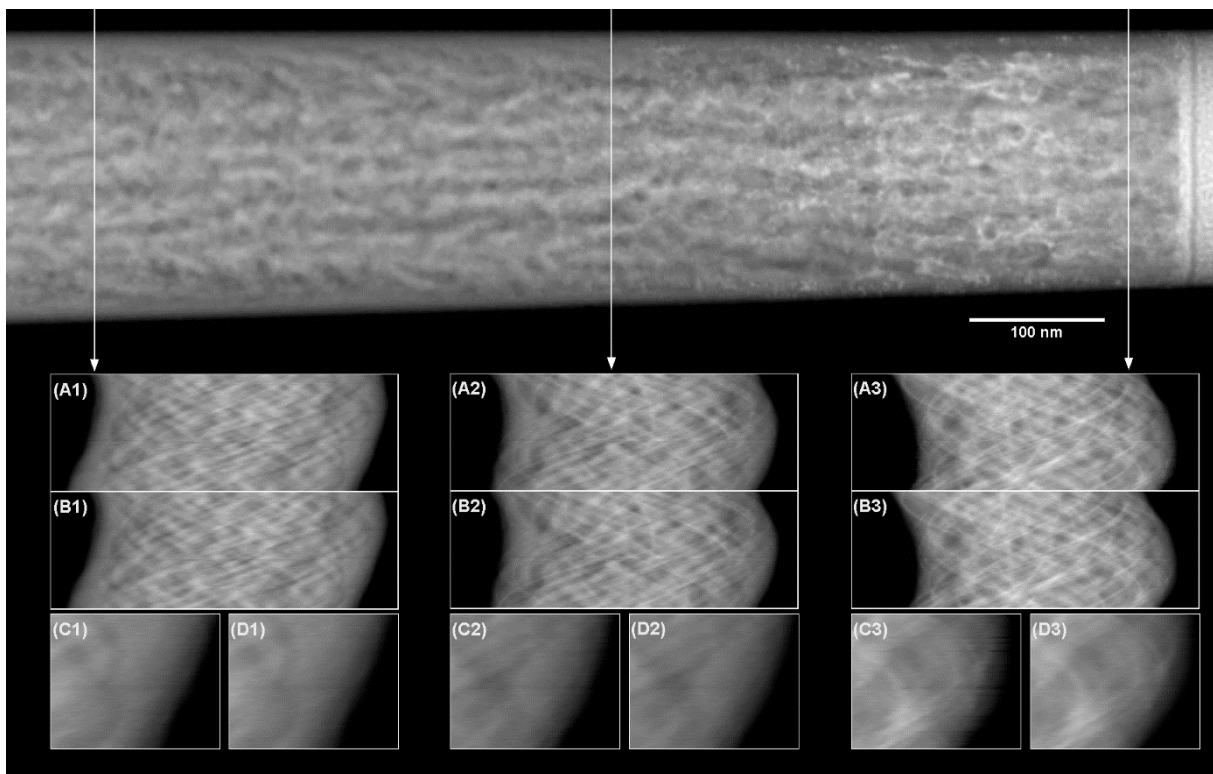


Figure 88 : A projection of PSi sample #2 and three sinograms at different parts of the sample. (A) Sinograms of the projections after the RA of reference [126]. (B) Sinograms obtained after the proposed method of NRA. (C) Zooms in the sinograms (A); (D) equivalent zooms in the sinograms (B).

#### IV. 3. d. (ii) Reconstruction improvements

3D reconstructions are obtained using a Simultaneous Iterative Reconstruction Technique with 100 iterations and positivity constraints [126]. Differences in 3D reconstructions after RA and NRA are particularly important at the top of PSi sample #1, Figure 89. Many artefacts exist in the reconstruction obtained after RA. Those artefacts make impossible the separation of clusters at the top of the sample and produce inconstant grey level inside the silicon, particularly next to the white clusters. Those artefacts are mainly corrected by the NRA we propose.

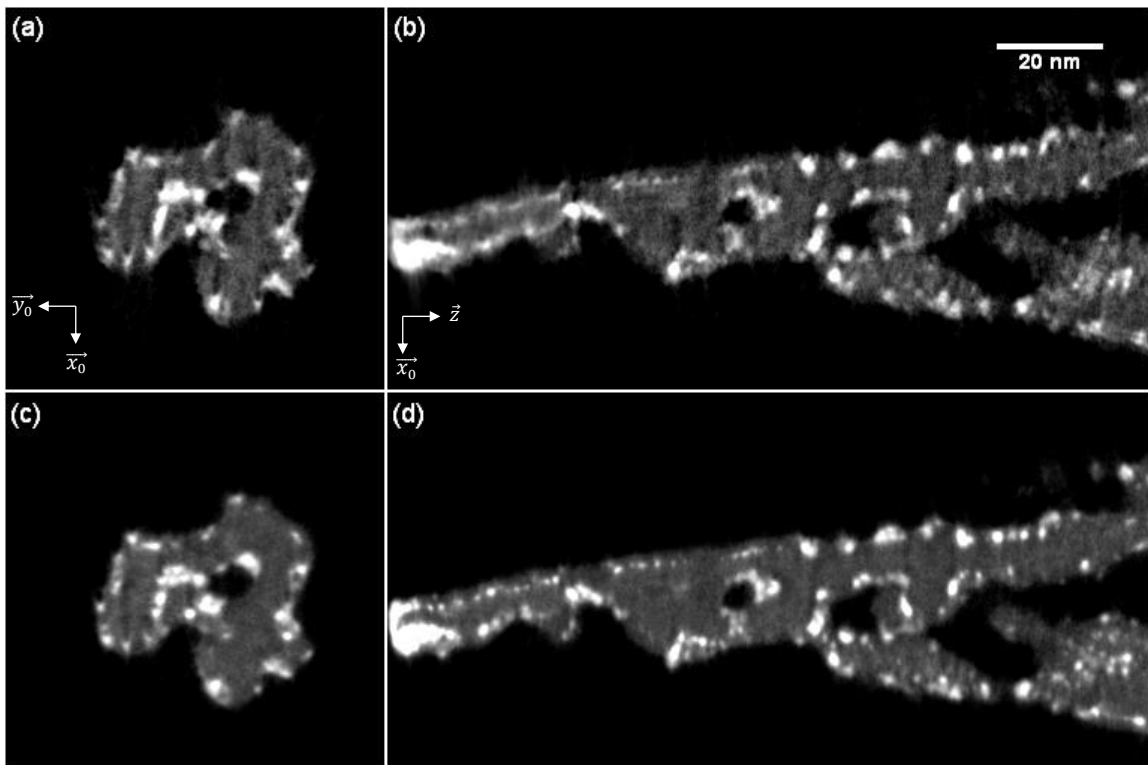


Figure 89 : Slices in the 3D reconstructions of PSi sample #1 after RA and NRA. (a) An axial slice after the RA and (c) the same slice after the NRA, (b) a sagittal slice after the RA and (d) the same slice after NRA.

The NRM of PSi sample #2 concerns too few projections to produce strong artefacts in the reconstruction. In this case a RA gives almost artefact-free reconstructions just like the NRA.

The reconstruction of the intermetallic sample using RA is strongly affected by misalignment artefacts. Some of those artefacts are pointed out by red arrows in Figure 90. As can be seen in Figure 90, most of those artefacts are well corrected by the NRA we propose.

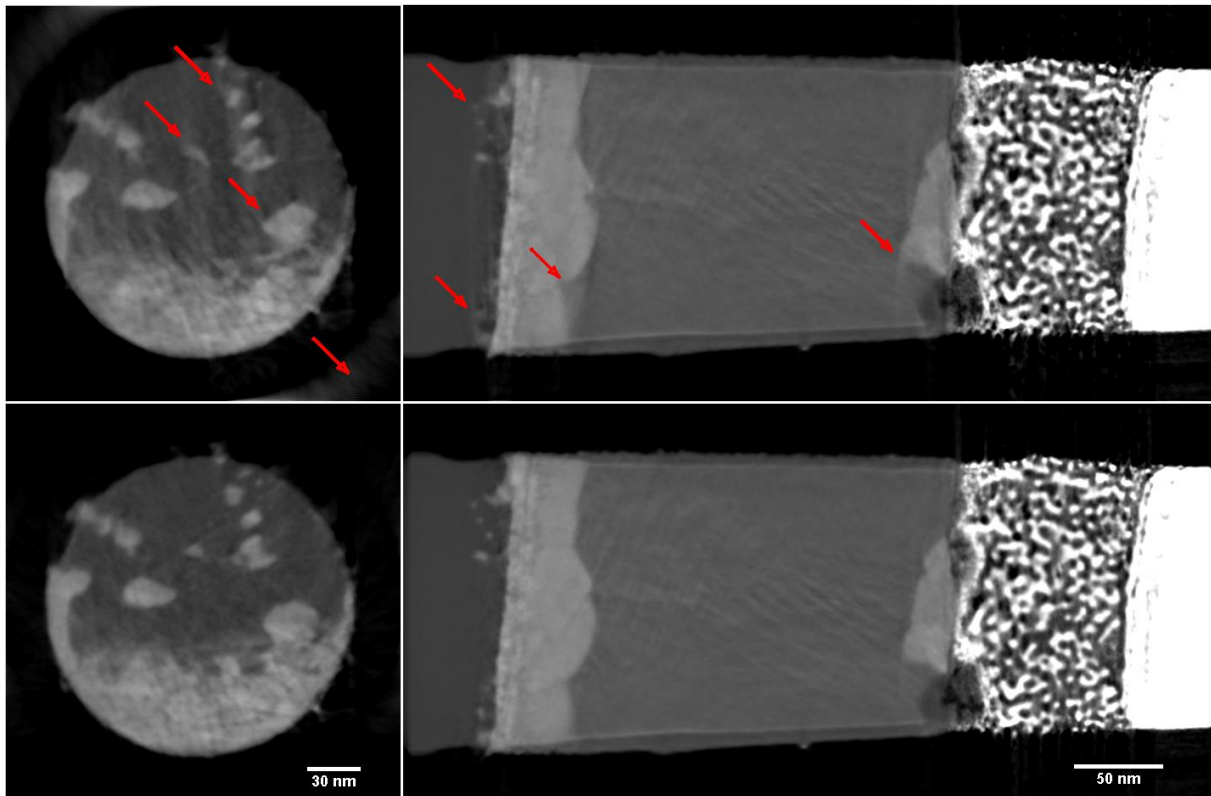


Figure 90 : Comparison of the intermetallic sample reconstructions using RA and NRA. (A,C) an axial slice in the part 1 defined in Figure 84 using respectively RA and NRA. (B,D) a sagittal slice using respectively the RA and NRA. Some misalignment artefacts are pointed out by red arrows.

### IV. 3. e. Discussion

The NRA we propose is easy to implement using an existing RA technique such as [126]. The main advantage of this NRA is its simplicity that still yields good results in practice. As seen in Figure 89 and Figure 90, this technique corrects most of the NRM artefacts. Since this method only uses RA of different parts of the projections, it has few inputs. The inputs are mostly the number and size of parts used for RA. In our opinion, this limited number of input brings reliability and implementation simplicity to the technique. The parts are chosen manually, and we proposed to use the CL representation to choose parts with enough contrast as was done for the intermetallic sample. This manual choice of splitting parts is a limitation of the technique. A further investigation may concern a more rigorous and automatic determination of splitting parts based for example on the size of the parts compared to the shifts determined. Another limitation of this technique is that it corrects deformations in X and Z directions but only with a piecewise linear variation depending on Z. As a consequence, it won't correct some NRM such as shrinkage in the X-direction.

Sample drift during the acquisition of a single STEM image can also produce distorted images. PSi sample #2 has been used to demonstrate that our NRA can correct those NRM too. As seen in Figure 88, the alignment accuracy is better with the NRA we propose than with a RA. Since our technique applies linear deformations depending on Z, the scanning orientation should be properly defined. It is indeed necessary for correction of those NRM to scan the sample in lines perpendicular to the tilt axis. In that case, the sample drift leads to deformations depending mostly on Z since the scanning time of a line is really small compared to the scanning time of the whole image. This mostly Z-related deformation can thus be corrected by the proposed NRA as shown in Figure 88.

### **IV. 3. f. Conclusions**

An easy-to-implement NRA in ET has been presented. It uses several classical RA in different parts of the projections. The different X and Z misalignments are then interpolated to the whole projections using piecewise linear interpolation to simultaneously satisfy the different RA. This new NRA has been tested on three real datasets. As shown using both CL image and sinograms, the alignment accuracy is much better using this NRA for the three samples. Reconstructions obtained after NRA are almost artefact-free while a classical RA was unable to lead to a good reconstruction in every parts of the intermetallic sample and PSi sample #1.

### **IV. 3. g. Acknowledgment**

This work was supported by the French “Recherche Technologie de Base” (RTB) program. The authors acknowledge access to the nanocharacterization platform (PFNC) at the Minatec Campus in Grenoble. The authors thank Alphonse Torres from CEA Leti for providing the intermetallic specimen, and Guido Mula from Cagliari University for providing the PSi specimens.



# *Chapitre V*

# *TOMOGRAPHIE ANALYTIQUE*

## *Contenu du chapitre V*

La 1<sup>ère</sup> partie de ce chapitre présente les 2 échantillons qui sont utilisés ainsi que le procédé permettant d'obtenir une reconstruction 3,5D, ou autrement dit, plusieurs reconstructions 3D correspondant aux éléments présents dans l'échantillon.

La 2<sup>ème</sup> partie de ce chapitre, propose d'adapter les méthodes présentées précédemment au cas de la tomographie 3,5D. Il s'agit d'exploiter avantageusement le fait que plusieurs séries de projections soient disponibles pour un seul et même échantillon.

La 3<sup>ème</sup> partie compare les résultats obtenus avec et sans exploitation de la multiplicité des séries de projections, au niveau du débruitage, de l'alignement et des résultats 3D.





# 1) Reconstructions 3,5D d'éléments chimiques

## V. 1. a. Présentation des échantillons

### V. 1. a. (i) Un échantillon HEMT

#### Contexte scientifique

Dans le cas des transistors à haute mobilité électronique (HEMT pour “*High Electron Mobility Transistor*”), l’utilisation de matériaux à base de nitrure de gallium (GaN) est prometteuse. Des contacts ohmiques de très bonne qualité sont néanmoins nécessaires pour aller vers une industrialisation de ces transistors HEMT à base de GaN. L’utilisation d’un empilement de titane et d’aluminium a déjà donné de bons résultats en termes de résistance de contact, mais ces résultats s’avèrent très dépendants de la composition de la couche de Ti/Al et des températures de recuit utilisées. Des études préliminaires 2D sur la composition chimique à l’échelle nanométrique ont d’ores et déjà apporté des réponses sur cette sensibilité du contact. La Figure 91, adaptée de la référence [169], synthétise la compréhension actuelle du phénomène. L’explication tient à un phénomène de pompage de l’azote présent dans la couche AlGaN avec une température de recuit intermédiaire (600°C) qui devient plus important avec une température de recuit de 900°C, à telle point qu’une absorption du diazote de l’environnement est également observée.

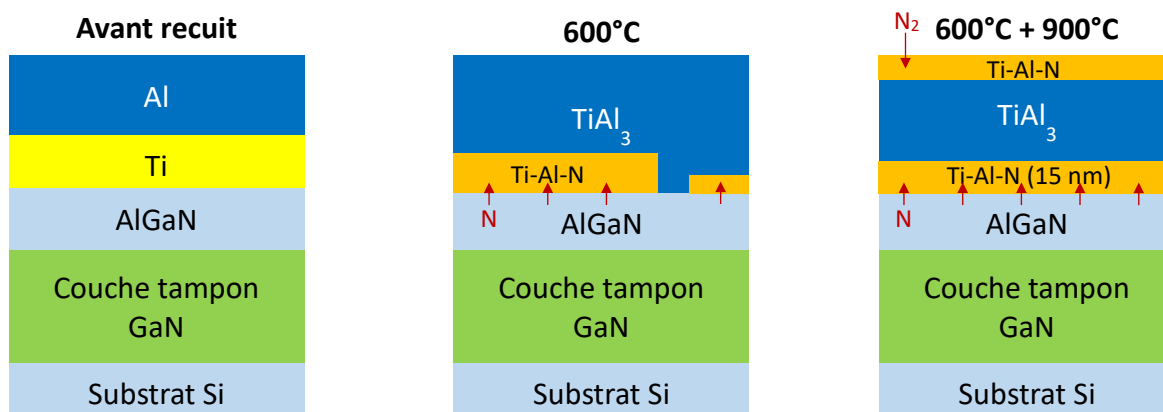


Figure 91 : Représentation du phénomène de métallisation de la couche de Ti/Al avant et après recuit à 600°C et à 600 puis 900°C. Figure adaptée de la référence [169]



## Besoin d'une information 3D sur la composition chimique

Pour aller plus loin encore dans la compréhension des mécanismes affectant la qualité du contact ohmique, une analyse 3D de la composition chimique au niveau du contact est nécessaire. Étant données les dimensions de l'empilement à caractériser (15 nm pour la couche de Ti-Al-N), la tomographie analytique STEM EDX est une technique de choix pour cet échantillon.

### V. 1. a. (ii) Un transistor 28 nm de STMicroelectronics

#### Contexte scientifique

Des données de tomographie STEM EDX d'un échantillon provenant de STMicroelectronics sont également utilisées dans cette partie. Ces données ont été fournies gracieusement par Frédéric Lorut et Kevin Lepinay (STMicroelectronics). Ces données concernent des transistors FDSOI ("Fully Depleted Silicon On Insulator") de la technologie 28 nm utilisés dans des mémoires SRAM ("Static Random Access Memory"). La préparation d'échantillon ainsi que l'acquisition de la série de projections EDX et l'extraction des projections élémentaires depuis les spectres ont été réalisées à STMicroelectronics sur le site de Crolles. Dans la pointe réalisée, 3 transistors sont présents comme on peut le voir sur la Figure 92 contenant une image TEM de la pointe analysée et un schéma représentant les trois transistors.

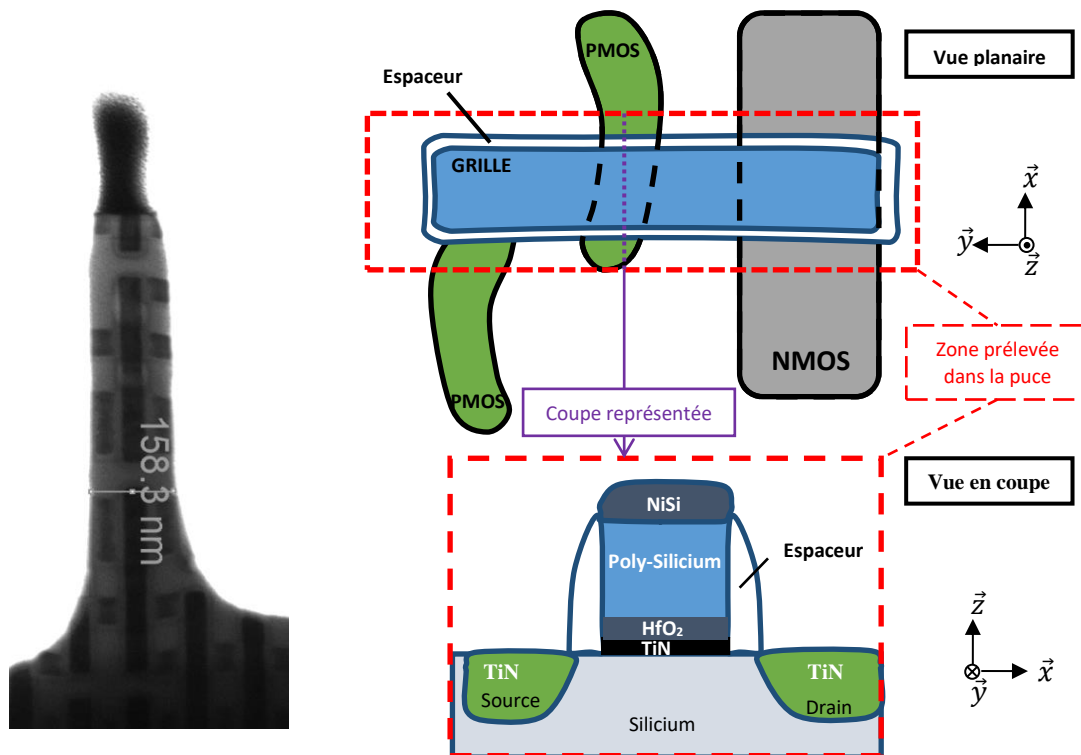


Figure 92 : image TEM Osiris (ST Crolles) de l'échantillon en forme de pointe analysé et schémas représentant la zone analysée avec les 3 transistors en vue planaire et un transistor PMOS en vue en coupe

### ***Besoin d'une information 3D sur la composition chimique***

Beaucoup d'éléments sont présents dans un dispositif de microélectronique comme celui qui est présenté ici. C'est pourquoi une analyse 3D avec un contraste en Z, n'est souvent pas suffisante pour comprendre complètement la morphologie 3D et l'emplacement des différents éléments constituant le dispositif. Parmi les éléments présents, il y a le silicium évidemment, mais également du titane et de l'azote dans la source, le drain et à la base de la grille. Les éléments hafnium, oxygène et nickel sont aussi présents dans l'empilement de la grille. Enfin, des dopants tels que le germanium et l'arsenic sont également présents. De plus, pendant la préparation de l'échantillon en forme de pointe, un dépôt amorphe a été réalisé sur le dispositif (oxygène, carbone et silicium). Une enveloppe protectrice en chrome a également été déposée tout autour de la pointe pour rendre l'échantillon plus résistant au faisceau d'électrons pendant l'acquisition.

Les deux échantillons présentés sont appelés HEMT et ST28 dans la suite de ce chapitre.

## **V. 1. b. Acquisition des données de tomographie**

### ***V. 1. b. (i) Préparation d'échantillon et paramètres d'acquisition utilisés***

#### ***Échantillon HEMT***

L'échantillon HEMT a été préparé en forme de pointe avec un diamètre d'environ 170 nm au FIB. Une image STEM HAADF de l'échantillon est visible dans la figure suivante.

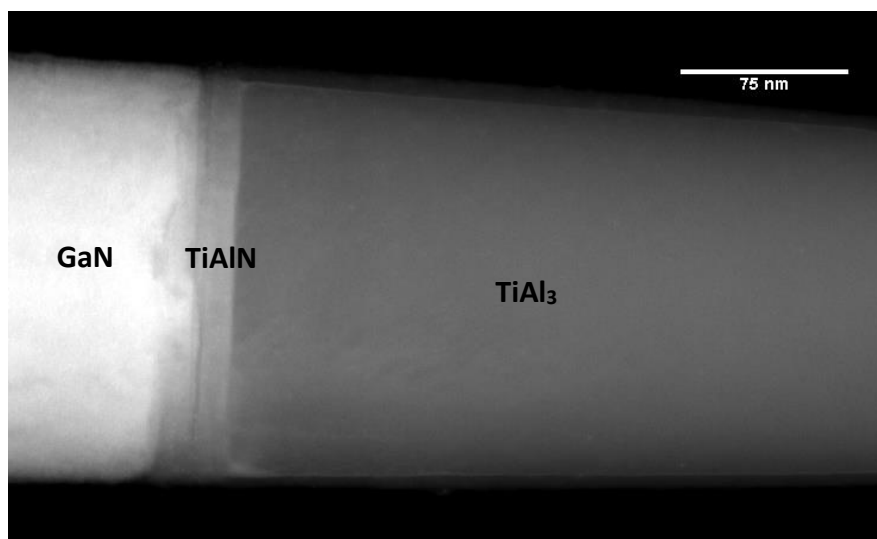


Figure 93 : Image STEM HAADF de l'échantillon en forme de pointe HEMT (Titan Thémis PFNC Grenoble). L'empilement de gauche à droite est : une couche tampon de GaN, une couche de TiAlN avec une certaine rugosité difficilement interprétable depuis une image en projection uniquement, et enfin la couche de TiAl<sub>3</sub>

Pour l'acquisition, le microscope Titan Thémis de FEI présent sur la plateforme de nano-caractérisation du CEA Grenoble a été utilisé. Une série de 36 projections avec un pas angulaire de 5°, donc une étendue idéale de 180°, a été acquise. Les projections ont une résolution de 200 × 103 pixels, ce qui permet d'obtenir une cartographie en 7 minutes avec une dizaine de coups par canal d'énergie et une taille de pixels d'environ 1 nm. Vu le nombre limité de projections disponibles, il n'est pas nécessaire de réaliser des cartographies avec beaucoup de pixels puisque la résolution de la reconstruction 3D est très limitante et que le niveau de bruit est déjà très important.

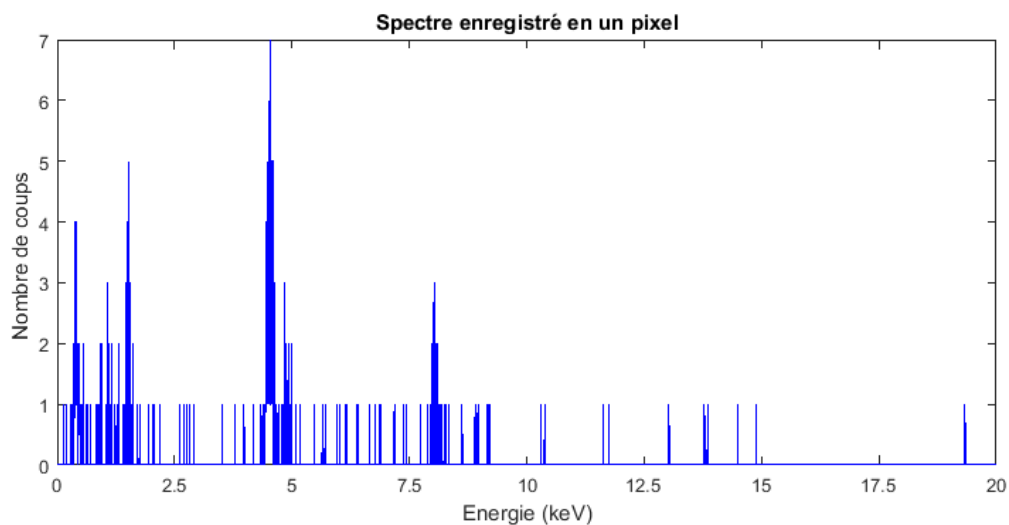


Figure 94 : Spectre enregistré en 1 pixel de l'acquisition de tomographie STEM EDX de l'échantillon HEMT

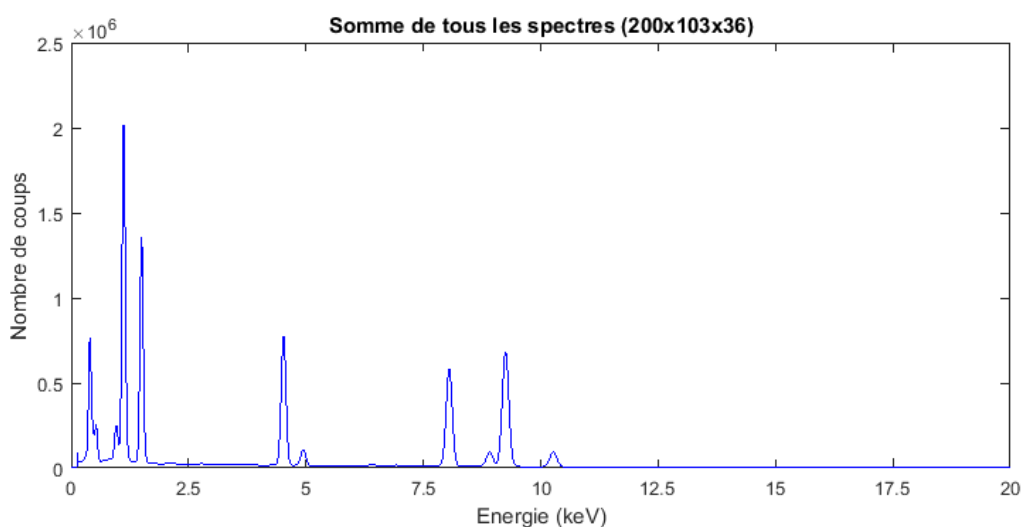


Figure 95 : Somme de tous les spectres enregistrés pendant l'acquisition de tomographie STEM EDX sur l'échantillon HEMT

### ***Échantillon ST28***

L'échantillon ST28 a été préparé au FIB sur le site de ST Crolles par Frédéric Lorut. Un dépôt de protection de chrome a été déposé tout autour de la pointe pour améliorer sa tenue pendant l'acquisition STEM EDX. La pointe finale a un diamètre d'environ 170 nm

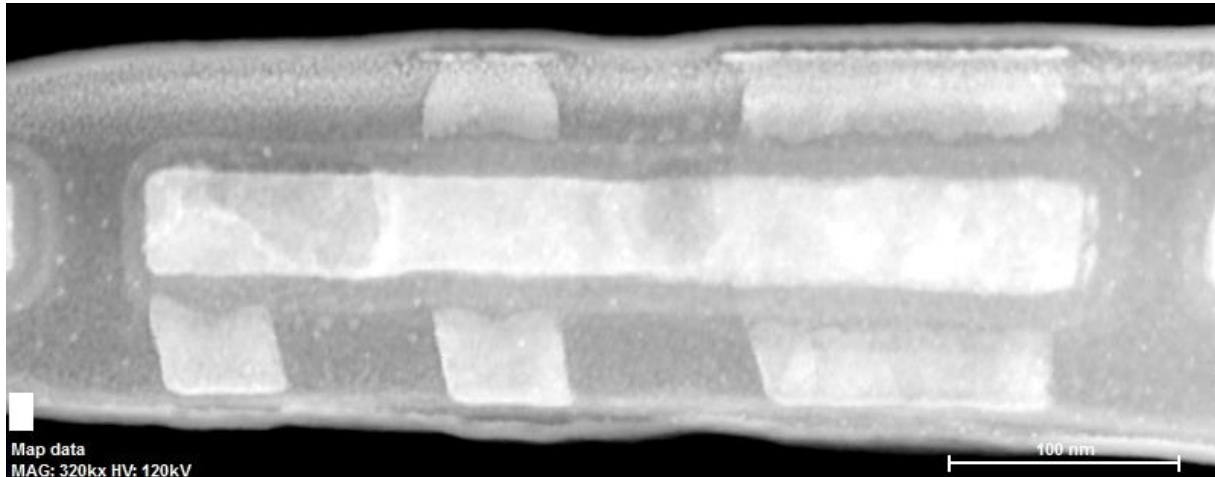


Figure 96 : Image STEM HAADF de l'échantillon ST28. L'échantillon a un diamètre d'environ 170 nm. Cette projection correspond à la vue planaire du schéma de la Figure 92.

L'acquisition de la série de projection STEM EDX a été réalisée sur un microscope Osiris de FEI présent sur le site STMicroelectronics de Crolles.

#### ***V. 1. b. (ii) Traitement des spectres pour une reconstruction 3,5D***

Il est possible d'extraire quelques jeux de projections à partir des projections hyperspectrales et de réaliser une reconstruction 3D pour chacun de ces jeux de projections pour obtenir une reconstruction 3,5D. Les projections peuvent être extraites de deux manières :

- (i) en sommant les canaux correspondants aux raies d'énergies typiques d'un élément
- (ii) en réalisant un traitement multivarié pour extraire les spectres principaux

Ces deux techniques possèdent des avantages et inconvénients qui sont détaillés ci-après.

#### ***Extraction des projections élémentaires par sommation des raies***

Sommer les canaux correspondants aux raies d'énergies typiques d'un élément présente plusieurs avantages. Parmi ces avantages il est possible de citer la simplicité de la technique et le fait que le résultat de la somme soit un nombre de coups. En effet, la somme exprimée en nombre de coups donne ainsi une image avec un bruit de Poisson dont le paramètre est connu et est le nombre de coups. Avec de telles projections il est ainsi possible de se ramener à un bruit blanc gaussien à l'aide d'une

transformée de Anscombe [59], [145]. Des méthodes classiques de débruitage peuvent donc être utilisées avec ces projections élémentaires. Un autre avantage de cette technique est que les reconstructions correspondent à des éléments. Il est ainsi plus facile d'extraire des informations quantitatives sur la composition chimique 3D de l'échantillon si plusieurs reconstructions 3D se superposent.

Il y a néanmoins des inconvénients à cette technique. Le premier inconvénient est le fait que certains pics peuvent être superposés. Une étape de déconvolution des pics est alors nécessaire pour séparer les contributions relatives des deux éléments. Ceci peut être fait en exploitant plusieurs des raies d'émission existantes pour un seul élément. Un autre inconvénient est la présence d'un fond non nul dans le spectre de rayons-X émis. Il peut alors être nécessaire de soustraire ce fond en prenant les valeurs autour du pic par exemple et en soustrayant la moyenne sur l'épaisseur sommée du pic. Enfin un dernier inconvénient de cette technique est de ne pas utiliser toutes les raies qui peuvent exister pour un élément et qui peuvent tout de même apporter une contribution au signal.

### ***Extraction des projections principales par analyse multivariée***

L'analyse en composantes principales est une technique connue permettant d'extraire les spectres principaux depuis l'ensemble des spectres acquis. L'idée de l'analyse en composantes principales est donc de se servir de l'extrême parcimonie des spectres pour extraire automatiquement les spectres élémentaires caractéristiques de l'échantillon étudié. Dans le cas d'une acquisition de tomographie STEM EDX classique de  $200 \times 200$  pixels sur 36 projections, il y a donc plus de 1,4 millions de spectres. Or il n'y a que quelques éléments présents dans un échantillon. L'extrême parcimonie des données spectrales peut donc être exploitée pour rechercher ces quelques spectres principaux de façon robuste. Pour des données EELS en particulier, l'environnement des atomes influe également sur les spectres enregistrés, il peut donc y avoir plus de spectres principaux que d'éléments présents dans l'échantillon, mais la parcimonie reste tout de même extrêmement importante.

Ces techniques permettent donc d'extraire des projections principales qui peuvent correspondre à un élément, ou à une phase, présents dans l'échantillon. L'avantage de ce type de technique est qu'elle permet d'extraire des spectres complets et pas uniquement une ou quelques raies. En réalisant ces techniques d'analyses multivariées, le problème de convolution des pics peut être corrigé en partie puisque les spectres principaux sont recherchés avec un critère d'indépendance. Parmi les inconvénients importants de ces techniques, on peut noter l'absence de sens physiques de certains spectres principaux ainsi que la modification du bruit de Poisson en une forme plus complexe dans les jeux de projections résultants. Les résultats peuvent également être plus difficilement interprétables si plusieurs phases se superposent dans les reconstructions 3D.

***V. 1. b. (iii) Projections élémentaires des deux échantillons***

Les projections élémentaires des deux échantillons (ST28 et HEMT) ont été obtenues en utilisant la technique de sommation des raies. Cela donne donc des projections exprimées en nombre de coups, qui sont plus facilement interprétables et dont le bruit est plus facilement identifiable à un bruit de Poisson. Les mêmes techniques de traitement sont donc appliquées aux deux échantillons.

## 2) Adapter les méthodes précédentes au STEM EDX

---

Il n'existe pas, à notre connaissance, de procédé exploitant les informations fournies par la multiplicité des séries de projections en tomographie électronique analytique comme la tomographie STEM EDX. Il est pourtant envisageable d'exploiter les informations fournies par toutes les séries de projections simultanément. Cette partie propose de faire cela pour améliorer l'étape de débruitage et l'étape d'alignement des projections 2D. Par soucis de simplification, nous parlons dans ce chapitre, par léger abus de langage, de projections hyperspectrales pour parler des images en projections contenant les différents éléments en plusieurs canaux pour chaque pixel et non pas un spectre complet. Le terme de série hyperspectrale est également utilisé de façon similaire.

### V. 2. a. Exploiter la série hyperspectrale pour le débruitage

#### V. 2. a. (i) *Utilisation d'un algorithme NLM avec des images hyperspectrales*

Puisque nous avons montré dans la chapitre précédent que le débruitage à l'aide d'un algorithme de type NLM est plus avantageux pour des données EDX, nous utilisons cet algorithme. Une projection hyperspectrale est considérée comme une image avec plusieurs canaux. Pour chaque angle de projection, il y a donc une projection hyperspectrale contenant 9 canaux (As, C, Cr, Ge, N, Ni, O, Pt et Si) pour l'échantillon ST28 et 3 canaux (Ti, Al et Ga) pour l'échantillon HEMT. L'application de l'algorithme NLM, présenté en partie I.3.d se fait ici en utilisant la similarité des voisinages sur tous les canaux, ce qui renforce d'autant l'efficacité de cette étape de recherche de similarités. Le débruitage d'un canal de l'image se fait en sommant les pixels de ce canal uniquement, ce qui limite les risques de générations de structures inexistantes. L'implémentation de l'algorithme NLM utilisé précédemment ne prend en compte que les images colorées à 3 canaux, nous avons donc utilisé une autre implémentation que nous avons modifiée pour pouvoir gérer des images hyperspectrales, cette implémentation Matlab est disponible en annexe.

### V. 2. a. (ii) Paramètres et bruit de Poisson des projections

Les images hyperspectrales sont extraites à l'aide des spectres en utilisant la technique de sommation des raies caractéristiques. Les images hyperspectrales sont ainsi exprimées en nombre de coups, ce qui doit engendrer une loi de Poisson en théorie. Nous avons appliqué la méthode d'évaluation du bruit de la référence [126] aux séries complètes des  $36 \times N_{\text{éléments}}$  projections pour les échantillons ST28 ( $N_{\text{éléments}} = 9$ ) et HEMT ( $N_{\text{éléments}} = 3$ ). L'évaluation du bruit, visible sur la figure suivante dans le cas de l'échantillon ST28, donne bel et bien un bruit de Poisson avec un coefficient d'environ 1 en accord avec le fait que les images sont exprimées en nombre de photons détectés.

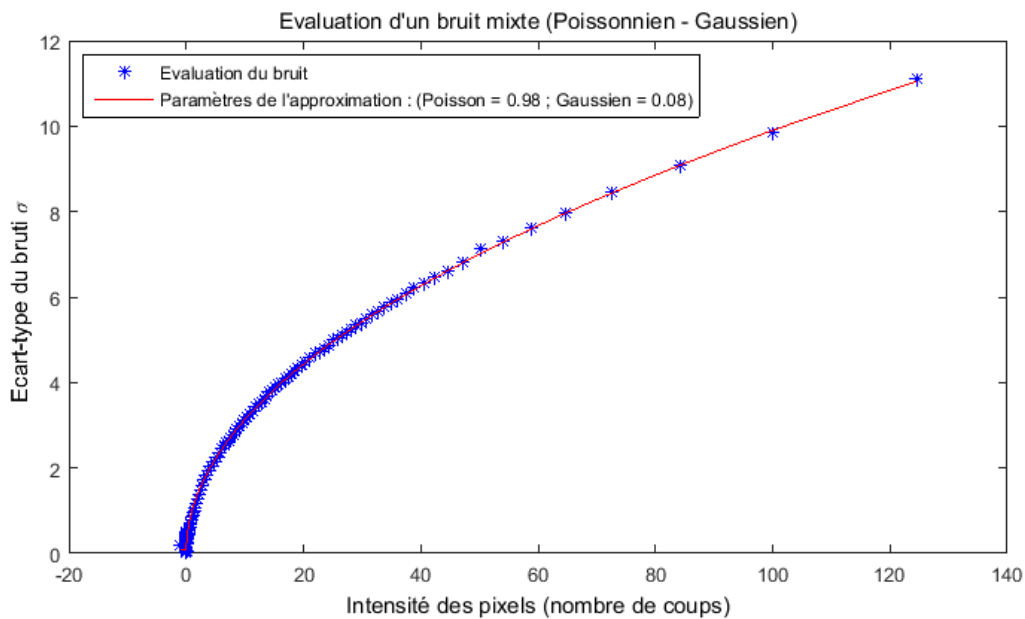


Figure 97 : Évaluation du bruit présent dans les projections de l'échantillon ST28. Le bruit suit une racine carré avec un paramètre d'environ 1 en accord avec le fait que les projections sont exprimées en nombre de coups.

La transformée de Anscombe généralisée est appliquée aux projections hyperspectrales avec l'évaluation des paramètres issues de la technique [126] pour obtenir un bruit blanc gaussien d'écart type  $\sigma = 1$ . Ce sont ces images hyperspectrales qui sont débruitées à l'aide de l'algorithme NLM disponible en annexes. Les 3 paramètres d'entrée de l'algorithme sont la puissance du filtre  $h$ , la taille des fenêtres de similarité  $N_s$  et la taille des fenêtres de recherche  $N_r$ . Ces trois paramètres sont choisis de façon à obtenir visuellement les meilleures projections débruitées, c'est-à-dire supprimer un maximum de bruit tout en gardant le plus de signal possible. En pratique, les meilleurs paramètres ne s'éloignent pas énormément des paramètres par défaut ( $h = \sigma$ ,  $N_s = 3$  et  $N_r = 3$ ).



### ***V. 2. a. (iii) Utilisation des projections HAADF***

Il est tout à fait envisageable et pertinent de vouloir utiliser en plus l'acquisition HAADF pouvant être obtenue en parallèle de l'acquisition EDX pour aider encore le débruitage. Les projections HAADF obtenues simultanément aux projections EDX (cf. partie II.3.b) possèdent des temps d'acquisition extrêmement élevés de plusieurs minutes et des courants de sonde importants. Ceci fait que l'acquisition HAADF ne présente quasiment aucun bruit par rapport à une acquisition HAADF classique de quelques secondes avec des courants de sonde bien plus faibles. Le niveau de bruit dans l'acquisition HAADF réalisée simultanément à l'acquisition EDX est trop faible pour une détection avec la technique de la référence [126]. En effet le niveau de bruit calculé est alors davantage dû au signal réel présent dans la projection qu'au bruit à proprement parler. La question de l'importance relative du signal HAADF par rapport aux projections EDX se pose alors. Un choix arbitraire sur cette importance semble inéluctable. Nous avons choisi de multiplier les projections HAADF par un coefficient pour obtenir une intensité moyenne qui soit égale à l'intensité moyenne de toutes les projections EDX sommées. Ainsi le signal HAADF a une importance environ égale à celle de toutes les autres projections EDX.

Ceci a été fait uniquement avec les données de l'échantillon HEMT parce que nous n'avons pas les données HAADF pour l'échantillon ST28.

### ***V. 2. a. (iv) Résultats du débruitage NLM hyperspectral***

Le débruitage par l'algorithme NLM sur la projection hyperspectrale à 0° de l'échantillon ST28, donne de très bons résultats qui sont visibles sur la Figure 98. Sur cette figure sont visibles les projections bruitées et débruitées des 9 éléments (As, C, Cr, Ge, N, Ni, O, Pt et Si). Les intensités en nombre de coups sont indiquées. Le débruitage fonctionne très bien en utilisant toutes les images simultanément, et ce même pour les dopants (As et Ge) pour lesquels le nombre de coups est pourtant très faible. Les paramètres utilisés pour le débruitage de l'échantillon ST28 sont :  $N_s = 2$ ,  $N_r = 5$  et  $h = 2, 3$  ou  $4 \sigma$ . Les très fortes différences entre les éléments tels que l'arsenic qui n'a que quelques coups et le silicium qui en a une centaine, nous oblige à utiliser quelques différences dans les paramètres du débruitage NLM.

La Figure 99 présente les projections bruitées et débruitées pour les 3 éléments de l'échantillon HEMT (Ti, Al et Ga). Les nombres de coups sont également indiqués. Les nombres de coups présents pour l'échantillon HEMT sont bien plus grands que ceux de l'échantillon ST28 et se situent tous dans

le même ordre de grandeur. Les paramètres de débruitage utilisés dans ce cas sont :  $N_s = 2$ ,  $N_r = 5$  et  $h = 1,4 \sigma$ .

La technique que nous proposons s'adapte bien à des cas diverses de rapport signal sur bruit en ne modifiant qu'un seul des 3 paramètres de l'algorithme NLM.

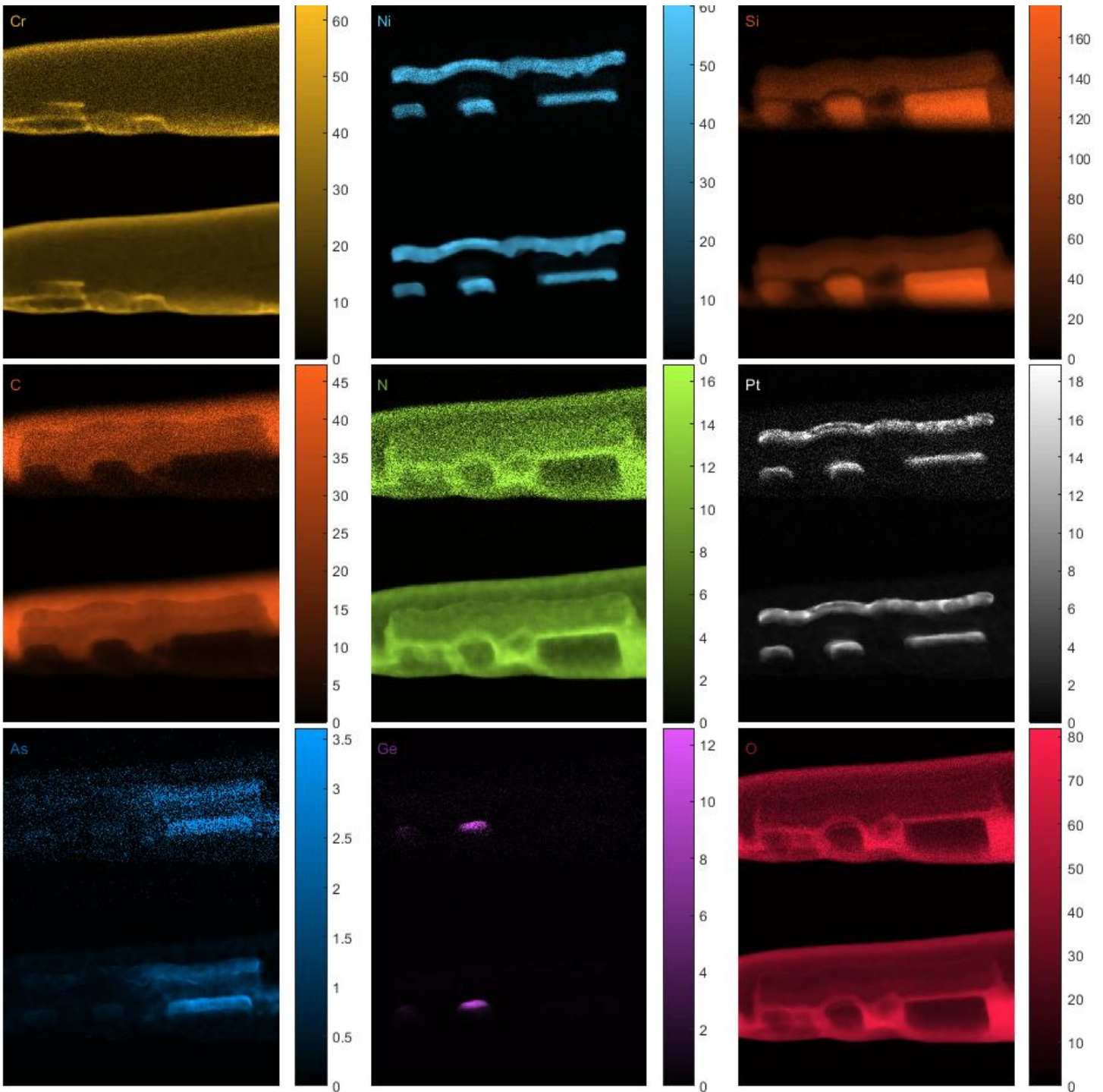


Figure 98 : projections à  $0^\circ$  de l'échantillon ST28 pour les 9 éléments reconstruits. La partie supérieure de chaque image représente la projection bruitée, la partie inférieure la projection débruitée. Les intensités sont en nombre de coups, ce qui montre un débruitage efficace même pour des nombres de coups très faibles, en particulier pour les dopants (As et Ge).

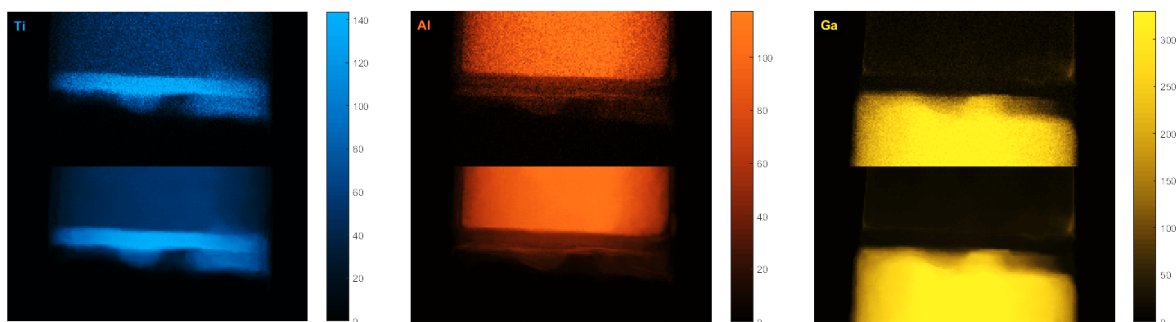


Figure 99 : Projections bruitées (en haut) et débruitées (en bas) des trois éléments (Ti, Al et Ga) pour l'échantillon HEMT. Les nombres de coup sont indiqués.

## V. 2. b. Exploiter la série hyperspectrale pour l'alignement

### V. 2. b. (i) *Intérêt d'une utilisation simultanée de toutes les séries*

Il est possible de déterminer l'alignement en utilisant une seule des séries de projections. Celle correspondant à un des éléments ou à la série des projections HAADF. Utiliser la série des projections HAADF semble être une bonne idée puisque nous avons montré que l'alignement fonctionne très bien, en particulier pour des pointes, avec ce type de données. Néanmoins, la tomographie analytique STEM EDX, bien plus gourmande en temps d'acquisition et de post-traitement mais également plus sévère au niveau de l'endommagement, n'est en général appliquée que lorsqu'une reconstruction avec un contraste en Z (STEM HAADF) n'est pas suffisante. Cela veut dire que la tomographie analytique est en général utilisée lorsqu'il n'y pas assez de contraste en mode STEM HAADF. L'alignement de ces échantillons si particulier peut ainsi être très délicat en n'utilisant que les projections HAADF. De plus les projections STEM HAADF possèdent également un peu de contraste de diffraction résiduel. Ce contraste est en général très faible devant le contraste en Z. Néanmoins pour des échantillons avec peu de contraste en Z, le contraste de diffraction peut alors devenir dominant et fausser l'alignement.

L'inconvénient des projections élémentaires est leur rapport signal sur bruit très faible. Même en utilisant des techniques de débruitage avancées comme proposé précédemment, il n'est pas optimal de n'utiliser qu'une seule des séries de projections. De plus certains éléments peuvent très bien ressortir dans une zone de l'échantillon mais être totalement absente d'une autre zone de l'échantillon. Il est alors difficile d'utiliser la détermination automatique de l'axe de rotation par exemple. L'utilisation simultanée de toutes les séries de projections permet de pallier les différents problèmes qui viennent juste d'être énumérés.

### V. 2. b. (ii) Utiliser au mieux toutes les séries simultanément

Nous proposons ici d'adapter légèrement la technique d'alignement du chapitre III pour prendre en compte les séries hyperspectrales. Puisque l'alignement proposé dans le chapitre III repose sur des corrélations-croisées pour les trois étapes (alignement en Z, alignement en X et détermination de l'axe de rotation), nous proposons simplement de remplacer la détermination des décalages à l'aide du maximum des corrélations croisées par le maximum de la somme des corrélations-croisées obtenues avec les différentes séries de projections. Ceci est simplement réalisable et permet de prendre en compte toutes les séries de projections à la fois.

Il est important de noter que ceci ne revient pas à aligner la somme des séries de projections. La simple écriture d'une corrélation-croisée permet de voir cela. Il est également possible de comprendre cela en imaginant un échantillon cylindrique constituée à 100% d'un certain élément sur sa partie supérieure et à 100% d'un second élément sur sa partie inférieure. Supposons également que les projections élémentaires de ces 2 éléments aient environ les mêmes intensités, sommer les 2 séries de projections correspondantes donne alors un cylindre sans contraste notable dans la direction de l'axe de rotation. Cette série de projections ne peut alors pas être alignée dans cette direction. À l'inverse, la corrélation-croisée de chaque série de projections apporte une information sur l'alignement dans la direction de l'axe de rotation et la somme des 2 corrélations-croisées permet d'améliorer la robustesse de cet alignement en améliorant le rapport signal sur bruit notamment.

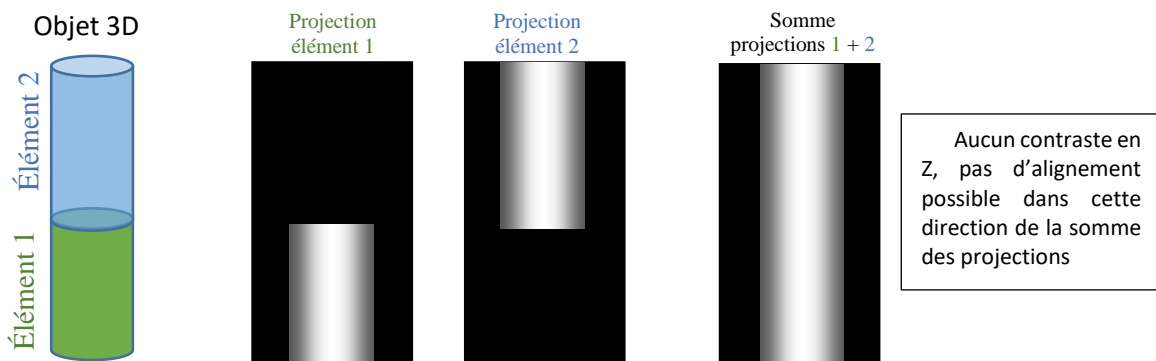


Figure 100 : Importance de la somme des corrélations croisées pour l'alignement représenté à l'aide d'un échantillon imaginaire qui est un cylindre composé de deux éléments.

En pratique, comme nous venons de le mentionner, il est important de réaliser la somme des corrélations-croisées pour l'alignement en Z. Néanmoins, dans le cas d'un échantillon en forme de pointe, il y a toujours suffisamment de contraste entre la pointe et le vide pour réaliser les étapes d'alignement en X et de détermination de l'axe de rotation. De plus ce sont ces étapes, nécessitant des reconstructions intermédiaires, qui sont les plus longues pour l'alignement, et ce d'autant plus qu'il y

a beaucoup de séries de projections. Finalement, en pratique nous alignons en Z les séries hyperspectrales en sommant les corrélations-croisées, mais nous alignons en X et déterminons l'axe de rotation en utilisant une série de projection qui est la somme des canaux des projections hyperspectrales. Ceci permet d'accélérer l'alignement mais aussi d'obtenir des reconstructions intermédiaires de meilleure qualité et *in fine* une détermination des décalages en X plus précise.

### 3) Comparaison des techniques hyperspectrale et simple et résultats 3D

---

Dans toute cette partie, l'alignement et le débruitage sont qualifiées de « simples », lorsqu'une seule série de projections est utilisée. À l'inverse, l'alignement et le débruitage sont qualifiés de « hyperspectraux » lorsqu'ils utilisent toutes les séries de projections simultanément ainsi que décrit dans la partie précédente. De même, on parle respectivement de techniques hyperspectrale et simple pour faire référence à l'ensemble constitué de l'alignement et du débruitage dans les cas simple et hyperspectral.

#### V. 3. a. Débruitages hyperspectral et simple

Les résultats obtenus en utilisant un seul des canaux à la fois pour le débruitage NLM, c'est-à-dire une seule des projections élémentaires, sont comparés sur la Figure 101 à ceux obtenus avec tous les éléments. Il ressort visuellement de cette comparaison un avantage du débruitage hyperspectral, qui produit des images moins floues, en particulier pour les images avec un très faible nombre de coups comme celle du dopant As. La Figure 102 montre un zoom dans les projections As et C permettant de mieux visualiser les différences.

Les débruitages NLM simple et hyperspectral ont également été comparés visuellement dans le cas de l'échantillon HEMT. Les résultats sont visibles dans la Figure 103 pour les trois éléments de l'échantillon HEMT. La Figure 104 présente un zoom au centre de la projection correspondant à l'aluminium. On voit bien sur ce zoom que le débruitage hyperspectral perd moins d'information puisqu'il a tendance à moins lisser l'image obtenue, notamment au niveau d'une fine couche d'aluminium présente au milieu de la projection affichée.

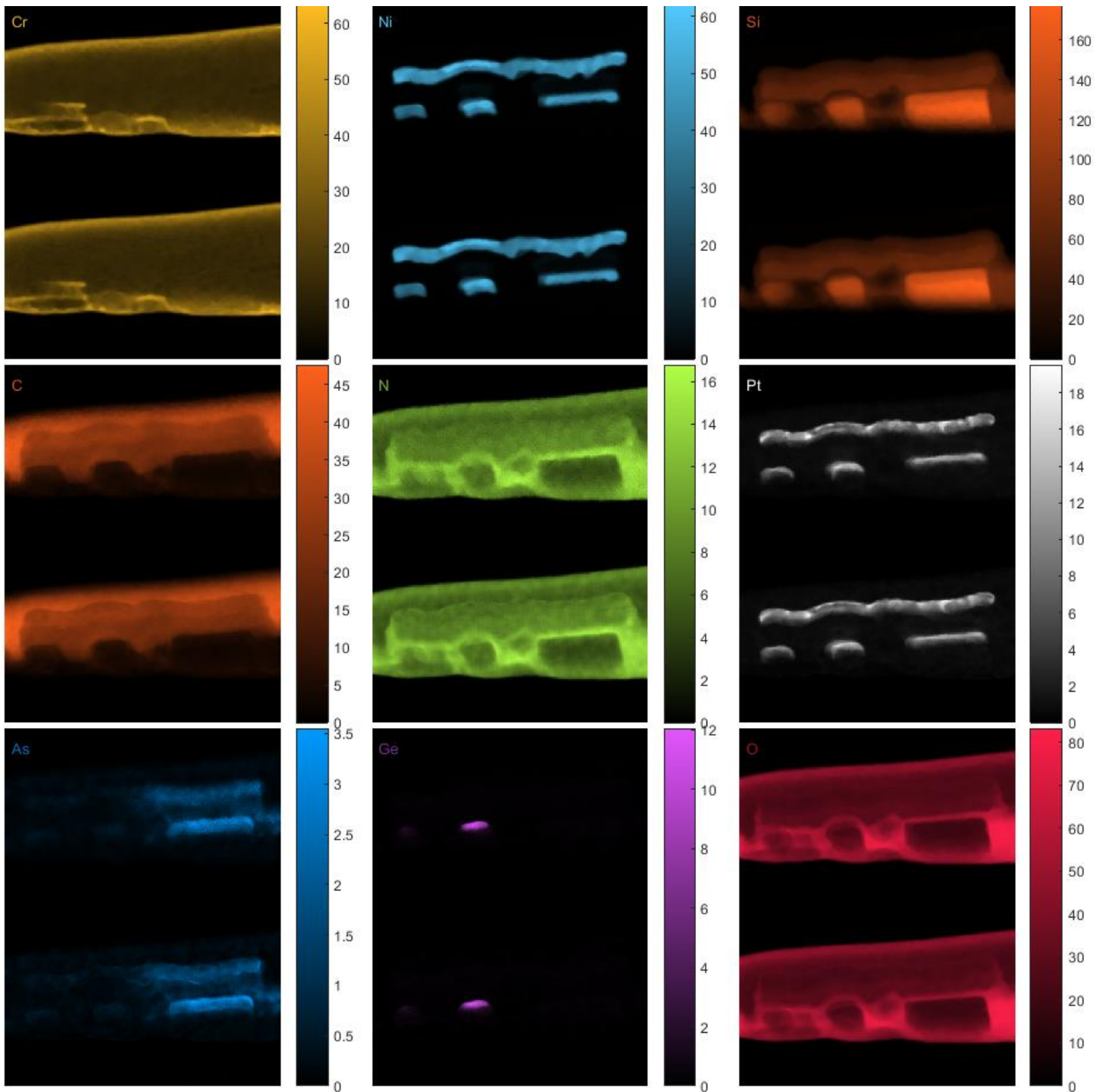


Figure 101 : Comparaison des débruitages NLM simple (en haut) et hyperspectral (en bas) appliqués aux projections de l'échantillon ST28. Les débruitages NLM hyperspectraux produisent des images moins floues, traduisant un débruitage plus efficace.

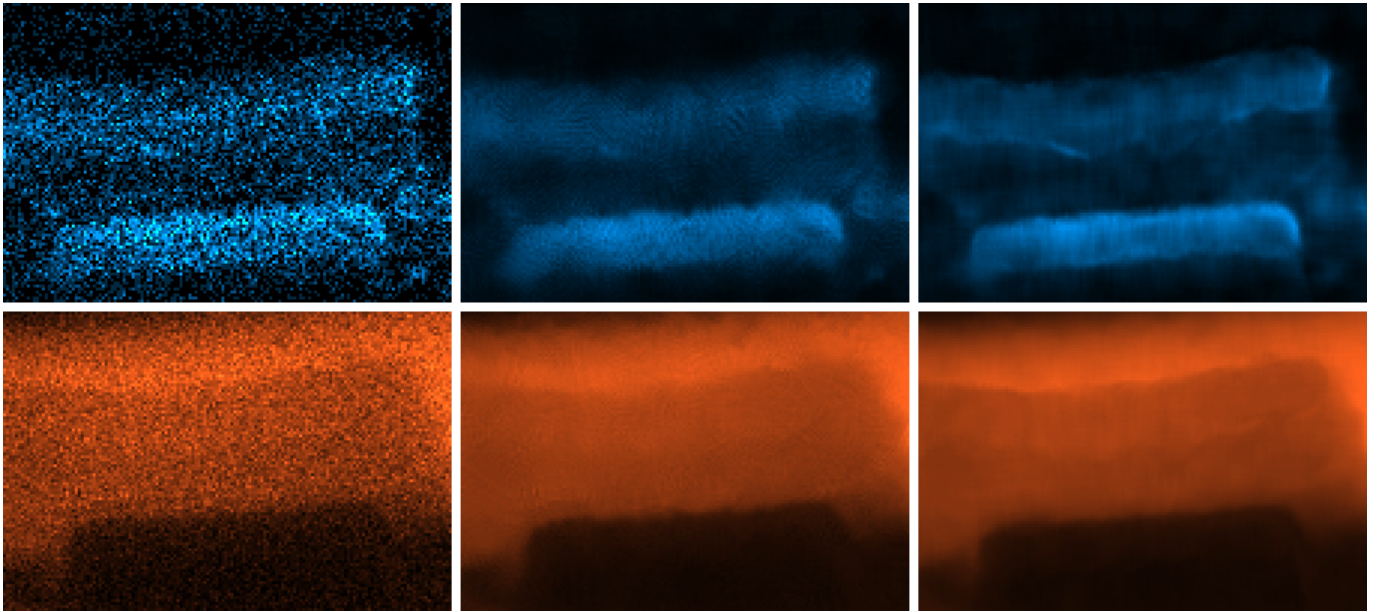


Figure 102 : Zoom dans les projections As (en haut) et C (en bas) de l'échantillon ST28. (Gauche) projection originale bruitée, (milieu) projection après un débruitage NLM simple et (droite) après un débruitage hyperspectral. Le débruitage hyperspectral produit une image bien moins floue que le débruitage simple.

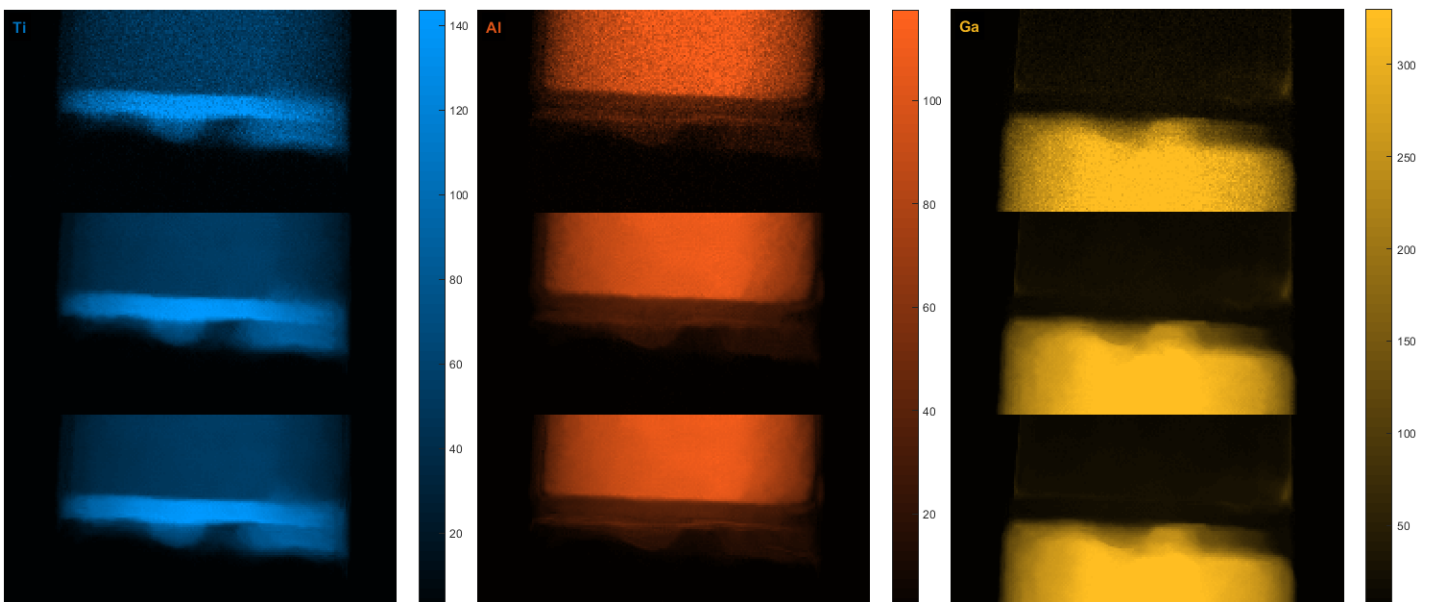


Figure 103 : Comparaison (en haut) des projections bruitées de l'échantillon HEMT, (au milieu) débruitées par un algorithme NLM simple et (en bas) par un algorithme NLM hyperspectral. Les débruitages NLM hyperspectraux produisent des images moins floues, traduisant un débruitage plus efficace, ce qui est en particulier visible sur la fine couche d'Al présente au milieu de la projection.



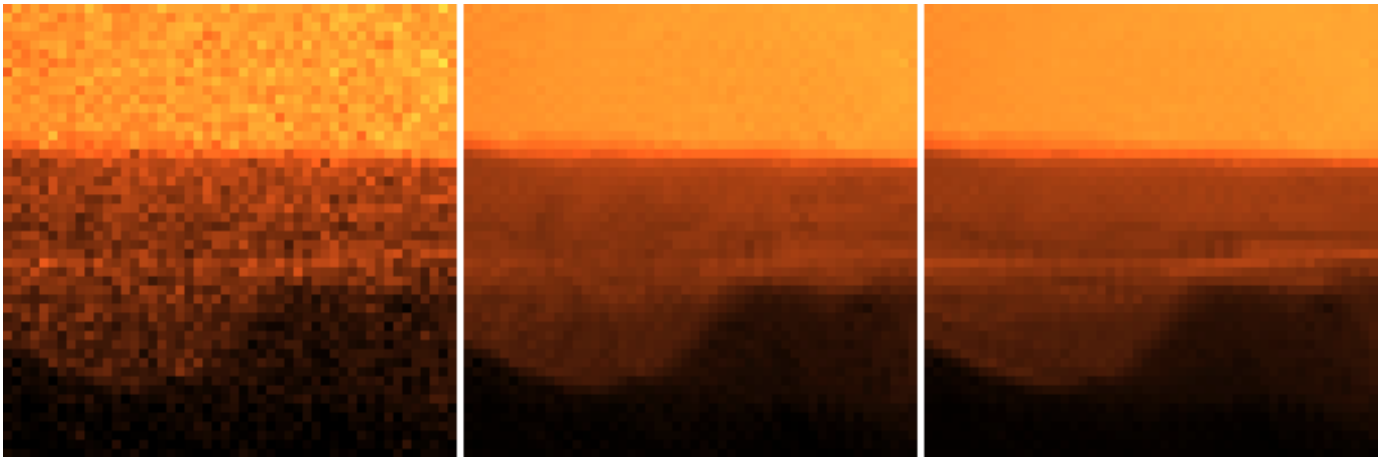


Figure 104 : Zoom au centre de la projection AI de l'échantillon HEMT. (Gauche) projection originale bruitée, (milieu) projection après un débruitage NLM simple et (droite) après un débruitage hyperspectral. Le débruitage hyperspectral produit une image bien moins floue que le débruitage simple.

## V. 3. b. Alignements hyperspectral et simple

### V. 3. b. (i) Échantillon ST28

Il est difficile d'évaluer la qualité d'un alignement par rapport à l'autre. Les alignements obtenus en utilisant toutes les projections à la fois ou une seule série de projections peuvent tout de même être comparés pour voir si des différences importantes existent. La Figure 105 montre la différence entre l'alignement hyperspectral et l'alignement simple en utilisant la projection Si de l'échantillon ST28. Cette projection élémentaire est utilisée parce que c'est celle qui possède le plus de coups et un bon contraste tout le long de la pointe. Il y a des différences notables dans l'alignement puisque plusieurs pixels d'écarts existent entre les deux types d'alignement.

La détermination de l'axe de rotation est cependant identique pour les deux types d'alignements. Une inclinaison de l'axe de rotation de  $2.84^\circ$  et  $2.88^\circ$  est ainsi obtenue pour les deux types d'alignement. Pour des projections de 237 pixels le long de l'axe Z, cela donne un écart en X maximum de  $\Delta X_m = 237 \times \tan(0.02^\circ) \approx 0.16$  pixels entre le début et la fin des projections, ce qui est négligeable.

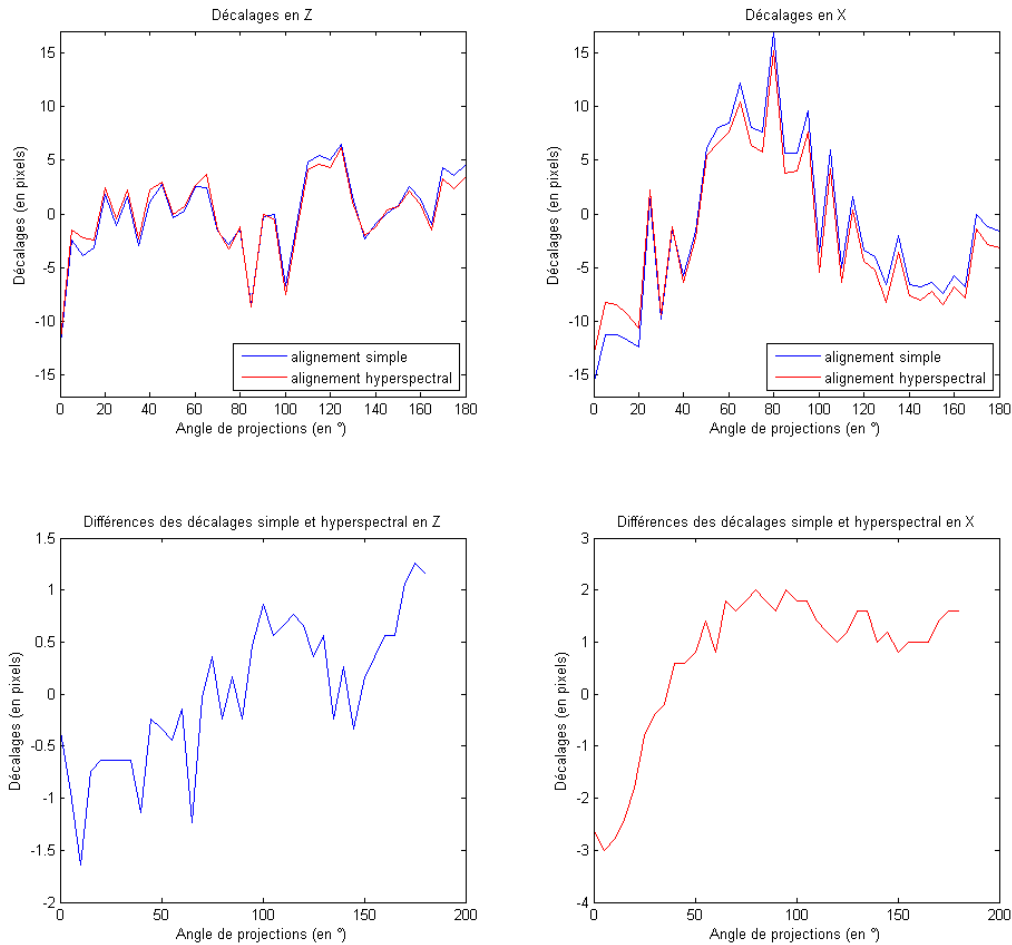


Figure 105 : Comparaison des alignements hyperspectral et simple dans le cas de l'échantillon ST28. L'alignement simple est obtenu en utilisant les projections  $S_i$  puisque ce sont les projections qui contiennent le plus de coups et un contraste important sur toute la longueur de la pointe analysée. Les écarts entre les deux alignements obtenus sont situés dans une plage de 3 pixels pour l'alignement en Z et dans une plage de 5 pixels pour l'alignement en X.

### V. 3. b. (ii) Échantillon HEMT

La même comparaison des alignements a été réalisée sur l'échantillon HEMT. Cette fois, puisque nous avons les données HAADF peu bruitées, nous les utilisons pour l'alignement simple. Il ressort de cette comparaison très peu d'écarts entre les alignements simple et hyperspectral en X. Par contre l'alignement en Z présente des différences significatives de plusieurs pixels entre les alignements simple et hyperspectral.

Cet écart au niveau de l'alignement en Z s'explique par le fait que les projections HAADF ne présentent pas un aussi bon contraste que les projections élémentaires dans la direction Z, ce qui est particulièrement visible en regardant les lignes communes de la Figure 107. De plus un contraste

résiduel de diffraction est visible pour certains angles de projection. C'est ce contraste qui vient fausser l'alignement en Z dans le cas simple où il n'y a que les projections HAADF qui sont utilisées.

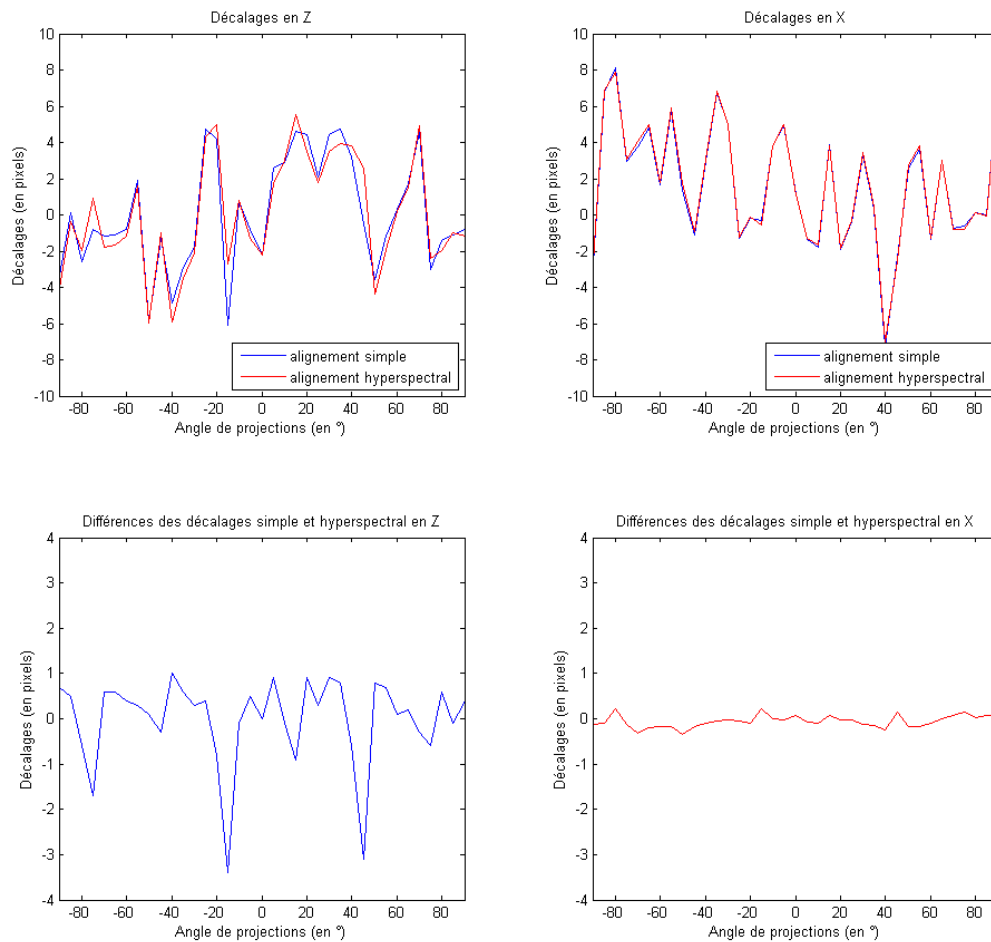


Figure 106 : Comparaison des alignements hyperspectral et simple dans le cas de l'échantillon HEMT. L'alignement simple est obtenu en utilisant les projections HAADF. Les écarts entre les deux alignements sont situés dans une plage de 5 pixels pour l'alignement en Z et dans une plage de 1 pixel pour l'alignement en X.

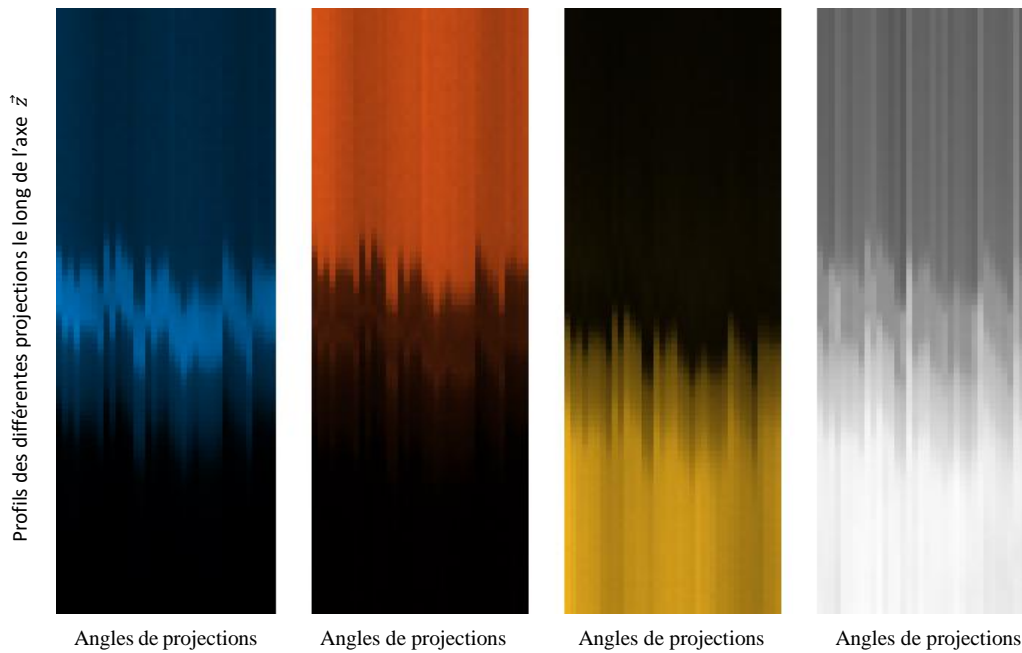


Figure 107 : Lignes communes de l'échantillon HEMT avant alignement pour les projections (de gauche à droite) Ti, Al, Ga et HAADF. Le contraste de diffraction est visible pour certains angles de projection sur la ligne commune HAADF. Ce contraste de diffraction allié à un faible contraste en Z est la raison pour laquelle l'alignement hyperspectral est plus efficace.

### V. 3. c. Résultats 3D

#### V. 3. c. (i) *Résultats 3D sur l'échantillon HEMT*

Les reconstructions 3D sont obtenues avec un SIRT>0 de 100 itérations pour les données traitées avec la technique hyperspectrale et la technique simple. Deux vues en coupes axiales et trois vues en coupes sagittales sont visibles respectivement dans la Figure 108 et dans la Figure 109 pour les trois éléments (Ti, Al et Ga). Les données de cet échantillon n'étant pas aussi sévères en termes de rapports signal sur bruit que celles de l'échantillon ST28, les résultats sont surtout différents au niveau de l'aluminium, sur la partie intermédiaire présentant une faible concentration en aluminium. Une très fine couche avec une concentration plus importante en aluminium n'est visible à l'extrémité inférieure de cette partie que pour la reconstruction utilisant la technique hyperspectrale d'alignement et de débruitage.

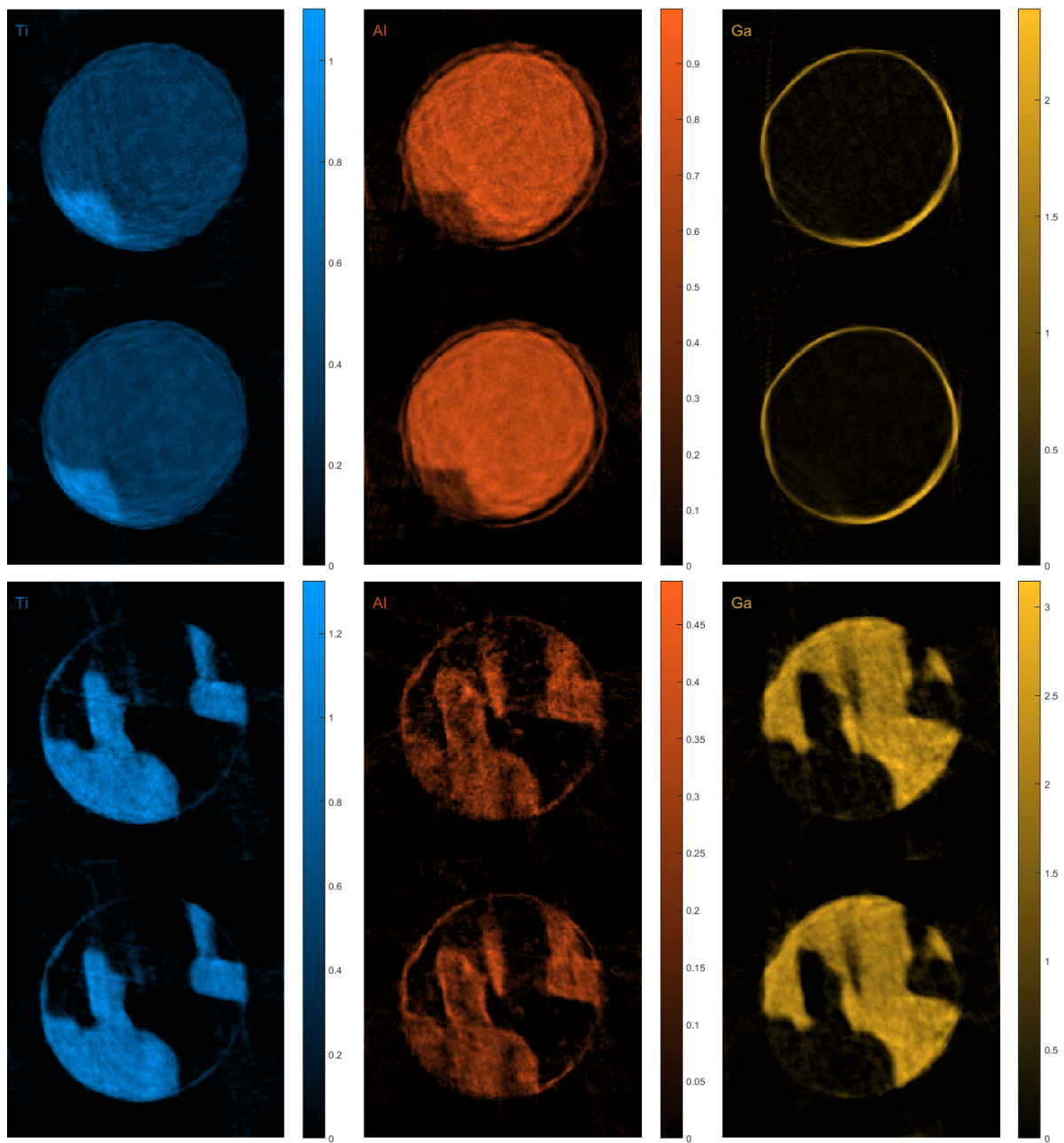


Figure 108 : Deux vues en coupes axiales pour les 3 éléments de l'échantillon HEMT. Pour chaque vue en coupe, la partie supérieure correspondant à la technique simple et la partie du bas à la technique hyperspectrale. La technique hyperspectrale est surtout avantageuse au niveau de la couche d'aluminium sur la coupe du bas présentant une intensité plus faible (en nombre de coups).

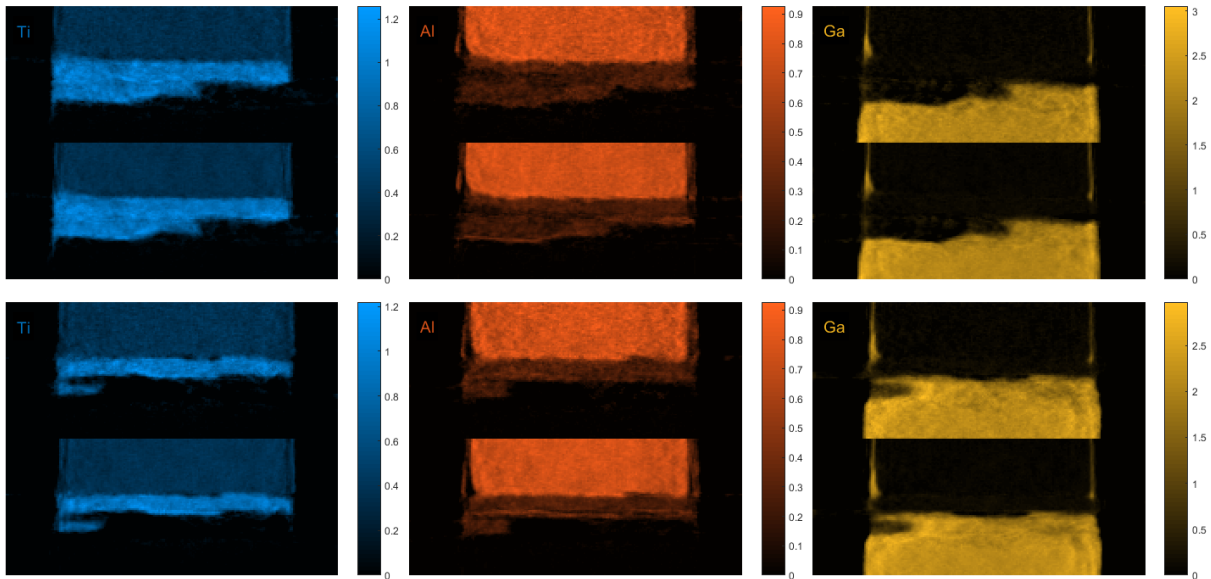


Figure 109 : Deux vues en coupes sagittales pour les 3 éléments de l'échantillon HEMT. Pour chaque vue en coupe, la partie supérieure correspondant à la technique simple et la partie du bas à la technique hyperspectrale. La technique hyperspectrale est surtout avantageuse en bas de la couche d'aluminium, révélant une zone avec une accumulation d'aluminium qui n'est pas visible sur la reconstruction obtenue avec la technique simple.

### V. 3. c. (ii) Résultats 3D sur l'échantillon ST28

Les résultats 3D obtenus sur l'échantillon ST28, avec les traitements hyperspectral et simple pour l'alignement et le débruitage, sont affichés et comparés sur les 4 figures suivantes. Comme pour l'échantillon HEMT, les reconstructions 3D sont obtenues avec un SIRT>0 de 100 itérations. Deux coupes axiales et une coupe sagittale sont visibles pour les 9 éléments pour les techniques hyperspectrale et simple. Il ressort visuellement de ces reconstructions un avantage fort de la technique hyperspectrale. Il y a en effet moins de bruit dans les reconstructions et souvent plus de détails fins visibles. Les intensités affichées dans ces figures sont en nombre de coups moyens par projection. Puisque 36 projections ont été utilisées, le nombre de coups détectés par voxel reconstruit doit être multiplié par 36. Les dopants (Ge et As) sont donc en très faibles quantités, l'arsenic possède donc au maximum de la reconstruction des voxels qui sont reconstruit en tout avec 2 coups répartis sur l'ensemble des projections.

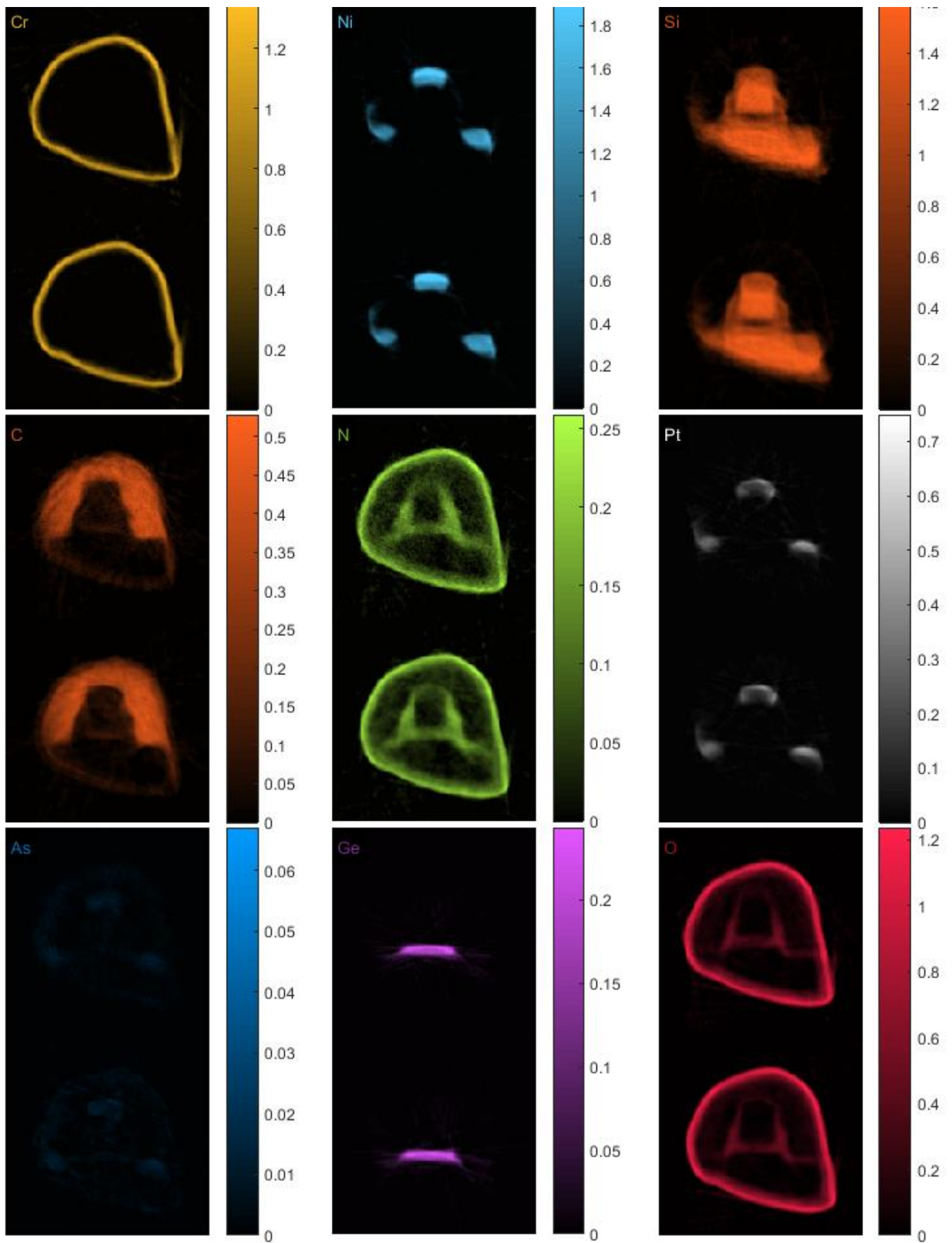


Figure 110 : Coupe axiale pour les 9 éléments reconstruits de l'échantillon ST28.

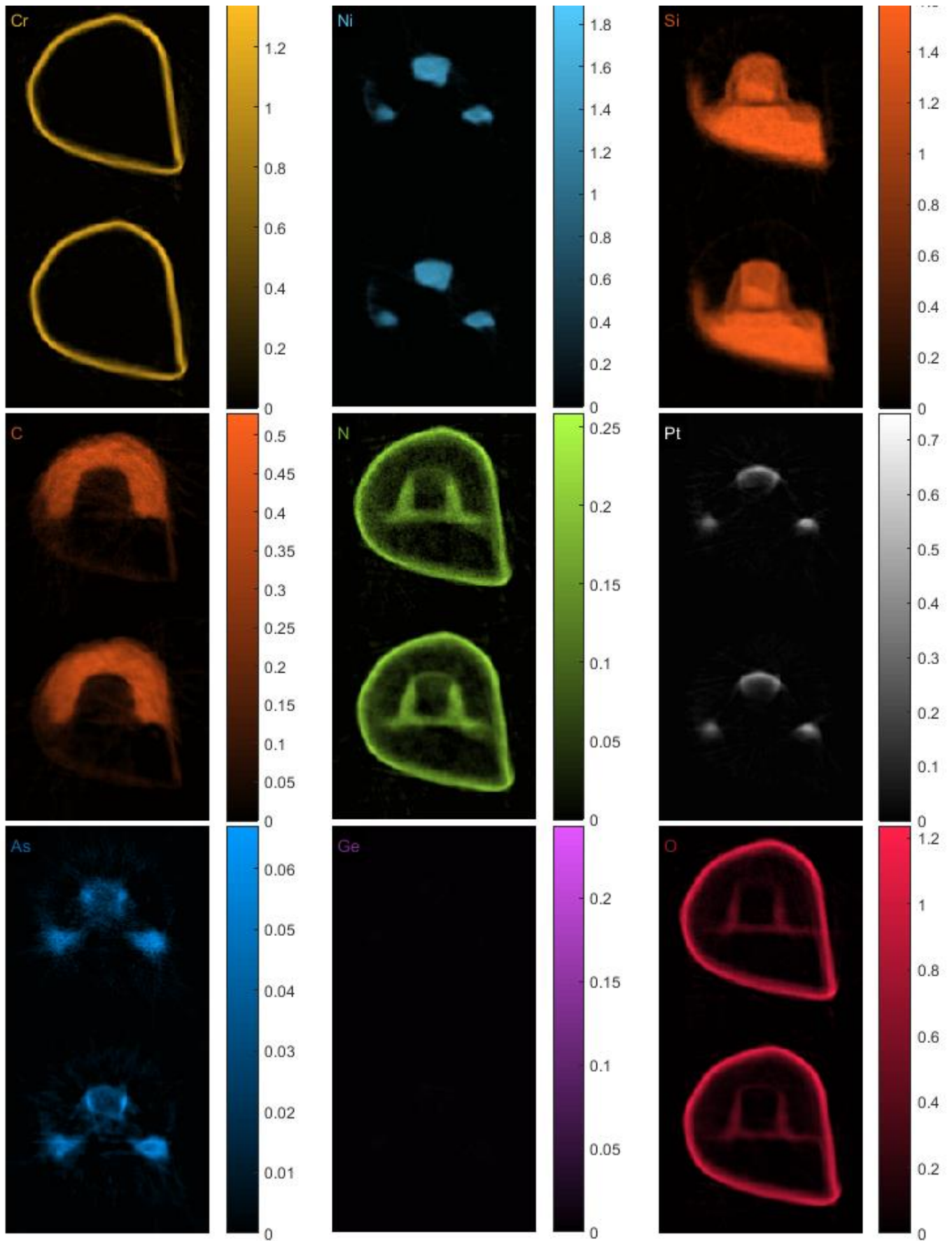


Figure 111 : Coupe axiale pour les 9 éléments reconstruits de l'échantillon ST28.



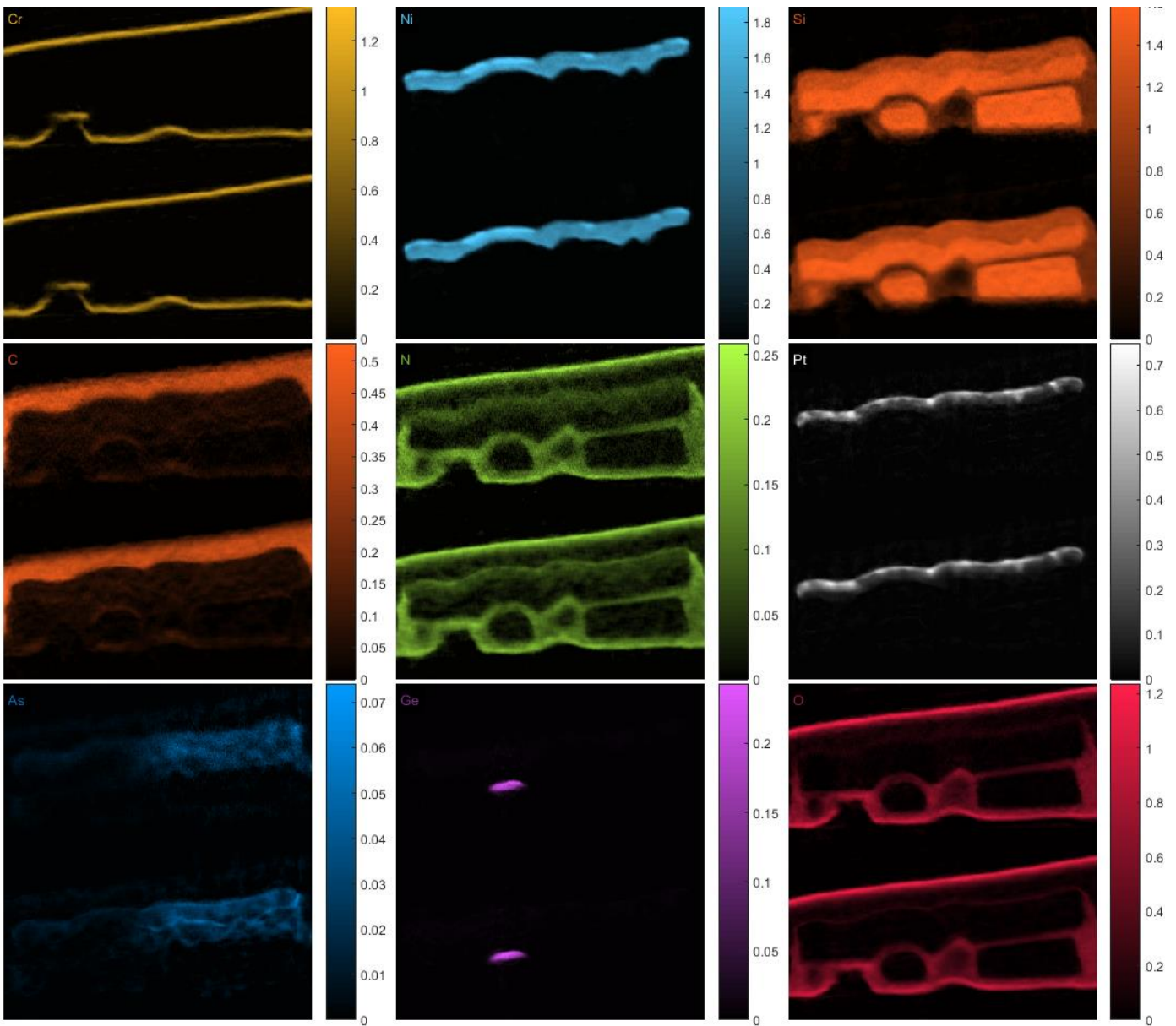


Figure 112 : Coupe sagittale pour les 9 éléments reconstruits de l'échantillon ST28.

### V. 3. d. Conclusions

Nous avons montré la possibilité d'exploiter simultanément toutes les séries de projections élémentaires en STEM EDX pour obtenir des reconstructions grandement améliorées par rapport aux reconstructions obtenues après débruitage NLM et alignement de la procédure décrite dans le chapitre III. Or d'après les résultats obtenus dans la partie IV.1.b, l'utilisation d'un débruitage NLM et d'un SIRT>0 est déjà plus efficace que ce qui peut être obtenu avec une reconstruction à l'état de l'art telles que celles basées sur la minimisation de la variation totale.

Utiliser toutes les projections élémentaires simultanément permet également d'améliorer la qualité de l'alignement. Ceci a été observé avec les échantillons que nous proposons dans ce chapitre. Pour d'autres échantillons avec des différences de numéros atomiques encore plus limitées, la technique que nous proposons s'avère certainement indispensable. De plus, le débruitage NLM hyperspectral permet d'exploiter plus fortement la parcimonie des données hyperspectrales, et apporte ainsi une nouvelle information qui permet un débruitage tout en conservant au maximum les détails sur la structure de l'échantillon. En comparaison au débruitage simple, le débruitage hyperspectral est particulièrement avantageux pour débruiter les projections élémentaires qui ne possèdent que très peu de coups. La technique de débruitage hyperspectral permet une amélioration nette des reconstructions 3D, mais aussi des projections. Cette technique peut donc tout à fait être utilisée indépendamment de la tomographie pour débruiter des cartographies élémentaires acquises avec un TEM.

La technique que nous proposons ici est donc réellement adaptée à la tomographie analytique, et à la tomographie STEM EDX en particulier, et permet d'avoir des résultats très bons, et ce même avec des projections élémentaires avec très peu de signal, puisqu'une dizaine de coups enregistrés (azote dans l'échantillon ST28) permet déjà d'obtenir une reconstruction 3D de relativement bonne qualité.



***CONCLUSION GENERALE ET  
PERSPECTIVES***





### ***Conclusion générale***

Au cours de cette thèse, nous avons réalisé un tour d'horizon de la tomographie électronique et de son application aux sciences des matériaux. Différents modes TEM permettant d'avoir une information morphologique (HAADF et IBF) ou analytique (EDX) ont été utilisés. Un travail particulier a été fait pour aller vers une simplification de la technique de tomographie électronique en mode STEM HAADF en particulier, cela s'est traduit par la création d'un logiciel permettant de traiter les données obtenues directement après l'acquisition au microscope pour réaliser toutes les étapes nécessaires à l'obtention d'une reconstruction 3D avec peu de bruit et peu d'artéfacts.

Nous avons mis l'accent sur l'importance cruciale d'utiliser des projections 2D de qualité avant toute application d'un algorithme de reconstruction. Puisque les projections acquises au TEM sont souvent loin d'être parfaites (forts bruits, désalignements, déformations sous le faisceau, non-linéarité dans l'acquisition...), la correction de ces imperfections a été un enjeu important de cette thèse. Il a ainsi été montré que l'utilisation d'algorithmes de reconstruction complexes nécessitant des temps de calculs importants et de nombreux choix critiques de paramètres par l'utilisateur, pouvait ne pas produire d'aussi bons résultats qu'une étape de débruitage des projections pré-reconstruction.

Toujours dans l'optique d'améliorer la qualité des projections 2D avant toute reconstruction 3D, un travail a été fait sur l'amélioration de l'alignement des projections. Classiquement en tomographie électronique en science des matériaux, l'alignement est réalisé à l'aide de corrélations-croisées entre projections successives. Une hypothèse extrêmement forte est alors faite, puisqu'il faut que les projections de l'objet soit similaires d'une projection à l'autre. Ceci est d'autant moins vrai que le pas angulaire entre deux projections successives est élevé. Pour corriger cela, nous avons proposé une technique qui exploite pleinement le mouvement de rotation de l'objet pour réaliser l'alignement. La ligne commune est en effet une constante d'un mouvement de rotation pur autour d'un axe. Elle permet d'évaluer de façon robuste les décalages dans la direction de l'axe de rotation. Nous utilisons aussi le fait que les projections sont issues d'un seul et même objet 3D pour déterminer l'alignement dans la direction perpendiculaire à l'axe de rotation à l'aide de reconstructions intermédiaires. En mélangeant ces deux techniques, le procédé que nous proposons aligne chaque projection en fonction de toutes les autres, ce qui permet de gagner en robustesse et précision.

Toujours dans le but d'améliorer la qualité des projections 2D pour obtenir une reconstruction 3D plus fiable et facilement exploitable, les problèmes de déformations de l'échantillon au cours de l'acquisition et de non-linéarité de l'acquisition ont été abordés. Des techniques de correction ont été proposées pour ces deux imperfections de l'acquisition des données. Des améliorations ont ainsi pu être apportées aux reconstructions 3D de données réelles à l'aide de ces techniques.

Enfin, un travail d'amélioration de la qualité des reconstructions 3,5D en tomographie analytique a été présenté. Ceci est rendu possible en exploitant la multiplicité des séries de projections disponibles pour un seul et même échantillon en tomographie électronique analytique. Une amélioration de l'alignement et de l'étape de débruitage a permis d'obtenir des reconstructions 3,5D de meilleure qualité, avec plus de détails fins visibles sur la structure 3D des échantillons.

### ***Perspectives***

Les différentes étapes nécessaires à la reconstruction 3D en tomographie électronique ont déjà été abordées dans cette thèse. Un effort pour exploiter toujours plus d'informations au cours des différentes étapes de la reconstruction 3D a été fait. Ceci pourrait être poussé toujours plus loin. Il serait ainsi possible d'exploiter l'information sur la parcimonie de l'objet pour améliorer l'alignement, par exemple en utilisant des algorithmes avancés de reconstructions sous-contraintes pour les étapes de reconstructions intermédiaires au cours de l'alignement. Il est aussi envisageable d'exploiter l'interdépendance des différentes reconstructions 3D en tomographie analytique pour améliorer toujours plus la parcimonie et ainsi l'algorithme de reconstruction 3D. Il serait en effet avantageux d'utiliser les volumes hyperspectraux complets lors de la reconstruction. L'emplacement et la concentration des différents éléments présents dans l'échantillon étant corrélés.

L'amélioration de la technique de tomographie électronique peut également passer par une simplification et accélération des étapes de préparation d'échantillons et d'acquisition des données. Il serait très avantageux de pouvoir réaliser l'extraction de plusieurs pointes avec un FIB et de les positionner sur un même porte-échantillon et ce de façon automatique. Un inconvénient de la tomographie électronique est son caractère très local. Si plusieurs pointes extraites en différents endroits d'un même échantillon étaient disponibles et accessibles très rapidement sur un même porte-échantillon, il serait possible d'inspecter rapidement les différentes pointes et ainsi de compenser le caractère très local de la tomographie électronique en vérifiant que l'échantillon est relativement homogène ou au contraire en réalisant plusieurs reconstructions 3D des pointes qui présentent des différences significatives.

Il est même envisageable de réaliser des acquisitions rapides de nombreux échantillons. Des travaux actuels visent à rendre possible des acquisitions très rapides de séries complètes de tomographie électronique en une centaine de secondes [170]. Il devient ainsi envisageable de réaliser de nombreuses reconstructions pour suivre l'évolution temporelle d'un même objet 3D, ou alors de réaliser de très nombreuses reconstructions pour obtenir une statistique intéressante et compenser le caractère très local d'une reconstruction en tomographie électronique.

Enfin la tomographie électronique pourrait bénéficier de connaissances préalables extrêmement fortes sur les objets à reconstruire. En particulier dans le cas de dispositifs fabriqués à partir d'une approche descendante pour lesquels les morphologies et composition chimique 3D ciblées lors de la fabrication sont accessibles. Il est ainsi probablement inutile de réaliser une acquisition complète pour mesurer et évaluer les écarts que peuvent avoir les dispositifs réels par rapport au dispositif idéal. Partir du modèle 3D idéal connu pourrait permettre de n'acquérir que deux ou trois projections. Des paramètres tels que les dimensions et compositions précises pourraient alors être modifiés au sein d'un algorithme de reconstruction partant du volume 3D connu pour s'adapter aux quelques projections mesurées. Cet algorithme pourrait également détecter si les dispositifs réels sont trop éloignés du dispositif idéal et réaliser dans ce cas une acquisition classique de plusieurs dizaines de projections pour reconstruire l'objet 3D sans partir d'un modèle existant. Ce genre de technique pourrait exister pour des objets dont la fabrication et les modèles sont connus *a priori* mais également dans le cas d'objets devant être caractérisés en grand nombre. Si de très nombreux objets existent et certains paramètres morphologiques de ces objets sont susceptibles de changer, il est envisageable d'avoir recours à un algorithme d'apprentissage. L'algorithme pourrait alors, dans une première phase, apprendre les structures 3D existantes pour les différents objets à partir de reconstructions classiques de tomographie électronique, puis dans une seconde phase, reconstruire les objets 3D à partir de deux ou trois projections uniquement.





# ***ANNEXES***





## ANNEXE 1 : Présentation et guide d'utilisateur du logiciel GUIDAR

### A1. 1 : Introduction générale de GUIDAR

Le logiciel **GUIDAR** ("*Graphical User Interface for Denoising Alignment and Reconstruction*") permet de réaliser toutes les étapes nécessaires à la reconstruction 3D en tomographie électronique. Ce logiciel a été développé dans le cadre d'un travail de thèse réalisé au Léti (de 2013 à 2016) sur la plateforme de nano-caractérisation du CEA Grenoble par Tony PRINTEMPS. GUIDAR permet de réaliser toutes les opérations détaillées dans la référence [126], l'intérêt de ce logiciel, au-delà de la qualité des reconstructions 3D obtenues est sa facilité d'utilisation pour reconstruire des données obtenues à partir d'échantillons en forme de pointe. GUIDAR va même au-delà des méthodes développées dans l'article [126] puisqu'il permet aussi de corriger les déformations des projections à l'aide de la technique d'alignement non-rigide présentée dans la publication [153]. Deux techniques de débruitage des projections sont disponibles (algorithmes de seuillage d'ondelettes non décimées « UWT » et de filtre à moyenne non-locale « NLM »). Ces techniques de débruitage sont facilitées et rendues plus robustes par l'évaluation automatique du bruit (de type mixte Poisson-Gaussien) présent dans l'ensemble des projections. Deux techniques de reconstructions, algébrique (SIRT) et analytique (FBP), donnent la possibilité à l'utilisateur d'obtenir des reconstructions 3D très rapidement (FBP) ou un peu plus lentement mais avec une qualité accrue (SIRT).

### A1. 2 : Prérequis logiciels et matériels

GUIDAR a été implémenté et testé sous Matlab R2015b sur une machine de calculs ne présentant pas de limitations contraignantes en termes de mémoire (100 Go) et possédant une carte graphique permettant de paralléliser les calculs de reconstructions. Ces configurations sont recommandées pour utiliser GUIDAR dans les meilleures conditions. La carte graphique doit gérer le calcul CUDA. GUIDAR fonctionne tout de même en mode dégradé sur un PC ne comportant pas de carte graphique CUDA, la reconstruction est dans ce cas plus lente et utilise uniquement le CPU. La détermination automatique de l'axe de rotation ainsi que l'alignement perpendiculairement à cet axe (X) à l'aide de reconstructions intermédiaires ne sont plus accessibles dans ce mode dégradé.

GUIDAR peut être lancé de deux manières :

- 1) depuis le logiciel Matlab
- 2) depuis un exécutable (ne nécessitant pas dans ce cas de licence Matlab)

## 1. Lancer GUIDAR depuis le logiciel Matlab

GUIDAR a été implémenté sous Matlab R2015b. Cette version est celle qui a été testée et qui est donc recommandée. Avant toute chose il faut ajouter le dossier « GUIDAR » contenant toutes les fonctions nécessaires au chemin d'accès de Matlab. GUIDAR se lance ensuite en tapant directement dans la fenêtre de commande Matlab : **GUIDAR**. Dans ce cas la fenêtre GUIDAR s'ouvre et permet de sélectionner les données à traiter sur l'ordinateur en mode interactif.

Dans le cas où les projections à traiter sont déjà présentes dans l'espace de travail de Matlab, une structure, **data** par exemple, peut être utilisée avec au moins un champ intitulé **sino**. Ce champ doit contenir la matrice 3D des projections, dans laquelle sont stockés les sinogrammes de l'acquisition à traiter. Le champ **data.angles** peut également être ajouté à la structure. C'est un vecteur contenant les valeurs des angles des projections en radian. Il est aussi possible d'ajouter les angles directement dans l'interface GUIDAR en mode interactif. Lancer l'interface GUIDAR avec les données directement se fait en tapant **GUIDAR(data)** dans la fenêtre de commandes.

## 2. Lancer GUIDAR depuis l'exécutable

Un exécutable a été généré pour utiliser GUIDAR sans avoir accès à un jeton Matlab. Cet exécutable fonctionne pour une version windows 64 bit. La version de Matlab R2015b ou le runtime correspondant (9.0) doit être installé sur l'ordinateur dans ce cas. Un double clic sur l'icône GUIDAR permet de lancer le logiciel directement.

Une fois lancé, le logiciel GUIDAR permet de charger les données à traiter dans le logiciel en mode interactif. Ces données peuvent être de 4 types :

- Un fichier TIFF 3D contenant les projections à traiter
- Un fichier MRC. C'est le format de fichier créé par le logiciel automatique d'acquisition Explore3D de FEI. Ce fichier contient toutes les projections ainsi que les valeurs des angles des projections
- Un dossier contenant toutes les projections acquises avec le logiciel TIA. Lors de l'acquisition au microscope, les projections doivent être enregistrées en leur donnant le nom de l'angle de rotation utilisé, par exemple : « +8 » ou « 8 » pour une projection à 8 degrés et « -17.3 » pour une projection à -17,3 degrés. Ceci donne alors des fichiers « +8\_1.ser », « 8\_1.ser » ou « -17.3\_1.ser » par exemple. Tous les fichiers d'extension « .ser » présents dans le dossier sélectionné sont ouverts et l'angle de projection correspondant à leur nom leur est attribué.
- Un fichier précédemment enregistré avec GUIDAR. Ceci est un fichier matlab d'extension « .mat » qui contient toutes les données utilisés par GUIDAR.

Puisque ces données contiennent un format Tiff largement utilisé, il est possible relativement simplement de charger des données acquises depuis presque n'importe quel type de technique.

### A1. 3 : Fonctionnement en onglets

Le logiciel GUIDAR possède un système d'onglets permettant de réaliser séquentiellement les différentes étapes de la reconstruction 3D, Figure 113. Ces onglets, pointés par une flèche rouge dans la figure, sont dans l'ordre :

- Chargement et prétraitement
- Débruitage
- Alignement
- Reconstructions directes
- Reconstructions
- Sauvegarde des données

Le logiciel GUIDAR possède également un système de triples boutons exclusifs, pointés par une flèche bleue dans la Figure 113, permettant d'alterner entre la visualisation des données originales, débruitées et alignées à tout moment et quel que soit l'onglet sélectionné.

Au lancement, la figure GUIDAR s'ouvre sur l'onglet « Chargement et prétraitement », Figure 113.

### A1. 4 : Onglet « Chargement et prétraitement »

Voir la Figure 113 pour les notations relatives à l'onglet « chargement et prétraitement »

#### **Chargement :**

Les quatre boutons situés en haut de l'onglet permettent de charger des projections à partir d'un des 4 formats compatibles (cf. A1. 2). Une fois les projections chargées, une projection est affichée dans la zone [1], un sinogramme dans la zone [2], les valeurs des angles de projections dans la zone [3].

#### **Affichage :**

Des barres sont présentes sur la projection et le sinogramme affichés. Ces barres désignent respectivement l'emplacement du sinogramme et de la projection représentés. Il est possible de cliquer sur ces barres en maintenant le bouton de la souris enfoncé, puis de les décaler. Une fois le bouton relâché, la projection ou le sinogramme à afficher sont mis à jour pour correspondre au nouvel emplacement de la barre sélectionnée. Il est également possible de modifier la projection ou

sinogramme à afficher en utilisant la roue de la souris. Après un clic sur la projection, utiliser la roue de la souris permet de changer la projection affichée, de même pour le sinogramme.

### Prétraitement des projections :

Si les données sont chargées à partir d'un fichier TIF, les angles ne sont pas fournis et il faut les ajouter à l'aide du bouton et du texte modifiable [4]. Il est toujours possible de les modifier depuis [4] à n'importe quel moment. Si le nombre de projections ne correspond pas au nombre d'angles entrés, l'affichage [3] est rouge. Il est vert si les angles sont en accord avec le nombre de projections. Le texte dans l'encadré [4] correspond à une expression Matlab : « ***data.angles = (-90:5:90) \* pi/180*** » correspond par exemple à des angles en radian entre -90 et +90° avec un pas de 5° entre chaque. Si l'utilisateur veut rentrer des projections avec un pas de 1° entre -90 et +90° mais avec les projections à 0° et à 30° en moins par exemple, il peut rentrer : « ***data.angles = [-90:1:-1 1:1:29 31:1:90] \* pi/180*** ». Une fois la bonne expression Matlab rentrée, il faut valider en cliquant sur le bouton [4].

Il est possible de supprimer les projections qui ne conviennent pas à l'aide des boutons [5].

Il est également possible de diminuer la taille des projections à l'aide des boutons et du texte modifiable [6]. Avoir des projections avec 2048 × 2048 pixels n'est par exemple pas souhaitable dans le cas où il n'y a que 90 ou 180 projections de disponibles. Une telle résolution sera de toute façon perdue lors de la reconstruction. Pour accélérer l'alignement et la reconstruction, il est donc vivement recommandé de diminuer la taille des projections par un certain facteur pour n'avoir plus que 512 ou 1024 pixels.

L'axe de rotation doit être approximativement horizontal. En fonction du microscope utilisé et de l'orientation du scan, il est possible que l'axe de rotation soit en fait approximativement vertical. Dans ce cas il faut cliquer sur le bouton [7] pour tourner les projections de 90°.

Il est possible de rogner les projections pour n'en traiter qu'une partie. Cela se fait à l'aide des boutons [8]. Cliquer sur le premier bouton fait apparaître un rectangle vert au centre de la projection représentée. Il est ensuite possible de déplacer et de modifier la taille de ce rectangle en cliquant sur un côté du carré puis en cliquant à nouveau à l'endroit de la projection ou le côté du rectangle doit être positionné. En cas de changement d'avis, pour ne pas rogner les projections, il faut cliquer sur le bouton « stop cropping » pour faire disparaître le rectangle vert. Le bouton « keep axis alignment » permet de décaler le rectangle vert qui a été placé par l'utilisateur de façon à ce que l'axe horizontal au centre du rectangle soit confondu avec l'axe horizontal au centre des projections. En d'autres termes cliquer sur ce bouton permet d'élargir la sélection de l'utilisateur pour gardant l'axe de rotation proprement centré après avoir rogné les projections. Ceci doit être réalisé en particulier dans le cas où

les projections ont déjà été alignées et où il est nécessaire de les rogner sans pour autant recommencer la détermination de l'axe de rotation.

La valeur du niveau de gris du vide (le noir) n'est pas forcément nulle. En général, les paramètres « brightness/contrast » du microscope sont réglés pour ne pas perdre de la dynamique sur le signal codé en 16 bit (valeurs entières de 0 à 65535). Les boutons  permettent de sélectionner une zone de fond à l'aide d'un rectangle vert à déplacer. La moyenne sur ce rectangle est alors soustraite à l'ensemble des projections de façon à ce que le fond soit proche de 0.

Enfin la zone de texte et le bouton  permettent de taper une expression Matlab pour modifier les données, les inverser par exemple dans le cas de projections IBF ou radiographies X.



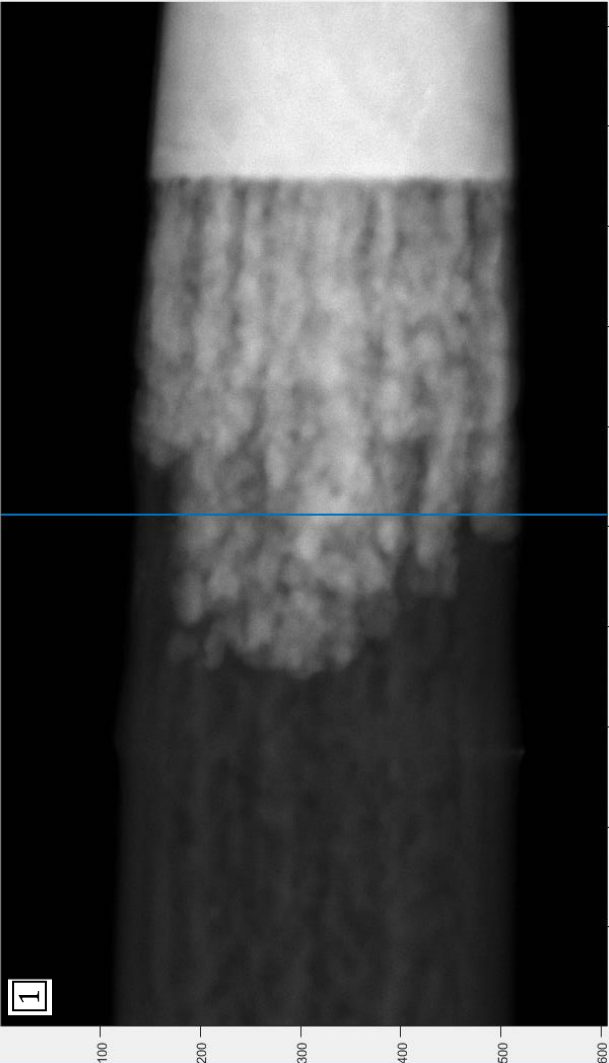
GPU is used for alignment and reconstruction

Original projections   
  Denoised projections   
  Aligned projections

Loading and pre-processing   
  Denoising   
  Alignment   
  Live reconstructions   
  Reconstruction   
  Saving data

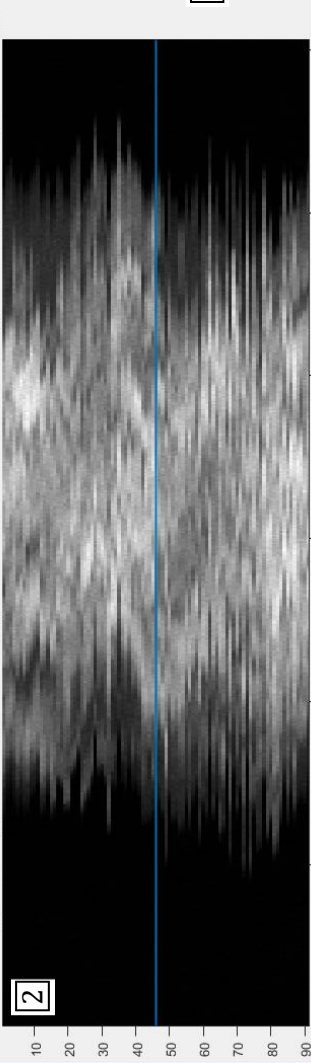
Load projections from TF 3D   
 Load projections & angles from SER files   
 Load projections & angles from MRC file   
 Load projections & angles from matlab file

**1**



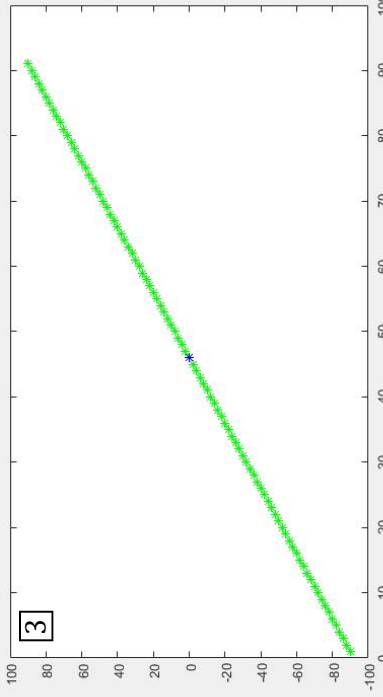
100 200 300 400 500 600

**2**



10 20 30 40 50 60 70 80 90

**3**



Dimensions of the dataset are (606 x 1024 x 91)  
 Consider binning data for speed! ( 512 x 512 x 180 ) is a good compromise at first

100 80 60 40 20 0 -20 -40 -60 -80 -100

0 10 20 30 40 50 60 70 80 90 100

**4** data angles = (-90:180)\*pi/180;    Create (or change) angles

**5** Select (or deselect) the (0°) projection    Delete selected projections (red)    -    +

**6** Bin data with a factor 2

**7** 90° rotation    Tilt axis must be roughly horizontal. If vertical, click the 90° rotation button

**8** Crop projections    Stop cropping    Keep axis alignment    Apply cropping

**9** Select a background area    Stop background correction    Subtract area mean

**10** `data.sino = -log(data.sino/max(data.sino));`  
 Apply the above matlab command (can be used to invert X-ray intensity for example)

Figure 113 : Onglet « chargement et prétraitement » de GUIDAR.

## A1. 5 : Onglet « Débruitage »

Après avoir cliqué sur l'onglet "*Denoising*", l'interface conserve une projection et un sinogramme, mais les boutons sur le côté droit changent, cf. Figure 114.

Les boutons [1] permettent au choix, d'évaluer le bruit présent dans l'ensemble des projections, en considérant soit que c'est un bruit mixte Poisson-Gaussien soit que c'est un bruit Gaussien. Pour rendre l'évaluation du bruit beaucoup plus rapide, le texte modifiable [2] permet de ne sélectionner qu'une partie des projections pour évaluer le bruit. Le texte par défaut est : « ***projToUse = (1:10:NbProj)*** ; ». Ceci est une expression matlab signifiant qu'il ne faut prendre qu'une projection toutes les 10 projections jusqu'à la fin. Pour prendre toute les projections il faut remplacer le texte par « ***projToUse = (1:1:NbProj)*** ; » ; pour n'utiliser que la 1<sup>ère</sup> projection il faut écrire « ***projToUse = 1*** ; ».

Après avoir appuyé sur l'un des boutons [1], l'évaluation du bruit est lancé. Une fenêtre s'ouvre ensuite, Figure 115, avec l'évaluation du bruit ainsi que l'approximation par une racine carré correspondant à un bruit mixte Poisson-Gaussien [7]. Les paramètres du bruit évalué sont placés dans les cases [3]. Ces cases peuvent être modifiées manuellement si l'évaluation du bruit n'est pas satisfaisante.

Les boutons [5] permettent de lancer un débruitage « UWT » ou « NLM » sur toute la série de projections. Le débruitage « UWT » est le plus rapide, mais le débruitage « NLM » est plus efficace en général.

Il est possible de tester le débruitage sur une projection avant de l'appliquer à toute la série. Pour cela il suffit de cliquer sur les boutons [5]. Un affichage en bas à droite de la fenêtre GUIDAR apparait alors pour observer la projection débruitée [8], cf. Figure 116. Il est possible de zoomer dans cette projection en cliquant sur la loupe en haut de la fenêtre. Des boutons exclusifs apparaissent également [9] pour alterner facilement entre projection bruitée, débruitée et projection résiduelle (différence entre projections bruitée et débruitée). L'intérêt de la projection résiduelle et de voir rapidement s'il n'y a que du bruit qui est retiré par l'opération de débruitage.

Le bouton à cocher [6] est décoché par défaut. Le cocher ouvre une boîte de diagonal quand le bouton débruitage NLM est enfoncé. Cette boîte de dialogue permet de modifier les 3 paramètres qui peuvent jouer sur le débruitage NLM, à savoir la force du filtre, la taille de la fenêtre de similitudes à utiliser et la taille de la fenêtre de recherche (par défaut 1, 3, 3). Ce bouton [6] sert à la fois pour tester le débruitage sur une projection et pour lancer le débruitage sur toute la série de projection.

GPU is used for alignment and reconstruction

Original projections   
  Denoised projections   
  Aligned projections

Loading and pre-processing   
 Denoising   
 Alignment   
 Live reconstructions   
 Reconstruction   
 Saving data

**1** Evaluate mixed Poisson-Gaussian noise  
 Evaluate pure Gaussian noise  
`projNoise = (1:10:NbProj);`

**2**

**3**

Poisson noise parameter	1
Gaussian noise parameter	0

**4** Projection denoising UWT  
 Projection denoising NL-means

**5** Test UWT on 1 projection     Test NL-means on 1 projection

**6**

Figure 114 : Onglet « débruitage » de GUIDAR

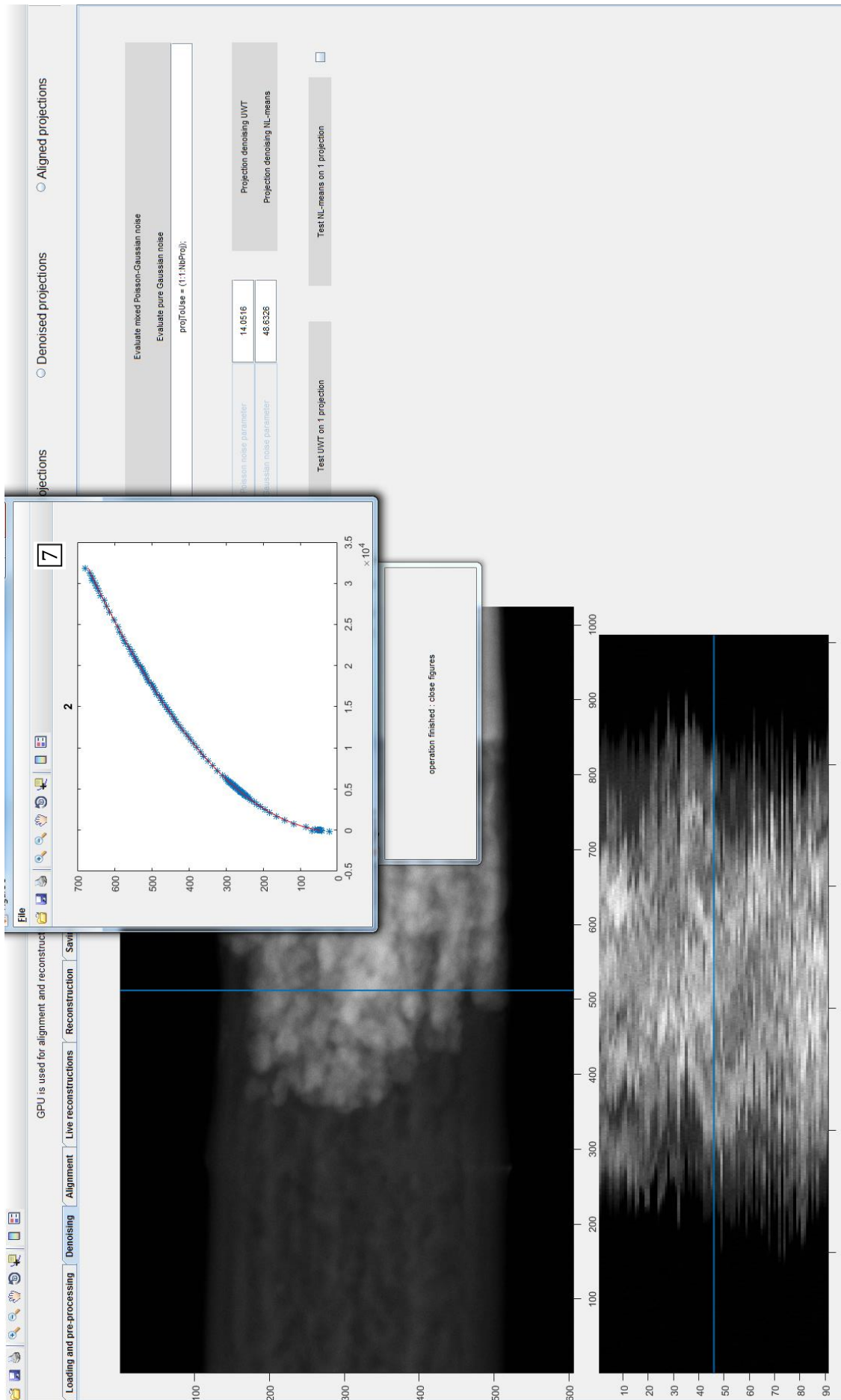


Figure 115 : Onglet « débruitage » de GUIDAR. Évaluation automatique d'un bruit mixte Poisson-Gaussien.

GPU is used for alignment and reconstruction

Original projections   
 Denoised projections   
 Aligned projections

Loading and pre-processing   
 Denoising   
 Alignment   
 Live reconstructions   
 Reconstruction   
 Saving data

Evaluate mixed Poisson-Gaussian noise

Evaluate pure Gaussian noise

projNoise = ([11;nbProj]);

Poisson noise parameter	14.0516
Gaussian noise parameter	48.6326

Projection denoising UWT

Projection denoising NL-means

Test UWT on 1 projection

Test NL-means on 1 projection

Original projection   
 Denoised projection   
 Residual projection

Figure 116 : Onglet « débruitage » de GUIDAR. Test du débruitage sur une projection

## A1. 6 : Onglet « Alignement »

### **Remarque 1 :**

L'onglet alignement possède de nombreux boutons parce qu'il permet de réaliser beaucoup de choses plus ou moins manuellement pour s'adapter à un maximum de types d'échantillons différents. Dans le cas d'une acquisition avec une pointe sur une étendue angulaires de 180°, n'utiliser que les boutons [4] donnera des résultats satisfaisants.

### **Remarque 2 :**

Pour appliquer les alignements avec une précision inférieure au pixel séquentiellement, il n'est pas optimal de faire des interpolations bilinéaires de très nombreuses fois. En effet, il faut faire une interpolation bilinéaire après l'alignement en Z, puis recommencer après l'alignement en X, puis recommencer après la rotation pour l'axe de rotation et enfin recommencer encore 2 fois pour les derniers alignements en Z et en X. Pour éviter toutes ces interpolations qui font perdre en résolution, ce sont des grilles X et Z de même taille que les projections qui sont décalées et tournées autant de fois que nécessaires. À chaque fois que les images sont alignées, il n'y a qu'une seule interpolation qui est faite à partir de ces 2 grilles pour obtenir les images alignées.

En cliquant sur l'onglet alignement, la fenêtre de GUIDAR devient celle qui est visible sur la Figure 117. Il y a deux images [1] et [2] sur cette fenêtre qui permettent d'évaluer en un coup d'œil l'alignement dans la direction de l'axe de rotation (Z) [1] et dans la direction perpendiculaire à l'axe de rotation (X) [2]. La première image s'appelle la ligne commune. Dans le cas de projection parfaitement alignées, cette image ne possède que des lignes identiques. Dans l'exemple de la Figure 117, l'alignement dans la direction Z n'est pas encore réalisé et les lignes sont toutes décalées les unes par rapport aux autres. L'image [2] représente un sinogramme, dans le cas d'un alignement parfait le sinogramme doit présenter une continuité et non pas les sauts qui sont visibles sur la figure et qui sont caractéristique d'un mauvais alignement des projections. Si le sinogramme ne présente aucun saut cela ne veut pas dire que les projections sont bien alignées pour la reconstruction. Par exemple, si l'objet à reconstruire n'est composé que d'un point au centré, son sinogramme est alors un trait vertical centré. Si le trait n'est pas centré mais décalé, le sinogramme ne présente pas de sauts, mais la reconstruction présentera de nombreux artefacts et l'alignement n'est pas bon.

Les volets déroulants [3] présentent les opérations qui seront réalisées dans l'ordre lors de l'alignement. Par défaut, l'alignement commence par un alignement en Z, puis en X, puis une détermination de l'axe de rotation et se termine par un alignement en Z et en X. Il est possible de

modifier toutes ces opérations comme le souhaite l'opérateur. Dans le cas de données où il n'y a pas d'indétermination dans l'axe de rotation, il est possible notamment de remplacer les 3 derniers volets déroulants par un blanc pour ne réaliser qu'une correction des décalages en Z et en X.

Les boutons [4] permettent de lancer l'alignement (opérations sélectionnées dans les volets [3]) sur les projections bruitées ou débruitées. Des fenêtres s'ouvrent alors au fur et à mesure que l'alignement est réalisé pour chacune des opérations demandées, cf. Figure 118. Dans l'exemple de la Figure 118, une fenêtre pour la détermination des décalages en Z est présente en haut à gauche. Puis une fenêtre en haut au milieu, indique l'emplacement qui est utilisé automatiquement pour l'alignement dans la direction X à l'aide de reconstructions intermédiaires. La fenêtre en haut à droite montre les décalages en X obtenus. La fenêtre en bas au milieu montre les différents emplacements qui sont utilisés automatiquement par l'algorithme pour réaliser la détermination de l'axe de rotation. Enfin, la fenêtre en bas à droite montre le résultat de l'estimation de l'axe de rotation.

Une fois l'alignement réalisé, les résultats obtenus sont visibles très rapidement en regardant la ligne commune et le sinogramme des projections alignées à l'aide des images [1] et [2]. La fenêtre de GUIDAR donnant le résultat après un alignement classique est visible sur la Figure 119. De très bons alignements en Z et en X sont alors visibles puisqu'il n'y a presque plus de sauts dans l'image de la ligne commune ni dans celle du sinogramme.

Les boutons [5] permettent de sauvegarder les alignements ou d'en télécharger de nouveaux. En cliquant dessus une fenêtre s'ouvre pour sélectionner le fichier « .mat » à charger ou choisir un nom et un emplacement pour enregistrer les alignements déterminés. Il est ainsi possible d'appliquer le même alignement à des séries de projections différentes, dans le cas de tomographie analytique STEM EDX ou STEM EELS par exemple. Il est également possible en cliquant sur les boutons [6] d'appliquer l'alignement déterminé précédemment soit aux projections originales soit aux projections débruitées.

Le bouton [7] permet de déterminer à la main l'imprécision au niveau de l'axe de rotation. Ceci peut être utilisé dans le cas de projections d'un objet qui n'est pas en forme de pointe pour lequel la détermination automatique de l'axe de rotation peut ne pas fonctionner parfaitement.

Si l'alignement n'est pas idéal, il est possible d'imposer les emplacements déterminés automatiquement par le logiciel pour les reconstructions intermédiaires par exemple. Pour cela il suffit de cocher les boutons [8] en face des opérations pour lesquelles l'utilisateur veut imposer un emplacement à utiliser lors de l'alignement.

Cocher le bouton [9] permet de lancer la détermination des opérations sélectionnées dans les onglets [3] en repartant des alignements déjà déterminés. Il est ainsi possible de lancer les étapes une à une pour voir la progression.

Cocher le bouton [10] permet d'utiliser la technique d'alignement non-rigide de la référence [153]. Si ce bouton est coché, au moment de réaliser un alignement en Z ou en X, une fenêtre s'ouvre pour demander combien de sous-parties seront utilisées pour l'alignement non-rigide (cf. [153]). L'emplacement des sous-parties utilisées est important (en particulier pour l'alignement non-rigide en Z) et nous conseillons donc de cocher les boutons [8] pour sélectionner ces emplacements idéalement. Je conseille d'appliquer la procédure suivante pour réaliser un alignement non-rigide :

1. Lancer l'alignement rigide classique (Z, X, axe de rotation, Z, X)
2. Enregistrer les alignements ([5]) pour revenir simplement à l'alignement rigide si les paramètres appliqués pour l'alignement non-rigide ne conviennent pas.
3. Regarder la ligne commune [1] des données alignées et évaluer en combien de sous-parties il est possible de réaliser un alignement en Z avec suffisamment de contraste.
4. Ne laisser que l'opération « *Z-alignment* » dans [3] et cocher [8] en face.
5. Cocher [9] et [10] et appuyer sur un des boutons [4] pour lancer l'alignement non-rigide en Z.
6. Choisir sur l'onglet qui s'ouvre (Figure 120) le nombre de sous-parties à utiliser (étape 3)
7. Une figure s'ouvre affichant la ligne commune avec autant de paires de barres verticales que de sous-parties sélectionnées. Il faut déplacer ces barres avec la souris pour sélectionner les sous-parties à utiliser. Deux barres de la même couleur servent à désigner le début et la fin d'une sous-partie. Le bouton [11] permet de passer de l'affichage de la ligne commune à celui d'une projection (Figure 122). Le bouton [12] permet de lancer les calculs de l'alignement non-rigide avec les sous-parties sélectionnées par l'emplacement des barres.
8. Il faut ensuite vérifier que l'alignement a bien fonctionné avec les affichages [1] et [2] ou en revenant sur l'onglet « chargement et pré-traitement ». Si ce n'est pas le cas, parce qu'il n'y avait pas assez de contraste dans certaines sous-parties par exemple, il faut recharger l'alignement rigide enregistré à l'étape 2 et recommencer à partir de l'étape 3 en changeant le nombre et/ou la position des sous-parties. Si l'alignement non-rigide en Z est bon, il est conseillé de l'enregistrer et de passer à l'alignement non-rigide en X. Les mêmes étapes doivent être réalisées avec la différence que les sous-parties sont des coupes cette fois-ci. Il n'y a pas de problèmes de contrastes en général, en particulier avec des pointes, et beaucoup de sous-parties peuvent donc être prises pour l'alignement non-rigide en X.



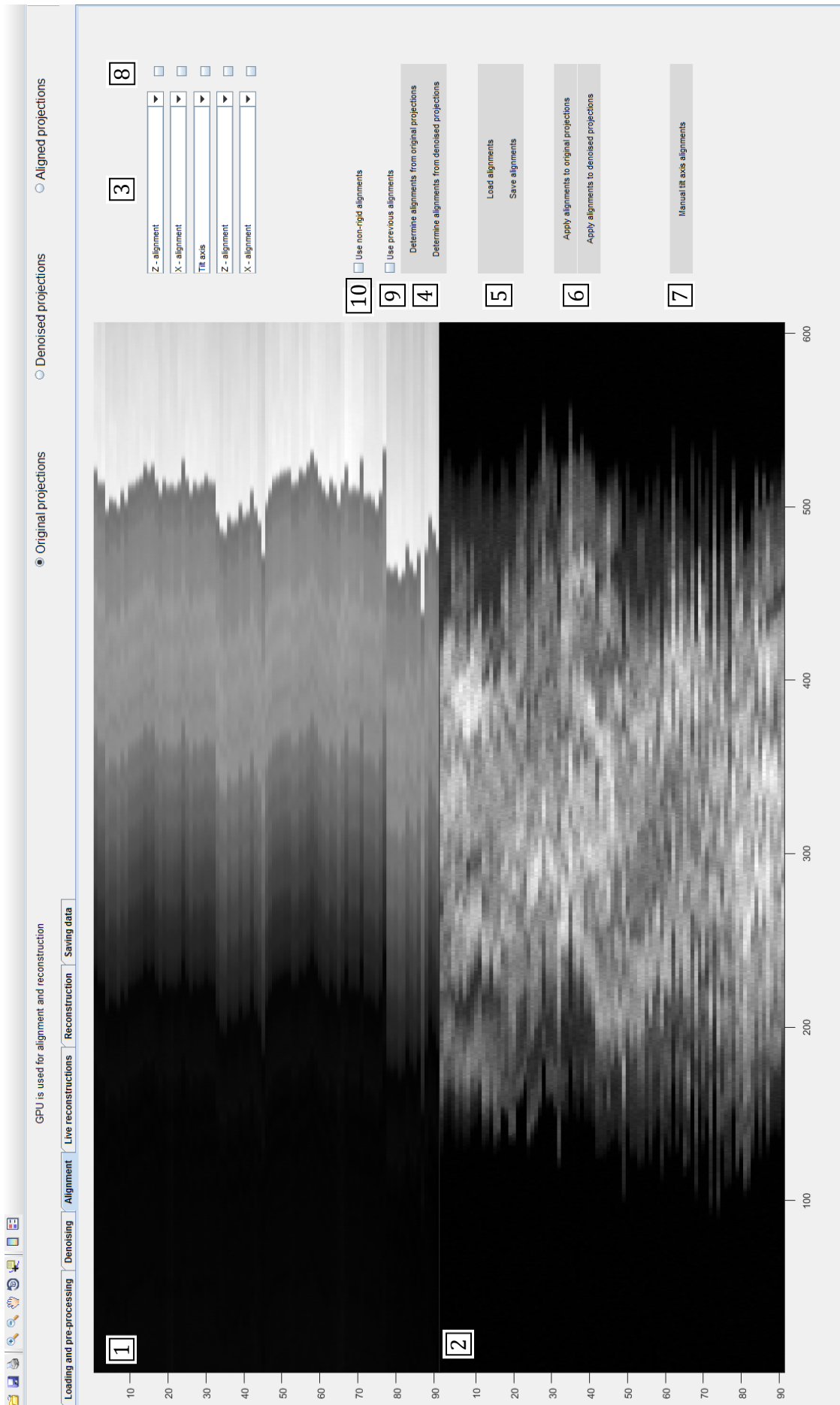


Figure 117 : Onglet « alignement » de GUIDAR

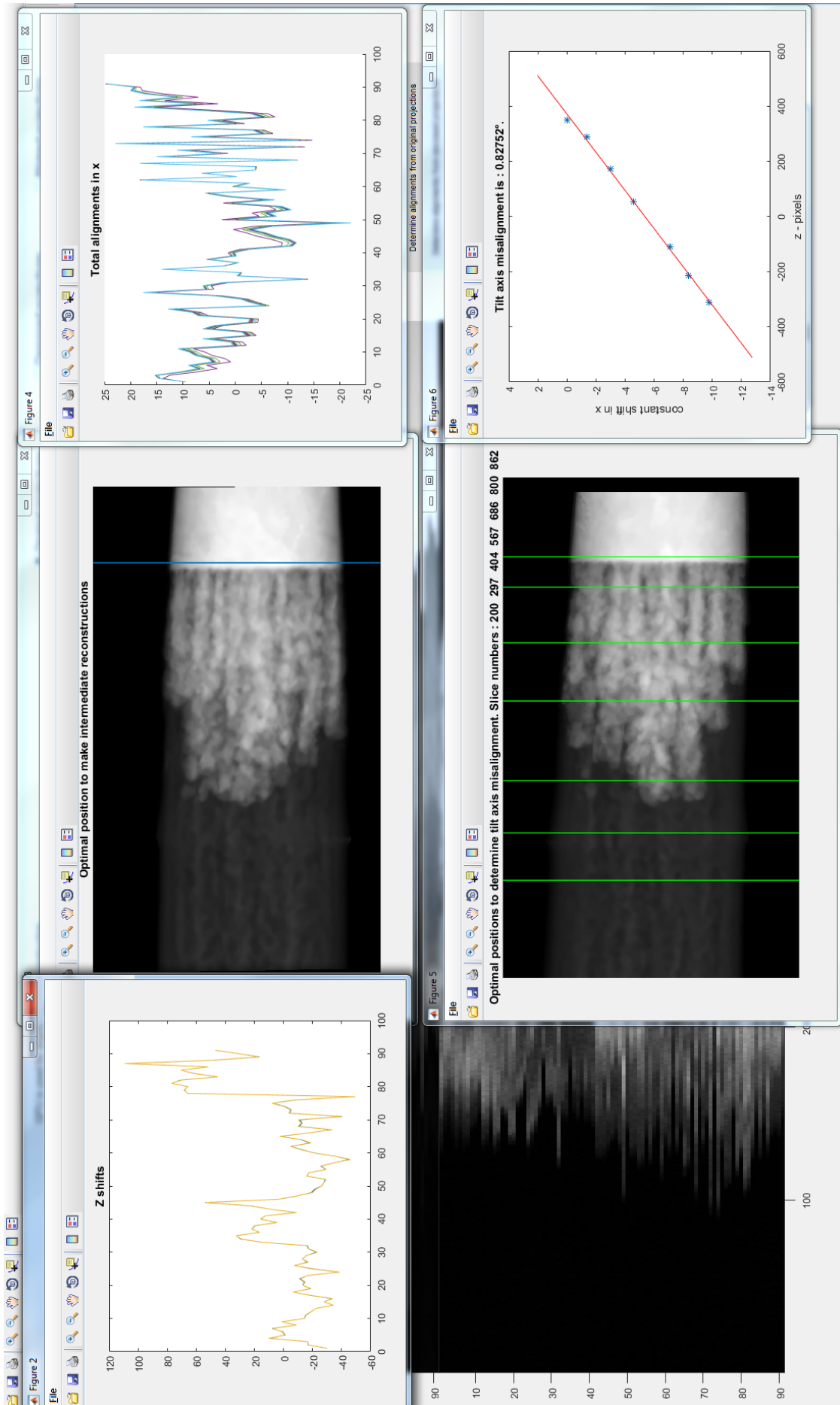


Figure 118 : Onglet « alignment » de GUIDAR avec les différentes fenêtres qui s'ouvrent au fur et à mesure de l'alignement.

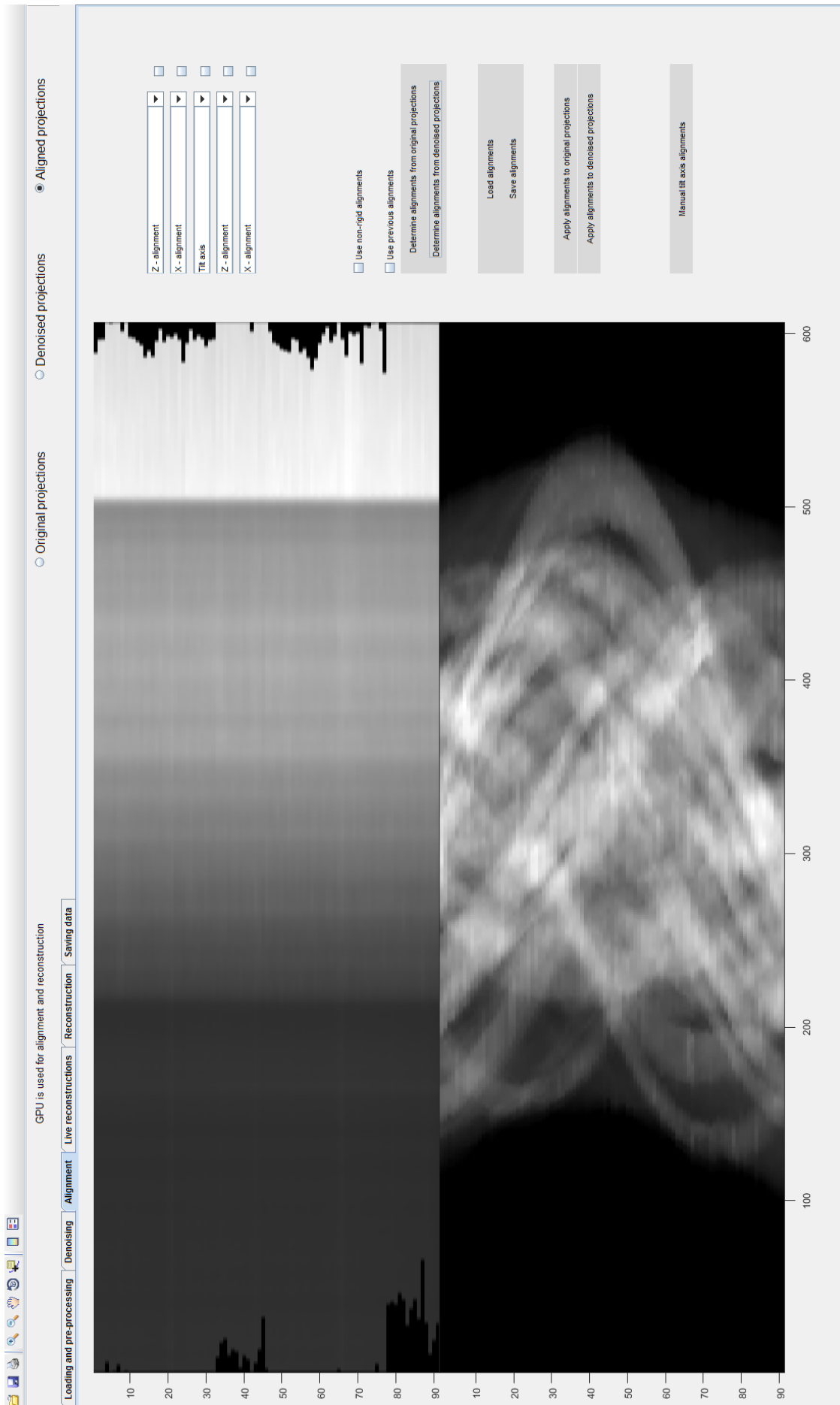


Figure 119 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Résultats obtenus après un alignement classique

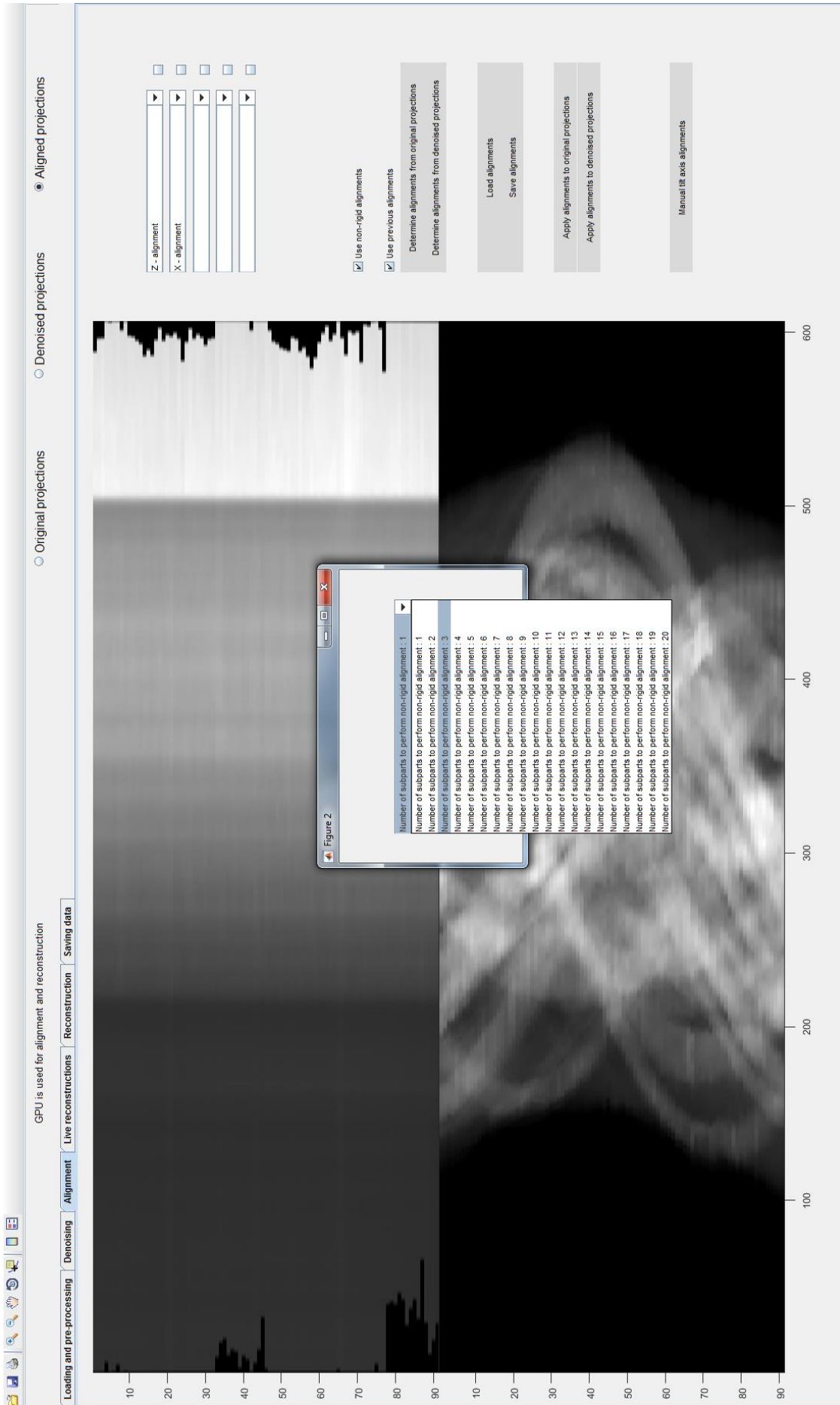


Figure 120 : Onqlet « alignement » de GUIDAR. Après demande d'alignement non-riptide



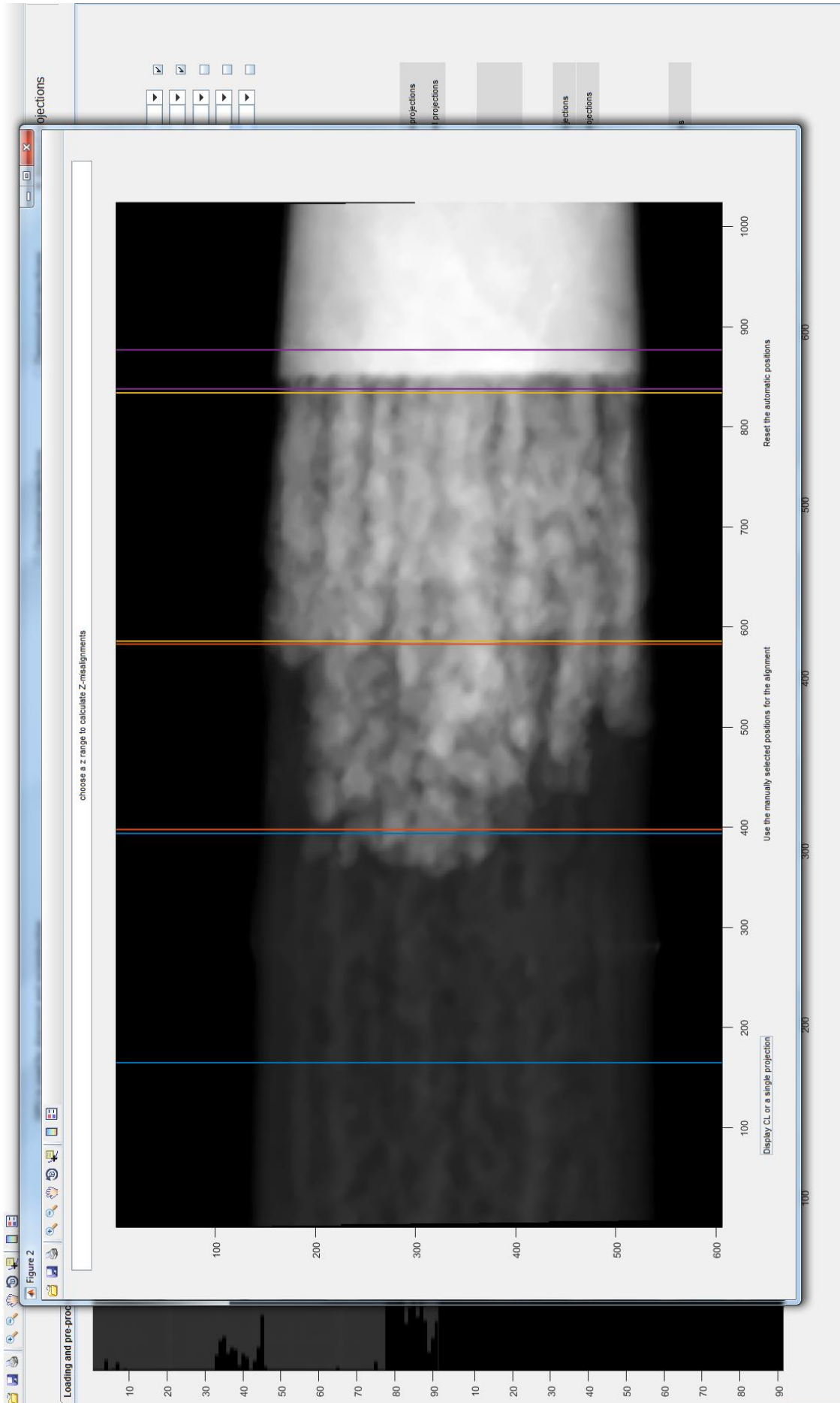


Figure 122 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Positionnement des sous-parties pour l'alignement non-rigide (projection)

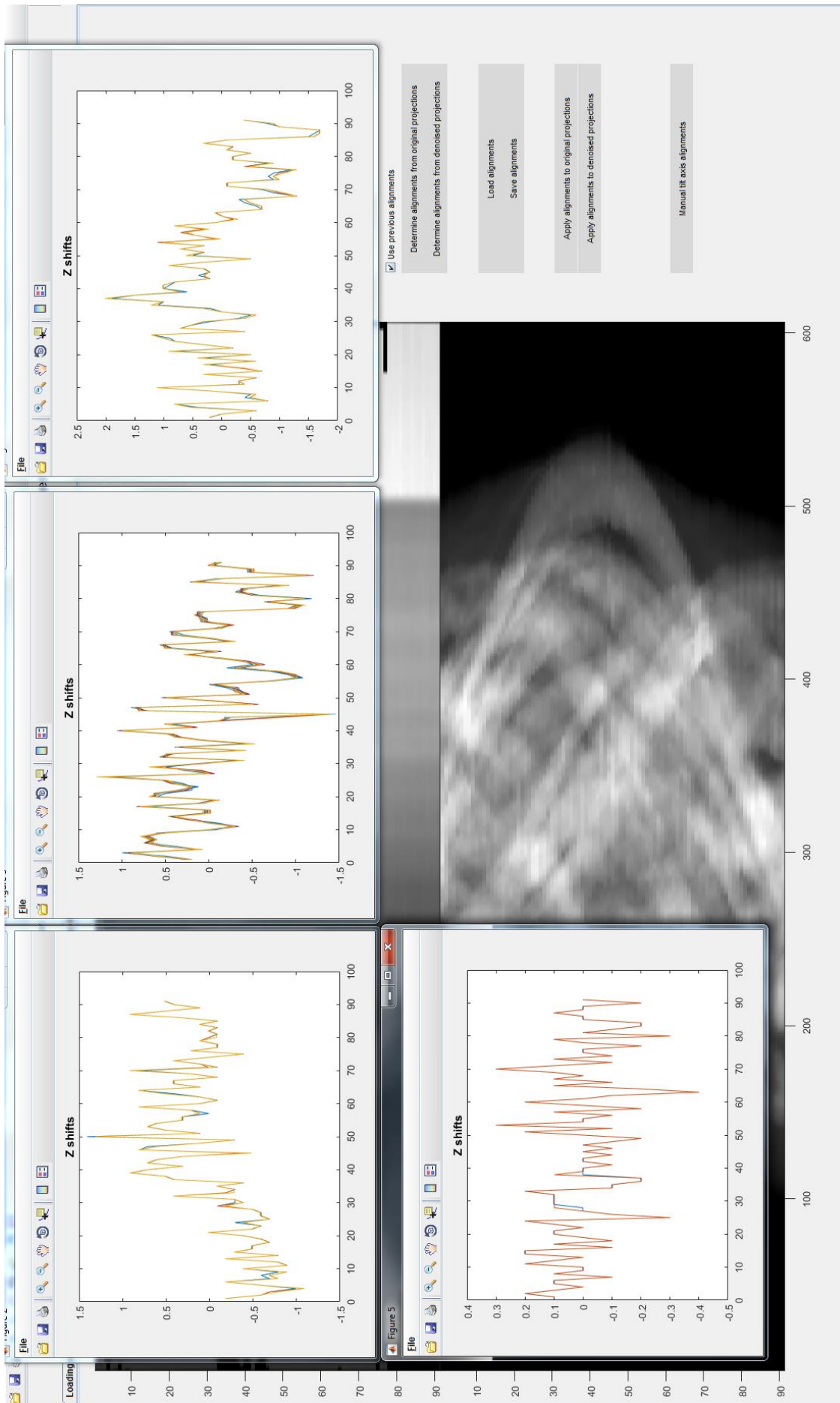


Figure 123 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Résultats d'un alignement non-rigide en Z.

## A1. 7 : Onglet « Reconstructions directes »

Cliquer sur l'onglet « *Live reconstructions* » transforme la fenêtre principale de GUIDAR en celle qui est visible sur la Figure 124. Une projection est visible [1] correspondant au type sélectionné (« *Original projections* » ou « *Denoised projections* » ou « *Aligned projections* »). Il est toujours possible de changer le type de projection sélectionné à l'aide des 3 boutons exclusifs en haut à droite de la fenêtre GUIDAR. Après avoir cliqué sur la projection affichée, tourner la molette de la souris permet de changer la projection qui est affichée. Il y a également une barre présente sur la projection affichée.

Une reconstruction en coupe axiale correspondant à l'emplacement de la barre est visible [2]. Il est possible de déplacer la barre en cliquant dessus avec la souris. Une fois le bouton de la souris relâché, la reconstruction [2] est mise à jour pour correspondre au nouvel emplacement de la barre. Cette reconstruction est une reconstruction rapide FBP qui est obtenue en 1 dixième de seconde avec le PC de traitement utilisé. Il est possible d'avancer coupe par coupe en cliquant sur la reconstruction, puis en utilisant la molette de la souris, pour reconstruire et afficher les coupes situées juste au-dessus ou juste en dessous de la reconstruction actuelle.



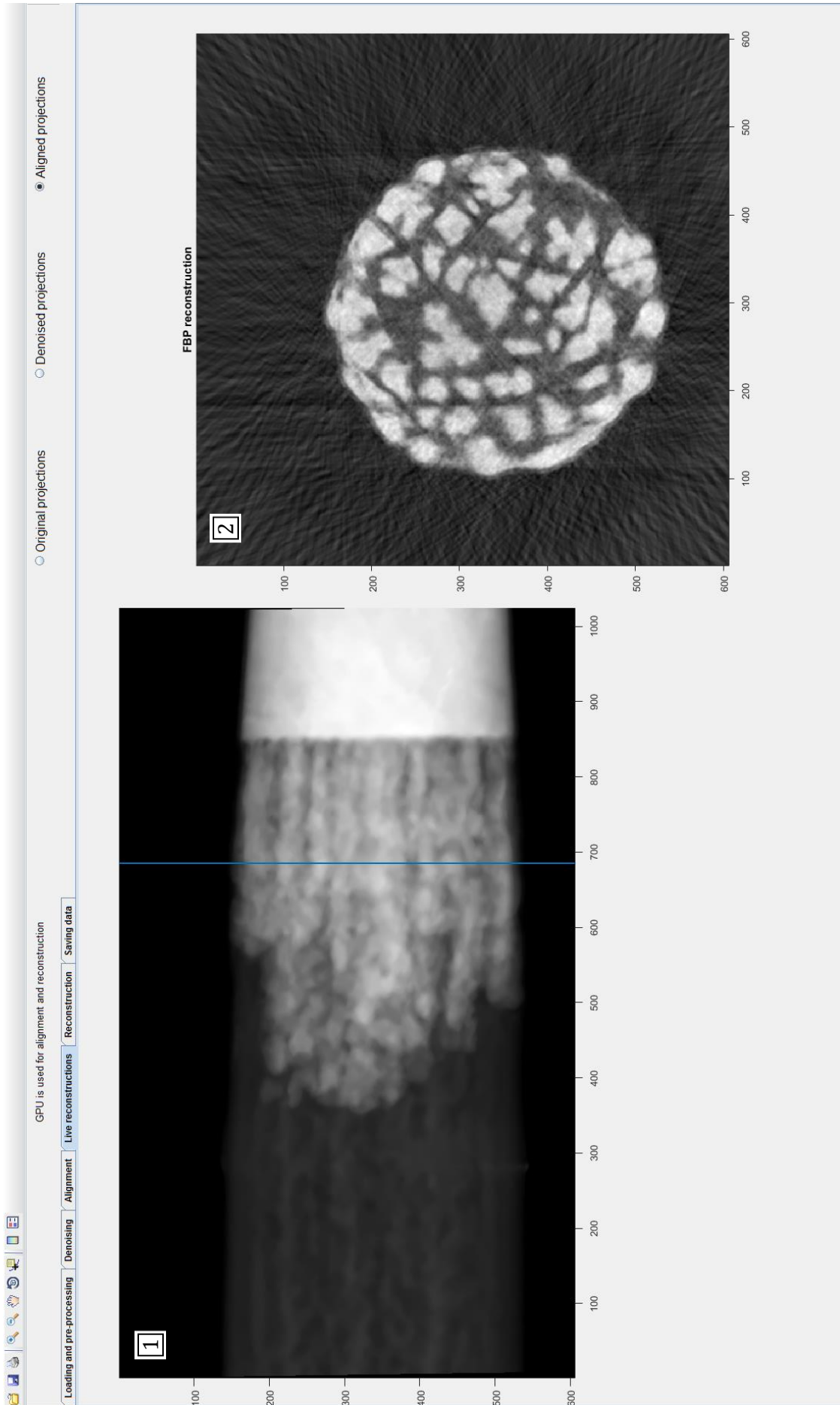


Figure 124 : Onglet « Reconstructions directes » de GUIDAR

## A1. 8 : Onglet « Reconstructions »

Cliquer sur l'onglet « *Reconstructions* » transforme la fenêtre principale de GUIDAR en celle visible sur la Figure 125. Le système utilisant la barre sur la projection affichée et la vue en coupe axiale correspondante est similaire à celui de l'onglet « Reconstructions directes ». Cette fois par contre relâcher la barre ne met pas à jour la reconstruction. Il faut cliquer sur le bouton « *make a FBP slice reconstruction* » pour faire et afficher une reconstruction FBP sur la coupe sélectionnée. Dans cet onglet est également disponible une reconstruction analytique SIRT. Cliquer sur le bouton « *make a SIRT slice reconstruction* » permet de lancer une reconstruction avec le nombre d'itération affiché dans la zone [1] qui peut être modifié par l'utilisateur. Des contraintes de positivité sont appliquées si le bouton [2] est coché. Pendant la reconstruction SIRT, l'erreur résiduelle est affichée dans la partie [3]. L'erreur résiduelle est la valeur normalisée des moindres carrés entre les projections et les reprojektion de la reconstruction. La reconstruction affichée dans la Figure 125 est le résultat d'un SIRT>0 de 100 itérations dont la progression en termes d'erreur résiduelles est visible dans la partie [3].

Il est également possible dans cet onglet de lancer une reconstruction sur tout le volume en cliquant sur les boutons « *make a FBP volume reconstruction* » ou « *make a SIRT volume reconstrucion* ». Immédiatement après avoir cliqué sur un de ces boutons, une fenêtre windows s'ouvre pour sélectionner l'emplacement et le nom du fichier 3D qui est utilisé pour écrire la reconstruction. La reconstruction se lance alors et la fenêtre GUIDAR est bloquée jusqu'à ce que l'utilisateur clique sur le bouton « *cancel* » qui apparait alors ou jusqu'à ce que la reconstruction soit finie. Cliquer sur le bouton « *cancel* » pour stopper la reconstruction peut mettre quelques instants avant d'être pris en compte. Une fois la reconstruction stoppée ou finie, elle est écrite en l'état dans le fichier tif 3D sélectionné. Il est possible de visualiser cette reconstruction avec n'importe quel logiciel de visualisation (ImageJ par exemple).

## A1. 9 : Onglet « Sauvegarde des données »

Cliquer sur l'onglet « *Saving data* » transforme la fenêtre principale GUIDAR en celle qui est visible sur la Figure 126. Il est possible d'enregistrer les différents éléments en fichier Matlab pouvant être ouvert directement avec GUIDAR. Il est aussi possible d'enregistrer toutes les données actuelles de GUIDAR (projections originales, angles, projections débruitées, alignements, projections alignées) ou uniquement les projections alignées ou les projections débruitées. Les projections originales, débruitées et alignées peuvent également être enregistrées dans des fichiers tif 3D.

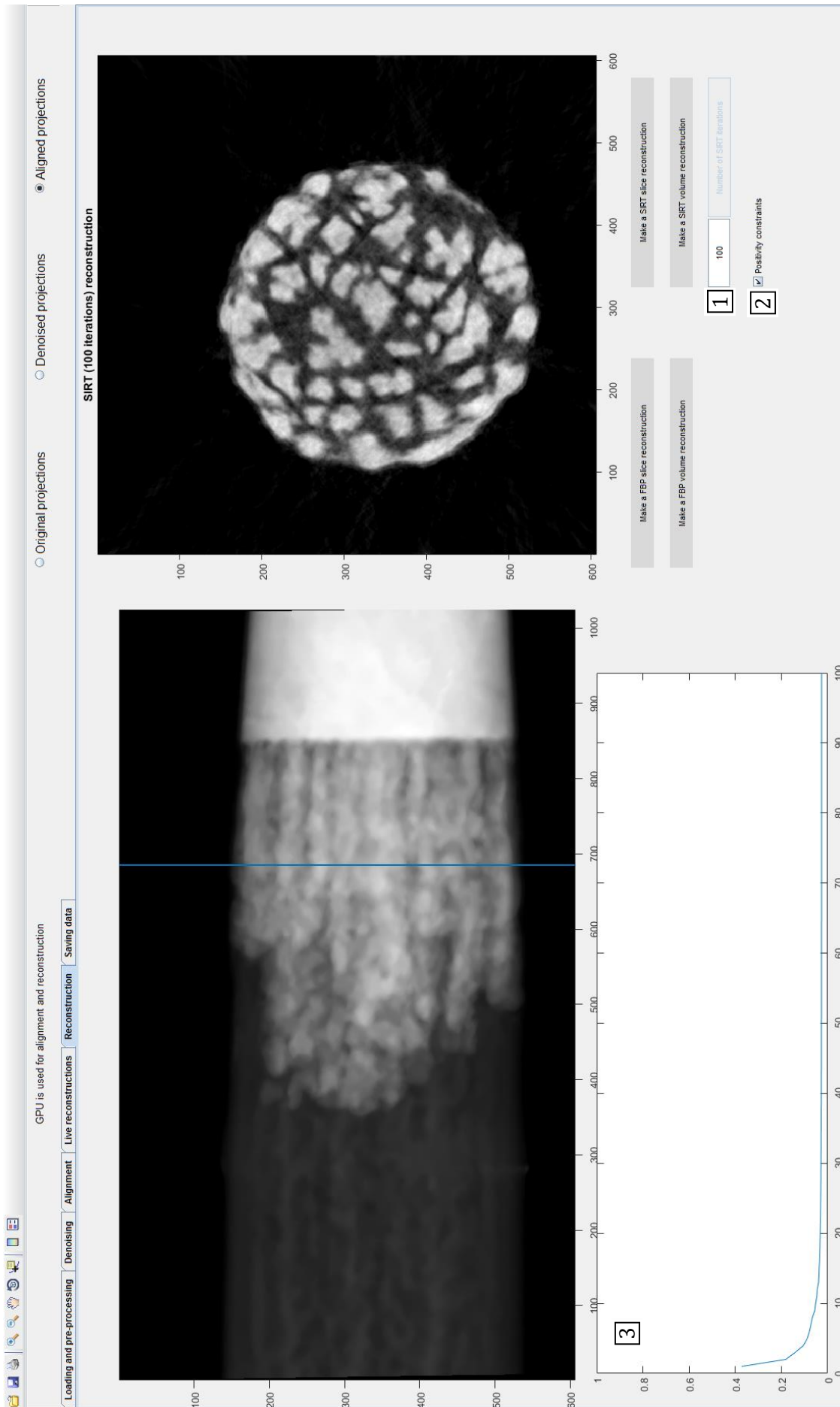


Figure 125 : Onglet « Reconstructions » de GUIDAR

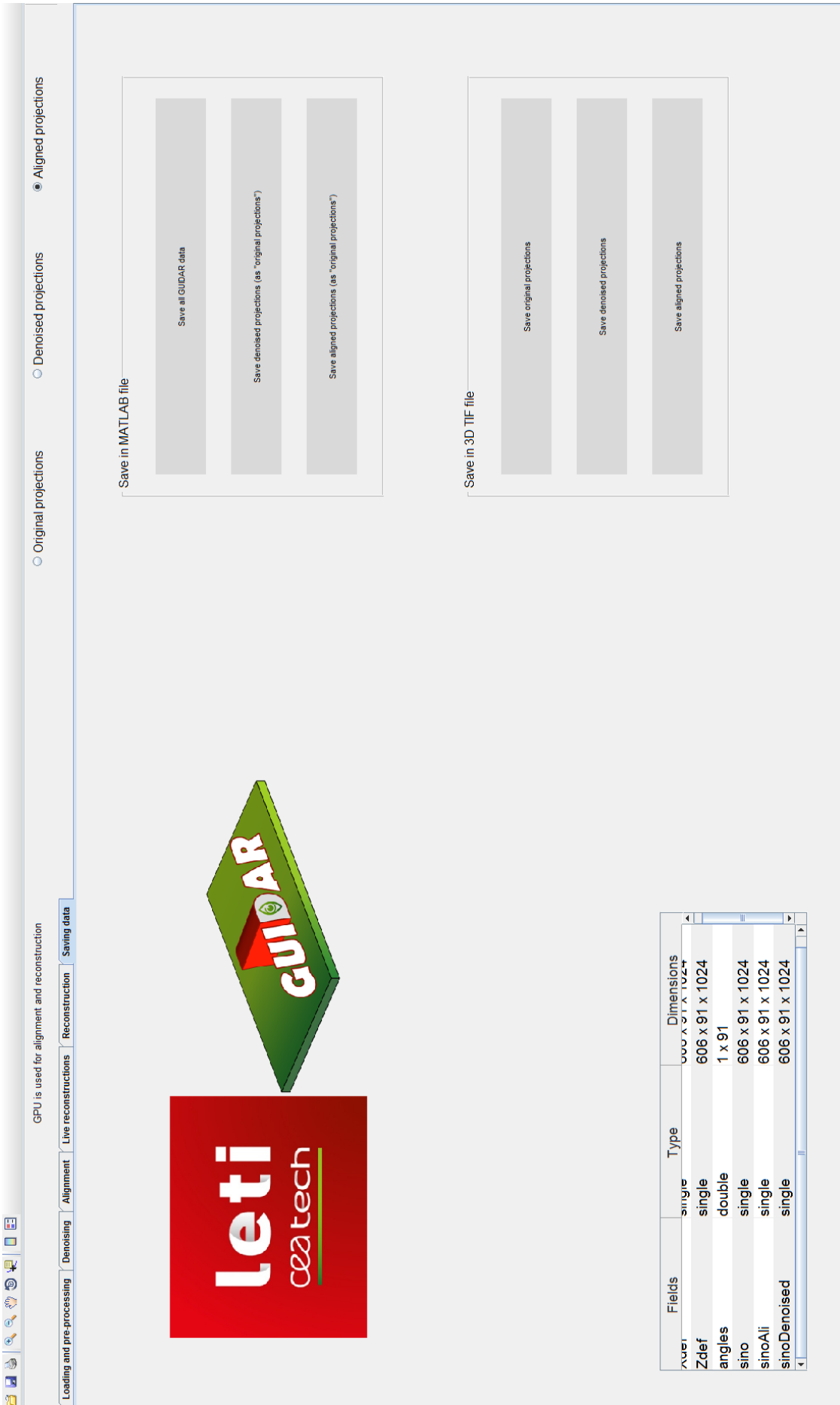


Figure 126 : Onglet « sauvegarde des données » de GUIDAR

## ANNEXE 2 : fonction Matlab pour créer le fantôme du chapitre IV

```
function [ phantomT , d ] = creationPhantomT( N , Nz , type )
% Construction d'un phantom de N x N x Nz voxels constitué d'un disque
% (ou cylindre) avec une rugosité de surface, percé de trous de différents
% diamètres (d).
%
% [ phantomT , d ] = creationPhantomT( N )
%     => fantôme 2D (Nz = 1)
% [ phantomT , d ] = creationPhantomT( N , Nz )
%     => fantôme 3D de (N x N x Nz voxels)
% [ phantomT , d ] = creationPhantomT( N , Nz , type )
%     => fantôme 3D de (N x N x Nz voxels).
%     => type = 1 ou 2. (défaut = 2)
%     si type == 1    alors les trous sont des cylindres et tous les
%                     slices du fantôme sont identiques
%     si type == 2    alors les trous sont sphères dont les centres sont
%                     situés sur le slice du milieu

if nargin < 2; Nz = 1; end
if nargin < 3; type = 1; end

% Création d'un phantom de taille N x N x Nz
phantomT = zeros(N,N,'single');

% Création d'un cylindre de diamètre Rm = 0.85N au minimum
Rm = N*0.85/2;

% Rajout d'une certaine rugosité de surface r en utilisant les décimales de
% pi pour que le calcul soit reproductible
phi = (-180:10:179)*pi/180;

r = Rm*ones(size(phi));
digits(500);
PI = vpa(pi);
decimalesPi = char(PI);
for kk = 1:numel(phi)
    r(kk) = r(kk) + 0.05*N*str2num(decimalesPi(kk+2))/10;
end

x = (1:1:N) - N/2;

X = x'*ones(1,N);
Y = ones(N,1)*x;
[TH,R] = cart2pol(X,Y);

Vq = interp1(phi,r,TH,'spline');
phantomT( R(:) < Vq(:) ) = 1;

% Rajout de Nt=12 trous à l'intérieur du cylindre de rayon R, de différents
% diamètres d et à différentes positions
Nt = 12;
```

## ANNEXES

```

d = ceil((1:1:Nt)*N/256); % évolution linéaire de la taille des trous

% Positions des Nt=12 trous en coordonnées polaires
theta = ([ 0.1576 ; 0.9706 ; 0.9572 ; 0.4854 ; 0.8003 ; 0.2741 ; ...
          0.4218 ; 0.9157 ; 0.7922 ; 0.3841 ; 0.1548 ; 0.6348 ] -0.5 ) * 2*pi;
rho    = ([ 0.4387 ; 0.3816 ; 0.7655 ; 0.7952 ; 0.1869 ; 0.4898 ; ...
          0.4456 ; 0.6463 ; 0.7094 ; 0.7547 ; 0.6746 ; 0.8742 ] * Rm );

if Nz == 1 || type == 1
    G = fspecial('gaussian',d(end),d(end)/5);
    for nn = 1:Nt
        se = (G >= G(ceil(d(end)/2),ceil(d(end)/2+d(nn)/2)) );
        Z = false(N,N);
        Z(ceil(rho(nn)*cos(theta(nn))+N/2), ...
          ceil(rho(nn)*sin(theta(nn))+N/2)) = true;
        Z = imdilate(Z,se);

        phantomT = phantomT.* ~Z;
    end

    phantomT = repmat(phantomT,[1 1 Nz]);

else

    phantomT = repmat(phantomT,[1 1 Nz]);

    G = fspecial('gaussian',d(end),d(end)/5);
    G3 = zeros(size(G,1),size(G,2),size(G,2));
    for zz = 1:size(G,1)
        G3(:,:,zz) = G(:,:,ceil(end/2),zz);
    end
    for nn = 1:Nt
        se = (G3 >=
G3(ceil(d(end)/2),ceil(d(end)/2),ceil(d(end)/2+d(nn)/2)) );
        Z = false(N,N,Nz);
        Z(ceil(rho(nn)*cos(theta(nn))+N/2), ...
          ceil(rho(nn)*sin(theta(nn))+N/2), ...
          ceil(end/2)) = true;
        Z = imdilate(Z,se);

        phantomT = phantomT.* ~Z;
    end
end

end
end

```

## ANNEXE 3 : implémentation Matlab de l'algorithme NLM pour des projections hyperspectrales

L'Implémentation Matlab de l'algorithme Non-Local Means utilisée est celle proposée par Jose Vicente Manjon-Herrera. Le code a été légèrement modifié pour prendre en compte des données hyperspectrales avec un nombre quelconque de canaux.

Cette implémentation n'est pas vectorisée, elle est donc très lente. La rapidité n'est cependant pas un critère déterminant pour l'application à des données de STEM EDX avec peu de pixels ( $\approx 200 \times 200$ ). L'algorithme NLM n'est en effet pas adaptable simplement au principe de vectorisation, ce qui en fait un algorithme peu adapté à une programmation rapide avec un langage interprété comme Matlab.

Copyright (c) 2005, Jose Vicente Manjon-Herrera  
All rights reserved.

Redistribution and use in source and binary forms, with or without modification, are permitted provided that the following conditions are met:

- \* Redistributions of source code must retain the above copyright notice, this list of conditions and the following disclaimer.
- \* Redistributions in binary form must reproduce the above copyright notice, this list of conditions and the following disclaimer in the documentation and/or other materials provided with the distribution

THIS SOFTWARE IS PROVIDED BY THE COPYRIGHT HOLDERS AND CONTRIBUTORS "AS IS" AND ANY EXPRESS OR IMPLIED WARRANTIES, INCLUDING, BUT NOT LIMITED TO, THE IMPLIED WARRANTIES OF MERCHANTABILITY AND FITNESS FOR A PARTICULAR PURPOSE ARE DISCLAIMED. IN NO EVENT SHALL THE COPYRIGHT OWNER OR CONTRIBUTORS BE LIABLE FOR ANY DIRECT, INDIRECT, INCIDENTAL, SPECIAL, EXEMPLARY, OR CONSEQUENTIAL DAMAGES (INCLUDING, BUT NOT LIMITED TO, PROCUREMENT OF SUBSTITUTE GOODS OR SERVICES; LOSS OF USE, DATA, OR PROFITS; OR BUSINESS INTERRUPTION) HOWEVER CAUSED AND ON ANY THEORY OF LIABILITY, WHETHER IN CONTRACT, STRICT LIABILITY, OR TORT (INCLUDING NEGLIGENCE OR OTHERWISE) ARISING IN ANY WAY OUT OF THE USE OF THIS SOFTWARE, EVEN IF ADVISED OF THE POSSIBILITY OF SUCH DAMAGE.

```

function [output]=NLmeansfilter(input,t,f,h)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%
% input: image to be filtered
% t: radio of search window
% f: radio of similarity window
% h: degree of filtering
%
% Author: Jose Vicente Manjon Herrera & Antoni Buades
% Date: 09-03-2006
%
% Implementation of the Non local filter proposed for A. Buades, B. Coll
and J.M. Morel in
% "A non-local algorithm for image denoising"
%
% Modified by Tony Printemps : 2016
%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Size of the image
[m , n , d]=size(input);

% Memory for the output
output=zeros(m,n,d);

% Replicate the boundaries of the input image
input2 = padarray(input,[f f 0],'symmetric');

% Used kernel
kernel = make_kernel(f);
kernel = kernel / sum(sum(kernel));
kernel = repmat(kernel,[1 1 d]);

h=h*h;

parfor i=1:m
    for j=1:n

        i1 = i + f;
        j1 = j + f;

        W1 = input2(i1-f:i1+f , j1-f:j1+f , :);

        wmax=0;
        average=0;
        sweight=0;

        rmin = max(i1-t,f+1);
        rmax = min(i1+t,m+f);
        smin = max(j1-t,f+1);
        smax = min(j1+t,n+f);

        for r=rmin:1:rmax
            for s=smin:1:smax

                if(r==i1 && s==j1) continue; end;

                W2 = input2(r-f:r+f , s-f:s+f , :);

```



```

        d = sum(sum(sum(kernel.*(W1-W2).*(W1-W2))));

        w=exp(-d/h);

        if w>wmax
            wmax=w;
        end

        sweight = sweight + w;
        average = average + w*input2(r,s,:);
    end
end

average = average + wmax*input2(i1,j1,:);
sweight = sweight + wmax;

if sweight > 0
    output(i,j,:) = average / sweight;
else
    output(i,j,:) = input(i,j,:);
end
end
end

function [kernel] = make_kernel(f)

kernel=zeros(2*f+1,2*f+1);
for d=1:f
    value= 1 / (2*d+1)^2 ;
    for i=-d:d
        for j=-d:d
            kernel(f+1-i,f+1-j)= kernel(f+1-i,f+1-j) + value ;
        end
    end
end
end
kernel = kernel ./ f;

```

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] P. Colombari, "The Use of Metal Nanoparticles to Produce Yellow, Red and Iridescent Colour, from Bronze Age to Present Times in Lustre Pottery and Glass: Solid State Chemistry, Spectroscopy and Nanostructure," *J. Nano Res.*, vol. 8, pp. 109–132, 2009.
- [2] R. J. Full, K. Autumn, Y. A. Liang, S. T. Hsieh, W. Zesch, W. P. Chan, T. W. Kenny, and R. Fearing, "Adhesive force of a single gecko foot-hair," *Nature*, vol. 405, no. 6787, pp. 681–685, Jun. 2000.
- [3] B. Karthick and R. Maheshwari, "Lotus-inspired nanotechnology applications," *Resonance*, vol. 13, no. 12, pp. 1141–1145, Dec. 2008.
- [4] R. P. Feynman, "Plenty of Room at the Bottom," *Am. Phys. Soc.*, no. December, 1959.
- [5] J. Haccoun, D. Théron, and A. Tournier, "Les nanotechnologies : un nouveau paradigme," *Les Cah. l'ANR*, vol. 5, 2012.
- [6] K. E. Drexler, "The Engines of Creation. The Coming Era of Nanotechnology," *Anchor Books*, 1986.
- [7] P. Iqbal, J. a. Preece, and P. M. Mendes, "Nanotechnology: The 'Top-Down' and 'Bottom-Up' Approaches," in *Supramolecular Chemistry*, Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd, 2012.
- [8] D. M. Eigler and E. K. Schweizer, "Positioning single atoms with a scanning tunnelling microscope," *Nature*, vol. 344, no. 6266, pp. 524–526, Apr. 1990.
- [9] J. C. Love, L. A. Estroff, J. K. Kriebel, R. G. Nuzzo, and G. M. Whitesides, "Self-Assembled Monolayers of Thiolates on Metals as a Form of Nanotechnology," *Chem. Rev.*, vol. 105, no. 4, pp. 1103–1170, Apr. 2005.
- [10] C. a. Mirkin, R. L. Letsinger, R. C. Mucic, and J. J. Storhoff, "A DNA-based method for rationally assembling nanoparticles into macroscopic materials," *Nature*, vol. 382, no. 6592, pp. 607–609, Aug. 1996.
- [11] K. Kataoka, A. Harada, and Y. Nagasaki, "Block copolymer micelles for drug delivery: Design, characterization and biological significance," *Adv. Drug Deliv. Rev.*, vol. 47, no. 1, pp. 113–131, 2001.
- [12] D. Zhao, J. Feng, Q. Huo, N. Melosh, G. Fredrickson, B. Chmelka, and G. Stucky, "Triblock copolymer syntheses of mesoporous silica with periodic 50 to 300 angstrom pores," *Science (80-. )*, vol. 279, no. 5350, pp. 548–552, 1998.
- [13] V. V. Pokropivny and V. V. Skorokhod, "Classification of nanostructures by dimensionality and concept of surface forms engineering in nanomaterial science," *Mater. Sci. Eng. C*, vol. 27, no. 5–8, pp. 990–993, Sep. 2007.
- [14] M.-C. Daniel and D. Astruc, "Gold nanoparticles: assembly, supramolecular chemistry, quantum-size-related properties, and applications toward biology, catalysis, and nanotechnology.," *Chem. Rev.*, vol. 104, no. 1, pp. 293–346, Jan. 2004.
- [15] X. Huang, I. H. El-Sayed, W. Qian, and M. A. El-Sayed, "Cancer Cell Imaging and Photothermal Therapy in the Near-Infrared Region by Using Gold Nanorods," *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 128, no. 6, pp. 2115–2120, Feb. 2006.
- [16] H. W. Kroto, J. R. Heath, S. C. O'Brien, R. F. Curl, and R. E. Smalley, "C60: Buckminsterfullerene," *Nature*, vol. 318, no. 6042, pp. 162–163, Nov. 1985.
- [17] R. Bakry, R. M. Vallant, M. Najam-ul-Haq, M. Rainer, Z. Szabo, C. W. Huck, and G. K. Bonn, "Medicinal applications of fullerenes.," *Int. J. Nanomedicine*, vol. 2, no. 4, pp. 639–49, 2007.
- [18] T. T. T. Luong, Z. Chen, and H. Zhu, "Flexible solar cells based on copper phthalocyanine and buckminsterfullerene," *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, vol. 94, no. 6, pp. 1059–1063, Jun. 2010.
- [19] M. F. L. De Volder, S. H. Tawfick, R. H. Baughman, and A. J. Hart, "Carbon Nanotubes: Present and Future Commercial Applications," *Science (80-. )*, vol. 339, no. 6119, pp. 535–539, Feb. 2013.
- [20] X. Wang, Q. Li, J. Xie, Z. Jin, J. Wang, Y. Li, K. Jiang, and S. Fan, "Fabrication of Ultralong and Electrically Uniform Single-Walled Carbon Nanotubes on Clean Substrates," *Nano Lett.*, vol. 9, no. 9, pp. 3137–3141, Sep. 2009.
- [21] N. P. Dasgupta, J. Sun, C. Liu, S. Brittman, S. C. Andrews, J. Lim, H. Gao, R. Yan, and P. Yang, "25th Anniversary Article: Semiconductor Nanowires - Synthesis, Characterization, and Applications," *Adv.*

- Mater.*, vol. 26, no. 14, pp. 2137–2184, Apr. 2014.
- [22] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, “Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films,” *Science* (80-. ), vol. 306, no. 5696, pp. 666–669, Oct. 2004.
- [23] M.-S. Cao, X.-X. Wang, W.-Q. Cao, and J. Yuan, “Ultrathin graphene: electrical properties and highly efficient electromagnetic interference shielding,” *J. Mater. Chem. C*, vol. 3, no. 26, pp. 6589–6599, 2015.
- [24] A. K. Geim and K. S. Novoselov, “The rise of graphene,” *Nat. Mater.*, vol. 6, no. 3, pp. 183–191, Mar. 2007.
- [25] A. Uhliir and I. Uhliir, “Historical perspective on the discovery of porous silicon,” in *Physica Status Solidi C: Conferences*, 2005, vol. 2, pp. 3185–3187.
- [26] A. Uhliir, “Electrolytic shaping of germanium and silicon,” *Bell Syst. Tech. J.*, vol. 35, pp. 333–347, 1956.
- [27] G. Korotcenkov and B. K. Cho, “Silicon Porosification: State of the Art,” *Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.*, vol. 35, no. 3, pp. 153–260, Aug. 2010.
- [28] S. I. Hajdu, “A Note from History: The first use of the microscope in medicine,” *Ann. Clin. Lab. Sci.*, vol. 32, no. 3, pp. 309–310, 2002.
- [29] J. Tersoff and D. Hamann, “Theory and application for the scanning tunneling microscope,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 50, no. 25, p. 1998, 1983.
- [30] D. Laloum, “Tomographie par rayons X haute résolution : Application à l’intégration 3D pour la microélectronique,” 2015.
- [31] Y. Tian, W. Li, J. Chen, L. Liu, G. Liu, A. Tkachuk, J. Tian, Y. Xiong, J. Gelb, G. Hsu, and W. Yun, “High resolution hard x-ray microscope on a second generation synchrotron source,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 79, no. 10, p. 103708, 2008.
- [32] M. Bech, O. Bunk, C. David, P. Kraft, C. Brönnimann, E. F. Eikenberry, and F. Pfeiffer, “X-ray imaging with the PILATUS 100k detector,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 66, no. 4, pp. 474–478, Apr. 2008.
- [33] S. MAYO, P. MILLER, D. GAO, and J. SHEFFIELD-PARKER, “Software image alignment for X-ray microtomography with submicrometre resolution using a SEM-based X-ray microscope,” *J. Microsc.*, vol. 228, no. 3, pp. 257–263, Dec. 2007.
- [34] D. Williams and C. B. Carter, “The Transmission Electron Microscope,” in *Transmission Electron Microscopy a textbook for material science*, 2009, pp. 3–22.
- [35] R. F. Egerton, P. Li, and M. Malac, “Radiation damage in the TEM and SEM,” *Micron*, vol. 35, no. 6, pp. 399–409, 2004.
- [36] R. M. Glaeser and K. A. Taylor, “Radiation damage relative to transmission electron microscopy of biological specimens at low temperature: a review,” *J. Microsc.*, vol. 112, no. 1, pp. 127–138, Jan. 1978.
- [37] C.-E. Hsieh, M. Marko, J. Frank, and C. A. Mannella, “Electron tomographic analysis of frozen-hydrated tissue sections,” *J. Struct. Biol.*, vol. 138, no. 1–2, pp. 63–73, Apr. 2002.
- [38] W. Baumeister, R. Grimm, and J. Walz, “Electron tomography of molecules and cells,” *Trends Cell Biol.*, vol. 9, no. 2, pp. 81–5, Mar. 1999.
- [39] J. C. Yang, M. W. Small, R. V. Grieshaber, and R. G. Nuzzo, “Recent developments and applications of electron microscopy to heterogeneous catalysis,” *Chem. Soc. Rev.*, vol. 41, no. 24, p. 8179, 2012.
- [40] J. Wall, J. Langmore, M. Isaacson, and A. V. Crewe, “Scanning Transmission Electron Microscopy at High Resolution,” *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 71, no. 1, pp. 1–5, Jan. 1974.
- [41] M. Haider, P. Hartel, H. Muller, S. Uhlemann, and J. Zach, “Current and future aberration correctors for the improvement of resolution in electron microscopy,” *Philos. Trans. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 367, no. 1903, pp. 3665–3682, Sep. 2009.
- [42] S. Bals, S. Van Aert, and G. Van Tendeloo, “High resolution electron tomography,” *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, vol. 17, no. 3, pp. 107–114, 2013.
- [43] K. Narayan and S. Subramaniam, “Focused ion beams in biology,” *Nat. Methods*, vol. 12, no. 11, pp. 1021–1031, 2015.

- [44] M. Salzer, A. Spettil, O. Stenzel, J.-H. Smått, M. Lindén, I. Manke, and V. Schmidt, "A two-stage approach to the segmentation of FIB-SEM images of highly porous materials," *Mater. Charact.*, vol. 69, pp. 115–126, Jul. 2012.
- [45] T. Prill, K. Schladitz, and C. Wieser, "Simulation of FIB-SEM Images for Segmentation of Porous Microstructures," in *1st International Conference on 3D Materials Science*, Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc., 2013, pp. 159–164.
- [46] M. K. Miller and R. G. Forbes, "Atom probe tomography," *Mater. Charact.*, vol. 60, no. 6, pp. 461–469, Jun. 2009.
- [47] A. Cerezo, P. H. Clifton, M. J. Galtrey, C. J. Humphreys, T. F. Kelly, D. J. Larson, S. Lozano-Perez, E. A. Marquis, R. A. Oliver, G. Sha, K. Thompson, M. Zandbergen, and R. L. Alvis, "Atom probe tomography today," *Mater. Today*, vol. 10, no. 12, pp. 36–42, Dec. 2007.
- [48] E. A. Marquis, N. A. Yahya, D. J. Larson, M. K. Miller, and R. I. Todd, "Probing the improbable: Imaging C atoms in alumina," *Mater. Today*, vol. 13, no. 10, pp. 34–36, 2010.
- [49] G. L. Kellogg and T. T. Tsong, "Pulsed-laser atom-probe field-ion microscopy," *J. Appl. Phys.*, vol. 51, no. 2, p. 1184, 1980.
- [50] A. Grenier, S. Duguay, J. P. Barnes, R. Serra, G. Haberfehlner, D. Cooper, F. Bertin, S. Barraud, G. Audoit, L. Arnoldi, E. Cadel, A. Chabli, and F. Vurpillot, "3D analysis of advanced nano-devices using electron and atom probe tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 136, pp. 185–192, Jan. 2014.
- [51] F. Vurpillot, A. Bostel, and D. Blavette, "Trajectory overlaps and local magnification in three-dimensional atom probe," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, no. 21, p. 3127, 2000.
- [52] I. Arslan, E. A. Marquis, M. Homer, M. A. Hekmaty, and N. C. Bartelt, "Towards better 3-D reconstructions by combining electron tomography and atom-probe tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 108, no. 12, pp. 1579–1585, 2008.
- [53] T.-Y. Kim, J. Son, and K.-G. Kim, "The Recent Progress in Quantitative Medical Image Analysis for Computer Aided Diagnosis Systems," *Healthc. Inform. Res.*, vol. 17, no. 3, p. 143, 2011.
- [54] K. W. Eliceiri, M. R. Berthold, I. G. Goldberg, L. Ibáñez, B. S. Manjunath, M. E. Martone, R. F. Murphy, H. Peng, A. L. Plant, B. Roysam, N. Stuurman, J. R. Swedlow, P. Tomancak, and A. E. Carpenter, "Biological imaging software tools," *Nat. Methods*, vol. 9, no. 7, pp. 697–710, Jun. 2012.
- [55] L. Duval, M. Moreaud, C. Couprie, D. Jeulin, H. Talbot, and J. Angulo, "Image processing for materials characterization: Issues, challenges and opportunities," in *2014 IEEE International Conference on Image Processing (ICIP)*, 2014, pp. 4862–4866.
- [56] H. Li and F. Liu, "Image Denoising Via Sparse and Redundant Representations Over Learned Dictionaries in Wavelet Domain," in *2009 Fifth International Conference on Image and Graphics*, 2009, vol. 15, no. 12, pp. 754–758.
- [57] J.-L. Starck, J. Fadili, and F. Murtagh, "The undecimated wavelet decomposition and its reconstruction," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 16, no. 2, pp. 297–309, Feb. 2007.
- [58] K. Dabov, A. Foi, V. Katkovnik, and K. Egiazarian, "Image Denoising by Sparse 3-D Transform-Domain Collaborative Filtering," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 16, no. 8, pp. 2080–2095, Aug. 2007.
- [59] F. Anscombe, "The transformation of Poisson, binomial and negative-binomial data," *Biometrika*, pp. 246–254, 1948.
- [60] J. Ohser and K. Schladitz, *3D Images of Materials Structures*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2009.
- [61] N. Otsu, "A Threshold Selection Method from Gray-Level Histograms," *IEEE Trans. Syst. Man. Cybern.*, vol. 9, no. 1, pp. 62–66, 1979.
- [62] L. Vincent and P. Soille, "Watersheds in digital spaces: an efficient algorithm based on immersion simulations," *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, vol. 13, no. 6, pp. 583–598, Jun. 1991.
- [63] J. Serra, "Introduction to mathematical morphology," *Comput. Vision, Graph. Image Process.*, vol. 35, no. 3, pp. 283–305, Sep. 1986.
- [64] T. Y. Kim, J. Son, and K. G. Kim, "The recent progress in quantitative medical image analysis for computer

- aided diagnosis systems," *Healthc. Inform. Res.*, vol. 17, no. 3, pp. 143–149, 2013.
- [65] J.-L. Starck, F. Murtagh, and J. M. Fadili, *Sparse Image and Signal Processing*. New-York USA: Cambridge University Press, 2010.
- [66] D. L. Donoho, "Compressed sensing," *IEEE Trans. Inf. Theory*, vol. 52, no. 4, pp. 1289–1306, Apr. 2006.
- [67] B. A. Olshausen and D. J. Field, "Sparse coding with an overcomplete basis set: A strategy employed by V1?," *Vision Res.*, vol. 37, no. 23, pp. 3311–3325, Dec. 1997.
- [68] S. Roth and M. J. Black, "Fields of Experts: A Framework for Learning Image Priors," in *2005 IEEE Computer Society Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR'05)*, 2005, vol. 2, pp. 860–867.
- [69] S. G. Mallat, "A theory for multiresolution signal decomposition: the wavelet representation," *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, vol. 11, no. 7, pp. 674–693, Jul. 1989.
- [70] E. Candès, L. Demanet, D. Donoho, and L. Ying, "Fast Discrete Curvelet Transforms.," *Multiscale Model. Simul.*, vol. 5, no. 3, pp. 861–899, 2006.
- [71] S. Mallat, "A Wavelet Tour of Signal Processing," *A Wavelet Tour Signal Process.*, pp. 20–41, 1999.
- [72] R. Esla and H. Radha, "Translation-Invariant Contourlet Transform and Its Application to Image Denoising," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 15, no. 11, pp. 3362–3374, Nov. 2006.
- [73] R. R. Coifman and D. L. Donoho, "Translation-Invariant De-Noising," vol. 103, pp. 125–150, 1995.
- [74] D. L. Donoho, M. Elad, and V. N. Temlyakov, "Stable recovery of sparse overcomplete representations in the presence of noise," *IEEE Trans. Inf. Theory*, vol. 52, no. 1, pp. 6–18, Jan. 2006.
- [75] M. Elad, J.-L. Starck, P. Querre, and D. L. Donoho, "Simultaneous cartoon and texture image inpainting using morphological component analysis (MCA)," *Appl. Comput. Harmon. Anal.*, vol. 19, no. 3, pp. 340–358, Nov. 2005.
- [76] J.-L. Starck, M. Elad, and D. L. Donoho, "Image decomposition via the combination of sparse representations and a variational approach," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 14, no. 10, pp. 1570–1582, Oct. 2005.
- [77] S. Indu and C. Ramesh, "A Noise Fading Technique for Images Highly Corrupted with Impulse Noise," in *2007 International Conference on Computing: Theory and Applications (ICCTA'07)*, 2007, pp. 627–632.
- [78] Z. Wang, a C. Bovik, H. R. Sheikh, and E. P. Simoncelli, "Image quality assessment: form error visibility to structural similarity," *Image Process. IEEE Trans.*, vol. 13, no. 4, pp. 600–612, 2004.
- [79] D. L. Donoho and J. M. Johnstone, "Ideal spatial adaptation by wavelet shrinkage," *Biometrika*, vol. 81, no. 3, pp. 425–455, 1994.
- [80] J.-L. Starck and J. Bobin, "Astronomical Data Analysis and Sparsity: From Wavelets to Compressed Sensing," *Proc. IEEE*, vol. 98, no. 6, pp. 1021–1030, Jun. 2010.
- [81] P. Perona and J. Malik, "Scale-space and edge detection using anisotropic diffusion," *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, vol. 12, no. 7, pp. 629–639, Jul. 1990.
- [82] A. Buades, B. Coll, and J. M. Morel, "A Review of Image Denoising Algorithms, with a New One," *Multiscale Model. Simul.*, vol. 4, no. 2, pp. 490–530, Jan. 2005.
- [83] S. G. Mallat and Zhifeng Zhang, "Matching pursuits with time-frequency dictionaries," *IEEE Trans. Signal Process.*, vol. 41, no. 12, pp. 3397–3415, 1993.
- [84] E. Candès and J. Romberg, "Sparsity and incoherence in compressive sampling," *Inverse Probl.*, vol. 23, no. 3, pp. 969–985, Jun. 2007.
- [85] M. F. Duarte, M. A. Davenport, D. Takhar, J. N. Laska, Ting Sun, K. F. Kelly, and R. G. Baraniuk, "Single-Pixel Imaging via Compressive Sampling," *IEEE Signal Process. Mag.*, vol. 25, no. 2, pp. 83–91, Mar. 2008.
- [86] M. Lustig, D. L. Donoho, J. M. Santos, and J. M. Pauly, "Compressed sensing MRI: A look at how CS can improve on current imaging techniques," *IEEE Signal Processing Magazine*, vol. 25, no. 2. pp. 72–82, 2008.
- [87] R. Leary, Z. Saghi, P. A. Midgley, and D. Holland, "Compressed sensing electron tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 131, pp. 70–91, Aug. 2013.

- [88] J. Radon, "On the Determination of Functions from Their Integral Values along Certain Manifolds.," *IEEE Trans. Med. Imaging*, vol. 5, no. 4, pp. 170–176, 1986.
- [89] M. Slaney and A. (Purdue U. Kak, "Algorithms for Reconstruction with Nondiffracting Sources," in *Principles of Computerized Tomographic Imaging*, no. 1, pp. 50 – 110.
- [90] J. Miao, F. Förster, and O. Levi, "Equally sloped tomography with oversampling reconstruction," *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 5, p. 052103, Aug. 2005.
- [91] A. Averbuch, R. R. Coifman, D. L. Donoho, M. Israeli, and Y. Shkolnisky, "A Framework for Discrete Integral Transformations I—The Pseudopolar Fourier Transform," *SIAM J. Sci. Comput.*, vol. 30, no. 2, pp. 764–784, Jan. 2008.
- [92] E. Lee, B. P. Fahimian, C. V. Iancu, C. Suloway, G. E. Murphy, E. R. Wright, D. Castaño-Díez, G. J. Jensen, and J. Miao, "Radiation dose reduction and image enhancement in biological imaging through equally-sloped tomography," *J. Struct. Biol.*, vol. 164, no. 2, pp. 221–227, 2008.
- [93] M. Slaney and A. (Purdue U. Kak, "Algebraic Reconstruction Algorithms," in *Principles of Computerized Tomographic Imaging*, I. Press, Ed. New York, USA, 1988, pp. 275–296.
- [94] T. Elfving, P. C. Hansen, and T. Nikazad, "Semiconvergence and Relaxation Parameters for Projected SIRT Algorithms," *SIAM J. Sci. Comput.*, vol. 34, no. 4, pp. A2000–A2017, Jan. 2012.
- [95] A. Dax, "Line search acceleration of iterative methods," *Linear Algebra Appl.*, vol. 130, pp. 43–63, Mar. 1990.
- [96] W. van Aarle, W. J. Palenstijn, J. De Beenhouwer, T. Altantzis, S. Bals, K. J. Batenburg, and J. Sijbers, "The ASTRA Toolbox: A platform for advanced algorithm development in electron tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 157, pp. 35–47, 2015.
- [97] R. . Crowther, D. . De Rosier, and A. Klug, "The reconstruction of a three-dimensional structure from projections and its application to electron microscopy," *Proc. R. Soc. London Ser. A Math. Phys. Sci.*, pp. 319–340, 1970.
- [98] M. Radermacher, "Three-Dimensional reconstruction of single particles from random and nonrandom tilt series," *J. Electron Microsc. Tech.*, vol. 9, no. 4, pp. 359–394, Aug. 1988.
- [99] Z. Saghi, D. J. Holland, R. Leary, A. Falqui, G. Bertoni, A. J. Sederman, L. F. Gladden, and P. a Midgley, "Three-dimensional morphology of iron oxide nanoparticles with reactive concave surfaces. A compressed sensing-electron tomography (CS-ET) approach.," *Nano Lett.*, vol. 11, no. 11, pp. 4666–73, Nov. 2011.
- [100] K. J. Batenburg, S. Bals, J. Sijbers, C. Kübel, P. a Midgley, J. C. Hernandez, U. Kaiser, E. R. Encina, E. a Coronado, and G. Van Tendeloo, "3D imaging of nanomaterials by discrete tomography.," *Ultramicroscopy*, vol. 109, no. 6, pp. 730–40, May 2009.
- [101] K. J. Batenburg and J. Sijbers, "DART: a practical reconstruction algorithm for discrete tomography.," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 20, no. 9, pp. 2542–53, 2011.
- [102] S. Peng and Z. Wu, "Research on the CT image reconstruction of steel tube section from few projections," *NDT E Int.*, vol. 42, no. 5, pp. 435–440, Jul. 2009.
- [103] G. T. Herman and A. Kuba, "Discrete tomography in medical imaging," *Proc. IEEE*, vol. 91, no. 10, pp. 1612–1626, Oct. 2003.
- [104] B. Goris, T. Roelandts, K. J. Batenburg, H. Heidari Mezerji, and S. Bals, "Advanced reconstruction algorithms for electron tomography: from comparison to combination.," *Ultramicroscopy*, vol. 127, pp. 40–7, Apr. 2013.
- [105] D. Chen, B. Goris, F. Bleichrodt, H. H. Mezerji, S. Bals, K. J. Batenburg, G. de With, and H. Friedrich, "The properties of SIRT, TVM, and DART for 3D imaging of tubular domains in nanocomposite thin-films and sections.," *Ultramicroscopy*, vol. 147, pp. 137–48, Dec. 2014.
- [106] W. van Aarle, K. J. Batenburg, and J. Sijbers, "Automatic Parameter Estimation for the Discrete Algebraic Reconstruction Technique (DART)," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 21, no. 11, pp. 4608–4621, Nov. 2012.
- [107] F. Bleichrodt, F. Tabak, and K. J. Batenburg, "SDART: An algorithm for discrete tomography from noisy projections," *Comput. Vis. Image Underst.*, vol. 129, pp. 63–74, Dec. 2014.

- [108] X. Zhuge, W. J. Palenstijn, and K. J. Batenburg, "TVR-DART: A More Robust Algorithm for Discrete Tomography From Limited Projection Data With Automated Gray Value Estimation," vol. 25, no. 1, pp. 455–468, 2016.
- [109] B. Goris, W. Van den Broek, K. J. Batenburg, H. Heidari Mezerji, and S. Bals, "Electron tomography based on a total variation minimization reconstruction technique," *Ultramicroscopy*, vol. 113, pp. 120–130, Feb. 2012.
- [110] D. Laloum, T. Printemps, D. F. Sanchez, F. Lorut, G. Audoit, and P. Bleuet, "Reduction of the scanning time by total variation minimization reconstruction for X-ray tomography in a SEM," *J. Microsc.*, vol. 256, no. 2, pp. 90–99, Nov. 2014.
- [111] B. Goris, S. Bals, W. Van den Broek, E. Carbó-Argibay, S. Gómez-Graña, L. M. Liz-Marzán, and G. Van Tendeloo, "Atomic-scale determination of surface facets in gold nanorods," *Nat. Mater.*, vol. 11, no. 11, pp. 930–935, Oct. 2012.
- [112] D. B. Williams and C. B. Carter, *Transmission Electron Microscopy, a Text Book for Material Science*. Springer, 1996.
- [113] D. B. Williams and C. B. Carter, "Elastic Scattering," in *Transmission Electron Microscopy a textbook for material science*, 2009, pp. 39–51.
- [114] K. Lepinay, F. Lorut, R. Pantel, and T. Epicier, "Chemical 3D tomography of 28nm high K metal gate transistor: STEM XEDS experimental method and results," *Micron*, vol. 47, pp. 43–49, Apr. 2013.
- [115] D. B. Williams and C. B. Carter, "Electron sources," in *Transmission electron microscopy: a textbook for materials science*, 2009, pp. 73–89.
- [116] J. Biskupek, J. Leschner, P. Walther, and U. Kaiser, "Optimization of STEM tomography acquisition — A comparison of convergent beam and parallel beam STEM tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 110, no. 9, pp. 1231–1237, Aug. 2010.
- [117] D. Williams and C. B. Carter, "Specimen Preparation," in *Transmission Electron Microscopy a textbook for material science*, 2009, pp. 173–193.
- [118] P. Bleuet, G. Audoit, J.-P. Barnes, J. Bertheau, Y. Dabin, H. Dansas, J.-M. Fabbri, B. Florin, P. Gergaud, A. Grenier, G. Haberfehlner, E. Lay, J. Laurencin, R. Serra, and J. Villanova, "Specifications for Hard Condensed Matter Specimens for Three-Dimensional High-Resolution Tomographies," *Microsc. Microanal.*, vol. 19, no. 03, pp. 726–739, Jun. 2013.
- [119] M. Weyland and P. a. Midgley, "Electron tomography," *Mater. Today*, vol. 7, no. 12, pp. 32–40, 2004.
- [120] P. A. Midgley and M. Weyland, "3D electron microscopy in the physical sciences: the development of Z-contrast and EFTEM tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 96, no. 3–4, pp. 413–31, Sep. 2003.
- [121] W. Van den Broek, A. Rosenauer, B. Goris, G. T. Martinez, S. Bals, S. Van Aert, and D. Van Dyck, "Correction of non-linear thickness effects in HAADF STEM electron tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 116, pp. 8–12, May 2012.
- [122] P. Ercius and D. Muller, "Incoherent bright field STEM for imaging and tomography of ultra-thick TEM cross-sections," *Microsc. Microanal.*, vol. 15, no. Suppl 2, pp. 238–239, 2009.
- [123] G. Haberfehlner, A. Orthacker, M. Albu, J. Li, and G. Kothleitner, "Nanoscale voxel spectroscopy by simultaneous EELS and EDS tomography," *Nanoscale*, vol. 6, no. 23, pp. 14563–14569, Oct. 2014.
- [124] G. Möbus, R. C. Doole, and B. J. Inkson, "Spectroscopic electron tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 96, no. 3–4, pp. 433–51, Sep. 2003.
- [125] G. Haberfehlner, P. Bayle-Guillemaud, G. Audoit, D. Lafond, P. H. Morel, V. Jousseume, T. Ernst, and P. Bleuet, "Four-dimensional spectral low-loss energy-filtered transmission electron tomography of silicon nanowire-based capacitors," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, no. 6, p. 063108, 2012.
- [126] T. Printemps, G. Mula, D. Sette, P. Bleuet, V. Delaye, N. Bernier, A. Grenier, G. Audoit, N. Gambacorti, and L. Hervé, "Self-adapting denoising, alignment and reconstruction in electron tomography in materials science," *Ultramicroscopy*, vol. 160, pp. 23–34, 2016.
- [127] G. Cardone, K. Grünwald, and A. C. Steven, "A resolution criterion for electron tomography based on cross-validation," *J. Struct. Biol.*, vol. 151, no. 2, pp. 117–29, Aug. 2005.

- [128] H. Heidari Mezerji, W. Van den Broek, and S. Bals, "A practical method to determine the effective resolution in incoherent experimental electron tomography.," *Ultramicroscopy*, vol. 111, no. 5, pp. 330–6, Apr. 2011.
- [129] P. Gilbert, "Iterative methods for the three-dimensional reconstruction of an object from projections.," *J. Theor. Biol.*, vol. 36, no. 1, pp. 105–117, 1972.
- [130] W. van Aarle, K. J. Batenburg, G. Van Gompel, E. Van de Casteele, and J. Sijbers, "Super-resolution for computed tomography based on discrete tomography.," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 23, no. 3, pp. 1181–93, Mar. 2014.
- [131] T. Altantzis, B. Goris, A. Sánchez-Iglesias, M. Grzelczak, L. M. Liz-Marzán, and S. Bals, "Quantitative Structure Determination of Large Three-Dimensional Nanoparticle Assemblies," *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 30, no. 1, pp. 84–88, Jan. 2013.
- [132] C. Li, W. Yin, H. Jiang, and Y. Zhang, "An efficient augmented Lagrangian method with applications to total variation minimization," *Comput. Optim. Appl.*, vol. 56, no. 3, pp. 507–530, Jul. 2013.
- [133] O. Bisi, S. Ossicini, and L. Pavesi, "Porous silicon: a quantum sponge structure for silicon based optoelectronics," *Surf. Sci. Rep.*, vol. 38, pp. 1–126, 2000.
- [134] I. Suárez, V. Chirvony, D. Hill, and J. Martínez-Pastor, "Simulation of surface-modified porous silicon photonic crystals for biosensing applications," *Photonics Nanostructures - Fundam. Appl.*, vol. 10, no. 3, pp. 304–311, Jun. 2012.
- [135] A. Leacock-Johnson, A. Garcia Segá, A. Sharief, M. J. Sailor, and G. M. Miskelly, "Real-time 1D hyperspectral imaging of porous silicon-based photonic crystals with one-dimensional chemical composition gradients undergoing pore-filling-induced spectral shifts," *Sensors Actuators A Phys.*, vol. 203, pp. 154–159, Dec. 2013.
- [136] S. J. P. McInnes and N. H. Voelcker, *Porous Silicon for Biomedical Applications*. 2014.
- [137] M. J. Sailor, *Porous Silicon in Practice: Preparation, Characterization and Applications*. 2012.
- [138] V. Subramanian, J. B. Chang, A. D. L. F. Vornbrock, D. C. Huang, L. Jagannathan, F. Liao, B. Mattis, S. Molesá, D. R. Redinger, D. Soltman, S. K. Volkman, and Q. Zhang, "Printed electronics for low-cost electronic systems: Technology status and application development," *ESSDERC 2008 - 38th Eur. Solid-State Device Res. Conf.*, pp. 17–24, 2008.
- [139] S. H. Eom, S. Senthilarasu, P. Uthirakumar, C.-H. Hong, Y.-S. Lee, J. Lim, S. C. Yoon, C. Lee, and S.-H. Lee, "Preparation and characterization of nano-scale ZnO as a buffer layer for inkjet printing of silver cathode in polymer solar cells," *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, vol. 92, no. 5, pp. 564–570, May 2008.
- [140] S. B. Fuller, E. J. Wilhelm, and J. M. Jacobson, "Ink-jet printed nanoparticle microelectromechanical systems," *J. Microelectromechanical Syst.*, vol. 11, no. 1, pp. 54–60, 2002.
- [141] D. Sette, D. Mercier, P. Brunet-Manquat, C. Poulain, and A. Blayo, "Micro Pirani pressure sensor fabricated by inkjet printing of silver nanoparticles," in *Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (TRANSDUCERS & EUROSENSORS XXVII)*, 2013, no. June, pp. 1783–1786.
- [142] D. Sette and A. Blayo, "Silver nanoparticle inkjet printed 17 GHz filter," in *Microwave Symposium Digest (IMS), 2013 IEEE MTT-S International*, 2013, pp. 1–4.
- [143] M. Park, J. Im, M. Shin, Y. Min, J. Park, H. Cho, S. Park, M.-B. Shim, S. Jeon, D.-Y. Chung, J. Bae, J. Park, U. Jeong, and K. Kim, "Highly stretchable electric circuits from a composite material of silver nanoparticles and elastomeric fibres.," *Nat. Nanotechnol.*, vol. 7, no. 12, pp. 803–9, Dec. 2012.
- [144] A. F. De Siqueira, F. C. Cabrera, A. Pagamisse, and A. E. Job, "Segmentation of scanning electron microscopy images from natural rubber samples with gold nanoparticles using starlet wavelets," *Microsc. Res. Tech.*, vol. 77, no. 1, pp. 71–78, 2014.
- [145] F. Murtagh, J.-L. Starck, and a Bijaoui, "Image restoration with noise suppression using a multiresolution support.," *Astron. Astrophys. Suppl.*, vol. 112, p. 179, 1995.
- [146] J.-L. Starck, E. J. Candès, and D. L. Donoho, "The curvelet transform for image denoising.," *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 11, no. 6, pp. 670–84, Jan. 2002.
- [147] Y. Liu, P. A. Penczek, B. F. McEwen, and J. Franks, "A marker-free alignment method for electron



- tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 58, no. 3–4, pp. 393–402, 1995.
- [148] M. Cop and J. Dengler, "A multi-Resolution Approach to the 3D Reconstruction of a 50s Ribosome from an EM-Tilt Series Solving the Alignment Problem without Gold Particles," [1990] *Proceedings. 10th Int. Conf. Pattern Recognit.*, 1990.
- [149] L. Houben and M. Bar Sadan, "Refinement procedure for the image alignment in high-resolution electron tomography," *Ultramicroscopy*, vol. 111, no. 9–10, pp. 1512–1520, 2011.
- [150] W. J. Palenstijn, K. J. Batenburg, and J. Sijbers, "Performance improvements for iterative electron tomography reconstruction using graphics processing units (GPUs).," *J. Struct. Biol.*, vol. 176, no. 2, pp. 250–3, Nov. 2011.
- [151] A. Stoschek and R. Hegerl, "Denoising of Electron Tomographic Reconstructions Using Multiscale Transformations," *J. Struct. Biol.*, vol. 120, no. 3, pp. 257–265, Dec. 1997.
- [152] M. Maiorca, E. Hanssen, E. Kazmierczak, B. Maco, M. Kudryashev, R. Hall, H. Quiney, and L. Tilley, "Improving the quality of electron tomography image volumes using pre-reconstruction filtering.," *J. Struct. Biol.*, vol. 180, no. 1, pp. 132–42, Oct. 2012.
- [153] T. Printemps, N. Bernier, P. Bleuet, G. Mula, and L. Hervé, "Non-rigid alignment in electron tomography in materials science," *J. Microsc.*, 2016.
- [154] G. Harauz and M. van Heel, "Exact filters for general geometry three dimensional reconstruction," *Optik*, vol. 78, no. 4, pp. 146–156, 1986.
- [155] M. Lopez-Haro, L. Guétaz, T. Printemps, A. Morin, S. Escribano, P.-H. Jouneau, P. Bayle-Guillemaud, F. Chandezon, and G. Gebel, "Three-dimensional analysis of Nafion layers in fuel cell electrodes," *Nat. Commun.*, vol. 5, p. 5229, Oct. 2014.
- [156] A. Rosenauer, K. Gries, K. Müller, A. Pretorius, M. Schowalter, A. Avramescu, K. Engl, and S. Lutgen, "Measurement of specimen thickness and composition in Al(x)Ga(1-x)N/GaN using high-angle annular dark field images," *Ultramicroscopy*, vol. 109, no. 9, pp. 1171–82, Aug. 2009.
- [157] K. C. Tam and V. Perez-Mendez, "Tomographical imaging with limited-angle input," *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 71, no. 5, p. 582, 1981.
- [158] S. Kawata and O. Nalcioglu, "Constrained iterative reconstruction by the conjugate gradient method.," *IEEE Trans. Med. Imaging*, vol. 4, no. 2, pp. 65–71, 1985.
- [159] A. Derksen, S. Heldmann, T. Polzin, and B. Berkels, "Image Registration with Sliding Motion Constraints for 4D CT Motion Correction," in *Bildverarbeitung für die Medizin 2015*, H. Handels, T. M. Deserno, H.-P. Meinzer, and T. Tolxdorff, Eds. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2015, pp. 335–340.
- [160] D. Hill, P. Batchelor, M. Holden, and D. Hawkes, "Medical Image Registration," *Phys. Med. Biol.*, vol. 46, pp. R1–R45, 2001.
- [161] H. Chui and A. Rangarajan, "A new point matching algorithm for non-rigid registration," *Comput. Vis. Image Underst.*, vol. 89, no. 2–3, pp. 114–141, 2003.
- [162] L. Jones, H. Yang, T. J. Pennycook, M. S. J. Marshall, S. Van Aert, N. D. Browning, M. R. Castell, and P. D. Nellist, "Smart Align—a new tool for robust non-rigid registration of scanning microscope data," *Adv. Struct. Chem. Imaging*, vol. 1, no. 1, p. 8, 2015.
- [163] B. Berkels, P. Binev, D. a Blom, W. Dahmen, R. C. Sharpley, and T. Vogt, "Optimized imaging using non-rigid registration.," *Ultramicroscopy*, vol. 138, pp. 46–56, Mar. 2014.
- [164] T. Sanders, M. Prange, C. Akatay, and P. Binev, "Physically motivated global alignment method for electron tomography," *Adv. Struct. Chem. Imaging*, vol. 1, no. 1, pp. 1–11, 2015.
- [165] M. Hayashida, M. Malac, M. Bergen, and P. Li, "Nano-dot markers for electron tomography formed by electron beam-induced deposition: Nanoparticle agglomerates application.," *Ultramicroscopy*, vol. 144, pp. 50–7, Sep. 2014.
- [166] G. T. Reed and A. K. Kewell, "Erbium-doped silicon and porous silicon for optoelectronics," *Mater. Sci. Eng. B*, vol. 40, no. 2–3, pp. 207–215, Sep. 1996.
- [167] E. Marstein, J. Skjølnes, and T. Finstad, "Incorporation of Erbium in Porous Silicon," *Phys. Scr.*, vol. T101, pp. 103–105, 2002.

## BIBLIOGRAPHIE

- [168] G. Mula, L. Loddo, E. Pinna, M. V Tiddia, M. Mascia, S. Palmas, R. Ruffilli, and A. Falqui, "Controlling the Er content of porous silicon using the doping current intensity," *Nanoscale Res. Lett.*, vol. 9, no. 1, p. 332, Jan. 2014.
- [169] D. Bertrand, M. Fayolle, A. Torres, E. Blanquet, and F. Volpi, "Study of Ti-Rich and Al-Rich Contact Metallization for AlGaN/GaN HEMT Power Devices," *ECS Trans.*, vol. 64, no. 7, pp. 263–272, Aug. 2014.
- [170] S. Koneti, L. Roiban, V. Maxim, T. Grenier, P. Avenier, A. Cabiac, A.-S. Gay, F. Dalmás, and T. Epicier, "Environmental Transmission Electron Tomography : fast 3D analysis of nano-materials," in *European Microscopy Congress*, 2016, no. c, pp. 1–4.

## LISTE DES FIGURES :

Figure 1 : Schéma montrant les nanostructures des setae du gecko .....	20
Figure 2 : Schéma montrant la super-hydrophobie du lotus et la surface nanostructurée .....	20
Figure 3 : Représentation schématique des nanomatériaux.....	23
Figure 4 : Représentation du graphène avec cette structure en nid d'abeilles caractéristique ....	25
Figure 5 : Image MEB de silicium poreux, Guido Mula, Université de Cagliari.....	25
Figure 6 : Deux objets 2D très différents qui pourtant présentent les mêmes projections à 0° ....	28
Figure 7 : Cas d'un objet 3D de silicium poreux.....	29
Figure 8 : Principe de la tomographie rayons-X dans un MEB.....	30
Figure 9: Résolutions atteintes en microscopie depuis les premiers microscopes optiques .....	31
Figure 10 : Représentation schématique du FIB-SEM 3D. ....	32
Figure 11 : Principe de la sonde atomique tomographique .....	33
Figure 12 : Exemple d'une reconstruction de sonde atomique tomographique.....	33
Figure 13 : Visualisation 3D de la segmentation d'une reconstruction de tomographie .....	35
Figure 14 : Exemple de segmentation et d'utilisation d'opérations morphologiques .....	37
Figure 15 : La parcimonie, un sens mathématique et physique bien différent.....	39
Figure 16 : Représentation de la forte parcimonie de l'image « barbara ».....	40
Figure 17 : Quatre éléments d'une transformée en ondelettes de Haar et trois éléments d'une transformée en curvelettes à différentes échelles et orientations représentant .....	41
Figure 18: Exemples de décompositions en ondelettes décimées (Haar).....	42
Figure 19 : Transformée de Haar et dépendance à la translation .....	43
Figure 20 : Comparaison des techniques de débruitage sur le fantôme de Shepp & Logan.....	50
Figure 22 : Comparaison des techniques de débruitage sur le sinogramme du fantôme.....	51
Figure 23 : Objet 2D $f(x,y)$ et droite du plan de paramètres $(\theta, t)$ .....	57
Figure 24 : Transformée de radon d'une carte de France. ....	59
Figure 25: Objet 2D constitué de 3 points et sinogramme correspondant. ....	59

Figure 26 : Représentation de la matrice de projection $\mathbb{A}$ liant projections et objet .....	60
Figure 27: Projections d'un objet 2D selon 3 directions à $0^\circ$ , $45^\circ$ et $90^\circ$ et rétroprojection .....	60
Figure 28 : Représentation du théorème coupe-projection.....	61
Figure 29 : Représentation d'une grille pseudo-polaire. ....	63
Figure 30 : 18 vecteurs propres de la matrice $t\mathbb{A}\mathbb{A}$ . ....	65
Figure 31 : Schéma de principe de l'algorithme de reconstruction SIRT.....	66
Figure 32 : Représentation de l'information connue pour un objet 2D .....	68
Figure 33 : Simulation d'une étendue angulaire limitée à $\pm 60^\circ$ .....	69
Figure 34: Schéma d'explication de l'algorithme DART et quelques étapes de l'algorithme.....	72
Figure 35 : Représentation des différentes interactions électron-matière.....	75
Figure 36 : Représentation du mode STEM avec les détecteur.....	76
Figure 37 : Image d'une acquisition STEM EDS d'un transistor 28 nm.....	77
Figure 38 : Mesures expérimentales réalisées sur un microscope VG HB501 STEM .....	78
Figure 39 : Lien entre profondeur de champ et résolution pour différentes tensions .....	79
Figure 40 : Libres parcours moyens pour différents éléments chimiques .....	80
Figure 41 : Préparation d'un échantillon en forme de pointe au FIB .....	82
Figure 42 : Cas d'une fonction strictement monotone de type Beer-Lambert .....	84
Figure 43 : Fonction d'acquisition $\Phi$ en mode STEM HAADF .....	86
Figure 44 : Schéma représentant les modes HAADF, BF et IBF .....	87
Figure 45 : Fonctions d'acquisition expérimentales des modes HAADF et IBF.....	87
Figure 46 : Reconstructions 3,5D et 4D en tomographies STEM EDX et STEM EELS simultanées..	88
Figure 47 : Exemple de reconstruction 3,5D de tomographie EFTEM.....	89
Figure 48 : 3D elongated Shepp-Logan phantom. ....	99
Figure 49 : Undecimated wavelet transform of a projection of the porous silicon sample.....	100
Figure 50 : Estimation of the noise level using bins of pixels intensity .....	102
Figure 51: Results of the denoising process. ....	103

Figure 52 : Representation of the fine alignment along z-axis using the common line .....	104
Figure 53 : Pseudo-code for determination of tilt axis misalignment .....	105
Figure 54 : Determination of the tilt axis using intermediate reconstructions .....	106
Figure 55 : Profiles in the middle of the phantom projection .....	108
Figure 56 : Comparison of the three reconstructions of the simulated phantom .....	108
Figure 57 : Reconstructions of the porous silicon .....	110
Figure 58 : Segmentations of the zooms. ....	110
Figure 59 : Reconstructions of the agglomerated silver nanoparticles sample .....	112
Figure 60 : Capture d'écran du logiciel GUIDAR .....	115
Figure 61 : Exemple d'application de la FSC. ....	119
Figure 62 : Comparaison de la résolution obtenue par la méthode FSC .....	121
Figure 63 : Fantôme proposé.....	122
Figure 64 : Triple vue en coupe du volume reconstruit à l'aide d'un algorithme de type TVM... ..	123
Figure 65 : Projection rayons-X de l'objet à reconstruire.....	123
Figure 66 : Représentation de la distance algébrique $C1$ .....	126
Figure 67 : Comparaison visuelle des reconstructions obtenues pour les 9 algorithmes dans le cas des simulations <i>SHAADF</i> . ....	128
Figure 68 : Comparaison visuelle des reconstructions obtenues pour les 9 algorithmes dans le cas des simulations <i>SEDX</i> .....	129
Figure 69 : Histogrammes dans le cas des simulations <i>SHAADF</i> .....	130
Figure 70 : Histogrammes dans le cas des simulations <i>SEDX</i> .....	130
Figure 71 : Segmentations obtenant la meilleure limite de détectabilité dans le cas des simulations <i>SHAADF</i> .....	131
Figure 72 : Segmentations obtenant la meilleure limite de détectabilité dans le cas des simulations <i>SEDX</i> .....	132
Figure 73 : Cas limites pour lesquels les résolutions 2D et 3D sont équivalentes.....	136

Figure 74: Une projection de l'échantillon PSi-Ni avec la zone $Pz$ représentée en rouge.....	138
Figure 75 : Détermination expérimentale de la fonction d'acquisition $\Phi$ .....	139
Figure 76 : Résultats obtenus pour l'échantillon PSi-Ni après reconstructions SIRT>0.....	140
Figure 77 : Comparaison des histogrammes des reconstructions SIRT>0 de l'échantillon PSi-Ni	140
Figure 78 : Comparaison d'une projection STEM HAADF et de la même projection STEM IBF ...	141
Figure 79 : Fantôme utilisé pour les simulations.....	144
Figure 80 : Représentation du diamètre de la sonde électronique.....	145
Figure 81 : Représentation du meilleur diamètre de la sonde .....	145
Figure 82 : Reconstructions SIRT>0 de 100 itérations obtenues dans le cas $A3$ . .....	146
Figure 83 : Comparaison des résultats obtenus dans les cas $A1, A2$ et $A3$ .....	148
Figure 84 : A projection of PSi sample #1 with the 9 parts used for independent RA .....	155
Figure 85 : A projection and the CL representation of the intermetallic sample .....	155
Figure 86 : CL representation of the intermetallic sample for RA and NRA. ....	156
Figure 87 : Three sinograms of PSi sample #1 after RA and after NRA .....	157
Figure 88 : Superposition of neighboring projections for the RA and the NRA.....	158
Figure 89 : A projection of PSi sample #2 and three sinograms at different parts of the sample	158
Figure 90 : Slices in the 3D reconstructions of PSi sample #1 after RA and NRA .....	159
Figure 91 : Comparison of the intermetallic sample reconstructions using RA and NRA .....	160
Figure 92 : Représentation du phénomène de métallisation de la couche de Ti/Al .....	165
Figure 93 : image TEM Osiris (ST Crolles) de l'échantillon en forme de pointe analysé.....	166
Figure 94 : Image STEM HAADF de l'échantillon en forme de pointe HEMT.....	167
Figure 95 : Spectre enregistré en 1 pixel de l'acquisition de tomographie STEM EDX.....	168
Figure 96 : Somme de tous les spectres enregistrés pendant l'acquisition de tomographie.....	168
Figure 97 : Image STEM HAADF de l'échantillon ST28.....	169
Figure 98 : Évaluation du bruit présent dans les projections de l'échantillon ST28.....	173
Figure 99 : projections à $0^\circ$ de l'échantillon ST28 pour les 9 éléments reconstruits.....	175

Figure 100 : Projections bruitées (en haut) et débruitées (en bas) des trois éléments .....	176
Figure 101 : Importance de la somme des corrélations croisées pour l'alignement.....	177
Figure 102 : Comparaison des débruitages NLM simple et hyperspectral .....	180
Figure 103 : Zoom dans les projections As et C de l'échantillon ST28.....	181
Figure 104 : Comparaison des projections bruitées de l'échantillon HEMT.....	181
Figure 105 : Zoom au centre de la projection A1 de l'échantillon HEMT. ....	182
Figure 106 : Comparaison des alignements hyperspectral et simple pour l'échantillon ST28.....	183
Figure 107 : Comparaison des alignements hyperspectral et simple pour l'échantillon HEMT ...	184
Figure 108 : Lignes communes de l'échantillon HEMT avant alignement .....	185
Figure 109 : Deux vues en coupes axiales pour les 3 éléments de l'échantillon HEMT .....	186
Figure 110 : Deux vues en coupes sagittales pour les 3 éléments de l'échantillon HEMT. ....	187
Figure 111 : Coupe axiale pour les 9 éléments reconstruits de l'échantillon ST28. ....	188
Figure 112 : Coupe axiale pour les 9 éléments reconstruits de l'échantillon ST28.....	189
Figure 113 : Coupe sagittale pour les 9 éléments reconstruits de l'échantillon ST28.....	190
Figure 114 : Onglet « chargement et prétraitement » de GUIDAR. ....	200
Figure 115 : Onglet « débruitage » de GUIDAR .....	200
Figure 116 : Onglet « débruitage » de GUIDAR. Évaluation automatique d'un bruit mixte Poisson- Gaussien. ....	200
Figure 117 : Onglet « débruitage » de GUIDAR. Test du débruitage sur une projection .....	200
Figure 118 : Onglet « alignement » de GUIDAR.....	200
Figure 119 : Onglet « alignement » de GUIDAR avec les différentes fenêtres qui s'ouvrent.....	200
Figure 120 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Résultats obtenus après alignement classique	200
Figure 121 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Après demande d'alignement non-rigide .....	200
Figure 122 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Positionnement des sous-parties.....	200
Figure 123 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Positionnement des sous-parties (projection).	200
Figure 124 : Onglet « alignement » de GUIDAR. Résultats d'un alignement non-rigide en Z. ....	200

## LISTE DES FIGURES

Figure 125 : Onglet « Reconstructions directes » de GUIDAR .....	200
Figure 126 : Onglet « Reconstructions » de GUIDAR.....	200
Figure 127 : Onglet « sauvegarde des données » de GUIDAR .....	200







**« Débruitage, alignement et reconstruction 3D automatisés en tomographie électronique – Applications en Sciences des Matériaux »**

**Résumé :**

La tomographie électronique est une technique de nano-caractérisation 3D non destructive. C'est une technique de choix dans le domaine des nanotechnologies pour caractériser des structures tridimensionnelles complexes pour lesquelles l'imagerie 2D en microscopie électronique en transmission seule n'est pas suffisante. Toutes les étapes nécessaires à la réalisation d'une reconstruction 3D en tomographie électronique sont investiguées dans cette thèse, de la préparation d'échantillon aux algorithmes de reconstruction, en passant par l'acquisition des données et l'alignement. Les travaux entrepris visent en particulier (i) à développer une algorithmie complète incluant débruitage, alignement et reconstruction automatisés afin de rendre la technique plus robuste et donc utilisable en routine (ii) à étendre la tomographie électronique à des échantillons plus épais ou ayant subi une déformation en cours d'acquisition et enfin (iii) à améliorer la tomographie électronique chimique en essayant d'exploiter au maximum toutes les informations disponibles. Toutes ces avancées ont pu être réalisées en s'intéressant particulièrement aux échantillons permettant une acquisition sur une étendue angulaire idéale de 180°. Un logiciel a également été développé au cours de cette thèse synthétisant la majeure partie de ces avancées pour permettre de réaliser simplement toutes les étapes de tomographie électronique post-acquisition.

**Mots-clés :**

« Tomographie », « STEM », « Reconstruction », « 3D », « Débruitage », « alignement »

**“Automatic denoising, alignment and reconstruction in electron tomography – Materials Science Applications“**

**Abstract:**

Electron tomography is a 3D non-destructive nano-characterization technique. It is an essential technique in the field of nanotechnologies to characterize complex structures particularly when 2D projections using a transmission electron microscope (TEM) are inappropriate for understanding the 3D sample morphology. During this thesis each one of the necessary steps of electron tomography have been studied: sample preparation, TEM acquisition, projection alignment and inversion algorithms. The main contributions of this thesis are (i) the development of a new complete procedure of automatic denoising, alignment and reconstruction for a routine use of electron tomography (ii) the extension of the technique to thicker specimen and specimen being damaged during the acquisition and finally (iii) the improvement of chemical tomography reconstructions using as much information as possible. All those contributions are possible taking advantage of the use of needle-shaped samples to acquire projections on an ideal tilt range of 180°. A software has been developed during this thesis to allow users to simply apply most of the contributions proposed in this work.

**Keywords:**

“Tomography”, “STEM”, “Reconstruction”, “3D”, “Denoising”, “alignment”