



**HAL**  
open science

# Imagerie nanométrique ultra-rapide par diffraction cohérente de rayonnement XUV produit par génération d'harmoniques d'ordre élevés

Rémy Cassin

► **To cite this version:**

Rémy Cassin. Imagerie nanométrique ultra-rapide par diffraction cohérente de rayonnement XUV produit par génération d'harmoniques d'ordre élevés. Optique [physics.optics]. Université paris sud 11, LRI; Paris Saclay, 2017. Français. NNT: . tel-01664520v1

**HAL Id: tel-01664520**

**<https://theses.hal.science/tel-01664520v1>**

Submitted on 14 Dec 2017 (v1), last revised 19 Feb 2018 (v3)

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

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



# THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY

EFFECTUÉE AU SEIN DU GROUPE ATTO DANS LE LABORATOIRE LIDYL DU  
CEA-SACLAY

ÉCOLE DOCTORALE ONDES ET MATIÈRE  
SPÉCIALITÉ : OPTIQUE ET PHOTONIQUE

---

## Imagerie nanométrique ultra-rapide par diffraction cohérente de rayonnement XUV produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé

PRÉSENTÉE ET SOUTENUE PAR

**RÈMY CASSIN**

LE 21 DÉCEMBRE 2017

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ  
PARIS-SACLAY

---

### Composition du Jury

RAPPORTEUR	Dr. Vincent FAVRE-NICOLIN <i>ESRF - Grenoble, FRANCE</i>
RAPPORTEUR	Pr. Jean-Yves BIGOT <i>IPCMS - Strasbourg, FRANCE</i>
EXAMINATEUR	Dr. Eric CONSTANT <i>Institut Lumière Matière - Lyon, FRANCE</i>
EXAMINATEUR	Pr. Stéphane SEBBAN <i>Laboratoire d'Optique Appliquée - Palaiseau, FRANCE</i>
DIRECTEUR DE THÈSE	Dr. Hamed MERDJI <i>CEA Saclay - Saclay, FRANCE</i>

# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>i</b>
<b>Table des figures</b>	<b>iii</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>1</b>
<b>2 Imagerie sans lentilles</b>	<b>8</b>
2.1 Principe . . . . .	8
2.2 Formation de l'image dans l'imagerie sans lentille . . . . .	11
2.2.1 Principe de la diffraction . . . . .	11
2.2.2 Transmission . . . . .	14
2.2.3 Détection et échantillonnage . . . . .	15
2.2.3.1 Sur-échantillonnage linéaire . . . . .	17
2.3 Reconstruction . . . . .	20
2.3.1 Reconstruction par algorithmes itératifs . . . . .	20
2.3.2 FTH et Heraldo . . . . .	24
2.3.3 Conclusion . . . . .	29
<b>3 Ligne de lumière génération d'harmoniques d'ordre élevé</b>	<b>30</b>
3.1 Introduction . . . . .	30
3.2 Principe de la génération d'harmoniques d'ordre élevé . . . . .	31
3.3 Ligne de LUCA . . . . .	35
3.3.1 Setup . . . . .	35
3.3.2 Optimisation qualité de faisceau . . . . .	38
3.3.2.1 Cohérence spatiale . . . . .	38
3.3.2.2 Stabilité du faisceau . . . . .	42
<b>4 Imagerie sans lentille 2D</b>	<b>46</b>
4.1 Introduction . . . . .	46
4.2 Préparation des échantillons . . . . .	46
4.3 Amélioration du SNR . . . . .	48
4.3.1 Accumulation et HDR . . . . .	48
4.3.2 Superposition des reconstructions . . . . .	50
4.4 Étude SNR dans les reconstruction holographiques . . . . .	51
4.4.1 Impact du bruit de lecture et des filtres de reconstruction : résultats expérimentaux . . . . .	51
4.4.2 Analyse théorique de l'impact du filtre multiplicatif dans la technique HERALDO . . . . .	56

4.4.3	Impact du bruit de lecture et du binning <i>hardware</i> . . . . .	59
4.5	Caractérisation de la cohérence spatiale d'un faisceau XUV en simple tir . . . . .	62
4.5.1	Introduction . . . . .	62
4.5.2	Caractérisation complète de la cohérence spatiale d'une impulsion unique d'un faisceau XUV . . . . .	66
4.5.2.1	Méthode . . . . .	66
4.5.2.2	Résultats expérimentaux avec une source d'harmoniques d'ordres élevés . . . . .	70
4.5.2.3	Conclusion et perspective . . . . .	80
4.6	Imagerie CDI d'objets de phase . . . . .	83
4.6.1	Introduction . . . . .	83
4.6.2	Échantillons et montage . . . . .	85
4.6.3	Reconstructions . . . . .	88
4.6.3.1	Simulations . . . . .	88
4.6.3.2	Résultats expérimentaux . . . . .	92
4.6.4	Conclusion et perspectives . . . . .	96
<b>5</b>	<b>Imagerie sans lentille 3D</b> . . . . .	<b>99</b>
5.1	Introduction . . . . .	99
5.2	Imagerie sans lentille stéréo simple tir . . . . .	102
5.2.1	Principe . . . . .	102
5.2.2	Montage . . . . .	104
5.2.3	Reconstruction 2D et 3D CDI . . . . .	107
5.2.4	Reconstructions HERALDO et stéréo-microscopie . . . . .	117
5.2.5	Conclusion . . . . .	125
5.3	Classification angulaire des figures de diffraction avec un faible flux de photons . . . . .	126
5.3.1	Introduction . . . . .	126
5.3.2	Montage et traitement des figures de diffraction . . . . .	130
5.3.3	Méthode de classification par orientation . . . . .	136
<b>6</b>	<b>Conclusion et perspectives</b> . . . . .	<b>143</b>
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	<b>176</b>
	<b>Publications</b> . . . . .	<b>176</b>

# Table des figures

1.1	Schéma de l'imagerie par diffraction cohérente avec reconstruction de la phase par algorithmes itératifs. . . . .	2
2.1	Schéma d'un système d'imagerie conventionnelle où l'image est formée par un système de lentille. . . . .	9
2.2	Schéma de principe de la technique CDI : on récupère d'abord l'intensité de la figure de diffraction grâce à un capteur CCD, la phase est ici perdue, puis on reconstruit la phase à l'aide d'un algorithme itératif. Ainsi on peut reconstruire l'image de l'objet [1] . . . . .	10
2.3	Schéma de propagation du front d'onde dans l'imagerie sans lentille [2] . . . . .	12
2.4	Représentation du lien entre le vecteur d'onde et l'angle de diffraction sur la sphère d'Ewald. . . . .	13
2.5	Représentation des différents espaces dans une expérience d'imagerie sans lentille [2] . . . . .	17
2.6	Schéma de principe de l'algorithme itératif HIO de récupération de phase [3]. . . . .	20
2.7	Schéma de principe des projections successives appliquées à $x$ dans le cas ou $N = 2$ contraintes. . . . .	22
2.8	Évolution du critère d'erreur lors d'une reconstruction de la simulation de l'objet "Pion" isolé de la partie 4.6 du chapitre 4 . . . . .	23
2.9	a) est une reconstruction expérimentale issue minimisant la fonction d'erreur d'un lacement unique de l'algorithme de l'objet 1) et b) est le résultat d'un superpositions de 40 <i>runs</i> indépendants de l'algorithme avec une phase initiale différente à chaque lancement . . . . .	24
2.10	Principe de la technique HERALDO, tiré de la thèse de M. Guizar-Sicairos [4]. (a) : objet observé. (b) : représentation des supports de corrélation : de l'objet avec lui-même ( $o \otimes o$ ), de la référence avec elle-même ( $r \otimes r$ ), et de l'objet avec la référence ( $o \otimes r$ et $r \otimes o$ ). (c) : représentation des différents domaines afin de comprendre la notion de « séparation holographique ». (d) : Reconstruction HERALDO après application de l'opérateur linéaire $\mathcal{L}^{(n)}$ . . . . .	28
3.1	Spectre typique dans l'argon obtenu dans des conditions standard de génération [1]. . . . .	32
3.2	Modèle en trois étapes de la génération d'harmoniques d'ordre élevé. . . . .	33
3.3	Photo des 3 enceintes La flèche rouge indique le sens de propagation du faisceau. L'ensemble fait environ 5m de long. . . . .	36
3.4	Photo de la cellule de gaz où à lieu la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Le lumière bleu est due à l'ionisation des atomes d'argon par l'IR incident. . . . .	37

3.5	Photo de l'enceinte de diffraction. Le miroir parabolique focalise le faisceau harmonique sur l'échantillon maintenu par le porte échantillon. Enfin la caméra CCD récupère la figure de diffraction en champ lointain. . . . .	38
3.6	Schéma de propagation du faisceau IR incident et du faisceau harmonique [2]. . . . .	38
3.7	Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H25 dans l'argon en fonction du diamètre du faisceau incident IR. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré. . . . .	40
3.8	Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H25 dans l'argon en fonction de la pression du gaz dans la cellule. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré. . . . .	40
3.9	Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H33 dans le néon en fonction du diamètre du faisceau incident IR. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré. . . . .	41
3.10	Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H33 dans le néon en fonction de la pression du gaz dans la cellule. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré. . . . .	41
3.11	A droite : interférogramme obtenu à partir de fentes d'Young espacées de $1.2\mu m$ de $100nm$ de largeur (taille des pixels : $27\mu m$ ). A gauche : transformée de Fourier du profil de droite . . . . .	42
3.12	L'image en haut à gauche montre une figure de diffraction accumulée sur 40 tirs pour l'objet HERALDO -dont on peut voir une image MEB dans l'insert- avant optimisation du faisceau. L'image en haut à droite est une figure de diffraction sur 40 tirs recueilli après optimisation de la stabilité du pointé du faisceau. Le graphe du bas montre la coupe des franges d'interférences horizontales en rouge pour la stabilité non optimisée et en bleu pour le faisceau stabilisé. . . . .	44
3.13	Faisceau harmonique optimal à H33 généré par le montage LUCA dans le néon. . . . .	45
3.14	Faisceau harmonique optimal à H25 généré par le montage LUCA dans l'argon. . . . .	45
4.1	Schéma de gravure des échantillons 2D avec le FIB. Les membranes d'or, de chrome et de niture de silicium font $150nm$ , $4nm$ et $75nm$ d'épaisseur respectivement. . . . .	47
4.2	L'image de gauche est la transformée de Fourier d'une figure de diffraction simple tir obtenue avec le NRA utilisé dans la section 4.5.1. La figure de droite est la transformée de Fourier d'un signal de diffraction accumulé pour 100 tirs laser. Le rapport signal sur bruit et la résolution de la reconstruction sont détériorés par l'accumulation de tirs laser. . . . .	49
4.3	L'image de gauche est une image MEB de l'échantillon HERALDO. L'image de droite est la figure de diffraction en échelle logarithmique correspondante obtenue pour un temps d'acquisition de $300s$ . . . . .	53

4.4	Influence du filtre passe-bas sur le processus de reconstruction HERALDO. (a,d,g) Filtre multiplicatif sans (a) et avec un filtre passe-bas super Gaussien d'ordre 3 (de diamètre 400 et 140 pixels pour (d) et (g) respectivement). (b,e,h) résultats de la multiplication dans l'espace de Fourier de la figure de diffraction expérimentale par le filtre multiplicatif HERALDO (a,d,g respectivement). (c,f,i) transformée de Fourier inverse de b,e,h respectivement, donnant la reconstruction de l'objet. Il est impossible de distinguer l'objet dans la reconstruction sans filtre passe bas gaussien (c) car il est noyé dans le bruit. La reconstruction obtenue avec un filtre gaussien de grand diamètre (f) est de mauvaise qualité, à cause de la contribution encore trop importante du bruit de lecture. Enfin la reconstruction (i) obtenue avec un filtre super gaussien de diamètre adapté (140 pixels) permet d'obtenir une bonne reconstruction de l'objet. . . . .	54
4.5	Évolution du $RSB_p$ et de la résolution (en $nm$ ) de la reconstruction en fonction du rayon du filtre passe-bas. La meilleure résolution ( $81nm$ ) est obtenue pour un rayon de 200 pixels. Il est impossible de calculer une résolution pour les rayons 50 et 450 pixels, l'objet étant trop flouté et modulé par des franges, respectivement. Le maximum du $RSB_p$ vaut 13.7, obtenu pour un rayon de 150 pixels et la résolution maximale vaut $81nm$ , obtenue pour un rayon de 165 pixels. . . . .	56
4.6	Effet du binning <i>hardware</i> sur la figure de diffraction. Les figures de diffraction sont enregistrées avec les mêmes conditions, en simple tir. Les facteurs de binning utilisés pour (a,b,c) sont ( $2 \times 2$ , $3 \times 3$ et $4 \times 4$ respectivement). La taille des fenêtres utilisées est $600 \times 600$ , $400 \times 400$ et $300 \times 300$ pour (a,b,c) respectivement. Toutes les figures de diffraction possèdent la même échelle de couleur. En dessous des trois figures de diffraction est présentée l'image MEB de l'échantillon. . . . .	61
4.7	Effet du binning <i>hardware</i> sur la reconstruction de l'image. La figure de gauche est la transformée de Fourier de la figure de diffraction 4.6 (a) . L'image de droite est reconstruite à partir de la figure de diffraction 4.6 (c) . L'augmentation du facteur de binning se traduit par une augmentation du $RSB_r$ et de la résolution. . . . .	61
4.8	Configuration trous d'Young. Les deux trous (A et B) agissent comme sources ponctuelles secondaires de la source principale. Ici on suppose que les angles sous lesquels on voit A et B depuis P sont tous deux très inférieurs à $1mrad$ . . . . .	64
4.9	A gauche, un NRA de 3 trous équidistants donc possédant un $ d_{nm}^{\vec{r}} $ égal pour chaque paire de trous. A droite, la transformée de Fourier de la figure de diffraction obtenue à partir du NRA, c'est l'autocorrélation du NRA. . . . .	67
4.10	A gauche, un NRA de 7 trous, possédant 3 jeux de 3 trous équidistants (donc possédant un $ d_{nm}^{\vec{r}} $ égal pour chaque paire de trous dans un même triangle). A droite, la transformée de Fourier de la figure de diffraction obtenue à partir du NRA, c'est l'autocorrélation du NRA. . . . .	68
4.11	(a,c) répartition d'intensité du faisceau gaussien par rapport au NRA. (a) est centrée, (c) est déviée de $(-1.6\mu m x, -1.1\mu m)$ . Les trous du NRA sont représentés par des cercles noirs. (b,d) Courbe de la cohérence en fonction des séparations $ d_{nm}^{\vec{r}} $ pour chaque paire de trous. Le calcul de la cohérence est effectué après normalisation de l'intensité sans supposition sur la répartition d'intensité. La courbe rouge est la simulation de la cohérence et les carrés noirs sont les valeurs de la cohérence calculées. [5].	69

4.12	Image MEB de la face avant du NRA à 5 références ponctuelles utilisé pour caractériser la cohérence spatiale. Chaque trou fait environ $310nm$ de diamètre. . . . .	70
4.13	(a) Figure de diffraction expérimentale simple tir obtenue par la diffraction de H25 traversant le NRA présenté en figure 4.12. La fenêtre fait $400 \times 400$ pixels avec un binning $2 \times 2$ (b) Transformée de Fourier de (a), on reconstruit les 10 pics associés aux 10 paires de références. (c) Simulation de l'autocorrélation du même NRA dans le cas où le faisceau possède une répartition d'intensité uniforme et une cohérence parfaite. . . . .	72
4.14	En rouge : Courbe du degré de cohérence fitté à partir des valeurs $ \gamma_{nm} $ calculées (points bleus) pour les différents $ \vec{d}_{nm} $ à partir de la figure de diffraction présentée dans la figure 4.13. On trouve un rayon expérimental de la courbe de cohérence qui vaut $3.85\mu m \pm 0.1\mu m$ . . . . .	73
4.15	Courbes du degré de cohérence obtenues pour une pression de $1.70mbar$ , $1.90mbar$ et $2mbar$ (graphe du haut, milieu et bas respectivement). En rouge : Courbe du degré de cohérence des valeurs $ \gamma_{nm} $ (points rouges) expérimentales simple tir. Les barres d'erreurs correspondent à l'écart type de $ \gamma_{nm} $ . En vert : courbe de cohérence fittée sur les $ \gamma_{nm} $ (points verts) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des figures de diffraction permettant de reconstruire la totalité des pics de l'autocorrélation du NRA. En violet : courbe de cohérence fittée sur les $ \gamma_{nm} $ (points violet) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des 100 figures de diffraction. . . . .	75
4.16	Courbes du degré de cohérence obtenues pour une pression de $2.10mbar$ , $2.30mbar$ et $2.55mbar$ (graphe du haut, milieu et bas respectivement). En rouge : Courbe du degré de cohérence des valeurs $ \gamma_{nm} $ (points rouges) expérimentales simple tir. Les barres d'erreurs correspondent à l'écart type de $ \gamma_{nm} $ . En vert : courbe de cohérence fittée sur les $ \gamma_{nm} $ (points verts) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des figures de diffraction permettant de reconstruire la totalité des pics de l'autocorrélation du NRA. En violet : courbe de cohérence fittée sur les $ \gamma_{nm} $ (points violet) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des 100 figures de diffraction. . . . .	76
4.17	Récapitulatif des mesures de cohérence spatiale en fonction des paramètres de génération. . . . .	77
4.18	Illustration des vecteurs de séparation entre l'objet et la référence dans le cas FTH. . . . .	81
4.19	(a, c et e) Images de l'échantillon "roue" prises à $60^\circ$ , vue du dessus et modèle inkscape, respectivement. Le TPP utilisée ici est $0.8\mu s$ . (b, d et f) Images de l'échantillon "Pion" prises à $60^\circ$ , vue du dessus et modèle inkscape, respectivement. Le TPP utilisée ici est $2\mu s$ . . . . .	86
4.20	Schéma du montage expérimental de génération d'harmoniques d'ordres élevés et d'imagerie sans lentille. Les lames en incidences rasantes sont placées à $11mm$ l'une de l'autre à un angle de $82^\circ$ . . . . .	87
4.21	A gauche : Figure de diffraction de l'échantillon "Pion" isolé (voir insert) simulée pour un temps d'acquisition de $20s$ . A droite : Transformée de Fourier de l'image de gauche correspondant à l'autocorrélation de l'échantillon Pion. . . . .	89



4.22	Amplitude (à gauche) et phase (à droite) de l'image reconstruite de l'objet, obtenue à partir de l'image de diffraction simulée présentée en figure 4.21. L'image est issue d'un lancement unique de l'algorithme itératif. L'échantillon fait $1\mu m$ de largeur. . . . .	90
4.23	A gauche : Figure de diffraction de l'échantillon "Pion" réel (voir insert) simulée pour un temps d'acquisition de 20s. A droite : Transformée de Fourier de l'image de gauche correspondant à l'autocorrélation de l'échantillon Pion. . . . .	91
4.24	Amplitude (à gauche) et phase (à droite) de l'image de l'objet reconstruites, obtenues à partir de l'image de diffraction simulée présentée en figure 4.23. L'image est issue d'un lancement unique de l'algorithme itératif et la valeur du seuil de l'autocorrélation est 9%. L'échantillon fait $1\mu m$ de largeur. . . . .	92
4.25	Amplitude (à gauche) et phase (à droite) de l'image de l'objet reconstruites, obtenues à partir de l'image de diffraction simulée présentée en figure 4.23. L'image est issue d'un lancement unique de l'algorithme itératif et la valeur du seuil de l'autocorrélation est 4.5%. Les traits noir et noir pointillé dans l'image de droite tracent le contour de l'objet Pion et son complexe conjugué. L'échantillon fait $1\mu m$ de largeur et le disque fait $2\mu m$ . . . . .	92
4.26	(a) Figure de diffraction expérimentale en échelle logarithmique de l'objet "roue" obtenue par assemblage HDR de 3 temps d'acquisitions : 3.3s, 20s et 120s. (b) Transformée de Fourier de (a), autocorrélation de l'objet. (c) et (d) sont l'amplitude et la phase de l'image de l'objet reconstruite, respectivement, issue d'une moyenne de 25 reconstructions minimisant le critère d'erreur de lancements indépendants de l'algorithme. . . . .	93
4.27	(a et c) Figures de diffraction de l'échantillon "Pion" dessiné avec un TPP de $0.14\mu s$ et $0.37\mu s$ , respectivement et obtenues après assemblage HDR de trois temps d'acquisitions différents : 5s, 30s et 300s. (b) Figure de diffraction qui provient d'un échantillon dessiné avec un TPP de $0.23\mu s$ , obtenue à partir d'un assemblage HDR de 3 temps d'acquisitions (5s, 30s et 240s). Les trois figures de diffraction sont enregistrées avec un facteur de binning $2 \times 2$ . . . . .	95
4.28	A gauche : Autocorrélation de l'objet réel "Pion" obtenue à partir de la transformée de Fourier du signal de diffraction expérimental (b) de la figure 4.27 (240s de temps d'acquisition). A droite : Autocorrélation de l'objet réel "Pion" obtenue à partir de la transformée de Fourier d'une figure de diffraction simulée avec un temps d'acquisition de 240s. . . . .	96
4.29	Image MEB de l'échantillon Pion prise à $60^\circ$ . Il reste de fines zones d'or disséminées sur l'échantillon. . . . .	97
5.1	Image MEB de l'échantillon. La taille du contour de la croix fait $6 \times 7\mu m$ . La membrane fait $150nm$ d'or, $75nm$ de $Si_3N_4$ et $4nm$ de Cr pour faciliter l'adhésion des deux couches. On dessine l'échantillon avec un faisceau d'ion focalisé. Les forces électrostatiques empêchent l'intérieur de la croix de tomber, l'attachant de façon permanente à la membrane. . . . .	105

5.2	Montage expérimental pour l'imagerie stéréo 3D. Une parabole hors axe (OAP) sélectionne l'harmonique 33 ( $\lambda = 24.24nm$ ) généré dans le néon grâce à un traitement multi-couches. Un prisme en silice en incidence rasante inséré après l'OAP sépare le faisceau harmonique en deux. Des lames de silicium contrôlables permettent de dévier chaque sous-faisceau sur l'échantillon. On récupère les deux figures de diffractions simultanément sur une unique caméra CCD. . . . .	106
5.3	Photo du montage expérimental pour l'imagerie stéréo 3D. Pour améliorer la visibilité le trajet du faisceau harmonique est tracé en violet et les contours du prisme et des miroirs sont tracés en bleu. . . . .	107
5.4	Les deux figures de diffraction simple acquisition, en échelle logarithmique (tournées de $90^\circ$ dans le sens horaire) enregistrées simultanément sur une seule caméra CCD avec un temps d'acquisition de 180s. La figure de diffraction de gauche provient du faisceau réfléchi par la lame du haut et celle de droite provient de celui réfléchi par la lame du bas. On observe que la répartition en intensité est égale entre les deux figures de diffraction. . . . .	108
5.5	a) Figure de diffraction provenant du faisceau du haut isolée et traitée par HDR avec des temps d'intégration de 30s et 240s. b) Figure de diffraction provenant du faisceau du bas isolée et traitée par HDR avec des temps d'intégration de 35s et 240s. . . . .	109
5.6	a) est une reconstruction expérimentale de l'objet 1) "vue du bas" minimisant la fonction d'erreur issue d'un lancement unique de l'algorithme et b) est le résultat d'une superposition de 40 reconstructions provenant de lancements indépendants de l'algorithme avec une phase initiale différente à chaque départ. . . . .	110
5.7	a) : Reconstruction de l'objet "vue du haut" provenant d'une superposition cohérente de 40 reconstructions provenant de lancements indépendants de l'algorithme avec une phase initiale différente à chaque départ. b) Idem pour "la vue du bas". . . . .	110
5.8	Coupe de la reconstruction "vue du haut" après superposition cohérente et estimation de la résolution par critère 10% – 90%. Le pas pixel est de $42.4nm$ et la résolution est estimée à 3 pixels, soit $127nm$ . . . . .	111
5.9	a) Anaglyphe stéréo, obtenu après rectification, à partir duquel la carte des disparités est calculée. Les parties rouges et cyans de l'image correspondent aux régions de l'objet transmettant des photons pour la vue du haut et du bas respectivement. Les régions qui transmettent pour les deux images sont représentées en blanc. b et c) Cartes de disparités calculées à partir de la vue du bas et du haut respectivement. Elles sont calculées après le redimensionnement des images stéréo, la valeur réelle en pixel de la disparité est divisée par un facteur 2. . . . .	114
5.10	a) b) carte de disparité obtenue pour l'objet d'amplitude pure simulée et expérimentale, respectivement c) d) Reconstruction 3D obtenue après fit et interpolation. . . . .	115
5.11	a) b) carte de disparité obtenue pour l'objet simulé d'amplitude pure et d'amplitude et de phase respectivement c) d) Reconstruction 3D obtenue après fit et interpolation. Les cercles rouges montre les différences qu'apportent une transmission partielle de la membrane dans la carte de disparité et dans la reconstruction 3D. . . . .	116

5.12	Figure 1 : Anaglyphe rouge-vert d'un nano-plancton obtenu à partir d'images MEB (Figure 2) prises avec une rotation de 5 degrés entre les prises de vues. . . . .	118
5.13	Échantillon 3D utilisé pour l'expérience de stéréo-microscopie. L'angle entre la membrane et la fenêtre est de $2.6^\circ$ . . . . .	119
5.14	Figure de diffraction en échelle logarithmique (tournée de $90^\circ$ ) obtenue pour un temps d'acquisition de 540s. La figure de diffraction provenant de la lame du haut est à gauche. . . . .	120
5.15	Transformée de Fourier du signal de diffraction de droite de la figure 5.14. Au dessus de la tache centrale, correspondant à l'autocorrelation de l'objet et celle de la fente, on trouve la corrélation de l'objet et de la fente rectangulaire. Pour obtenir la reconstruction de l'objet il faut appliquer un opérateur linéaire dérivant la reconstruction dans la direction de la fente. . . . .	121
5.16	Représentation de l'opérateur $F$ (à droite) qu'on applique à la paire de figures de diffraction stéréo expérimentales avant d'effectuer une transformée de Fourier pour obtenir la reconstruction de l'objet. $F$ est le produit de l'opérateur linéaire de dérivation $U$ et du filtre gaussien d'ordre 2 $G$ . . . . .	122
5.17	a : Reconstruction HERALDO obtenue à partir du signal de diffraction de droite de la figure 5.14 avec un filtre super-gaussien de rayon $r = 300pixels$ . b : Reconstruction HERALDO obtenue de la même figure de diffraction que a, mais en utilisant un filtre super-gaussien de rayon $r = 140pixels$ . . . . .	122
5.18	Le graphe de gauche montre l'évolution du RSB de l'image reconstruite en fonction du rayon $r$ du filtre $G$ pour notre signal de diffraction où il existe une superposition des figures de diffraction (cf figure 5.14). Le graphe de droite compare la même évolution pour un signal de diffraction HERALDO classique tiré de [6]). On note que le comportement des courbes est similaire. . . . .	123
5.19	Anaglyphe construit à partir de la paire d'image stéréo reconstruites avec la technique HERALDO. On place la vue du haut dans le plan rouge et la vue du bas dans le plan bleu. L'effet 3D est difficile à observer car l'angle de parallaxe est trop grand ( $9.8^\circ$ ), causant une violation de la fenêtre stéréo. . . . .	124
5.20	(a,b) Assemblage 3D des figures de diffraction. (a) 10 figures de diffraction présentées selon l'orientation calculée par l'algorithme EMC. Chaque figure de diffraction représente une coupe du module au carré de la transformée de Fourier 3D de la densité électronique du mimivirus. (b) La totalité des 198 figures de diffraction avec une vue sur le centre de l'espace 3D de diffraction. (c) Densité électronique 3D du mimivirus reconstruite à partir de (b) avec une résolution de $125nm$ . [7] . . . . .	128
5.21	Échantillon utilisé dans l'expérience de détermination de l'orientation en régime de faible flux. L'angle entre la membrane et la fenêtre principale est de $5^\circ$ . . . . .	130
5.22	Illustration de la technique de dessin des échantillons : (a) et (b) sont dessinés avec la même dose pour la fenêtre principale et une dose plus importantes pour les rectangles dans (b). (c) et (d) sont dessinés avec la même dose pour les rectangles mais avec une dose plus importante pour la fenêtre dans (c). . . . .	131

- 5.23 L'image en haut à droite montre une figure de diffraction accumulée sur 50 tirs pour l'objet HERALDO avec une fluctuation de pointé tir à tir. L'image en haut à gauche est une figure de diffraction sur 50 tirs recueillie avec un pointé de faisceau stable. Le graphe du bas montre la coupe des franges d'interférences horizontales en rouge pour un pointé instable et en bleu pour le faisceau stable. . . . . 133
- 5.24 a) Profil d'intensité des franges d'interférence entre la fenêtre de l'objet et la référence rectangulaire. Ce profil est obtenue en sommant puis moyennant 230 figures de diffraction recueillis pour l'échantillon tourné de  $3^\circ$  autour d'un axe de rotation vertical perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau. b et c) Module et phase de la transformée de Fourier de a) respectivement. La ligne pointillé rouge est placée sur la fréquence  $f_0$ , premier maximum de la première fréquence non nulle présente dans le profil a). . . . . 134
- 5.25 Exemple de représentation de la phase et l'amplitude du premier maximum d'amplitude de la première fréquence non nulle d'un ensemble de données. L'étoile bleu représente la position de la phase et l'amplitude de  $f_0$ . . . . . 135
- 5.26 A gauche : Exemple de représentation des données avec les paramètres  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  permettant de trier les "bonnes" figures de diffraction des "mauvaises". Les étoiles oranges sont les positions des maximums d'amplitude qui ne sont pas situés en  $f_0$ , les bleus sont les maximums situés exactement en  $f_0$ . On peut directement exclure les figures de diffraction dont proviennent les maximums orange. Le cercle orange inclut tout les maximums provenant des "bonnes" figures de diffraction. Changer  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  change le nombre de figures de diffraction sélectionnées. A droite : Évolution de l'amplitude de  $f_0$  en fonction de  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$ . Ici  $f_0$  est l'amplitude du premier maximum calculé à partir de la moyenne des figures de diffraction sélectionnés par  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  (inclut dans le cercle orange de la figure du haut). On considère que les valeurs de  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  optimales sont celles qui maximisent l'amplitude de  $f_0$ . Les données expérimentales utilisées pour le graphe de droite sont les mêmes que celles utilisées pour la figure 5.27 . . . . . 136
- 5.27 Comparaison des données "bonnes" et "mauvaises" après tri. a) Contraste des franges d'interférences. Les profils d'intensité vert et bleu sont le contraste moyen des mauvaises et des bonnes données respectivement. b) Module de la transformée de Fourier des profils d'intensité présentés en a). Les courbes verte et bleu correspondent aux mauvaises et des bonnes données respectivement. c) Représentation de la phase et de l'amplitude du premier maximum de la première fréquence non nulle. Les points verts sont les positions des maximums d'amplitude qui ne sont pas situés en  $f_0$ , les bleus sont les maximums situés exactement en  $f_0$ . Les points noir et rouge sont la position du  $f_0$  calculée à partir de la moyenne de toutes les données et de toutes les bonnes données respectivement. . . . . 137

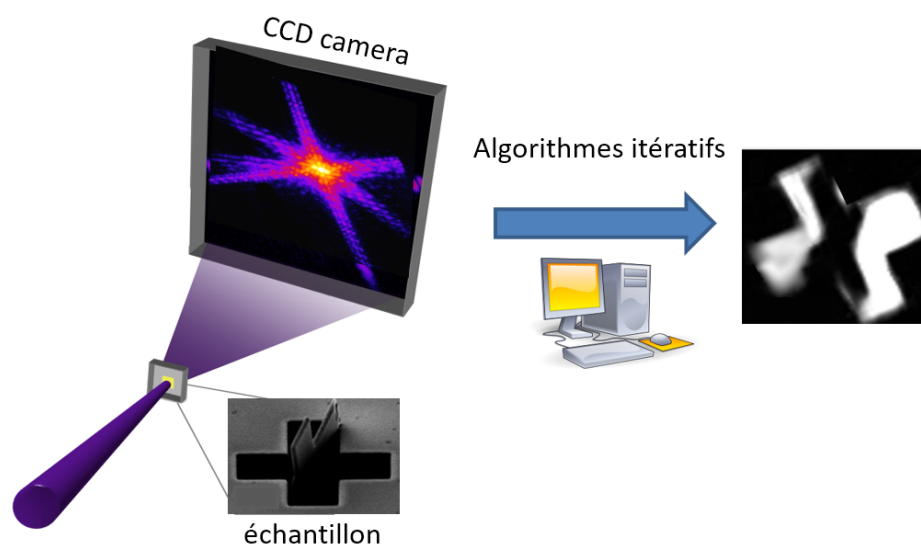
5.28	Dans chaque graphe, on affiche le logarithme du nombre de photons détectés sur les pixels actifs en ordonnée et en abscisse, on calcule la probabilité de correctement identifier l'orientation d'un détail de l'objet grâce au pixel correspondant dans le jeu de donnée. On calcule cette probabilité grâce au modèle défini dans l'hypothèse III.(a,b,c,d) sont obtenus pour des orientations de l'échantillon valant $3^\circ$ , $4^\circ$ , $5^\circ$ et $6^\circ$ , respectivement. La ligne rouge montre le seuil d'une probabilité aléatoire d'identification d'orientation. La ligne noire représente le niveau de confiance 50% d'identifier correctement une orientation. . . . .	141
6.1	Schéma présentant l'expérience de transparence induite du titane et les images reconstruites. L'image du haut est obtenue à $T = 0$ en faisant la TF de l'hologramme et celle du bas est obtenue après chauffage de l'échantillon par le faisceau pompe infrarouge à $T = 100fs$ . . . . .	148
6.2	Simulation de l'image reconstruite avec un spectre d'harmoniques allant de H15 à H29. L'objet est une fente de $500nm$ de largeur et 7 références sont placées autour à une distance de $22.5\mu m$ . . . . .	149
6.3	Simulations PIC de l'expansion du plasma dans une membrane de titane. On affiche ici la densité des protons dans le vide. . . . .	149
6.4	Arrangement expérimental de l'expérience de l'amplification de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des guides d'ondes 3D semi-conducteurs [8]. . . . .	152

# Chapitre 1

## Introduction

L'imagerie par diffraction cohérente (CDI pour le sigle anglais) est une technique d'imagerie dans laquelle les optiques conventionnelles, comme les lentilles, les miroirs ou les éléments optiques holographiques, sont remplacées par la propagation dans l'espace libre, la détection de l'intensité du champ par un capteur et une reconstruction par des techniques post-acquisition. Un schéma de l'arrangement expérimental typique de l'imagerie sans lentille est présenté dans la figure 1.1. Dans cette approche, un faisceau cohérent spatialement est dirigé vers un objet (en transmission ou en réflexion) et l'intensité du champ diffracté par l'objet est mesurée par un détecteur (en général en champ lointain). Pour que cette technique fonctionne, il faut que la source d'illumination possède une cohérence spatiale non nulle sur toute la largeur de l'objet et il faut que la figure de diffraction soit correctement échantillonnée, en accord avec le théorème de Nyquist-Shannon. Ces conditions limitent le champ de l'image (FOV pour le sigle anglais) utilisable avec cette technique. Cependant, il reste largement supérieur au FOV des techniques scannant l'échantillon comme la microscopie confocale. Dans cette configuration sans lentille, on peut reconstruire des images dont la qualité est limitée uniquement par la diffraction (donc la longueur d'onde de la source).

Dans le domaine de l'imagerie, on cherche continuellement à améliorer la résolution afin d'étudier des échantillons de plus en plus petits. Dans un système d'imagerie conventionnelle, cela est réalisé en augmentant la taille de la pupille d'entrée du système. Ceci implique d'augmenter le diamètre des optiques utilisées ce qui est parfois complexe à réaliser. En effet, la fabrication d'optiques de bonnes qualités et non aberrantes est de plus en plus difficile quand le diamètre du composant augmente, ce qui se traduit par



**Figure 1.1** Schéma de l'imagerie par diffraction cohérente avec reconstruction de la phase par algorithmes itératifs.

un coût parfois très élevé. De plus, cela accroît le poids et la longueur totale du système selon l'axe optique (appelée encombrement). Dans l'imagerie sans lentille, on augmente la résolution en augmentant la taille du détecteur, on ne change donc pas l'encombrement du système.

Proposée par D. Sayre en 1952 [9], puis développée [10] et démontrée expérimentalement [11] pour des longueurs d'ondes dans le spectre du visible, les techniques CDI ont trouvé un champ d'application privilégié dans l'imagerie de haute résolution par rayons X [12–15]. Bien que des résolutions de l'ordre de quelques nanomètres soient atteignables avec des techniques non-optiques telles que la microscopie à force atomique (AFM) ou la microscopie électronique à balayage (MEB), ces techniques sont limitées par leur faible profondeur de pénétration dans la plupart des matériaux et donc ne peuvent pas imager des structures "enfouies" (typiquement l'intérieur d'une cellule). L'imagerie par diffraction cohérente par rayons X est une alternative qui fournit des images d'excellente résolution grâce à leurs courtes longueurs d'ondes et leurs fortes profondeurs de pénétration. De plus, cette technique permet d'éviter l'utilisation d'optiques de focalisation adaptées au rayonnement X qui sont extrêmement difficiles à fabriquer, qui induisent des aberrations optiques et qui sont coûteuses. La grande profondeur de pénétration des rayons X permet d'imager des échantillons biologiques non-cristallisés tels que des cellules vivantes [16, 17], des organelles [18] et des virus [15]. Les rayons X fournissent aussi un contraste magnétique qui est critique dans le domaine de la physique des solides,

---

pour l'étude de la dynamique ultra rapide de réseaux magnétiques nanométriques par exemple [19].

Les installations de grandes dimensions comme les lasers à électron libres (FEL pour le sigle anglais) ou les synchrotrons fournissent des sources de rayonnements X cohérentes, à longueurs d'onde ajustable, de fort flux. Ces sources sont ultra-intenses et peuvent fournir des rayonnement X "durs" (jusqu'à la centaine de  $keV$  pour les synchrotrons) sous la forme d'impulsions ultra-brèves (de  $ps$  à  $fs$ ). Par exemple, au FEL SACLA, au Japon, des intensités de  $10^{20}W/cm^2$  sont obtenues à  $7.1keV$  avec des impulsions de  $7fs$ , permettant d'étudier des phénomènes de transparence induite par absorption saturable dans le fer [20]. Des telles sources ouvrent d'innombrables opportunités pour l'imagerie de phénomènes ultra-rapides aux échelles nanométrique et femtoseconde. Le fort flux, la haute énergie et la cohérence du rayonnement généré rendent ces sources particulièrement adaptées à l'imagerie sans lentille notamment pour l'étude de particules biologiques uniques. De plus, la durée des impulsions FEL est suffisamment courte ( $< 50fs$ ) pour récupérer l'information de transmission de l'échantillon biologique et la diffraction du front d'onde incident avant que l'échantillon ne soit détruit ou endommagé [14, 21, 22]. Ainsi, au cours de la dernière décennie, ces sources ont permis d'obtenir de nombreux résultats pionniers dans des domaines scientifiques variés par le biais de l'imagerie par diffraction cohérente [7, 14–16, 23–25].

Cependant, ces installations sont peu nombreuses et leur accès est limité, ce qui restreint le développement grand public de l'imagerie par diffraction cohérente, tout comme ses domaines d'applications. C'est pourquoi la génération d'harmoniques laser d'ordre élevé (HHG) est une alternative particulièrement intéressante. La HHG produit des impulsions X ultra-courtes, intenses, très cohérentes spatialement idéales pour l'imagerie par diffraction cohérente. Bien que l'énergie du rayonnement atteignable par la HHG soit limitée, jusqu'à  $1.85 \times 10^7 photons/s$  à  $300eV$  avec une largeur spectrale de 1% peuvent être générés [26]. Ce flux est théoriquement suffisant pour réaliser l'imagerie d'un échantillon biologique *in vivo* dans la fenêtre de l'eau avec un temps d'acquisition de plusieurs dizaines de minutes. L'imagerie par diffraction cohérente avec des sources harmoniques permet d'atteindre d'excellentes résolutions spatiales. Par exemple, en 2016, Tadesse *et al.* obtiennent une résolution spatiale transverse de  $15nm$  avec une longueur d'onde de  $18nm$ , un record pour la microscopie X ou XUV (*Extreme Ultra Violet* en anglais) "table top"[27]. De plus, la courte durée des impulsions générées par la HHG (quelques dizaines de femtosecondes) rend possible l'imagerie de phénomènes



---

dynamiques résolue en temps (voir référence [19] par exemple). Cependant, cela requiert de générer un flux de photons suffisant pour pouvoir reconstruire des images à partir de figure de diffraction simple tir. Ce n'est qu'en 2009, dans notre groupe au CEA Saclay, que la première reconstruction simple tir par imagerie par diffraction cohérente avec une source HHG est obtenue [28]. L'image d'un objet isolé nano-structuré isolé est reconstruite avec une résolution transverse de  $119\text{nm}$  à partir d'une figure de diffraction enregistrée pour une impulsion unique de  $20\text{fs}$ . Ainsi, la HHG est un candidat idéal et relativement accessible permettant de réaliser de l'imagerie par diffraction cohérente avec une résolution spatiale nanométrique et temporelle femtoseconde. Comme mentionné précédemment, l'accès aux installations FEL est très restreint. Il est possible d'utiliser des sources HHG pour obtenir des données préliminaires aux expériences FEL grâce aux similitudes entre ces sources. Ainsi, on peut tester et valider les techniques d'imagerie que l'on souhaite implémenter sur ces installations. Ces résultats peuvent ensuite servir à consolider la demande d'obtention de temps de faisceau FEL.

## Plan de la thèse

Le principal but du travail présenté dans cette thèse est de développer des nouvelles techniques d'imagerie sans lentille 2D et 3D afin de trouver des applications innovantes aux sources harmoniques. Je présente tous les travaux qui ont été réalisés pour quantifier l'influence sur la qualité de l'image reconstruite des paramètres principaux de l'imagerie sans lentille. De plus, je me suis particulièrement intéressé aux techniques d'imageries 3D pouvant servir à observer des objets biologiques et de phases. Ainsi, j'ai réalisé une expérience d'imagerie CDI d'objets de phase avec une source harmonique et j'ai testé la faisabilité d'une expérience de cryptotomographie dans un régime de faible flux avec une source harmonique. Ces travaux peuvent servir de base pour effectuer une reconstruction par cryptotomographie d'un échantillon biologique de phase avec une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau. Je présente le développement d'une technique d'imagerie 3D en simple tir qui semble particulièrement prometteuse pour observer des échantillons biologiques sensibles aux dégâts d'irradiation.

Les travaux sont séparés en 4 chapitres.

Le **Chapitre 2** est consacré à l'introduction de la théorie de l'imagerie dans lentille.

J'y détaille les méthodes utilisées au cours de cette thèse pour reconstruire l'image de l'objet étudié. Je commence par effectuer une description théorique de la diffraction et de la formation de l'image en imagerie sans lentille. Puis je décris les deux principales techniques permettant de reconstruire l'image de l'objet : les algorithmes itératifs et les méthodes holographiques. Je discute des conditions expérimentales nécessaires à la reconstruction de l'image de l'objet et présente les avantages et inconvénient des deux types de techniques.

Le **Chapitre 3** décrit brièvement la théorie de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, qui est le processus que j'utilise dans cette thèse pour obtenir une source cohérente et intense de rayonnements XUV. Ce chapitre traite des aspects pratiques de l'optimisation du faisceau harmonique et détaille l'arrangement expérimental de la ligne de lumière LUCA sur laquelle sont réalisées la plupart des expériences de cette thèse. Je précise les paramètres optimaux du faisceau harmonique pour l'imagerie sans lentille.

Le **Chapitre 4** discute des paramètres expérimentaux et des techniques de traitement des données qui influencent la qualité de l'image reconstruite en imagerie sans lentille. Ce chapitre rassemble les résultats d'imagerie bi-dimensionnelle réalisés au cours de cette thèse. Dans la première partie je présente différentes stratégies visant à améliorer la résolution et le rapport signal sur bruit des images reconstruites grâce à la technique HERALDO dans un régime de faible flux. Une publication a été publiée sur ces travaux [29].

La deuxième partie du chapitre présente des résultats d'une technique de caractérisation complète de la cohérence spatiale en simple tir à l'aide de tableaux de références ponctuelles non redondantes. Le degré de cohérence est un autre paramètre primordial de l'imagerie sans lentille : une faible cohérence spatiale peut dégrader la résolution de l'image reconstruite, voir même empêcher d'obtenir une reconstruction de l'objet. Ces résultats sont la continuation du travail de thèse de A. Gonzalez [5]. Je commence par un rappel théorique sur la cohérence spatiale puis je détaille le fonctionnement de la technique utilisée. A l'inverse des techniques habituelles de caractérisation de la cohérence spatiale (comme les fentes d'Young), cette méthode ne nécessite pas la connaissance de la distribution du profil transverse d'intensité. Entre autre, j'observe que la distribution spatiale de la cohérence dépend des paramètres de génération. La dernière partie du **Chapitre 4** présente les résultats d'une expérience d'imagerie d'objets de phase avec

---

une source harmonique, réalisée à l’Institut Helmholtz de Jena, en collaboration avec Jan Rothhardt. Je commence par expliquer la raison pour laquelle, dans le domaine XUV et des rayons X, l’imagerie de phase d’échantillons biologiques est avantageuse par rapport au contraste de transmission et permet d’obtenir de meilleures résolutions. Puis je présente le résultat de simulations de reconstructions d’objets par un algorithme de reconstruction de phase itératif HIO *difference map* [30]. Enfin, je discute des résultats expérimentaux. A notre connaissance c’est la première reconstruction par méthode CDI d’objets de phase avec une source harmonique.

Deux publications, une sur l’expérience de caractérisation complète de la cohérence et une autre sur l’imagerie d’objet de phase sont en cours de rédaction.

Le **Chapitre 5** présente les résultats de deux expériences visant à réaliser de la microscopie 3D à l’échelle nanométrique avec une source harmonique. La première partie présente les résultats d’une technique d’imagerie par diffraction cohérente 3D en une seule acquisition. Cette technique repose sur un montage expérimental simple permettant de séparer un faisceau harmonique XUV en deux sous-faisceaux cohérents focalisés au même point d’un échantillon avec deux angles différents. A partir de la reconstruction des deux projections 2D, on construit une matrice 3D contenant les informations de profondeur quantitatives de l’échantillon. C’est la première expérience permettant une reconstruction 3D à partir d’une seule acquisition, avec une résolution spatiale axiale et transverse nanométrique et une résolution temporelle femtoseconde, sans formuler d’hypothèses ou utiliser des connaissances *a priori* sur l’objet étudié. Cette technique possède un vaste spectre d’application, particulièrement pour l’étude structurale d’échantillons biologiques sensibles aux dégâts d’irradiation ou des phénomènes 3D non réversibles. De plus, en adaptant le séparateur de faisceau, cette technique peut être facilement applicable à des FELs et synchrotrons pour obtenir de meilleures résolutions axiales et transverses. Une publication sur ces travaux est soumise. Enfin la dernière expérience que je présente dans le **Chapitre 5** est une preuve de concept validant la faisabilité de la cryptomographie avec une source harmonique dans un régime de faible flux. Pour reconstruire le volume 3D de l’échantillon, la cryptotomographie utilise des figures de diffraction qui sont acquises pour des orientations de l’échantillon inconnues et donc non triées. Elle utilise un algorithme (EMC) qui classe les figures de diffractions selon l’orientation de l’échantillon à l’aide d’un modèle probabiliste. Cet algorithme permet d’obtenir

une reconstruction 3D de l'échantillon étudié. Cette technique est extrêmement intéressante pour l'imagerie de particules uniques sensibles aux rayonnements X. Ces résultats semblent impliquer qu'une expérience de cryptotomographie d'objet de phase biologique avec une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau serait réalisable. Une publication basée sur ces résultats est en cours de rédaction.

Enfin je tire la conclusion générale du travail de cette thèse et présente deux perspectives d'applications utilisant l'imagerie sans lentille particulièrement intéressantes.

## Chapitre 2

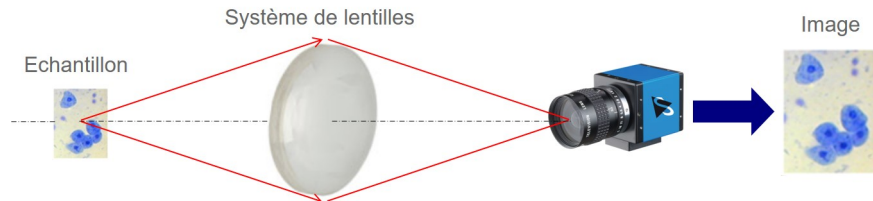
# Imagerie sans lentilles

Nous allons introduire dans ce chapitre les modèles théoriques qui seront réutilisés dans nos expériences de diffraction cohérente, ainsi que les formalismes qui permettent d'exploiter simplement ces modèles.

### 2.1 Principe

Dans l'imagerie conventionnelle, telle que la microscopie ou la photographie, une ou plusieurs lentilles concaves et/ou convexes sont utilisées pour former l'image de l'objet étudié éclairé par une source lumineuse (Fig. 2.1). Un système optique complexe peut être composée de nombreux autres éléments tels que miroirs, filtres, paraboles, etc... En règle générale la résolution de l'image obtenue est limitée par la qualité du système de lentilles. En effet, l'ensemble des aberrations induites par chaque composant optique influe directement sur la résolution spatiale maximale de l'image de l'objet. C'est pourquoi la qualité des composants optiques utilisés dans le système de lentilles est si importante. Dans le domaine de la microscopie par rayons X le composant optique donnant la meilleure résolution spatiale est la lentille de Fresnel. C'est la taille de la plus petite zone de Fresnel extérieure qui donne la résolution spatiale maximale atteignable ce qui impose une difficulté fondamentale dans la fabrication et conception de ces lentilles lorsque l'on souhaite atteindre une résolution nanométrique. De plus, les matériaux utilisés pour la fabrication de ces lentilles sont très absorbants dans le domaine des X avec une efficacité de diffraction de typiquement quelques pour cent [31]. L'absorption

peut devenir un paramètre critique, par exemple dans l'étude d'échantillons biologiques qui sont susceptibles de subir des dommages par rayonnement [32]. C'est pourquoi l'imagerie sans lentille fournit une solution alternative parfaite pour effectuer de l'imagerie à haute résolution dans des domaines variés allant de la bio-moléculaire à la physique des solides.



**Figure 2.1** Schéma d'un système d'imagerie conventionnelle où l'image est formée par un système de lentille.

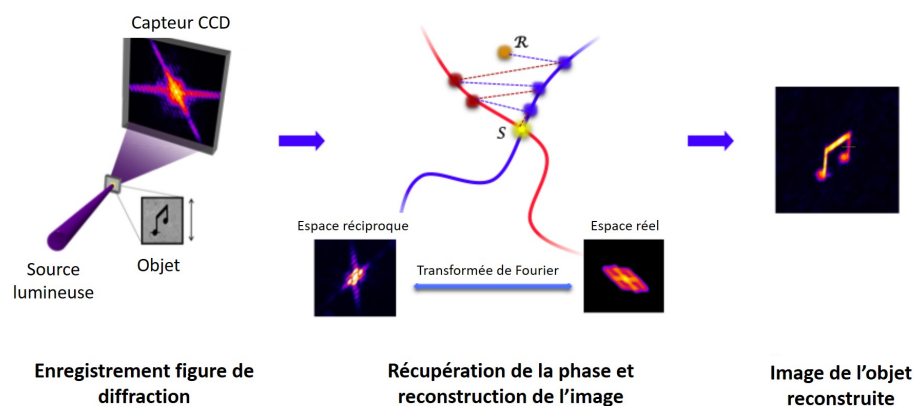
Dans le cas de l'imagerie sans lentille aucun système de lentilles n'est nécessaire pour obtenir l'image de l'objet, on utilise pour cela un algorithme itératif. Un objet bidimensionnel de transmission complexe  $t(x, y)$  isolé spatialement est illuminé par une source de lumière cohérente spatialement qu'on suppose ici monochromatique. Le front d'onde est alors diffracté au passage de l'objet et, en chaque point, va créer des ondelettes sphériques qui vont interférer entre elles. En champ lointain, on récupère la valeur absolue du module carré du champ électromagnétique sortant, qu'on appelle aussi figure de diffraction, sur une caméra CCD (pour Charged Coupled Device en anglais). Dans l'approximation de Fraunhofer (en champ lointain) le champ de l'onde diffractée  $E$  est proportionnel à la transformée de Fourier du front d'onde juste après l'objet :

$$E(X, Y) \propto |\text{FT}[t(x, y)]| \quad (2.1)$$

Théoriquement une simple transformée Fourier inverse de la figure de diffraction devrait permettre de reconstruire une image de l'objet. Cependant, le détecteur CCD ne détecte que l'intensité du champ électromagnétique (le module du champ au carré), ce qui entraîne la perte de la phase du champ diffracté lors de l'acquisition de la figure de diffraction. Ainsi si on appliquait la transformée de Fourier inverse à la figure de diffraction enregistrée nous n'obtiendrions pas directement l'image de l'objet mais uniquement son auto-corrélation. C'est le "problème de la phase". Deux méthodes sont prédominantes pour contourner ce problème : l'une utilise des algorithmes itératifs pour reconstruire la

phase, c'est l'imagerie par diffraction cohérente (ou CDI pour en anglais) [3],[33]; l'autre est l'holographie [34].

Dans le cas de la technique CDI, les algorithmes itératifs convergent pour récupérer la phase spatiale dans le plan du capteur CCD (ou plan de diffraction) en utilisant des contraintes dans l'espace image et l'espace réciproque (plan de diffraction). Le schéma de principe de la méthode CDI est illustré dans la figure 2.2. Dans l'espace réciproque la figure de diffraction enregistrée par le détecteur est proportionnelle au module du carré du front d'onde juste après l'objet. Dans l'espace image, l'objet est contenu dans un support de dimension fini. Sa taille initiale est en général définie par l'auto-corrélation de l'objet (deux fois celle de l'objet). Dans l'espace détection on remplace le module du champ simulé par la figure de diffraction enregistrée par le détecteur. On passe de l'espace réciproque à l'espace réel par une transformée de Fourier -et on fait le chemin opposé par une transformée de Fourier inverse. La solution obtenue est unique pour des problèmes qui ont plus d'une dimension, sauf cas particuliers [35].



**Figure 2.2** Schéma de principe de la technique CDI : on récupère d'abord l'intensité de la figure de diffraction grâce à un capteur CCD, la phase est ici perdue, puis on reconstruit la phase à l'aide d'un algorithme itératif. Ainsi on peut reconstruire l'image de l'objet [1]

L'holographie par transformée de Fourier (ou FTH en anglais) est une autre méthode de l'imagerie sans lentille. Elle utilise le même dispositif expérimental, mais on ajoute une référence holographique (en général une référence ponctuelle) dans le plan de l'échantillon étudié. La FTH permet d'encoder la phase dans les modulations de la figure de diffraction dues aux interférences entre les fronts d'ondes diffractés par la référence et par l'objet. On appelle celle-ci "hologramme" et elle est enregistrée par le détecteur placé en champ lointain. Comme cette figure de diffraction possède à la fois l'information de

l'intensité et de la phase spatiale on peut reconstruire l'objet par une simple transformée de Fourier [31]. Par celle-ci on obtient l'auto-corrélation de l'objet et de la référence ponctuelle. L'objet reconstruit est alors la convolution entre référence et objet. A noter qu'il est possible d'effectuer des reconstructions en ayant l'objet et la référence dans un plan différent pour faciliter l'imagerie de certains type d'échantillons [36]. Enfin, la forme de la référence holographique n'est pas limitée à un trou : on peut utiliser des références étendues pour maximiser le flux passant au travers de ces dernières (technique HERALDO [37] ,[38]) ou même quasiment n'importe quelle référence tant que l'on connait parfaitement le formalisme de l'onde diffractée par la référence [39].

## 2.2 Formation de l'image dans l'imagerie sans lentille

La formation de l'image est la base de l'imagerie sans lentille et toutes les méthodes de reconstruction (holographiques ou CDI) se basent sur les mêmes principes. La géométrie des expériences réalisées pendant ma thèse restant la même que l'on utilise la FTH ou le CDI le processus de formation de l'image est donc identique, de la propagation du faisceau incident jusqu'à la détection de la figure de diffraction en champ lointain. Dans cette partie il s'agira de décrire de manière non-exhaustive les équations et autres propriétés pertinentes de l'imagerie sans lentille pour en détailler la base théorique et exploiter les modèles qui en dérivent. Une partie de cette section est tirée des polycopiés des cours d'optiques de Fourier d'Arnaud Dubois à l'IOGS.

### 2.2.1 Principe de la diffraction

Considérons un objet isolé illuminé par une onde plane dans une géométrie d'imagerie sans lentille (cf Fig. 2.3). Dans le cadre d'une expérience de diffraction cohérente nous considérons la source d'illumination comme une onde monochromatique, représentée par le vecteur d'onde  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ , et décrite par la fonction scalaire  $\psi(x, y, z)$ . L'onde transmise par l'objet a un comportement décrit par l'équation d'Helmholtz :

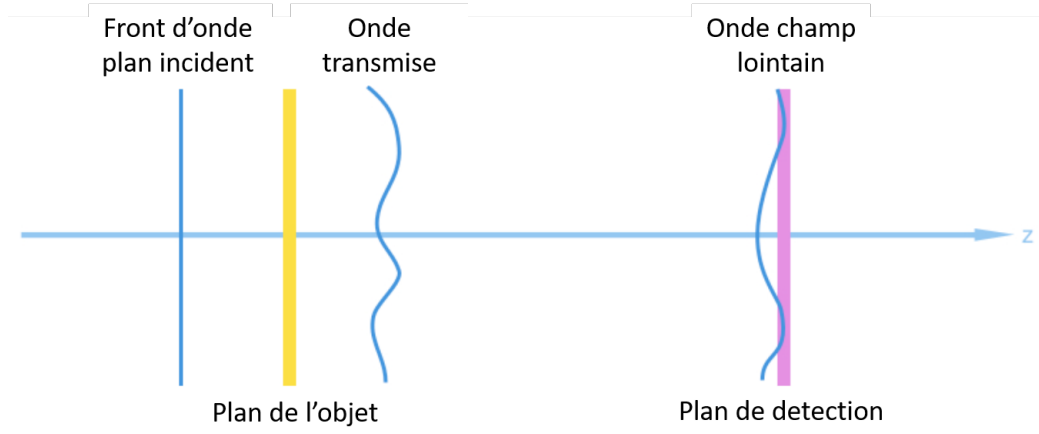
$$\nabla^2 \psi(x, y, z) + k^2 n^2 \psi(x, y, z) = 0 \quad (2.2)$$



Où  $n = c^2\epsilon\mu$  avec  $\epsilon$  et  $\mu$  sont respectivement la permittivité diélectrique et la perméabilité magnétique du milieu.

En passant dans l'espace de Fourier, cette équation prend la forme :

$$(q^2 - k^2)\tilde{\psi}(\vec{q}) = 0 \quad (2.3)$$



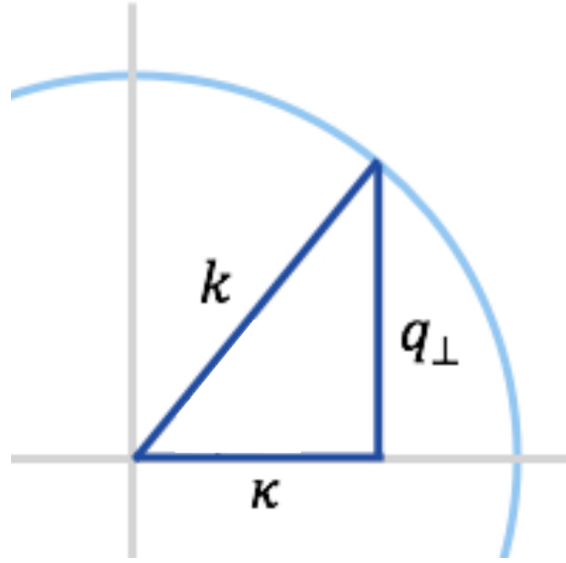
**Figure 2.3** Schéma de propagation du front d'onde dans l'imagerie sans lentille [2] .

Où  $\tilde{\psi} = \mathcal{F}(\psi)$ , et  $\mathcal{F}$  l'opérateur de transformée de Fourier. De manière évidente  $\tilde{\psi}(\vec{q}) = 0$  à moins que  $\|\vec{q}\| = |k|$ . En trois dimensions, l'ensemble des solutions dans l'espace de Fourier est donc une sphère de centre  $O = (0, 0, 0)$  et de rayon  $|k_0|$ . C'est la "sphère d'Ewald" [40]. Dans notre expérience d'imagerie sans lentille le plan du détection est perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde transmise. Il est donc possible de séparer l'onde se propageant dans l'espace libre en une composante transverse ( $r_{\perp} = (x, y)$ ) et une autre parallèle ( $z$ ). La solution générale de l'équation 2.3 est :

$$\tilde{\psi}(r_{\perp}, z) = \tilde{\psi}^{+}(r_{\perp})e^{i\kappa z} + \tilde{\psi}^{-}(r_{\perp})e^{-i\kappa z} \quad (2.4)$$

Où  $\kappa = \sqrt{k_0^2 - k_{\perp}^2}$  (cf Fig. 2.4) et  $\tilde{\psi}^{+}(r_{\perp}, 0)$  et  $\tilde{\psi}^{-}(r_{\perp}, 0)$  représentent deux fonctions indépendantes solutions de l'équation 2.4 se propageant vers les  $z$  positifs et les  $z$  négatifs respectivement. Dans notre cas, seul le terme se propageant vers l'avant nous intéresse ce qui nous donne comme solution dans l'espace réel :

$$\psi(r_{\perp}, z) = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{\psi}^{+}(r_{\perp})e^{i\kappa z}] \quad (2.5)$$



**Figure 2.4** Représentation du lien entre le vecteur d'onde et l'angle de diffraction sur la sphère d'Ewald.

Il est intéressant de noter que l'onde ne peut se propager que si  $\kappa = \sqrt{k_0^2 - k_{\perp}^2}$  est réel, soit  $k_0^2 - k_{\perp}^2 > 0$ . Cela signifie que seuls les ondes ayant une longueur d'onde supérieure à  $\lambda_0$  peuvent se propager : c'est la "limite de diffraction", qui explique pourquoi la résolution théorique de l'imagerie sans lentille est fondamentalement limitée par la longueur d'onde de la source lumineuse.

Considérons l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld, liant l'amplitude complexe  $U_{\text{obj}}(\xi, \eta, z_0)$  dans le plan  $z_0 = 0$  et l'amplitude diffractée dans le plan  $z$ ,  $U_{\text{diff}}(x, y, z)$  [31] :

$$\psi_{\text{diff}}(x, y, z) = \exp(-jkz) \iint \psi_{\text{obj}}(\xi, \eta, z_0) \times \frac{\exp(jkr)}{j\lambda z} d\xi d\eta \quad (2.6)$$

En partant de l'équation 2.6, en effectuant un développement limité en  $r$ , avec :  $r = \sqrt{(x - \xi)^2 + (y - \eta)^2 + z^2}$  et en supposant que  $r \ll z$ , où  $r$  est la dimension caractéristique de l'objet, et  $z$  la distance de propagation, on obtient l'intégrale de Fresnel :

$$\psi_{\text{diff}}(x, y, z) = \iint \psi_{\text{obj}}(\xi, \eta) \times \frac{\exp(jkz)}{j\lambda z} \times \exp\left(j\frac{\pi}{\lambda z} [(x - \xi)^2 + (y - \eta)^2]\right) d\xi d\eta \quad (2.7)$$

Si on suppose maintenant que l'on est en champ lointain, c'est à dire quand l'approximation de Fraunhofer est valide. dans cette approximation le nombre de Fresnel,  $F = \frac{r^2}{\lambda z}$  est très largement inférieur a un. Dans la zone de Fraunhofer, on a donc :

$$\frac{r^2}{\lambda} \ll z \quad (2.8)$$

Nous pouvons développer le terme en  $(x - \xi)^2 + (y - \eta)^2$  et l'équation :

$$\psi_{\text{diff}}(x, y, z) = \iint \psi_{\text{obj}}(\xi, \eta) \times \frac{\exp(jkz)}{j\lambda z} \times \exp\left(jk \frac{[\xi^2 + \eta^2]}{2z}\right) \times \exp\left(-j \frac{k}{z} [(x \cdot \xi) + (y \cdot \eta)]\right) d\xi d\eta \quad (2.9)$$

Dans l'approximation de champ lointain on peut négliger le terme en  $\exp\left(jk \frac{[\xi^2 + \eta^2]}{2z}\right)$  car, comme expliqué en 2.8,  $\lambda z \gg \xi^2 + \eta^2$ , ainsi on obtient :

$$\psi_{\text{diff}}(x, y, z) = \propto \mathcal{F}[\psi_{\text{obj}}]\left(\frac{x}{\lambda z}, \frac{y}{\lambda z}\right) \quad (2.10)$$

En résumé dans l'approximation de Fraunhofer, l'amplitude complexe  $\psi_{\text{diff}}(x, y, z)$  de l'onde monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$  est proportionnelle à la transformée de Fourier du champ initial juste après transmission par l'objet.

### 2.2.2 Transmission

On a montré dans l'équation 2.10 que l'intensité de la figure de diffraction mesurée est proportionnelle à la transformée de Fourier de l'onde transmise par l'objet dans le plan transverse. Il s'agit maintenant de trouver une relation entre l'image de l'objet et l'onde transmise reconstruite grâce à un algorithme ou par FTH. Dans notre cas on considère que l'onde transmise juste après l'objet est le produit de sa transmittance et de l'amplitude de l'onde incidente :

$$\psi_{\text{transmise}} = \psi_{\text{incident}} \times t_{\text{obj}} \quad (2.11)$$

On suppose ici que l'objet est plan et bi-dimensionnel avec une épaisseur négligeable. Ainsi on considère que la diffraction au sein de l'objet est inexistante. La transmission complexe  $t_{obj}$  représente donc la manière selon laquelle l'objet modifie la phase et l'amplitude de l'onde incidente, c'est la projection de l'objet sur le plan perpendiculaire à la propagation de l'onde incidente. Celle-ci étant plane, l'onde diffractée (ou figure de diffraction) détectée en champ lointain est égale à la transformée de Fourier de la transmission complexe de l'objet. C'est ce qu'on obtient dans l'image reconstruite par le biais des algorithmes itératifs. Pour que cette approximation de projection soit valide il faut que l'objet étudié soit "optiquement fin". Si  $r$  est la résolution souhaitée alors l'objet est fin optiquement si son épaisseur  $e$  est inférieure à la profondeur de champ [41] :

$$e < 2r^2/\lambda \quad (2.12)$$

Quand cette condition est respectée, l'onde transmise est associée à un seul objet plan qui est celui visualisé après reconstruction par l'algorithme itératif. Sinon, il existe plusieurs plans objet et il n'y a pas unicité de la solution de la phase reconstruite associée à la figure de diffraction mesurée. Ce problème est susceptible d'empêcher la convergence de l'algorithme. Pour le contourner il est possible d'utiliser des contraintes supplémentaires sur le support dans l'espace réel pour forcer la reconstruction d'un plan objet unique, ou il faut utiliser d'autres méthodes plus appropriées à l'imagerie d'échantillons "optiquement épais" tel que la ptychographie [42] [43]. On peut aussi effectuer la mise au point sur différents plans de la reconstruction par propagation, en utilisant des propagateurs de Fresnel par exemple.

En résumé dans nos expériences d'imageries sans lentille l'objet est optiquement fin et la figure de diffraction est détectée en champ lointain (dans le régime de Fraunhofer).

### 2.2.3 Détection et échantillonnage

Nous détaillerons ici les méthodes d'échantillonnage de nos figures de diffractions et comment effectuer le passage entre grandeurs physiques (par exemple : le flux de photons) et numériques (par exemple : valeurs ADU affichées). Dans notre expérience la figure de diffraction est récupérée par une caméra CCD qui accumule les photons incidents pendant toute la durée d'acquisition. Il n'y a donc aucun moyen d'obtenir l'information

temporelle, comme le moment exact d'arrivée des photons provenant de l'onde diffractée, ce qui rend impossible la détermination de la phase du front d'onde. Ce qui est enregistré par la caméra CCD est uniquement le flux de photon (en *photons/cm<sup>2</sup>*).

$$F = |\tilde{\psi}_{\text{obj}}(\frac{x}{\lambda z}, \frac{y}{\lambda z})|^2 \quad (2.13)$$

Le signal de diffraction mesuré  $F$  est alors échantillonné numériquement avec un certain pas. On utilise la transformée de Fourier rapide (ou *FFT* pour Fast Fourier Transform en anglais) sur des données numérisées. La FFT 1-D d'un vecteur  $f = (f_1, f_2, \dots, f_n,)$  (complexe ou réel) de longueur  $N$  est :

$$\tilde{f}_n = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{m=1}^N f_m \exp(\frac{2j\pi mn}{N}) \quad (2.14)$$

Si une fonction continue  $f$  est échantillonnée avec un pas  $\Delta x$ , alors sa transformée de Fourier  $\tilde{f}_n$  sera échantillonnée avec un pas  $\Delta_q$ . La relation entre les deux pas est donnée simplement par :

$$\Delta_q = \frac{2\pi}{N\Delta_x} \quad (2.15)$$

Dans nos expériences, quand on applique la transformée de Fourier à la figure de diffraction on obtient l'autocorrélation de l'objet. On a alors :

$$\Delta_k = \frac{2P\pi}{N\Delta_r} \quad (2.16)$$

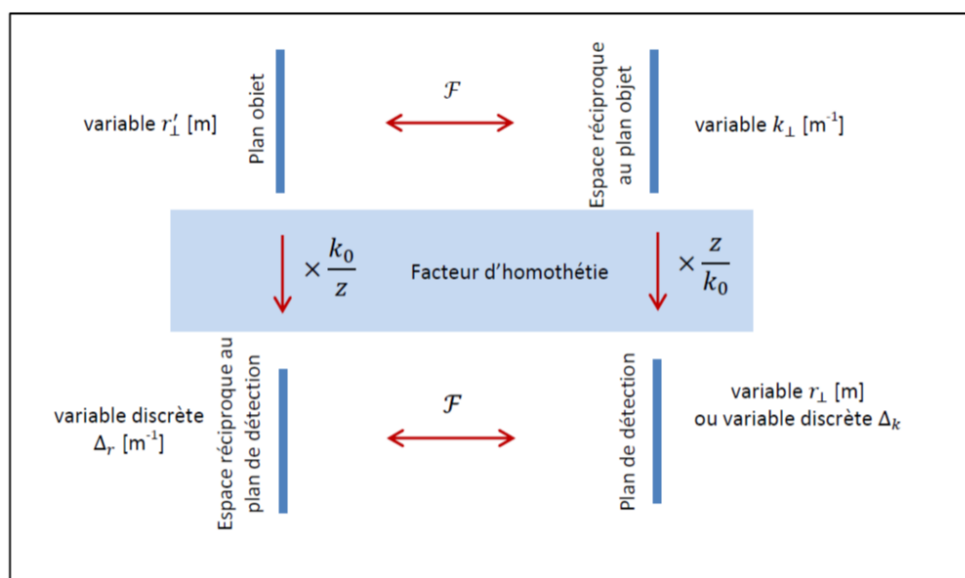
Où  $\Delta_k$  est la taille des pixels du capteur CCD qui est une matrice de  $N \times N$  pixels et  $\Delta_r$  est la taille de pixel dans l'espace réel (l'autocorrélation de l'objet). On définit la fréquence de Nyquist comme la plus grande fréquence contenue dans le signal. Dans le cas où le signal occupe la totalité de notre détecteur :

$$f_{\text{nyquist}} = \frac{N\Delta_q}{2} = \frac{\pi}{\Delta_x} \quad (2.17)$$

Supposons que la transmission  $t$  de l'objet de taille  $a \times a$  occupe une région de taille  $n \times n$  sur le détecteur (de taille  $N \times N$ ) en champ lointain . La relation entre les paramètres physiques de l'objet et sa représentation matérielle est donnée par :

$$a \frac{k}{z} = n \Delta_r \quad (2.18)$$

Où  $\frac{k}{z}$  est le facteur d'homothétie permettant de passer du plan objet à l'espace réciproque au plan de détection (espace image reconstruite), avec  $z$  la distance entre l'objet et le capteur CCD et  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  le vecteur d'onde de l'onde transmise. Les relations entre les différents espaces associés à l'expérience d'imagerie sans lentilles sont détaillées en figure 2.5



**Figure 2.5** Représentation des différents espaces dans une expérience d'imagerie sans lentille [2]

### 2.2.3.1 Sur-échantillonnage linéaire

Durant l'étape de reconstruction de la phase la fréquence d'échantillonnage est un facteur critique. S'il est trop grand, les fréquences plus grandes que la fréquence de Nyquist vont être repliées et apparaîtront comme des basses fréquences. C'est le phénomène de repliement de spectre (ou *aliasing* en anglais). Pour éviter ce phénomène et ainsi prévenir toute perte d'information dans l'échantillonnage d'un signal (ici, notre figure de diffraction), la fréquence d'échantillonnage doit être au moins égale à deux fois

la fréquence maximale de ce signal [44] [45]. On dit qu'il doit être sur-échantillonné. D. Sayre est le premier à appliquer cette notion en 1952 pour contourner le problème de la phase en cristallographie [46]. Le sur-échantillonnage est possible en contenant le signal (ici notre figure de diffraction) dans un support composé de valeurs nulles. On a le champ de l'image totale qui est la matrice CCD entière de  $N \times N$  pixels. Celle-ci contient la représentation matricielle de l'objet qui est de taille  $n \times n$ . La valeur du sur-échantillonnage linéaire,  $O$  est définie comme le rapport entre la taille de l'image et celle de l'objet :

$$O = \frac{N}{n} \quad (2.19)$$

Grâce aux équations 2.18 et 2.16 on peut exprimer  $\Delta_k$  en fonction du sur-échantillonnage linéaire  $O$  :

$$O = \frac{\lambda z}{a \Delta_k} \quad (2.20)$$

Reprenons maintenant le critère de Shannon et appliquons le à l'échantillonnage de notre figure de diffraction. On a vu dans l'équation 2.17 comment exprimer la plus grande fréquence détectable ( $f_{nyquist}$ ) par notre détecteur. Ici nous nous intéressons à la plus grande fréquence présente dans notre signal de diffraction. On a :

$$\Delta_k \leq \frac{2\pi}{2f_{nyquist}} \quad (2.21)$$

Dans l'espace réciproque de la figure de diffraction (espace image) la fréquence maximale détectable est donnée par la taille de l'autocorrélation de l'objet, qui est deux fois la taille de l'objet (de taille  $n \times n$ ). Donc :

$$f_{nyquist} = \frac{2n\Delta_r}{2} = n\Delta_r \quad (2.22)$$

En combinant les équations 2.21, 2.22 et 2.18 on obtient :

$$\Delta_k \leq \frac{\lambda z}{2a} \quad (2.23)$$

On déduit de l'équation précédente et de l'équation 2.20 que pour respecter le théorème de Shannon on doit avoir :

$$O = \frac{\lambda z}{a\Delta_k} \geq 2 \quad (2.24)$$

Si cette condition est respectée, aucune information ne sera perdue lors de l'enregistrement de la figure de diffraction. Il faut noter que cette condition est nécessaire mais pas suffisante, particulièrement dans le cas unidimensionnel où, même en respectant ce critère, l'unicité de la solution n'est pas garantie [47]. Dans des problèmes à plus d'une dimension, le critère 2.24 est suffisant dans la majorité des cas [48] [35]. On peut interpréter le critère de sur-échantillonnage d'une autre manière : l'objet étant à valeurs complexes et sa représentation matricielle étant de taille  $n \times n$  il y a donc  $2n$  équations à résoudre dans chaque dimension. L'image totale est de taille  $N \times N$  ce qui fournit  $N$  équations dans chaque dimension. Pour résoudre ce problème il faut avoir au moins autant d'équations que d'inconnues donc :  $N \geq 2n$  soit  $O \geq 2$ . Dans notre cas, quand on travaille avec l'harmonique 25 généré dans le néon, soit une longueur d'onde  $\lambda = 24.24nm$ , notre détecteur est typiquement placé à une distance  $z = 26mm$  de l'échantillon qui fait une taille  $a = 6\mu m$  au maximum (voir 5) et le pas de pixel de notre capteur vaut :  $\Delta_k = 13.5\mu m$ . Le facteur de sur-échantillonnage linéaire vaut ici  $O = 7.8$ , souvent plus quand on utilise un objet plus petit.

La résolution théorique maximale que l'on peut obtenir en imagerie sans lentille est :

$$r = \frac{1}{2f_{max}} = \frac{\lambda z}{N\Delta_k} \quad (2.25)$$

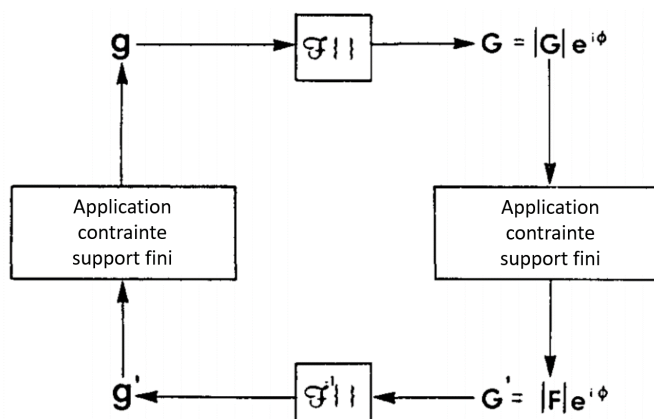
L'équation 2.25 implique que pour obtenir la meilleure résolution possible il faut avoir la distance objet-détecteur la plus petite possible tout en s'assurant que la condition de sur-échantillonnage linéaire détaillée en 2.24 soit valide. Il est inutile d'avoir un paramètre de sur-échantillonnage trop important car cela diminue le nombre de photons par pixels, et donc le rapport signal sur bruit (RSB) de l'enregistrement. Nous discutons de l'effet du RSB sur les reconstruction dans la section 4.4.



## 2.3 Reconstruction

### 2.3.1 Reconstruction par algorithmes itératifs

Les algorithmes de reconstruction de phase utilisés en imagerie sont inspirés de celui de Gerchberg-Saxton, originellement utilisé en cristallographie en 1972 [50]. La première version de l'algorithme permettait la reconstruction de l'objet grâce à deux mesures d'intensités ; une dans l'espace de Fourier et une en champs proche. En 1978 Fienup améliora cet algorithme en utilisant seulement une contrainte d'intensité dans l'espace de Fourier pour reconstruire l'objet [3]. Cette version de l'algorithme de récupération de phase est la plus utilisée de nos jours, bien qu'on la retrouve sous diverses variations : on l'appelle algorithme HIO (pour *Hybrid Input-Output* en anglais). Cet algorithme permet une reconstruction simultanée de la phase de la figure de diffraction et de l'amplitude dans le plan image (plan réciproque au plan de détection). La plupart de ceux utilisés actuellement utilisent une version améliorée et imposent des contraintes dans l'espace réciproque plus "fines". Par exemple l'algorithme "SHRINKWRAP"[51] où la contrainte de support fini est affinée périodiquement à partir de l'estimation de l'image pour l'itération actuelle. Les étapes de l'algorithme HIO sont détaillées dans la figure 2.6.



**Figure 2.6** Schéma de principe de l'algorithme itératif HIO de récupération de phase [3].

L'étape qui précède la première itération consiste à injecter une phase aléatoire et à effectuer une première reconstruction, notée  $g$ . Les étapes suivantes sont :

1. Appliquer une transformée de Fourier à l'objet  $g$ , donnant  $G = |G| \times e^{i\phi}$ ,

2. Appliquer la contrainte dans l'espace image : on remplace l'amplitude  $|G|$  par  $\sqrt{I}$ , où  $I$  est la figure de diffraction expérimentale enregistrée sur la CCD. Donc :  $G' = \sqrt{I}e^{i\phi}$
3. Appliquer une transformée de Fourier inverse de  $G'$ , donnant  $g'$ ,
4. Appliquer la contrainte de support fini ( en général grâce à l'autocorrélation de l'objet) pour obtenir une nouvelle itération de la reconstruction,  $g$ .

L'algorithme que nous utilisons dans nos expériences d'imagerie sans lentille sur LUCA est légèrement différent de l'algorithme HIO de Fienup. Il utilise une technique de *difference map* développée par Elser en 2003 [30] qui est basée sur la projections des solutions dans un ensemble d'espaces de contraintes. L'ensemble des contraintes est noté  $C_1, C_2, \dots, C_n$ , celles-ci étant définies dans un espace d'Hilbert de dimension finie  $\mathcal{E}$ . On rappelle qu'un espace d'Hilbert est un espace vectoriel (réel ou complexe) normé et complet (soit muni d'un produit scalaire). Chaque espace possède deux contraintes ou plus qui possèdent une signification physique : par exemple l'intensité de la figure de diffraction mesurée, le support fini de l'objet dans l'espace image, la positivité de la phase reconstruite, *etc.* Le but du *difference map* est de trouver une solution  $x$  avec  $x \in \mathcal{E}$  tel que :

$$x \in C_1 \cap C_2 \cap \dots \cap C_n \quad (2.26)$$

Pour tout  $i \in [1, N]$ , on définit l'opérateur de projection  $P_{C_i} : \mathcal{E} \rightarrow C_i$  par [52, 53] :

$$\forall x \in \mathcal{E}, P_{C_i} : x \rightarrow P_{C_i}(x) = y \text{ tel que } \forall x \in \mathcal{E}, \forall i \in [1, N] \|x - y\| = \inf\{\|x - y\|\}_{y \in C_i} \quad (2.27)$$

Comme toute opération de projection est une opération linéaire idempotente on a :

$$\forall i \in [1, N], P_{C_i}(x_{\text{sol}}) = x_{\text{sol}} \quad (2.28)$$

Dans notre expérience on a une contrainte sur l'intensité de la figure de diffraction mesurée et une autre sur le support fini de l'objet. On a donc  $N = 2$  et on définit leurs projecteurs respectifs  $P_1$  et  $P_2$ .

La boucle d'itération  $n$  est illustrée en figure 2.7 et est décrite par cette relation :

$$x_{n+1} = x_n + \beta \times d(x_n) \quad (2.29)$$

Avec

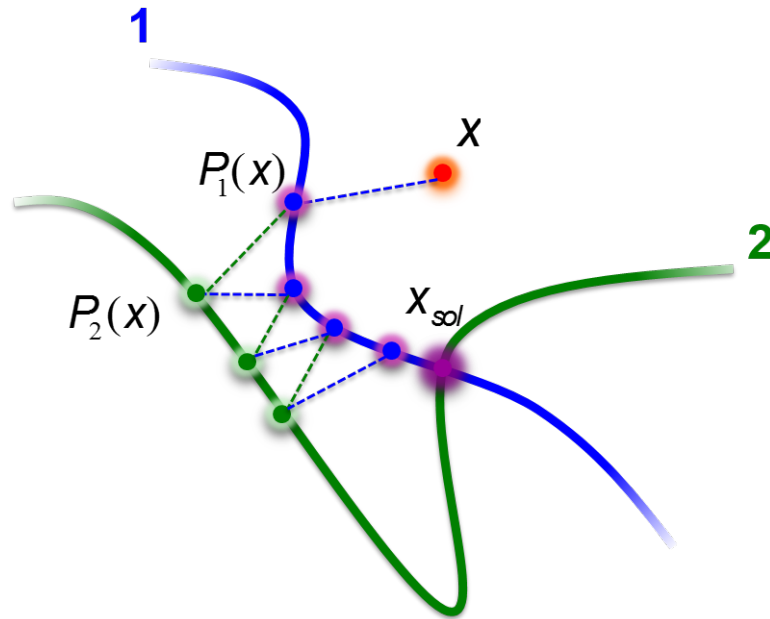
$$d(x) = y_2 - y_1 \quad (2.30)$$

et

$$y_1 = P_2[(1 + \gamma_1)P_1(x) - \gamma_1 x] \quad y_2 = P_1[(1 + \gamma_2)P_2(x) - \gamma_2 x] \quad (2.31)$$

Où  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  et  $\beta$  sont des paramètres complexes.

Il est intéressant de noter que l'algorithme HIO est un cas particulier du *difference map* où  $\gamma_1 = -1$  et  $\gamma_2 = \beta^{-1}$ .



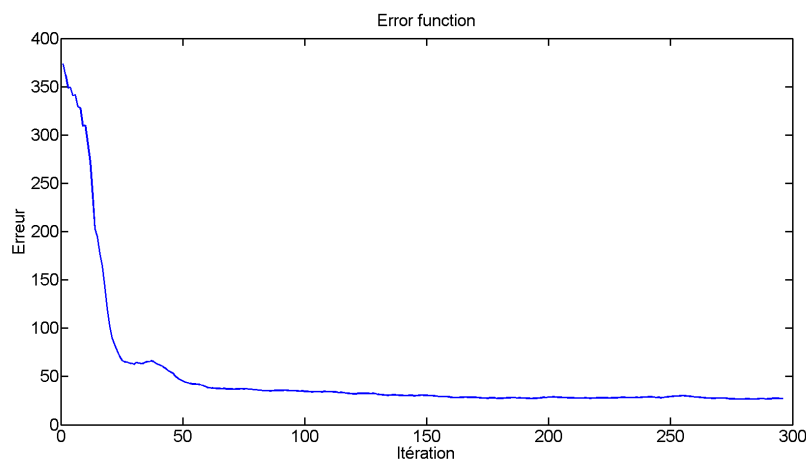
**Figure 2.7** Schéma de principe des projections successives appliquées à  $x$  dans le cas où  $N = 2$  contraintes.

Après chaque itération un critère d'erreur est calculé. Ce critère est basé sur la satisfaction des contraintes par l'image reconstruite pour une itération donnée. Une solution est obtenue quand le critère d'erreur est minimum. Il est défini ainsi :

$$\epsilon_n = \sqrt{\sum_{i=1}^N |d_i(x_n)|^2} \quad (2.32)$$

Où  $N$  est la dimension de la solution  $x$  ; on la suppose ici carrée. Généralement cette fonction d'erreur a une valeur qui chute rapidement lors des dix premières itérations pour ensuite se stabiliser autour d'un minimum. La figure 2.8 présente un exemple de l'évolution du critère d'erreur pour un échantillon de phase isolé. On voit que la convergence est assurée après environ 75 itérations mais que le critère d'erreur continue de diminuer sensiblement après ce point. Typiquement, nous réalisons quelques centaines d'itérations à partir de la même condition initiale et récupérons une dizaine de reconstructions qui minimisent la fonction d'erreur  $\epsilon$ . Cependant, pour certains échantillons, comme ceux de la section 4.6, la convergence est beaucoup plus difficile et s'observe parfois après plus de 1000 itérations. Cela peut être le cas avec des objets ayant une faible efficacité de diffraction ou trop centro-symétriques.

Les reconstructions sont ensuite sommées de façon cohérente pour augmenter le rapport signal sur bruit et afin d'améliorer la résolution. On calcule la résolution avec la PRTF [17, 41, 54] (pour *Phase Retrieval Transfer Function* en anglais) ou avec le critère 10 – 90%.

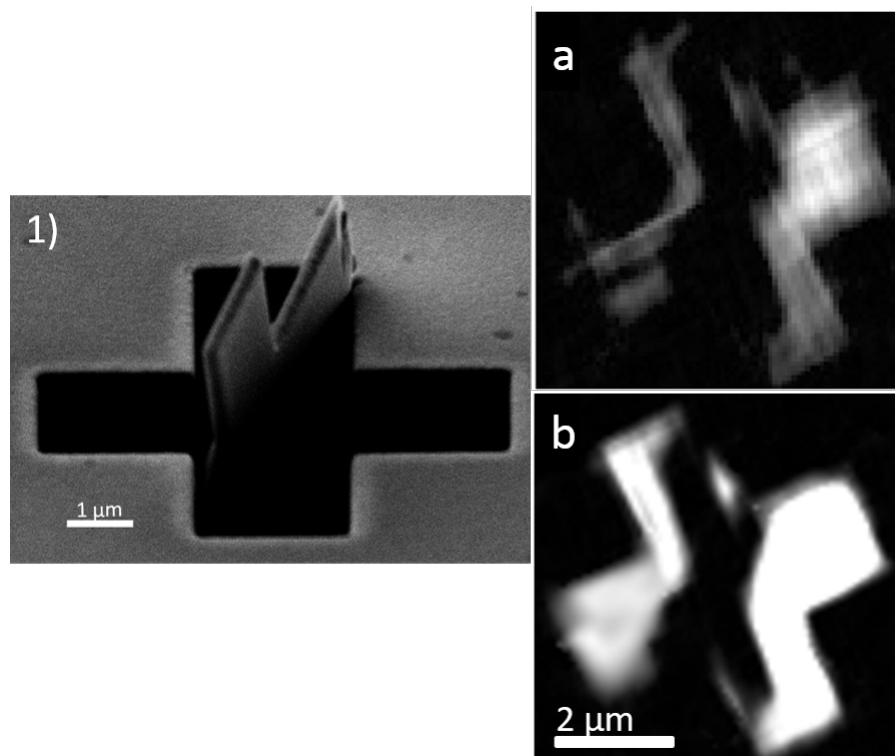


**Figure 2.8** Évolution du critère d'erreur lors d'une reconstruction de la simulation de l'objet "Pion" isolé de la partie 4.6 du chapitre 4

De nombreux algorithmes ont été développés dans les années 2000 et chacun fonctionne de façon optimale dans un environnement bien spécifique, avec des contraintes différentes. C'est pourquoi il est difficile de dire qu'un algorithme est supérieur en tout point à un autre.

La phase que l'on injecte dans la première itération de l'algorithme étant aléatoire, on obtient une reconstruction finale sensiblement différente d'un *run* à l'autre. Typiquement, la position de l'objet reconstruit dans la fenêtre de reconstruction varie. Pour

pour pallier ce problème, obtenir une image de l'objet la plus fidèle possible et d'augmenter le rapport signal sur bruit, on somme de façon cohérente les meilleurs reconstructions de plusieurs lancements de l'algorithme. On peut observer dans la figure 2.9 une claire amélioration de la qualité de la reconstruction après la somme cohérente de reconstructions conjointement avec une augmentation du rapport signal sur bruit.



**Figure 2.9** a) est une reconstruction expérimentale issue minimisant la fonction d'erreur d'un lancement unique de l'algorithme de l'objet 1) et b) est le résultat d'une superposition de 40 *runs* indépendants de l'algorithme avec une phase initiale différente à chaque lancement

### 2.3.2 FTH et Heraldo

Le problème de la phase est directement et sans ambiguïté résolu avec la technique FTH, ce qui est un clair avantage par rapport à l'utilisation d'algorithmes itératifs de récupération de phase. Le principal inconvénient de cette technique est qu'elle nécessite la mise en place d'une référence (en général ponctuelle) dans le plan de l'objet (transverse à la propagation du faisceau) et éloigné d'une certaine distance de celui-ci. Cela impose donc des contraintes plus strictes sur les conditions expérimentales et la préparation de l'échantillon, rendant certaines applications impossibles. La transmission de l'échantillon

(objet et référence) est donc :

$$t = o + r \quad (2.33)$$

Où  $o$  et  $r$  sont respectivement la transmission de l'objet et de la référence. Comme nous l'avons vu dans la section 2.2.1, en en champ lointain et si la condition de projection est valide, la figure de diffraction enregistrée par la caméra CCD est le module carré de la transformée de Fourier de la transmission de l'échantillon :

$$I = |\mathcal{F}\{t\}|^2 \quad (2.34)$$

Quand on applique la transformée de Fourier inverse à la figure de diffraction mesurée on obtient :

$$\mathcal{F}^{-1}\{I\} = \mathcal{F}^{-1}\{|\mathcal{F}\{t\}|^2\} = t \otimes t \quad (2.35)$$

La transformée de Fourier inverse du signal mesuré nous donne donc l'autocorrélation de l'objet. Dans le cas d'un objet isolé, sans référence présente, on obtiendrait un support de deux fois la taille de l'objet (section 2.2.3.1). Dans le cas présent si on développe cette équation, on a :

$$\mathcal{F}^{-1}\{I\} = o \otimes o + o \otimes r + r \otimes o^* + r \otimes r \quad (2.36)$$

Les deux premiers termes  $o \otimes o + r \otimes r$  sont les termes centraux de l'autocorrélation. Ils représentent respectivement l'autocorrélation de la transmission l'objet et celle de la transmission de la référence. Ils sont centrés et se chevauchent à l'origine de l'image reconstruite. En général, le terme  $r \otimes r$  est masqué par  $o \otimes o$  car la taille de l'objet est bien plus grande que celle de la référence. Les deux autres termes,  $r \otimes o^* + o \otimes r$ , correspondent aux reconstructions holographiques situées de manière symétrique par rapport à l'origine. Ces deux reconstructions ne sont pas indépendantes l'une de l'autre, se sont simplement des images complexes conjuguées. Ainsi on voit que la reconstruction par FTH de l'objet n'est pas directement l'objet mais bien la corrélation entre l'objet et la référence. On comprend alors que la résolution spatiale de l'objet est limitée par la taille de la référence ponctuelle. Une référence de grand diamètre détériorera la résolution alors qu'une référence de petit diamètre l'améliorera. A l'inverse, la visibilité des franges provenant de l'interférence entre l'onde diffractée par l'objet et celle par la référence

augmente lorsque le diamètre de la référence augmente. Ainsi reconstruire l'objet devient plus "facile" avec une grande référence. Il y a un compromis à trouver entre résolution et rapport signal sur bruit [55], [56],[13]. Pour optimiser la qualité de la reconstruction il faut trouver un moyen de maximiser le signal passant par la référence tout en minimisant son diamètre pour conserver une bonne résolution. On peut, par exemple, augmenter le nombre de références ponctuelles autour de l'objet pour maximiser le rapport signal sur bruit tout en gardant un petit diamètre de référence [57]. On peut effectuer la FTH avec une référence étendue connue et un opérateur de déconvolution spécialement conçu pour cette référence [55], l'holographie par rayons-X massivement parallèles [58] ou encore n'importe quelle référence tant qu'elle est connue [39]. Enfin on notera que effectuer un lancement de l'algorithme de reconstruction de phase avec la reconstruction FTH comme support donne une reconstruction plus rapide [59].

Enfin, pour que les reconstructions de l'objet  $r \otimes o^* + r \otimes r$  soient visibles et ne chevauchent pas spatialement les termes centraux ( $o \otimes o + r \otimes r$ ) il faut que la distance entre l'objet et la référence holographique soit suffisamment grande. Si  $a$  est la taille de l'objet alors la distance entre la référence et le point de plus proche de l'objet doit être supérieure à  $1.5a$ . On dit alors que la séparation spatiale holographique est suffisante.

Une manière de contourner le compromis RSB/résolution est d'utiliser des références étendues. C'est la technique HERALDO (pour *Holography with Extended Reference by Autocorrelation Linear Differential Operator*) développée par Podorov [37] en 2007 puis appliquée par Sicaïros-Guizar [38]. Cette technique remplace les références ponctuelles par des fentes 1-D, des rectangles *etc.* Le fait d'augmenter la taille des références permet d'augmenter le signal transmis par celles-ci. Soit  $r(x, y)$  la référence étendue placée à côté de l'objet  $o(x, y)$  avec une séparation holographique suffisante pour obtenir une reconstruction. La figure de diffraction mesurée en champ lointain a la même équation que celle en 2.34. Si on applique alors une simple transformée de Fourier, l'objet sera convolué avec la référence et ne permettra pas de distinguer complètement l'objet étant donnée que la référence n'est pas ponctuelle. Il faut donc une étape supplémentaire lors de laquelle on applique un opérateur linéaire de dérivation à la transformée de Fourier inverse du champ diffracté. Cette opérateur est défini par :

$$\mathcal{L}^{(n)}\{\cdot\} = \sum_{k=0}^n a_k \frac{\partial^n}{\partial x^k y^{n-k}} \quad (2.37)$$

L'opérateur différentiel appliqué à la référence étendue,  $r(x, y)$ , donne la somme d'une fonction de distribution de Dirac en  $(x_0, y_0)$  et d'une autre fonction  $g$  :

$$\mathcal{L}^{(n)}\{r(x, y)\} = A\delta(x - x_0)\delta(y - y_0) + g(x, y) \quad (2.38)$$

Où  $A$  est une constante complexe arbitraire.

En appliquant cet opérateur à l'autocorrélation (transformée de Fourier inverse de l'hologramme noté  $H$ ), on obtient (cf. équation 2.35) :

$$\begin{aligned} \mathcal{L}^{(n)}\{\mathcal{F}^{-1}\{H\}\} &= \mathcal{L}^{(n)}\{t \otimes t\} \\ &= \mathcal{L}^{(n)}\{o \otimes o\} + \mathcal{L}^{(n)}\{r \otimes r\} + \mathcal{L}^{(n)}\{o \otimes r\} + \mathcal{L}^{(n)}\{r \otimes o\} \end{aligned} \quad (2.39)$$

D'après la relation entre la convolution et la corrélation et l'application d'un opérateur linéaire sur ces dernières, on a :

$$\mathcal{L}^{(n)}\{u \otimes v\} = (-1)^n \left[ u \otimes \mathcal{L}^{(n)}\{v\} \right] = \mathcal{L}^{(n)}\{u\} \otimes v \quad (2.40)$$

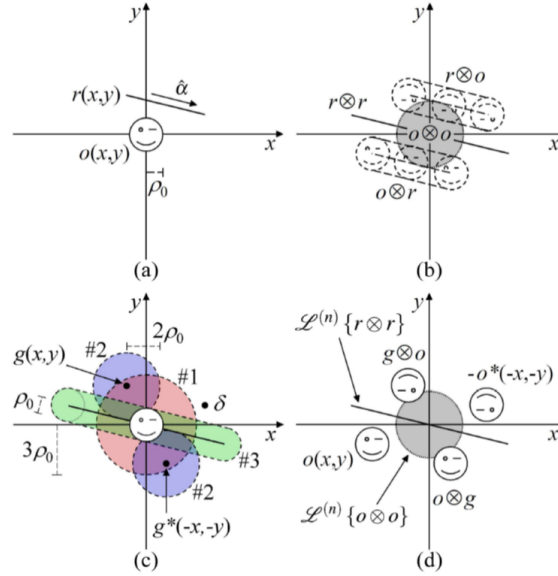
Il vient alors :

$$\begin{aligned} \mathcal{L}^{(n)}\{\mathcal{F}^{-1}\{H\}\} &= \mathcal{L}^{(n)}\{o \otimes o\} + \mathcal{L}^{(n)}\{r \otimes r\} \\ &\quad + (-1)^n \left[ o \otimes \mathcal{L}^{(n)}\{r\} \right] + \mathcal{L}^{(n)}\{r\} \otimes o \\ &= \mathcal{L}^{(n)}\{o \otimes o\} + \mathcal{L}^{(n)}\{r \otimes r\} + (-1)^n o \otimes g + g \otimes o \\ &\quad + (-1)^n A^* o(x + x_0, y + y_0) + A o^*(x - x_0, y - y_0) \end{aligned} \quad (2.41)$$

Les deux derniers termes représentent les deux reconstructions conjuguées de l'objet de part et d'autre du terme central d'autocorrélation. En effet dans le cas d'une référence "type fente", la dérivée d'une fente dans la dimension de sa longueur donne deux fonctions de Dirac sur les bords, ce qui équivaut à avoir deux références ponctuelles espacées de exactement la longueur de la fente. La Fig. 2.10 explicite le fonctionnement de cette technique. A la différence la technique FTH, la résolution de la reconstruction n'est pas limitée par la taille de la référence. En effet c'est la finesse du bord de la référence qui va déterminer la taille de distribution de Dirac et donc la résolution. On peut donc



augmenter la taille de la référence pour augmenter le flux qu'elle transmet tout en conservant une bonne résolution spatiale.



**Figure 2.10** Principe de la technique HERALDO, tiré de la thèse de M. Guizar-Sicairos [4].

(a) : objet observé.

(b) : représentation des supports de corrélation : de l'objet avec lui-même ( $o \otimes o$ ), de la référence avec elle-même ( $r \otimes r$ ), et de l'objet avec la référence ( $o \otimes r$  et  $r \otimes o$ ).

(c) : représentation des différents domaines afin de comprendre la notion de « séparation holographique ».

(d) : Reconstruction HERALDO après application de l'opérateur linéaire  $\mathcal{L}^{(n)}$ .

La condition de séparation holographique avec la technique HERALDO est similaire à la FTH : les bords de la référence, qui vont produire les fonctions de Dirac après application de l'opérateur linéaire, doivent être à une distance minimum de  $2a$  de l'objet, avec  $a$  la taille de l'objet. La figure 2.10 illustre cette condition. Le bord gauche de la référence est trop proche de l'objet, ce qui entraîne un chevauchement entre la reconstruction de l'objets,  $o \otimes g$ , par le bord gauche de la référence et l'autocorrélation de l'objet ( $o \otimes o$ ). De plus, pour éviter un recouvrement des reconstructions provenant des différents bords des références, il faut que la distance entre chaque bord des références soit supérieure à la taille de l'objet. Si on a une référence fente, cela signifie que la longueur de la fente doit être plus grande  $a$ . Dans la pratique on prend entre  $1.5a$  et  $2a$

### 2.3.3 Conclusion

Dans ce chapitre j'ai présenté la théorie de l'imagerie sans lentille, en précisant le principal obstacle à la reconstruction de l'image de l'objet : la perte de la phase lors de l'étape de détection de la figure de diffraction par le capteur CCD. J'ai détaillé deux types de méthodes permettant de résoudre ce problème de la phase. Les algorithmes itératifs de reconstruction de la phase utilisent des contraintes dans l'espace de Fourier et l'espace réciproque pour récupérer la phase et nécessitent de respecter la condition de sur-échantillonnage linéaire afin de converger. Les méthodes holographiques (FTH et HERALDO) encodent la phase directement dans la modulation de la figure de diffraction entre la référence et l'objet.

Pour réaliser de l'imagerie sans lentille de haute résolution, il faut un faisceau avec une courte longueur d'onde, une haute cohérence spatiale, un fort flux de photons. La génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG) permet d'obtenir une source de rayonnement XUV adaptée et accessible. De plus, la courte durée des impulsions générées permet d'étudier des phénomènes dynamiques ultra rapides. C'est ce type de source que j'utilise dans ma thèse. Le prochain chapitre détaille les aspects pratique de cette source et couvre brièvement la théorie associée au processus de HHG.

## Chapitre 3

# Ligne de lumière génération d'harmoniques d'ordre élevé

### 3.1 Introduction

Les techniques d'imagerie sans lentille FTH, CDI et HERALDO utilisent le même dispositif expérimental. Seule change la préparation de l'échantillon (*ie* mise en place de références ou non autour de l'objet). Les reconstructions de l'objet sont effectuées soit par un algorithme itératif de reconstruction de phase (CDI), par un opérateur linéaire et une transformée de Fourier (HERALDO) ou une simple transformée de Fourier (FTH). L'élément clef de ces reconstructions est bien sûr la qualité de la figure de diffraction. Pour obtenir une "bonne" figure de diffraction il faut un faisceau avec une petite longueur d'onde, une haute cohérence spatiale, un fort flux de photons et une durée d'impulsion très courte. Une faible longueur d'onde est nécessaire pour obtenir une bonne résolution spatiale (dans le domaine des X on obtient des résolutions en  $nm$ ) et une courte durée d'impulsion permet d'étudier des phénomènes dynamiques avec une résolution temporelle en femtosecondes ou même attosecondes. Par ailleurs, dans le cas d'une étude d'échantillon biologique sensible à une dose importante de rayons-X, l'utilisation d'impulsions X de courte durée permet d'obtenir l'information de transmission de l'échantillon avant que celui ne soit détruit ou endommagé par l'impulsion se qui se produit typiquement après plusieurs dizaines de femtosecondes [60, 61]. Enfin, une

---

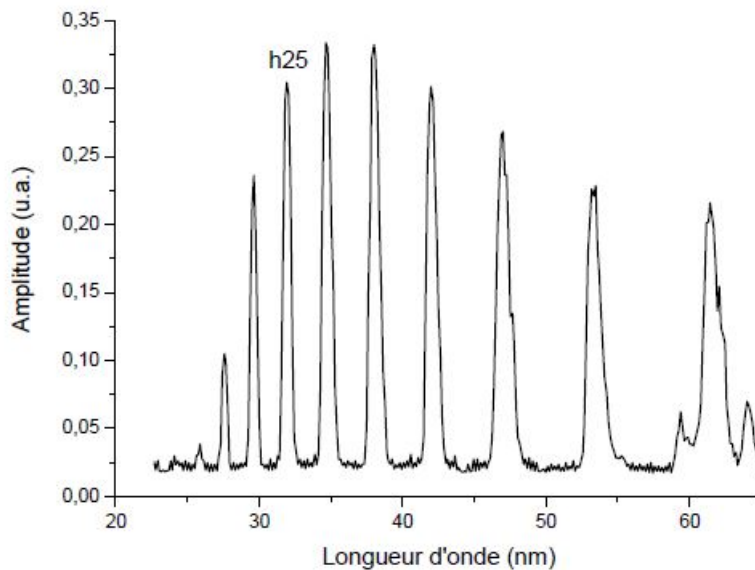
haute cohérence spatiale et un fort flux de photons permettent d’obtenir une figure de diffraction de qualité avec un bon rapport signal sur bruit.

Les lasers à électrons libres (FEL pour l’acronyme anglais), les synchrotrons et les lignes de lumière de génération d’harmoniques d’ordre élevé (HHG pour l’acronyme anglais) sont toutes des sources qui répondent à ces critères, chacune avec leurs avantages et inconvénients. Dans ma thèse j’utilise la HHG pour générer le faisceau XUV qui servira dans mes expériences d’imagerie sans lentille. La ligne de lumière par HHG développée dans le groupe ATTO du laboratoire LIDYL du CEA de Saclay fournit une source intense de photons XUV cohérents (plusieurs dizaines de nanomètres) avec une durée d’impulsion ultra-courte (quelques dizaines de femtosecondes). Une telle ligne de lumière par HHG fournit une alternative moins couteuse et plus facile d’accès que les grandes installations laser tels que FELs et les synchrotrons. De plus le contrôle quasi-complet des propriétés du faisceau harmonique permet un grand spectre d’applications (de la physique biomoléculaires à la physique des solides).

## 3.2 Principe de la génération d’harmoniques d’ordre élevé

Dans cette partie j’introduirai rapidement le processus de génération d’harmoniques d’ordre élevé le but étant de donner les bases aidant à comprendre quels sont les paramètres permettant l’optimisation de la source harmonique. Je ne rentrerai pas de les détails fondamentaux du processus HHG, qui peuvent être trouvés par exemple dans la thèse de W. Boutu [62]. Le procédé de génération d’harmoniques d’ordre élevé a été découvert quasi-simultanément en 1987 au CEA de Saclay [63] et à l’université de l’Illinois à Chicago [64]. Ils reportaient l’observation d’émissions intenses d’harmoniques du faisceau fondamental par les atomes de gaz rares (Xe, Kr et Ar) soumis à l’excitation d’un laser IR à impulsions ultra-courtes. La figure 3.1 montre un spectre obtenu dans l’argon dans des conditions de génération standard.

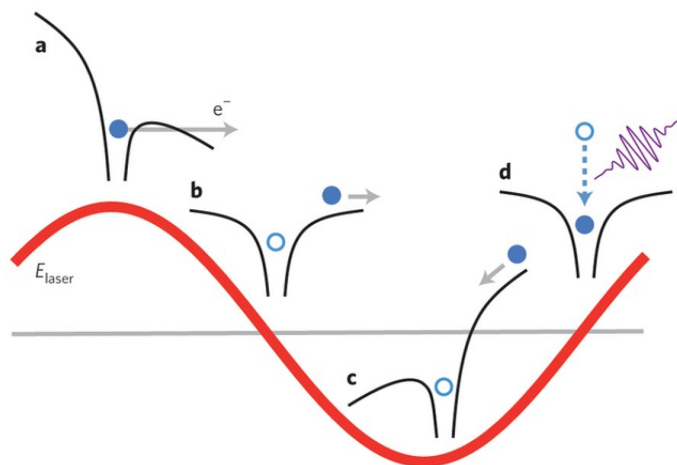
Un modèle semi-classique en trois étapes décrivant le phénomène de HHG a été proposé par Corkum en 1993 : ionisation tunnel, accélération du paquet d’onde dans le continuum et recombinaison [65, 66]. La figure 3.2 résume les différentes étapes du processus



**Figure 3.1** Spectre typique dans l'argon obtenu dans des conditions standard de génération [1].

Avant l'interaction entre le laser et l'atome, le potentiel coulombien de l'atome n'est pas perturbé. Lorsque le champ électrique laser est proche du maximum il abaisse la barrière de potentiel de l'atome, rendant possible l'ionisation tunnel d'un électron. De part l'intensité du champ laser à ce moment, le paquet d'onde crée ne subit pas l'influence du potentiel coulombien de l'ion parent. Le paquet d'onde va être accéléré dans le continuum par le champ laser. Quand le champ laser change de signe, l'électron va être décéléré et changer de sens pour se rapprocher de l'ion parent. Il a alors une probabilité de se recombinaison avec l'ion parent ou d'éjecter un électron supplémentaire du noyau (ionisation séquentielle). Lorsque l'électron se recombine avec l'ion parent il entraîne l'émission d'un photon XUV qui possède une énergie égale à l'énergie cinétique accumulée par l'électron lors de son trajet dans le continuum plus le potentiel d'ionisation de l'atome ( $I_p$ ). Ce processus se répète tous les demi-cycles optiques dans le cas d'une impulsion longue. Ainsi, l'émission harmonique se présente sous la forme d'un train d'impulsions séparées d'une demi-période optique et a pour conséquence la structure discrète du spectre harmonique. Il est cependant possible de moduler le champ laser de manière à confiner l'émission à un seul demi-cycle optique et ainsi générer des impulsions attosecondes isolées [67].

La coupure définit l'énergie maximale des photons qui peuvent être générés lors de



**Figure 3.2** Modèle en trois étapes de la génération d’harmoniques d’ordre élevé.

la recombinaison. En 1992, Krause et al. [68] proposent une loi empirique pour rendre compte de cette coupure :

$$h\nu_{max} = I_p + 3.2U_p \quad (3.1)$$

Où  $I_p$  est le potentiel d’ionisation de l’atome et  $U_p = e^2 E^2 / 4m\omega^2$  est l’énergie cinétique moyenne acquise par un électron libre au cours de son oscillation dans le champ laser (énergie pondéromotrice). En 1994 Lewenstein et al. [69] proposent un modèle purement quantique de l’HHG, dans l’approximation des champs forts et basse fréquence (Strong Field Approximation ou SFA). Ce modèle permet de calculer la valeur du dipôle atomique comme une somme d’amplitudes de probabilités associées à un chemin quantique du paquet d’onde électronique (ce chemin inclut les trois étapes du modèle semi-classique, ionisation accélération et recombinaison).

Le spectre obtenu est constitué d’harmoniques d’ordres impairs de la fréquence fondamentale  $\omega$  du faisceau laser incident et présente une structure caractéristique que l’on peut séparer en trois zones. Tout d’abord, une décroissance rapide avec l’ordre harmonique  $q$  pour les ordres les plus faibles. Cette décroissance est expliquée par la théorie perturbative de l’optique non linéaire. Cette partie du spectre est suivie par une zone « plateau » dont l’étendue dépend des conditions expérimentales (gaz utilisé, intensité du laser fondamental...). Dans cette zone l’amplitude des harmoniques successives est quasi constante. Enfin, dans le prolongement du plateau on trouve une zone de « coupure », où l’on observe une chute très rapide de l’amplitude des harmoniques. De manière générale, on sélectionne les harmoniques du plateau pour l’imagerie sans lentille. Ils sont plus stables et plus intenses que ceux situés dans la zone de coupure.

Les modèles mentionnés précédemment sont très utiles pour optimiser l'amplitude du dipôle atomique. Ils correspondent cependant à la réponse de l'atome unique. Pour optimiser le nombre de photons XUV générés par le milieu gazeux, il faut aussi prendre en compte la réponse macroscopique du système. Il faut remplir la condition d'accord de phase pour que le transfert d'énergie entre le champ laser et champ harmonique soit optimal. Quand la condition d'accord de phase est satisfaite la polarisation source et le champ harmonique se propagent dans le milieu avec la même vitesse de phase. Si c'est le cas, le rayonnement de chaque dipôle interfère de façon constructive et construit alors un champ cohérent XUV en sortie du milieu gazeux. Dans le cas où l'accord de phase n'est pas parfait, il faut optimiser la longueur de cohérence du rayonnement harmonique  $L_{coh}$  et tenir compte de la réabsorption du rayonnement par le milieu générateur [70]. Sans entrer dans les détails, on dit qu'on a optimisé la génération d'harmoniques lorsque la longueur de cohérence et la longueur du milieu (celle de la cellule) sont supérieures à la longueur d'absorption  $L_{abs}$ . L'optimisation de la HHG est un processus complexe (théoriquement et expérimentalement) à cause du nombre de paramètres qui régissent le phénomène physique. De plus, optimiser du nombre de photons générés se fait parfois au détriment de la qualité globale du faisceau harmonique (profil spatial, front d'onde, cohérence spatiale, stabilité en pointé et intensité...). En règle générale, l'optimisation du flux de photons harmonique est le résultat de plusieurs paramètres :

- Un éclairage transverse suffisant pour ioniser les atomes de gaz rares et permettre l'émission harmonique, mais qui n'ionise pas le milieu au delà de quelques pourcents. En effet, une ionisation trop importante du milieu générateur dégrade l'accord de phase et induit une forte réfraction sur le faisceau laser et un "blue shift" de la fréquence fondamentale. L'éclairage optimal est appelé  $I_{opt}$ .
- Une densité atomique du gaz élevée, maximisant la densité de dipôles. Cependant, elle ne doit pas dégrader l'accord de phase et ne doit pas trop augmenter la valeur de  $L_{abs}$ .
- Une grande section transverse du volume d'interaction entre le faisceau et le milieu générateur dans la zone de rayleigh du faisceau IR tout en maintenant un éclairage proche de  $I_{opt}$ . On réalise cela en utilisant une lentille de longue focale, qui permet aussi des conditions homogènes d'accord de phase.

Il existe une synchronisation temporelle naturelle entre le faisceau IR incident et le

faisceau harmonique ce qui facilite grandement les expériences visant à étudier des phénomènes dynamiques ultra-rapides par des techniques de type pompe-sonde.

### 3.3 Ligne de LUCA

#### 3.3.1 Setup

Toutes les expériences d'imagerie -sauf celle d'imagerie de phase- présentées dans cette thèse ont été réalisées sur la ligne de lumière harmonique au centre de recherche CEA Saclay en France. Cette ligne de lumière permet de délivrer une source harmonique XUV femtoseconde à partir du laser femtoseconde infrarouge (IR) LUCA (pour Laser Ultra Court Accordable). L'historique de la ligne de lumière harmonique est disponible dans la thèse de X. Ge [52]. LUCA est un système laser Ti :Sa qui peut délivrer une énergie par impulsion allant jusqu'à  $50mJ$  avec une durée d'impulsion de  $50fs$  avec un taux de répétition de  $20Hz$  et une longueur d'onde de  $800nm$ .

La ligne est séparée en deux parties : une dans l'air comprenant une lentille de longue focale puis une sous vide, constituée de 3 enceintes expérimentales. Dans la première partie on utilise une lentille longue focale ( $f = 5.6m$ ) pour focaliser le faisceau infrarouge dans la cellule de gaz située dans la première enceinte. Une géométrie longue focale permet de coupler une énergie laser plus élevée avec le milieu gazeux en augmentant la dimension transverse de la source. Ce schéma favorise également un accord de phase uniforme et permet donc d'augmenter l'efficacité de génération harmonique. On obtient donc un gain de conversion harmonique supérieur au simple facteur d'échelle de la taille de la source [71]. On peut contrôler l'éclairement dans le plan focal du faisceau IR incident et la taille de son diamètre en ajustant un diaphragme placé juste avant la lentille de focalisation. C'est un paramètre critique de l'optimisation du flux harmonique à optimiser chaque jour d'expérimentation. Idéalement, on souhaite augmenter le volume d'interaction entre le gaz et le laser tout en gardant l'éclairement du faisceau constant et proche de l'éclairement de saturation [70]. En effet, une fraction d'ionisation trop importante va entraîner un fort déphasage qui, non compensé, va détruire l'accord de phase et diminuer l'efficacité de génération des harmoniques. À l'inverse, un diaphragme trop fermé implique un flux IR moins intense et par conséquent un flux harmonique diminué [72]. Il est aussi possible de contrôler la position relative du point focal du

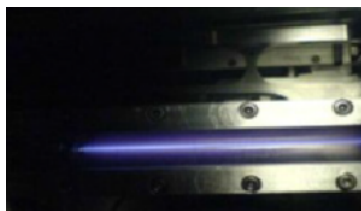


faisceau par rapport à la cellule de gaz grâce à la translation motorisée de la lentille (translation dans l'axe de propagation du faisceau). Les enceintes expérimentales qui forment le reste de la ligne de lumière sont, dans le sens de propagations du faisceau IR, l'enceinte de génération (ou enceinte HHG), l'enceinte des optiques et la chambre de diffraction (ou d'imagerie). La figure 3.3 montre l'agencement des enceintes de la ligne de lumière.



**Figure 3.3** Photo des 3 enceintes La flèche rouge indique le sens de propagation du faisceau. L'ensemble fait environ 5m de long.

Dans l'enceinte de génération on trouve la cellule de gaz dans laquelle on focalise le faisceau IR incident. La cellule de gaz consiste en un tube cylindrique avec deux trous de  $500\mu\text{m}$  aux extrémités (voir Fig 3.4 pour une photo de la cellule de gaz). On peut régler la longueur et la position de la cellule sous vide grâce à un ensemble de moteur. La longueur de la cellule de gaz peut varier de 0 à 15cm dans l'axe de propagation du faisceau IR incident  $z$  et sa position transverse dans la direction  $y$  est réglable grâce à une translation motorisée. On contrôle aussi l'orientation de la cellule en l'inclinant dans les deux directions perpendiculaires à  $z$  ( $x$  et  $y$ ) avec une grande précision. Enfin, on contrôle la pression du gaz noble qui remplit la cellule. Les paramètres de taille de cellule et de pression au sein de celle-ci sont primordiaux pour maximiser le flux et les propriétés spatiales du faisceau harmonique (stabilité, cohérence, profil d'intensité transverse...) [2].

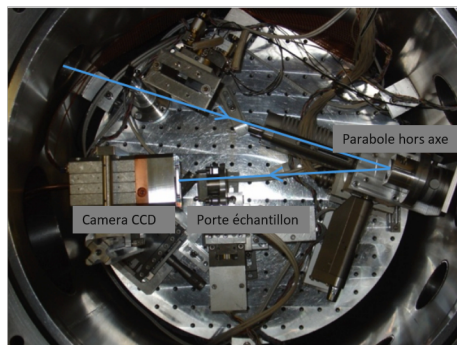


**Figure 3.4** Photo de la cellule de gaz où à lieu la génération d’harmoniques d’ordre élevé. Le lumière bleu est due à l’ionisation des atomes d’argon par l’IR incident.

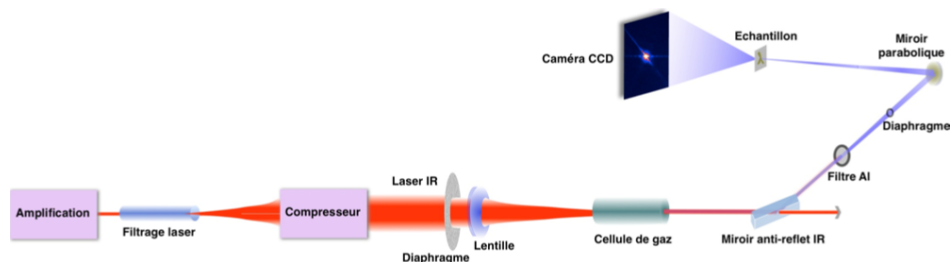
L’enceinte des optiques a pour but de séparer le faisceau harmonique du faisceau IR incident, colinéaires à la sortie de la cellule. Une lame anti-réfléchissante traitée pour IR, à incidence rasante pour augmenter la réflectivité de l’XUV, sépare les deux faisceaux et dirige le faisceau harmonique vers l’enceinte de diffraction. L’IR résiduel est alors filtré par deux filtres aluminium Luxel de  $150nm$  d’épaisseur placés entre l’enceinte des optiques et l’enceinte de diffraction. Il est aussi possible de remplacer la lame IR par un miroir toroïdal et un réseau de diffraction pour étudier le spectre harmonique bien que cela n’ait pas été effectué pendant ma thèse.

Dans l’enceinte de diffraction (cf Fig 3.5) une parabole hors axe (ou OAP pour Off Axis Parabola en anglais) à  $22.5^\circ$  avec une focale de  $20cm$  possédant un traitement multicouches permettant de sélectionner l’harmonique 33 du spectre harmonique (soit  $24.24nm$ ) focalise le faisceau sur l’échantillon. Dans l’expérience 4.5.1 on utilise une autre OAP qui sélectionne l’harmonique 25 du faisceau harmonique (soit  $32nm$ ) avec une focale de  $10cm$ . Dans le cas où l’on travaille avec H25 on utilise l’argon comme gaz noble. A l’inverse, si on souhaite utiliser H33 on utilise le néon. En effet, le néon possède un plus grand potentiel d’ionisation que l’argon et donc d’après l’équation 3.1 et donc la coupure a lieu à plus haute énergie. Contrairement au néon, pour l’argon H33 se situe dans la zone de coupure et possède donc un nombre de photons/tir bien plus faible que chez ce premier (1 à 2 ordres de grandeur de moins que dans l’argon, mais une finesse quasiment triple dans le néon). Enfin une caméra CCD XUV PMTE enregistre la figure de diffraction en champ lointain.

La figure 3.6 récapitule la propagation du faisceau incident depuis l’étape d’amplification laser jusqu’à la génération du faisceau harmonique dans la cellule de gaz puis son filtrage, la focalisation du faisceau harmonique par l’OAP sur l’échantillon étudié et enfin l’enregistrement de la figure de diffraction sur la caméra CCD.



**Figure 3.5** Photo de l'enceinte de diffraction. Le miroir parabolique focalise le faisceau harmonique sur l'échantillon maintenu par le porte échantillon. Enfin la caméra CCD récupère la figure de diffraction en champ lointain.



**Figure 3.6** Schéma de propagation du faisceau IR incident et du faisceau harmonique [2].

### 3.3.2 Optimisation qualité de faisceau

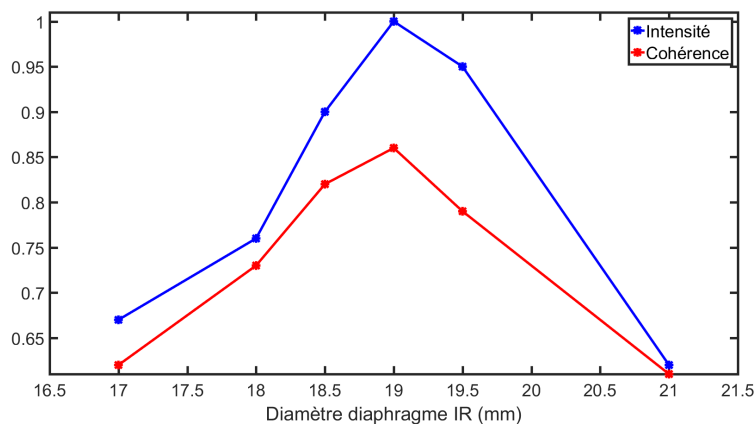
#### 3.3.2.1 Cohérence spatiale

Avant d'obtenir une reconstruction fidèle d'un objet à partir d'une figure de diffraction, il faut s'assurer que la source de rayonnement incident est optimisée. Dans notre cas on souhaite une bonne cohérence spatiale et un fort flux de photons. Il s'agit alors de trouver les conditions de génération pour lesquelles ces deux critères sont réunis. Selon la parabole de focalisation on travaille avec H33 dans le néon ou H25 dans l'argon. Les mesures de cohérence spatiale dans l'argon et dans le néon ont été effectuées pour différents paramètres d'optimisations du faisceau harmonique avec des fentes d'Young de  $100\text{nm}$  et  $150\text{nm}$  de largeur et séparées de  $1.2\mu\text{m}$  et  $2\mu\text{m}$  respectivement, usinées avec un faisceau d'ion focalisé (FIB en anglais) au CSNSM à Orsay. Les mesures dans le néon ont été prises dans la même configuration que pour l'expérience d'imagerie à bas flux

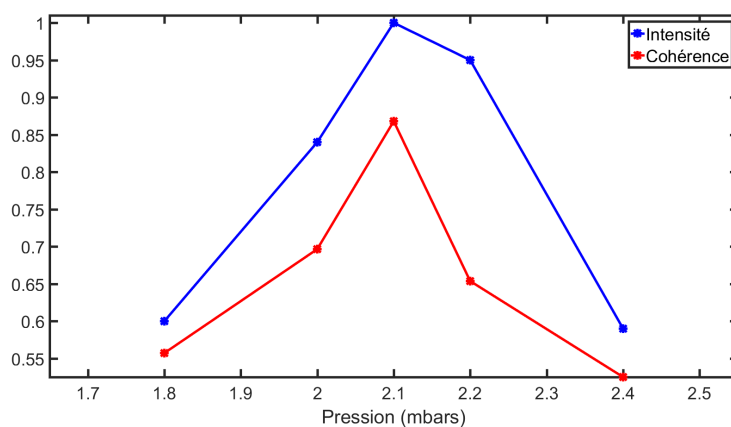
5.3 alors que les mesures dans l'argon proviennent de l'expérience 4.5.1. La mesure de la cohérence spatiale est reliée à la visibilité des franges au centre de l'interférogramme. La pression du gaz et l'ouverture du diaphragme IR avant focalisation sont les deux paramètres que l'on a modifiés lors cette étude. J'ai trouvé que la longueur de la cellule a un effet bien plus minime sur la cohérence, bien qu'elle influe sur le flux. Les graphes 3.7 et 3.8 montrent l'évolution de la cohérence spatiale au foyer et de l'intensité moyenne de H25 dans l'argon en fonction du diamètre du faisceau IR incident et de la pression du gaz dans la cellule respectivement. Les mesures d'intensité des faisceaux harmoniques sont effectuées sur le faisceau direct en champ lointain. Chaque point des courbes de cohérences et d'intensité est une moyenne de 150 mesures en simple tirs. Les graphes 3.9 et 3.10 montrent les mêmes mesures mais avec H33 dans le néon. Il faut noter que pour H33 les points des courbes de cohérences sont issus d'une moyenne de 50 mesures effectuées avec une accumulation de 200 tirs soit 10s en non pas en simple tir (pour des raison de RSB). L'effet d'une accumulation sur des mesures de cohérence spatiale est discuté dans la partie 4.5.1. Ici, l'instabilité du faisceau diminue la visibilité des franges de l'interférogramme, ce qui revient à dégrader la cohérence mesurée. Ainsi la valeur de la cohérence spatiale mesurée est une borne inférieure de la cohérence réelle.

On observe que la cohérence spatiale (ou ici la visibilité des franges) pour H33 et H25 possède le même comportement que l'intensité moyenne du faisceau harmonique quand on modifie les paramètres de génération. Cela revient à dire qu'optimiser l'intensité moyenne du flux harmonique équivaut à optimiser sa cohérence spatiale. Cette propriété est particulièrement intéressante pour l'imagerie sans lentille où le flux de photons et la cohérence spatiale sont deux paramètres critiques pour obtenir une figure de diffraction avec un bon RSB et une reconstruction fidèle de l'objet. On peut noter que la visibilité maximale des franges est légèrement plus grande dans l'argon que dans le néon (0.81 et 0.86 respectivement). Cela est sûrement dû à l'accumulation multi-tirs pour les mesures dans le néon où la variation de pointé du faisceau diminue la cohérence mesurée (voir section 4.5.1. On peut supposer que la valeur de la cohérence réelle pour H33 est similaire ou supérieure à H25. On remarque aussi que la valeur du diamètre du faisceau IR qui maximise le flux est plus grande pour le néon que pour l'argon (24.5mm et 19mm respectivement) et donc un éclairage transverse plus grand. En effet, il est plus difficile d'ioniser le néon que l'argon, l'énergie d'ionisation du néon étant plus grande (21.6eV pour la première ionisation de néon contre 15.8eV pour l'argon). De même la pression

optimisant le flux harmonique vaut  $5.7\text{mbars}$  dans le néon et  $2.1\text{mbars}$  dans le néon. Cette différence s'explique par la valeur de la section efficace de photo-absorption du milieu (et donc une  $L_{abs}$ ) différente pour les deux gaz et les deux harmoniques. La densité atomique optimale est donc différentes entre H33 et H25.

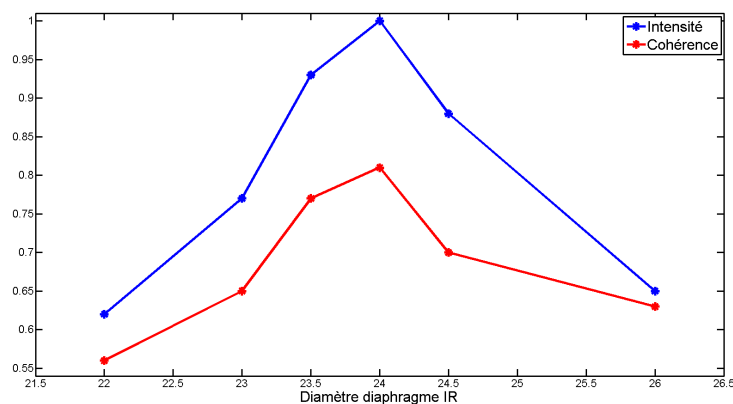


**Figure 3.7** Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H25 dans l'argon en fonction du diamètre du faisceau incident IR. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré.

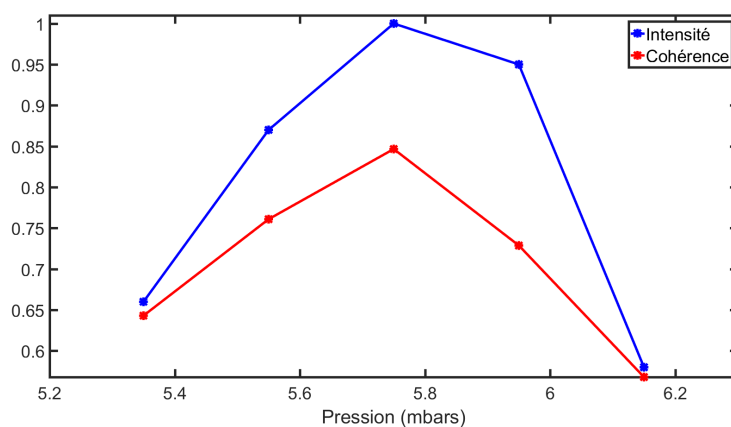


**Figure 3.8** Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H25 dans l'argon en fonction de la pression du gaz dans la cellule. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré.

On a fait jusqu'à présent l'hypothèse que nos harmoniques étaient une source parfaitement monochromatique ce qui n'est pas exact en réalité. Il est donc intéressant de calculer la finesse du faisceau harmonique et de calculer l'impact qu'elle a sur nos reconstructions. A partir des interférogrammes d'Young on peut estimer la finesse ( $N = \lambda/\Delta\lambda$ ) de H25 et H33. On sait que la limitation en résolution (ou l'élargissement spectral)  $\Delta r$ , due à la largeur spectrale  $\Delta\lambda$  de la source, d'un point de l'objet reconstruit situé à une distance  $p$  du centre de l'autocorrélation est donnée par :



**Figure 3.9** Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H33 dans le néon en fonction du diamètre du faisceau incident IR. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré.



**Figure 3.10** Évolution de la courbe d'intensité et de la cohérence spatiale de H33 dans le néon en fonction de la pression du gaz dans la cellule. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum mesuré.

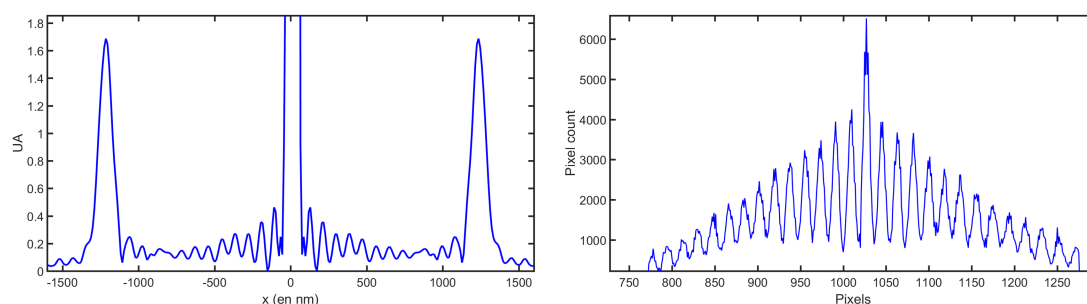
$$\Delta r = p/N = p \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \quad (3.2)$$

On comprend alors que plus un point est éloigné du centre de l'autocorrélation plus la résolution en ce point sera détériorée par l'effet de la largeur spectrale. Si on prend le cas d'un objet de taille  $d$ , la meilleure résolution atteignable pour les points les plus éloignés du centre de l'autocorrélation est [2] :

$$\Delta r = d \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \quad (3.3)$$

Le panel de droite de la figure 3.11 présente un interférogramme obtenu dans le néon

avec des fentes d'Young espacées de  $1.2\mu m$  de  $105nm$  de largeur. Le panel de gauche est la transformée de Fourier du panel de droite avec comme unité la taille d'un pixel dans l'espace réel. La position des pics satellites ( $1200nm$ ) est conforme avec la distance séparant les fentes d'Young et la largeur des pics à mi-hauteur ( $115nm$ ) est égale à la somme de la largeur des fentes et de l'élargissement spectral  $\Delta r$  explicité par l'équation 3.2. Ainsi  $\Delta r = 10nm$  et la largeur spectrale de H33 vaut  $\Delta\lambda = 0.2nm$ . La finesse de H33 vaut  $N = 120$ . On peut aussi observer avec le panel de droite que la sélection spectrale par la parabole hors axe H3 est excellente : il n'y a aucun élargissement spectral de la taille de la base des pics satellites. Il n'y a pas de composante multi-spectrale présente dans le faisceau réfléchi par l'OAP. La parabole hors axe ne transmet donc aucun des ordres harmoniques proches de H33. En effectuant la même mesure dans l'argon, pour H33, on calcule une finesse  $N = 50$ .



**Figure 3.11** A droite : interférogamme obtenu à partir de fentes d'Young espacées de  $1.2\mu m$  de  $100nm$  de largeur (taille des pixels :  $27\mu m$ ). A gauche : transformée de Fourier du profil de droite

### 3.3.2.2 Stabilité du faisceau

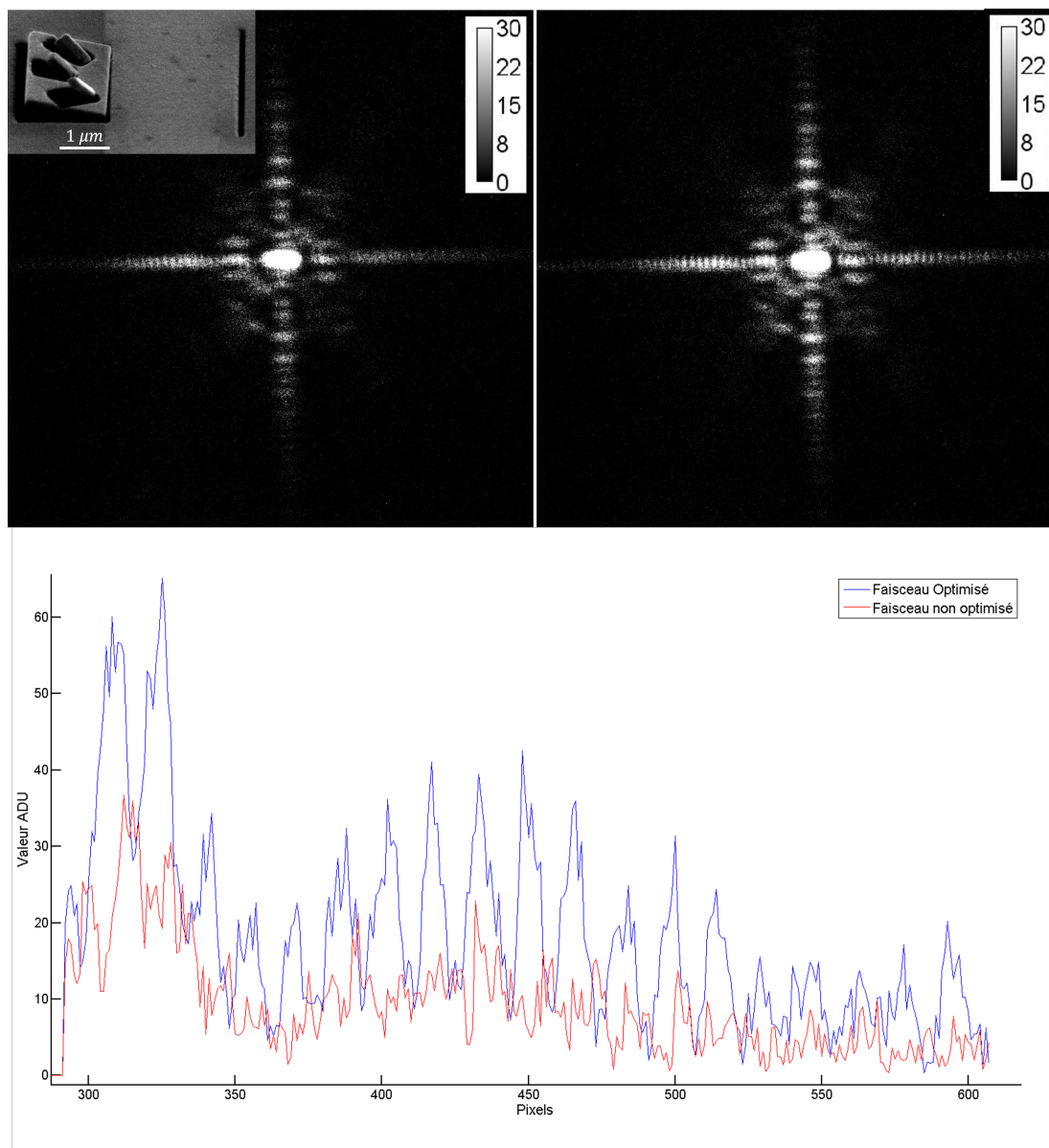
Pour les expériences réalisées avec H33 dans le néon il est nécessaire d'accumuler des tirs laser pour obtenir une figure de diffraction avec un rapport signal sur bruit suffisant pour obtenir une reconstruction satisfaisante de l'objet. Typiquement on accumule plus de 100 tirs laser et jusqu'à 4000 tirs pour l'expérience d'imagerie stéréo 5.2. Dans le cas d'un faisceau parfaitement stable l'accumulation de plusieurs tirs laser n'est pas problématique : le temps de cohérence temporelle,  $\tau = 1/\Delta\nu$ , ( avec  $\Delta\nu = c/\Delta\lambda$  ) étant largement inférieure au taux de répétition du laser ( $20Hz$ ) on a alors une superposition incohérente de plusieurs figures de diffraction simple tir comportant la même information. A l'inverse dans le cas réel, l'effet d'une accumulation peut être nuisible sur la qualité de la figure de diffraction si le pointé du faisceau n'est pas stable. Dans ce cas,

l'onde transmise par l'objet est différente tir à tir et on enregistre en champs lointain une superposition incohérente de contributions différentes entraînant une diminution de la visibilité des motifs de la figure de diffraction "totale". Dans le cas d'une reconstruction par algorithme itératif la possibilité d'obtenir ou non une image reconstruite satisfaisante de l'objet dépendra directement du nombre de tirs accumulés et de la stabilité du faisceau. On peut comparer l'effet d'une accumulation de nombreux tirs avec un pointé instable à celui d'un faisceau avec une cohérence spatiale "apparente" plus faible.

Par ailleurs, intrinsèquement, une variation d'intensité tir à tir du faisceau harmonique ne pose pas de problème dans le cas d'une acquisition multi-tirs. C'est l'effet conjoint d'une instabilité de pointé et d'une variation d'intensité qui impacte négativement la qualité de la figure de diffraction. Dans nos expériences réalisées avec H33 je me suis donc attaché à optimiser la stabilité en pointé et en intensité du faisceau plutôt qu'obtenir la plus grande énergie possible en un tir laser. Pour cela, pendant l'étape d'optimisation de la génération d'harmoniques, j'utilise un programme Labview permettant d'observer et d'optimiser en temps réel la stabilité en intensité et en pointé du faisceau harmonique en récupérant l'image du faisceau en champ lointain sur la caméra CCD XUV . On rappelle que les paramètres à optimiser lors de cette étape sont la longueur du milieu générateur (la cellule de gaz), la pression du gaz dans la cellule, le diamètre du faisceau IR avant focalisation dans la cellule et plus rarement, la position relative du foyer du faisceau IR par rapport à la cellule de gaz. Pour calculer l'écart-type des valeurs d'intensité du faisceau harmonique on enregistre continuellement les 20 dernières images des tirs harmoniques. Il suffit alors d'intégrer le signal de chaque faisceau pour obtenir une valeur de l'intensité moyenne et de l'écart-type de l'intensité des 20 derniers tirs. De même, l'instabilité du pointé du faisceau est calculée grâce à un fit des tirs enregistrés en champ lointain permettant de déterminer le centre du faisceau et donc calculer l'écart-type du pointé des 20 derniers tirs. Typiquement, les valeurs de stabilité du faisceau en intensité et en pointé sont, en écart type, 10% de la valeur en intensité moyenne et  $0.15\sigma$  de la position centrale moyenne (en champ lointain, mesuré à 24 mm de plan focal) respectivement, avec  $FWHM = 2\sqrt{2\ln(2)}\sigma$ , où FWHM est la largeur à mi-hauteur du faisceau harmonique sur la caméra CCD.

La figure 3.12 montre une figure de diffraction provenant d'un objet avec une référence HERALDO (visible dans l'insert) enregistrée avec une accumulation de 40 tirs avant et après optimisation de la stabilité du faisceau harmonique H33. En effectuant





**Figure 3.12** L'image en haut à gauche montre une figure de diffraction accumulée sur 40 tirs pour l'objet HERALDO -dont on peut voir une image MEB dans l'insert- avant optimisation du faisceau. L'image en haut à droite est une figure de diffraction sur 40 tirs recueilli après optimisation de la stabilité du pointé du faisceau. Le graphe du bas montre la coupe des franges d'interférences horizontales en rouge pour la stabilité non optimisée et en bleu pour le faisceau stabilisé.

une coupe des franges horizontales provenant de l'interférence entre l'objet et la référence HERALDO dans les deux conditions, on observe une très nette amélioration de la visibilité après optimisation de la stabilité du faisceau. Il est quasiment impossible d'observer des franges bien définies à partir de la figure de diffraction obtenue avec un faisceau non stabilisé (en rouge dans la figure du bas de 3.12). En répétant une mesure de la visibilité moyenne des franges pour un coupe horizontale de 200 interférogrammes,

on obtient un écart-type de 11%.

Les paramètres optimaux des faisceaux harmoniques H33 et H25 sont récapitulés dans les tableaux 3.13 et 3.14.

Longueur d'onde	24.24 nm
Énergie de l'impulsion au plan focal	$\sim 10^7$ photons/tir
Durée de l'impulsion	20 fs
Taux de répétition	20 Hz
Intensité au focus	$\approx 10^{10}$ W/cm <sup>2</sup>
Diamètre tâche focale	5 μm
Cohérence spatiale	$\approx 0.85$
Finesse ( $\lambda/\Delta\lambda$ )	120

**Figure 3.13** Faisceau harmonique optimal à H33 généré par le montage LUCA dans le néon.

Longueur d'onde	32 nm
Énergie de l'impulsion au plan focal	$\sim 10^9$ photons/tir
Durée de l'impulsion	20 fs
Taux de répétition	20 Hz
Intensité au focus	$\approx 10^{12}$ W/cm <sup>2</sup>
Diamètre tâche focale	4.5 μm
Cohérence spatiale	$\geq 0.8$
Finesse ( $\lambda/\Delta\lambda$ )	50

**Figure 3.14** Faisceau harmonique optimal à H25 généré par le montage LUCA dans l'argon.

# Chapitre 4

## Imagerie sans lentille 2D

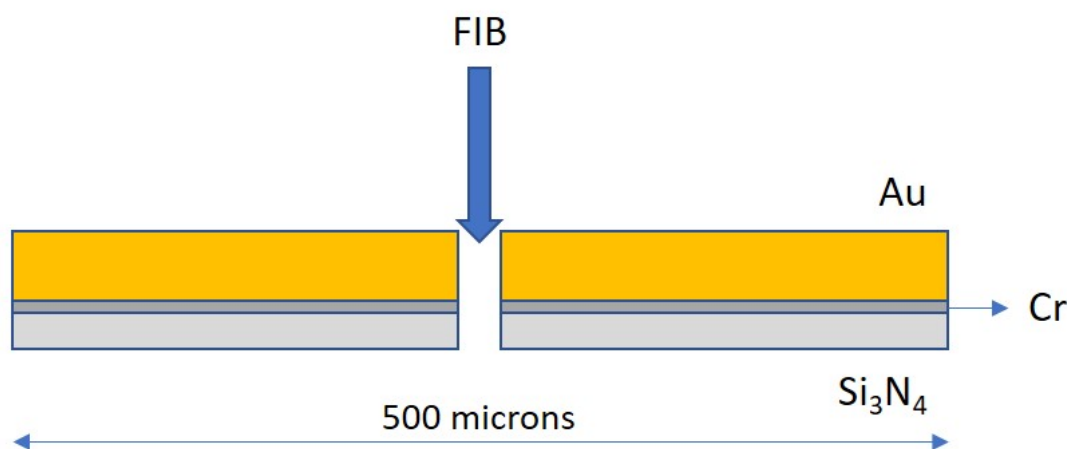
### 4.1 Introduction

Dans ce chapitre, je présente des résultats d'imagerie sans lentille en utilisant des techniques de diffraction cohérente. Je discute les paramètres importants de l'imagerie sans lentille et des techniques de traitement des données qui influent sur la qualité de la reconstruction (cohérence spatiale du faisceau, rapport signal sur bruit, accumulation de tirs, superposition des reconstructions...). On présente aussi des résultats préliminaires d'une expérience d'imagerie d'objets de phase avec une source harmonique réalisée à l'Institut Helmotz de Jena.

### 4.2 Préparation des échantillons

Afin de pouvoir effectuer la reconstruction de l'objet dans un seul plan il faut que l'on puisse considérer son épaisseur  $e$  comme négligeable. C'est possible si il est "optiquement fin", comme expliqué en section 2.2.2. Cette approximation est valide si  $e < \frac{2r^2}{\lambda}$  avec  $r$  la résolution transverse souhaitée et  $\lambda$  la longueur d'onde de la source. Bien que la résolution théorique maximale atteignable soit  $\lambda$ , dans notre cas une résolution de  $100nm$  est suffisante. Cela nous contraint à dessiner un objet plus fin que  $625nm$  dans le cas où nous utilisons H33 et  $825nm$  pour H25. Selon l'expérience réalisée (expérience d'imagerie 3D, imagerie de phase...), nous utilisons différents types d'échantillons. Pour les expériences du chapitre 5 et de la section 4.5.1 on utilise des échantillons dessinés

sur des membranes de nitrure de silicium  $Si_3N_4$  de  $75nm$  d'épaisseur sur lesquelles est déposée une couche  $150nm$  d'or avec  $4nm$  de Cr pour réaliser l'adhésion des deux membranes. Au Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM) à Orsay, on utilise un faisceau d'ions focalisé (FIB) pour graver les échantillons, couplé à un microscope électronique à balayage pour observer l'étape de gravure en temps réel et réaliser des images des échantillons finaux. La gravure retire toutes les épaisseurs de chrome, d'or et de nitrure de silicium. La précision de gravure est d'environ  $10nm$ . Les  $150nm$  d'or ont une transmission quasiment nulle, rendant les contours de l'objet opaques à notre source d'illumination, ( $T = 1.8 \times 10^{-7}$  pour H33 et  $T = 2.8 \times 10^{-9}$  pour H25 tiré de la base de données CXRO), résultant en un objet d'amplitude purement binaire (transmission de 0 pour la membrane et 1 pour l'objet). Comme mentionné précédemment, pour reconstruire un objet à l'aide de techniques itératives il faut que celui-ci soit isolé spatialement. Le théorème de Babinet affirme que la figure de diffraction d'un objet opaque entouré de vide (transmission 1) est identique à celle d'un objet identique possédant une transmission opposée (objet avec une transmission de 1 au sein d'une membrane opaque). Seul change l'intensité globale transmise du faisceau incident. Les échantillons utilisés sont donc les conjugués d'objets réel opaques parfaitement isolés. L'échantillon utilisé pour l'imagerie de phase est légèrement différent et sera détaillé en section 4.6.



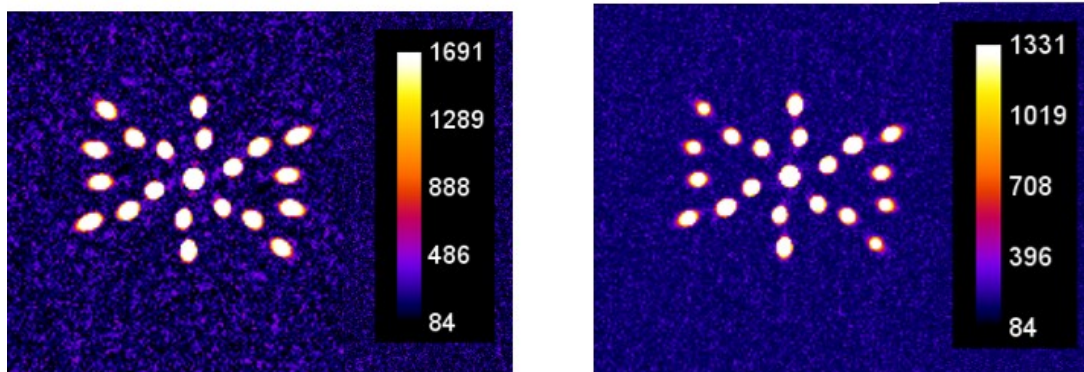
**Figure 4.1** Schéma de gravure des échantillons 2D avec le FIB. Les membranes d'or, de chrome et de nitrure de silicium font  $150nm$ ,  $4nm$  et  $75nm$  d'épaisseur respectivement.

## 4.3 Amélioration du SNR

### 4.3.1 Accumulation et HDR

En règle générale, quelques  $10^7$  photons diffractés utiles sur le détecteur suffisent à reconstruire un objet par algorithme itératif (sensiblement moins pour les techniques holographiques). Quand on utilise l'harmonique 25 généré dans l'argon, notre source possède un flux de photons suffisamment élevé pour effectuer des reconstructions simple tir (cf section 4.5.1). Cependant, une accumulation d'une dizaine de tirs permet une amélioration du RSB et de la résolution de la reconstruction, à condition que le faisceau soit stable [1]. Dans un régime de faible flux de photons (proche de la limite basse permettant une reconstruction) le bruit qui prédomine est le bruit de lecture de la caméra CCD (ou *readout noise* en anglais). A l'inverse, quand on possède un fort signal de diffraction (par exemple 1000 tirs laser accumulés avec H25) le bruit de photons domine. Dans ce cas on dit que la figure de diffraction est *photon limited* en anglais. La figure 4.2 montre un cas de figure intéressant : on souhaite effectuer des mesures de cohérence spatiale du faisceau harmonique en simple tir avec H25. Nous optimisons notre faisceau harmonique en flux XUV et non pas en stabilité afin de pouvoir réaliser des mesures simple tir. Ce qui signifie que la stabilité tir à tir du pointé de faisceau, du profil et de la phase spatiale, du front d'onde, de la cohérence spatiale n'est pas optimale. Dans ce cas précis, on n'observe pas d'amélioration dans la qualité de la reconstruction lors d'une accumulation de plusieurs tirs lasers avec un long temps d'acquisition. En réalité, la reconstruction par FTH provenant d'une accumulation de 100 tirs laser possède un RSB et une résolution (critère 10 – 90%) plus faible que la reconstruction en simple tir, de 15 et 168nm et de 19 et 145nm respectivement. Cela est dû à la diminution de la visibilité des franges de la figure de diffraction accumulée provoquée par la variation tir à tir du pointé du faisceau. En effet, l'accumulation de plusieurs tirs laser lors de l'acquisition est une somme incohérente de toutes les figures de diffractions simple tir accumulées compte tenu du taux de répétition des impulsions XUV (20Hz). C'est cette somme incohérente qui peut entraîner un brouillage des franges et dégrader la qualité de la reconstruction.

Néanmoins, il existe des cas de figure où une accumulation de centaines voir de milliers de tirs laser est indispensable. C'est le cas par exemple, quand on travaille avec



**Figure 4.2** L'image de gauche est la transformée de Fourier d'une figure de diffraction simple tir obtenue avec le NRA utilisé dans la section 4.5.1. La figure de droite est la transformée de Fourier d'un signal de diffraction accumulé pour 100 tirs laser. Le rapport signal sur bruit et la résolution de la reconstruction sont détériorés par l'accumulation de tirs laser.

l'harmonique 33 générée dans le néon (voir chapitre 5), où le nombre de photons par tir est environ 2 ordres de grandeur trop faible pour effectuer des reconstructions simple tir. Dans ce cas, notre faisceau harmonique sera optimisé en stabilité afin d'obtenir une figure de diffraction "nette", avec un contraste maximal des franges d'interférence.

En plus de la perte de visibilité des franges, un autre problème est susceptible d'intervenir lors d'une accumulation de tirs : la saturation de la dynamique du capteur CCD. En effet, nos échantillons étant majoritairement d'amplitude binaire, ils transmettent une grande partie du faisceau incident ce qui peut entraîner une saturation du centre de la figure de diffraction. La saturation de la caméra entraîne la création de fausses informations sur les valeurs des pixels du centre de la figure de diffraction, induisant d'importants artefacts dans l'image et pouvant même rendre impossible une reconstruction de l'objet. De plus, quand on s'approche de la limite de saturation de la caméra, la réponse de la détection des photons par le capteur n'est plus linéaire. Cet effet induit donc une erreur sur la valeur ADU affichée dans cette zone de la figure de diffraction. À l'inverse, si trop peu de hautes fréquences spatiales sont enregistrées par le capteur CCD, la résolution de la reconstruction diminuera. Pour remédier à ce problème on utilise la technique HDR, pour *High Dynamic Range* en anglais.

La technique HDR est principalement utilisée en photographie afin d'obtenir une plus grande plage dynamique et améliorer le contraste dans une image. Cette technique de traitement post-acquisition consiste à enregistrer plusieurs images avec différents temps d'acquisitions et à les assembler. L'application de cette technique à l'enregistrement des figures de diffraction permet de récupérer les hautes fréquences grâce à la la figure de

diffraction saturée. L'enregistrement d'une autre image à la limite de saturation permet d'utiliser la totalité de la dynamique du capteur au centre de la figure de diffraction. On cumule les deux avantages des deux temps d'acquisition : hautes fréquences avec un bon RSB pour l'image saturée et grande dynamique dans centre de la figure de diffraction pour l'image non saturée). Il est possible d'assembler plus que deux images, par exemple lorsqu'on utilise un très grand temps d'acquisition et où une grande partie de la dynamique de la figure de diffraction est saturée. Les différentes étapes de la technique HDR sont :

- On délimite la ROI où la dynamique est saturée à l'aide d'un seuillage ou d'une sélection manuelle (avec une routine MATLAB par exemple).
- On crée un masque binaire à partir de cette ROI (0 dans la zone saturée et 1 pour le reste) qu'on applique à l'image saturée. On applique le filtre opposé à l'image non saturée.
- On applique un filtre gaussien sur les masques binaires afin d'adoucir les bords de la ROI et de ne pas induire de fréquences artificielles lorsqu'on recombine les deux images.
- On applique un facteur multiplicateur à l'image non saturée qu'on trouve en calculant la valeur moyennes des pixels situés juste à l'extérieur de la zone saturée dans les deux images.
- On sélectionne l'image non saturée (à l'intérieur du rectangle après filtrage) et l'image saturée (à l'extérieur du rectangle après filtrage), et on assemble les deux.

L'intérêt de la technique est illustré dans la partie [5.2.3](#) où aucune reconstruction de la paire d'image stéréo n'est possible à partir simplement d'une figure de diffraction saturée (temps d'acquisition 180s) ou à la limite de la saturation (30s de temps d'acquisition). Il est nécessaire de combiner les deux pour parvenir à une reconstruction.

### 4.3.2 Superposition des reconstructions

Afin d'améliorer le contraste et le rapport signal sur bruit des reconstructions on superpose de façon cohérente plusieurs reconstructions issues de plusieurs lancements indépendants de l'algorithme. Cela signifie que nous superposons les images de l'objet en amplitude et en phase. Avec nos objets binaires, la phase joue un rôle crucial : bien définie au sein de l'objet mais aléatoire en dehors, elle permet ainsi d'augmenter le

contraste. L'annexe 6 détaille comment la superposition cohérente permet d'obtenir une amélioration du RSB.

Pour sommer les reconstructions précisément on utilise l'algorithme *DFT registration* développé par Guizar-Sicairos et Fienup [73]. Grâce à un redimensionnement des images cet algorithme permet d'aligner les images avec une précision inférieure au pixel. Il utilise pour cela la corrélation entre la transformée de Fourier des deux images que l'on souhaite aligner. En induisant un décalage entre les deux images et observant où est situé le maximum de la corrélation on obtient la valeur de la translation entre les images.

## 4.4 Étude SNR dans les reconstruction holographiques

### 4.4.1 Impact du bruit de lecture et des filtres de reconstruction : résultats expérimentaux

Dans nos expériences réalisées sur LUCA notre signal de diffraction n'est pas, en général, limité par le bruit de photon à cause de la faible énergie des photons et du flux de photon modéré. Ainsi le bruit de détection contribue de façon importante au bruit total de l'hologramme. On rappelle que le RSB est par définition :  $RSB = \frac{RMS_{signal}^2}{RMS_{bruit}^2}$ . Avec  $RMS = \sqrt{mean^2 + \sigma^2}$  On peut séparer le bruit en quatre composantes indépendantes selon leur nature :

- Le bruit de photons directement lié au signal de diffraction et possédant une distribution de Poisson avec un rapport signal sur bruit qui vaut :  $RSB = \frac{N}{\sqrt{N}} = \sqrt{N}$  avec  $N$  le nombre de photons. On note que dans le cas d'une longue accumulation, comme c'est le cas quand on utilise H33, la majorité des pixels de la figure de diffraction sont limités par le bruit de photons.
- Le bruit de lecture, provenant du capteur CCD lors de l'étape d'enregistrement de la figure de diffraction. Il est issu de l'incertitude introduite lors de la quantification du signal électronique. Il est caractérisé par sa variance  $\sigma_{readout}^2$ .
- Le bruit de courant d'obscurité ou *dark noise* en anglais, en électron/pixel/s, induit par les électrons générés dans les couches de silicium du détecteur. Le courant d'obscurité décrit la statistique des électrons thermiques, qui suivent une distribution de Poisson, pour une température de CCD et un temps d'acquisition



donné. On peut le réduire en diminuant la température du détecteur CCD. Il vaut  $0.05e^-/pixel$  pour 100s d'acquisition à  $-40^\circ$ .

- Le bruit de lumière parasite, provenant de la diffusion du faisceau harmonique ou IR pendant le trajet du faisceau depuis la génération jusqu'à l'objet.

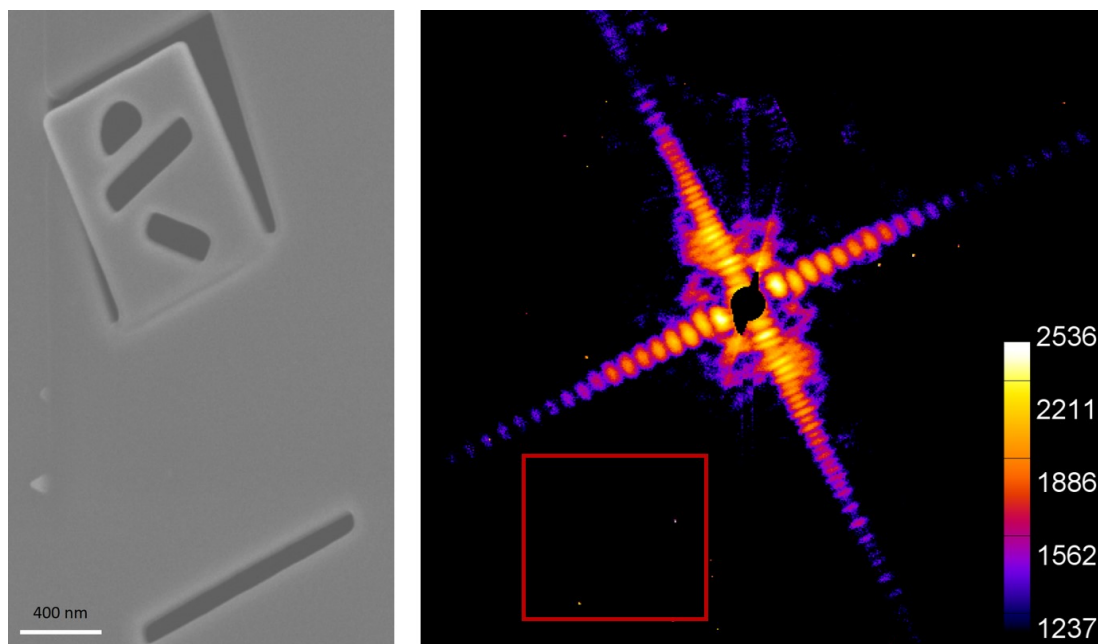
On réduit le bruit de lumière parasite en plaçant des filtres après séparation entre le faisceau harmonique et le faisceau IR et en plaçant un cache autour du capteur CCD. Par définition, on ne peut pas diminuer le bruit de photons mais on peut augmenter le RSB qui lui est associé en augmentant le flux de photons (efficacité de la génération HH, transmission de la ligne de lumière, réduction du diamètre de la tache focale, temps d'acquisition plus long). Rapprocher le capteur CCD de l'objet est aussi un moyen d'augmenter le nombre de photons diffractés par pixel et d'augmenter le RSB du bruit de photons. En général, dans un régime de faible flux de photons, le bruit est dominé par le bruit de lecture et dans un régime de fort flux, ou pour de longs temps d'acquisition, le bruit dominant est le bruit de photons. On a vu que pour H25, un photon détecté génère 10 électrons ce qui est comparable au bruit de lecture à 1MHz. Par conséquence, la qualité de la figure de diffraction mesurée est principalement influencée par le bruit de photon et le bruit de lecture. On peut alors écrire que le rapport signal sur bruit de la figure de diffraction vaut :

$$RSB_{diffraction} = \frac{N_{signal}}{\sqrt{N_{signal} + \sigma_{readout}^2}} \quad (4.1)$$

On distingue deux régions sur nos figures de diffraction : la région des hautes fréquences spatiales, limitée par le bruit de lecture et la région des basses fréquences spatiales qui est limitée par le bruit de photons. On dit qu'un pixel ou une zone du signal est limité par le bruit de photon quand la valeur ADU du pixel est au moins 10 fois plus grande que la valeur moyenne du bruit de lecture. A l'inverse, un pixel ou une région de la figure de diffraction est limité par le bruit de lecture quand la valeur ADU du pixel est comprise dans l'étendue de la distribution du bruit de lecture. Enfin les pixels dont les valeurs ADU se situent entre les deux limites sont des pixels de bruit mixte.

Comme on l'a vu précédemment, la technique HERALDO requiert l'utilisation d'un opérateur linéaire qui dépend de la forme de la référence utilisée. On réalise cette étape en effectuant une multiplication point par point de la figure de diffraction avec un filtre  $W_{p,q}$ , où  $p, q$  sont les coordonnées pixels dans l'espace de Fourier. Puis, on applique une

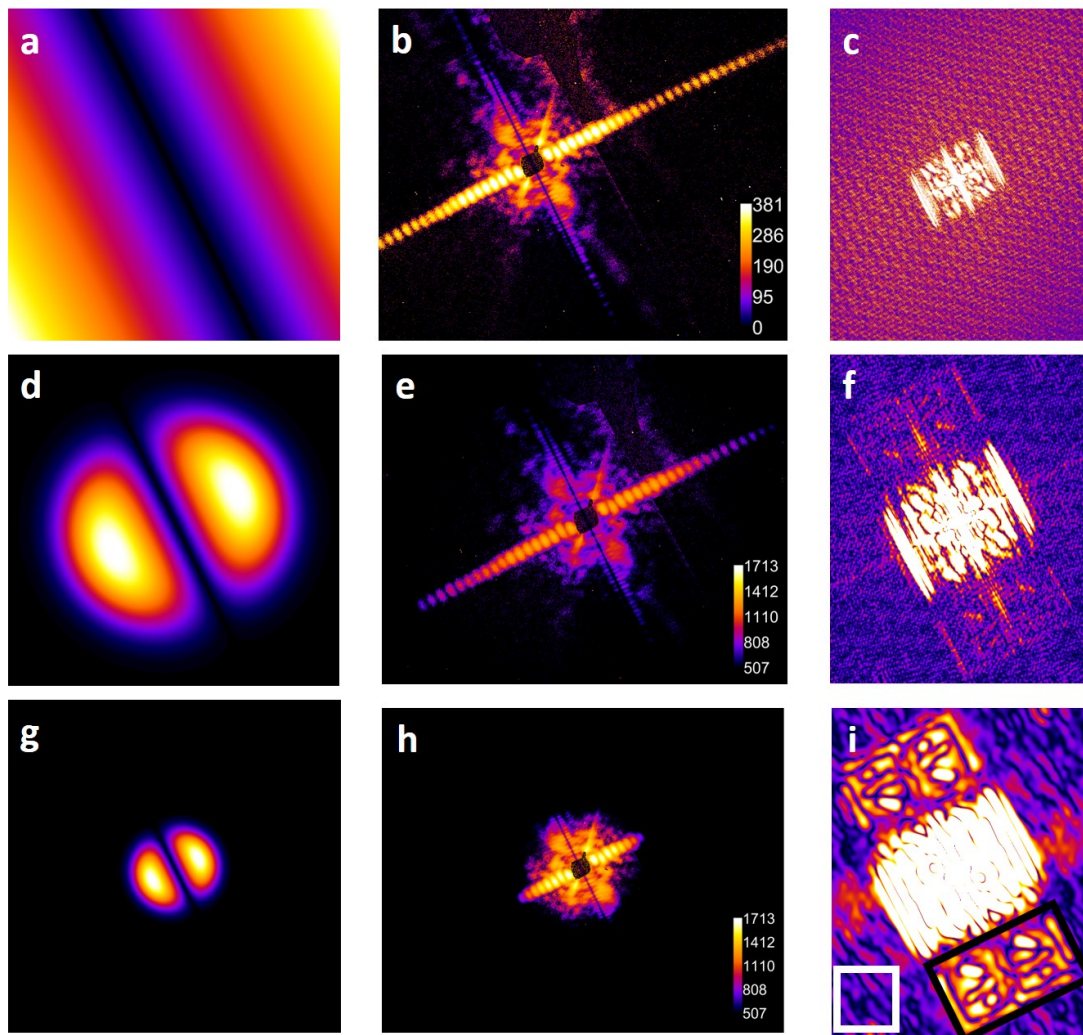
transformée de Fourier inverse au signal de diffraction filtré pour obtenir la reconstruction de l'objet.  $W_{p,q}$  est un filtre-passe haut, qui va donc amplifier les régions de hautes fréquences spatiales où le bruit domine. Pour compenser cela on utilise un filtre-passe bas afin d'éliminer le bruit de lecture amplifié. L'exemple suivant, tiré de la section 5.2.4, démontre pourquoi le filtre passe-bas est essentiel à l'étape de reconstruction HERALDO dans des figures de diffraction où le bruit n'est pas négligeable. L'échantillon HERALDO étudié ici est présenté dans la figure 4.3 à gauche. A droite est présentée une figure de diffraction de l'échantillon, obtenue pour un temps d'acquisition de 300s, avec une fréquence de lecture de 100kHz, un facteur de binning de  $2 \times 2$ , dans une fenêtre de  $680 \times 500$  pixels. Le signal de diffraction mesuré est de  $\sim 10^8$  photons. L'image à l'extérieur du signal de diffraction est dominée par le bruit de lecture, il possède un écart type de 5 ADU et une moyenne de 9 ADU, mesuré dans le carré rouge.



**Figure 4.3** L'image de gauche est une image MEB de l'échantillon HERALDO. L'image de droite est la figure de diffraction en échelle logarithmique correspondante obtenue pour un temps d'acquisition de 300s

La figure 4.4 illustre l'influence du filtre passe-bas sur la qualité de la reconstruction. Quand aucun filtre passe-bas n'est utilisé (images du haut a,b,c) les hautes fréquences spatiales sont amplifiées après application du filtre multiplicatif et les reconstructions sont détériorées par la contribution importante du bruit de lecture. Il est impossible de reconstruire l'objet. L'application d'un filtre passe-bas de trop grand diamètre (400 pixels) pour diminuer le bruit de lecture permet d'obtenir une reconstruction, mais de très mauvaise qualité comme on peut le voir pour les images de la ligne du milieu (d,e,f).

Enfin appliquer un filtre passe-bas de diamètre approprié (140 pixels) permet d'éliminer la contribution du bruit de lecture pour les hautes fréquences spatiales et d'obtenir une reconstruction satisfaisante de l'objet (images g,h,i).



**Figure 4.4** Influence du filtre passe-bas sur le processus de reconstruction HERALDO. (a,d,g) Filtre multiplicatif sans (a) et avec un filtre passe-bas super Gaussien d'ordre 3 (de diamètre 400 et 140 pixels pour (d) et (g) respectivement). (b,e,h) résultats de la multiplication dans l'espace de Fourier de la figure de diffraction expérimentale par le filtre multiplicatif HERALDO (a,d,g respectivement). (c,f,i) transformée de Fourier inverse de b,e,h respectivement, donnant la reconstruction de l'objet. Il est impossible de distinguer l'objet dans la reconstruction sans filtre passe bas gaussien (c) car il est noyé dans le bruit. La reconstruction obtenue avec un filtre gaussien de grand diamètre (f) est de mauvaise qualité, à cause de la contribution encore trop importante du bruit de lecture. Enfin la reconstruction (i) obtenue avec un filtre super gaussien de diamètre adapté (140 pixels) permet d'obtenir une bonne reconstruction de l'objet.

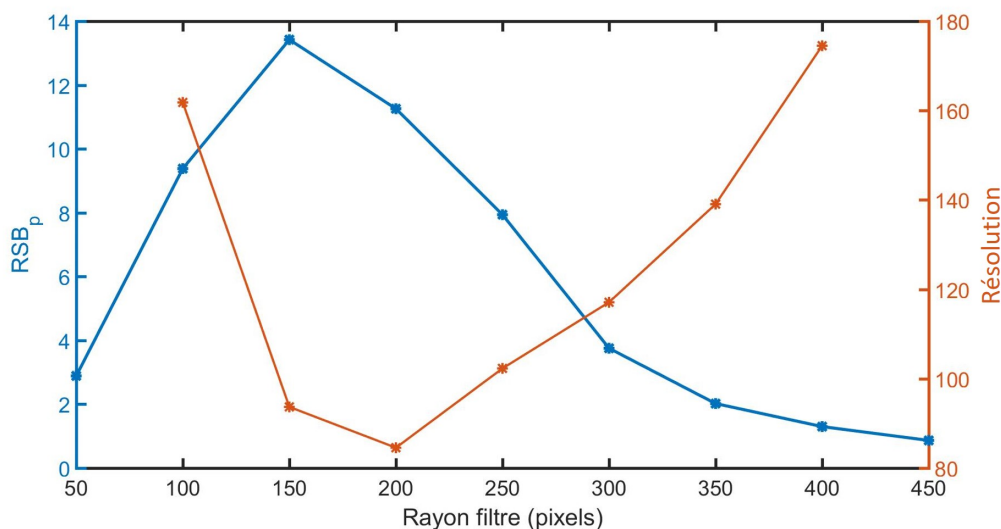
Afin de quantifier la contribution du bruit dans l'image reconstruite, on utilise la puissance du RSB de l'image reconstruite [4] :

$$RSB_p = \frac{\sum_{p,q}^{N_0} |O_{p,q}|^2}{N_0 \langle |\sigma_{p,q}|^2 \rangle} \quad (4.2)$$

Le  $RSB_p$  est le ratio entre l'énergie du signal (objet reconstruit) et l'énergie du bruit dans l'image reconstruite. L'énergie du signal ( $\sum_{p,q}^{N_0} |O_{p,q}|^2$ ) est calculée en intégrant le signal à l'intérieur de la région de l'objet  $N_0$  (le rectangle noir de l'image (i) de la figure 4.4) et l'énergie du bruit est la multiplication de  $N_0$  (la taille de l'objet dans l'image reconstruite) et de la variance du bruit, calculée dans la région sans signal (rectangle blanc de l'image (i) de la figure 4.4). Cette définition prend en compte la contribution du bruit de photons et du bruit de lecture. Cependant,  $|O_{p,q}|$  peut être une reconstruction floue ou fortement modulée si le diamètre du filtre super-gaussien est trop petit ou si la référence utilisée n'est pas "nette". En effet, le  $RSB_p$  ne prend en compte que les effets du bruit statistique et n'inclut pas les pertes de résolution ou les modulations locales de la reconstruction.

La figure 4.5 illustre plus clairement l'effet du diamètre du filtre passe-bas sur la qualité de la reconstruction. En utilisant la figure de diffraction présentée en figure 4.3 on effectue des reconstructions de l'objet en variant le rayon du filtre passe-bas super-gaussien de 50 à 450 pixels. On trouve la meilleure résolution en optimisant le rayon du filtre (81nm, obtenue pour un filtre de 165 pixels de rayon). En effet, en dessous d'un rayon de filtre de 450 pixels le nombre de pixels limités par le bruit de lecture commence à diminuer, puis lorsqu'on diminue le rayon en dessous de 250 pixels le nombre de pixels limités par le bruit de photon et celui des pixels de bruits mixtes diminuent fortement : on supprime alors la contribution de fréquences spatiales importante à la reconstruction de l'objet. La valeur maximale du  $RSB_p$ , 13.7, est obtenue en choisissant un filtre de 150 pixels de diamètre. Il faut donc trouver un équilibre entre augmenter le  $RSB_p$  de la reconstruction en diminuant le rayon du filtre et optimiser la résolution en gardant le maximum de photons provenant des hautes fréquences spatiales. Bien sur, augmenter le rayon du filtre au delà d'une certaine valeur se traduit par une diminution de la résolution : la contribution des pixels limités par le bruit de lecture devient alors trop importante et détériore la reconstruction (artefacts et franges apparaissent). Au delà de 450 pixels, il est impossible de distinguer l'objet. A l'inverse en diminuant le rayon en dessous d'une certaine valeur (80 pixels) on détruit complètement la reconstruction de l'objet en excluant trop de pixels limités par le bruit de photons. L'image obtenue est

alors totalement floue, ce qui traduit par une baisse du  $RSB_p$  et, surtout, de la résolution. En effet, un filtre de rayon 80 pixels impose une limite de résolution de  $105nm$ , ce qui est trop faible pour résoudre les détails les plus fins de l'objets qui font  $100nm$ . On remarque que le diamètre du filtre passe-bas qui maximise le  $RSB_p$  est plus petit que celle qui permet d'obtenir la meilleure résolution. On comprend que, en diminuant le diamètre du filtre à partir du maximum de résolution, on peut augmenter le signal reconstruit au détriment de la netteté de l'image.



**Figure 4.5** Évolution du  $RSB_p$  et de la résolution (en  $nm$ ) de la reconstruction en fonction du rayon du filtre passe-bas. La meilleure résolution ( $81nm$ ) est obtenue pour un rayon de 200 pixels. Il est impossible de calculer une résolution pour les rayons 50 et 450 pixels, l'objet étant trop flouté et modulé par des franges, respectivement. Le maximum du  $RSB_p$  vaut 13.7, obtenu pour un rayon de 150 pixels et la résolution maximale vaut  $81nm$ , obtenue pour un rayon de 165 pixels.

#### 4.4.2 Analyse théorique de l'impact du filtre multiplicatif dans la technique HERALDO

Comme observé expérimentalement dans la section précédente, nous allons voir ici théoriquement que le RSB peut être amélioré par un choix approprié du filtre super-gaussien dans les reconstructions HERALDO. Notons  $|O|$  et  $|R|$  les modules des champs diffractés objet et référence respectivement.

L'hologramme enregistré peut alors s'écrire :

$$H = |O + R|^2 = |O|^2 + |R|^2 + 2|O||R| \quad (4.3)$$

Les deux premiers termes représentent la contribution individuelle l'objet et de la référence et le 3ème terme provient de leur interférence. Si on considère seulement le signal utile de la reconstruction holographique, le RSB associé à l'hologramme s'écrit :

$$RSB = \frac{2|O||R|}{\sqrt{|O|^2 + |R|^2 + 2|O||R|}} \quad (4.4)$$

Pour calculer le rapport signal sur bruit, nous devons prendre en compte deux types de bruits : le bruit de photons et le bruit de lecture (de variance  $\sigma_l^2$ ). On néglige ici le bruit thermique et le bruit de lumière parasite. L'écart type du bruit de photons est  $\sigma_{ph} = \sqrt{N}$ , en notant  $N$  le nombre de photons. Dans le cas d'une configuration holographique, on a alors :  $\sigma_{ph}^2 = |O|^2 + |R|^2$ .

On peut donc écrire le rapport signal sur bruit de l'hologramme avant application de l'opérateur linéaire  $U$  sous la forme suivante :

$$RSB = \frac{|O||R|}{\sqrt{\sigma_{ph}^2 + \sigma_l^2}} = \frac{|O||R|}{\sqrt{|O|^2 + |R|^2 + \sigma_l^2}} \quad (4.5)$$

Afin d'extraire l'objet de la convolution entre l'objet et la référence HERALDO il faut appliquer un filtre multiplicatif  $U$  à la figure de diffraction. Cela revient à reconstruire l'objet  $|O|$  du terme de convolution  $|O||R|$ , soit :

$$U_\alpha |O||R| \equiv |O| \quad \text{et} \quad U_\alpha |R| \equiv 1 \quad (4.6)$$

Après cette étape, le rapport signal sur bruit de la reconstruction de l'objet s'écrit [2] :

$$RSB_{\text{image}} = \frac{|O|}{\sqrt{1 + U^2|O|^2 + U^2\sigma_l^2}} \quad (4.7)$$

On peut alors exprimer le rapport signal sur bruit en fonction du filtre multiplicatif  $U$  nécessaire à la reconstruction.

On peut décomposer l'hologramme en plusieurs régions d'intérêt afin de calculer le rapport signal sur bruit dans chacune d'elles.

1. La zone où la contribution de la référence domine (l'axe du sinus cardinal dans le cas d'une fente par exemple). La valeur du masque  $U$  est négligeable et on obtient :

$$\lim_{U \rightarrow 0} \text{RSB}_{image} = |O| \quad (4.8)$$

On a ici une limitation du rapport signal sur bruit par la contribution de l'objet au signal diffracté.

2. Région où la contribution de la référence au signal de diffraction est faible. On a :

$$\text{RSB}_{image} \sim \frac{|O|}{U \sqrt{|O|^2 + \sigma_l^2}} \quad (4.9)$$

Deux cas de figure se présente : soit la contribution de l'objet au signal de diffraction est importante (zone centrale typiquement, où les pixels sont limités par le bruit de photons), soit la contribution de l'objet est négligeable (périphérie, où la majorité des pixels sont limités par le bruit de lecture) :

$$\text{RSB}_{image} \underset{\frac{\sigma_l}{|O|} \rightarrow 0}{\sim} \frac{1}{U} \quad (4.10)$$

$$\text{RSB}_{image} \underset{\frac{|O|}{\sigma_l} \rightarrow 0}{\sim} \frac{1}{U} \times \frac{|O|}{\sigma_l} \quad (4.11)$$

Le second cas illustre l'impact du filtre multiplicatif  $U$  sur les zones de hautes fréquences spatiales où le bruit de lecture est majoritaire et la contribution de la référence est faible. Il agit ici comme un filtre passe-haut amplifiant le bruit. C'est pourquoi il est important d'ajouter un filtre passe-bas gaussien à  $U$ , permettant de diminuer la contribution du bruit amplifié à la reconstruction de l'objet.

Dans le cas de la FTH cependant, on peut considérer que la contribution de la référence au signal de diffraction est négligeable compte tenu de son diamètre relativement petit. On peut alors écrire :

$$\text{RSB}_{FTH} \underset{|R| \ll |O|}{=} \frac{|O||R|}{\sqrt{|O|^2 + \sigma_l^2}} \quad (4.12)$$

Dans le cas où la contribution de l'objet est grande devant le bruit de lecture (pixels limités par le bruit de photons) , on a :

$$\text{RSB}_{FTH} \underset{\frac{\sigma_l}{|\mathcal{O}|} \rightarrow 0}{\sim} |R| \quad (4.13)$$

On met ici en évidence le rôle crucial de la référence circulaire, qui influe le rapport signal sur bruit de la reconstruction. C'est le compromis entre RSB et résolution, classique en FTH : si elle est de diamètre trop petit, la référence diminue le rapport signal sur bruit (comme on peut le voir dans l'équation 4.13); trop grande, on "floute" la reconstruction lors de la convolution avec l'objet et on détériore résolution. En conclusion, le rapport signal sur bruit semble toujours limité par la contribution "signal faible" de l'échantillon (qu'il provienne de la référence ou de l'objet).

#### 4.4.3 Impact du bruit de lecture et du binning *hardware*

Après avoir montré les contraintes qu'impose le bruit crée par le détecteur dans des expériences de faible flux, on s'intéresse à l'amélioration des reconstructions grâce à des procédures post-détection (software) ou pendant l'étape d'enregistrement (*hardware*) de la figure de diffraction. La caméra que nous utilisons (PI-MTE CCD de Princeton Instrumentcaméra) est refroidie à  $-40^\circ$  à l'eau par effet Peltier. L'efficacité de détection est

$$I_{adu} = \frac{\gamma_e Q}{G} N_{photon} \quad (4.14)$$

avec  $I_{adu}$  la valeur ADU (pour *analog to digital unit* en anglais) affichée par les pixels de la caméra. La dynamique des valeurs ADU est celle de la caméra : 16 bits (soit de 0 à 65535).  $G$  est le gain système qui définit la relation entre le nombre d'électrons acquit sur le capteur CCD et la valeur ADU affichée.  $Q$  est l'efficacité quantique de la caméra CCD, c'est à dire la probabilité de produire des électrons à partir du nombre de photons incidents  $N_{photon}$ .  $\gamma_e$  est le nombre d'électrons générés pour un photon incident. Il vaut :

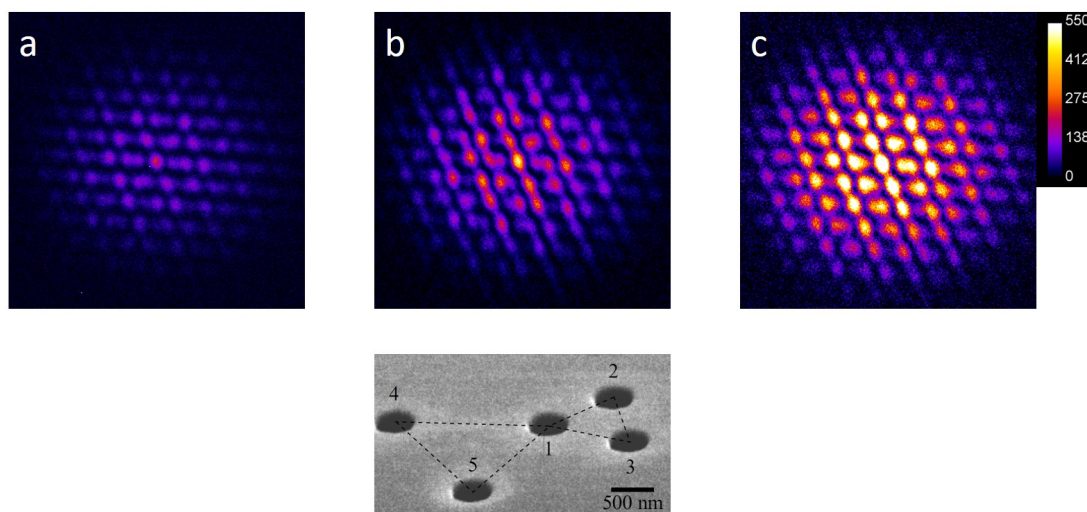
$$\gamma_e = \frac{E(eV)}{3.65} \quad (4.15)$$

Avec  $E$  l'énergie du photon incident. Pour des photons dans la gamme de  $30 - 100eV$ , on a  $Q \sim 40\%$  et  $G = 1.3e^-/ADU$ . Donc pour H33 on a  $I_{adu} = 3N_{photon}$  et pour H25 on a,  $I_{adu} = 4.3N_{photon}$ . La valeur du bruit de lecture mesuré (écart-type) vaut

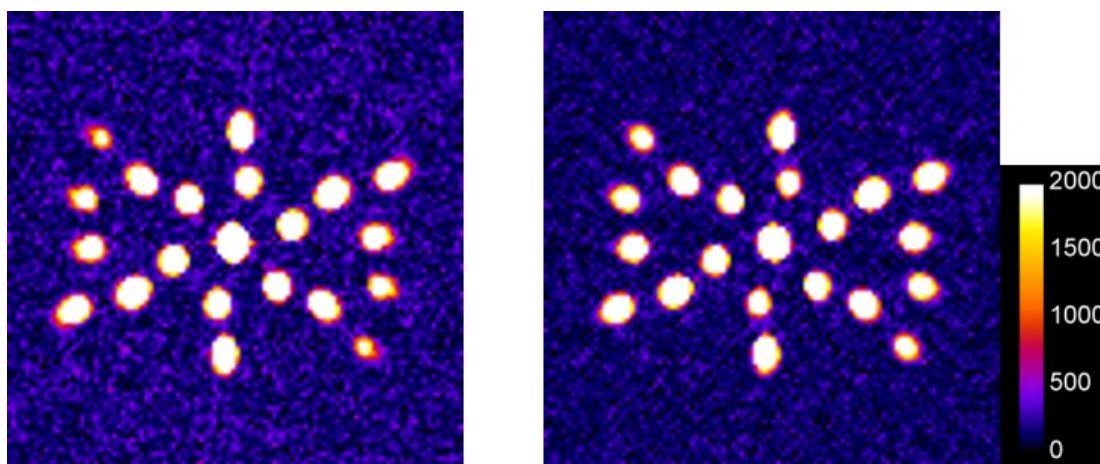


$9.5ADU$  et  $3.3ADU$ , soit  $\sim 12$  et  $\sim 4$  électrons, pour des taux de lecture de  $1MHz$  et  $100kHz$  respectivement. Il est donc clair que diminuer le taux de lecture de la caméra réduit l'influence du bruit de lecture. Typiquement on améliore le rapport signal sur bruit de la reconstruction d'un facteur deux en passant de  $1MHz$  à  $100kHz$ . Grâce à la diminution du bruit de lecture, on améliore la résolution de la reconstruction (jusqu'à 25% pour des filtres gaussiens de grand diamètre). Cela s'explique par le nombre de pixels limités par le bruit de photons et de pixels de bruit mixtes, qui sont environ 2 fois plus nombreux pour un taux de  $100kHz$  que pour  $1MHz$  (variable selon l'échantillon) [1]. L'inconvénient du taux de lecture à  $100kHz$  est la durée du temps de lecture qui vaut  $30s$  pour toute la matrice de pixel, contre  $4.5s$  pour  $1MHz$ . Une solution pour le réduire est de sélectionner une ROI sur le capteur afin de diminuer le nombre de pixels à lire. Un autre est d'utiliser du *hardware binning*, technique qui permet de grouper la charge des pixels adjacents pour former un seul pixel plus large lors de l'étape de lecture. Idéalement le binning permet une amélioration du RSB égale au facteur de binning, et permet généralement d'améliorer le contraste. En effet, prenons l'exemple d'un signal de 10 électrons uniforme sur 9 pixels et un bruit de lecture de 2 pixels. Si on effectue un *binning* de  $3 \times 3$ , le pixel aura un signal de 90 électrons et un bruit de lecture de toujours 2 électrons car l'étape de lecture n'est effectuée qu'une seule fois. On a donc augmenté le RSB d'un facteur 9. La différence entre le *hardware binning* et le *software binning* est que ce dernier est effectué après l'étape de lecture. Il augmente donc le RSB associé au bruit de photons mais pas celui du bruit de lecture. Cependant, il faut s'assurer qu'on respecte toujours la condition de sur-échantillonnage linéaire (quand on effectue des reconstructions CDI) et d'échantillonnage (avec des techniques holographiques) avant d'utiliser le binning. La figure 4.6 montre 3 figures de diffractions (a,b,c) enregistrées dans les mêmes conditions expérimentales (même temps d'acquisition, même nombre de photons par tir, même fréquence de lecture...) avec 3 facteurs de binning différents ( $2 \times 2$ ,  $3 \times 3$  et  $4 \times 4$  respectivement). L'image du bas présente une image MEB de l'échantillon étudié. Quand on augmente le facteur de binning, on est capable d'extraire plus de signal dans les hautes fréquences spatiales de l'hologramme, on augmente le nombre de pixels de bruits mixtes et de pixels limités par le bruit de photons en diminuant le nombre de pixels limités par le bruit de lecture. L'image 4.7 compare deux reconstruction de l'objet obtenue par la transformée de Fourier des figure de diffraction 4.6 (a) et (c). On observe une augmentation du  $RSB_r$  d'un facteur 1.84 (passant de 27 à 47) et une amélioration de la résolution (de 170 à 150nm) quand on double le facteur de binning.

Ces résultats ont été obtenus en moyennant le résultat de 50 images reconstruites à partir de 50 acquisitions simple tir pour les deux facteurs de binning. On conclut donc que l'utilisation judicieuse du binning *hardware* permet d'augmenter la qualité de la reconstruction.



**Figure 4.6** Effet du binning *hardware* sur la figure de diffraction. Les figures de diffraction sont enregistrées avec les mêmes conditions, en simple tir. Les facteurs de binning utilisés pour (a,b,c) sont  $2 \times 2$ ,  $3 \times 3$  et  $4 \times 4$  respectivement). La taille des fenêtres utilisées est  $600 \times 600$ ,  $400 \times 400$  et  $300 \times 300$  pour (a,b,c) respectivement. Toutes les figures de diffraction possèdent la même échelle de couleur. En dessous des trois figures de diffraction est présentée l'image MEB de l'échantillon.



**Figure 4.7** Effet du binning *hardware* sur la reconstruction de l'image. La figure de gauche est la transformée de Fourier de la figure de diffraction 4.6 (a) . L'image de droite est reconstruite à partir de la figure de diffraction 4.6 (c) . L'augmentation du facteur de binning se traduit par une augmentation du  $RSB_r$  et de la résolution.

En résumé, nous avons présenté différentes stratégies pour augmenter la résolution et le rapport signal sur bruit dans les reconstructions holographiques, dans un domaine de faible flux de photons, là où le niveau de signal est comparable au bruit de lecture.

Le grand nombre de photons diffractés par l'utilisation de références est ce qui donne à la technique HERALDO sa grande robustesse au bruit de photons. Dans un régime de faible flux, plusieurs sources de bruit sont susceptibles de détériorer la qualité de la reconstruction, le bruit de lecture étant la principale. Le filtre multiplicatif à appliquer sur la figure de diffraction avec la technique HERALDO agit comme un filtre passe haut, amplifiant le bruit aux hautes fréquences spatiales. Ceci entraîne la création d'artefacts, modulations et autres structures artificielles dans la reconstruction. Ajouter un filtre passe bas de diamètre adapté à l'opérateur de dérivation permet de réduire cet effet. L'optimisation de l'étape de détection peut aussi améliorer la qualité de la reconstruction. En effet, on a vu qu'augmenter le facteur de binning *hardware* et diminuer la fréquence de lecture permet d'augmenter le rapport signal sur bruit de la figure de diffraction. Enfin, l'accumulation de plusieurs tirs laser pendant un long temps d'acquisition augmente le nombre de photons diffractés utiles à la reconstruction et améliore globalement la qualité de l'image reconstruite. Le signal est alors généralement limité par le bruit de photons. Cependant afin d'observer une amélioration nette de la qualité de la reconstruction, il faut travailler dans des conditions de stabilité de faisceau optimales (stabilité de pointé de faisceau, stabilité du profil et de la phase spatiale, du front d'onde, de la cohérence spatiale...). Le cas échéant, le contraste des franges de la figure de diffraction diminue, tout comme la qualité de l'image reconstruite.

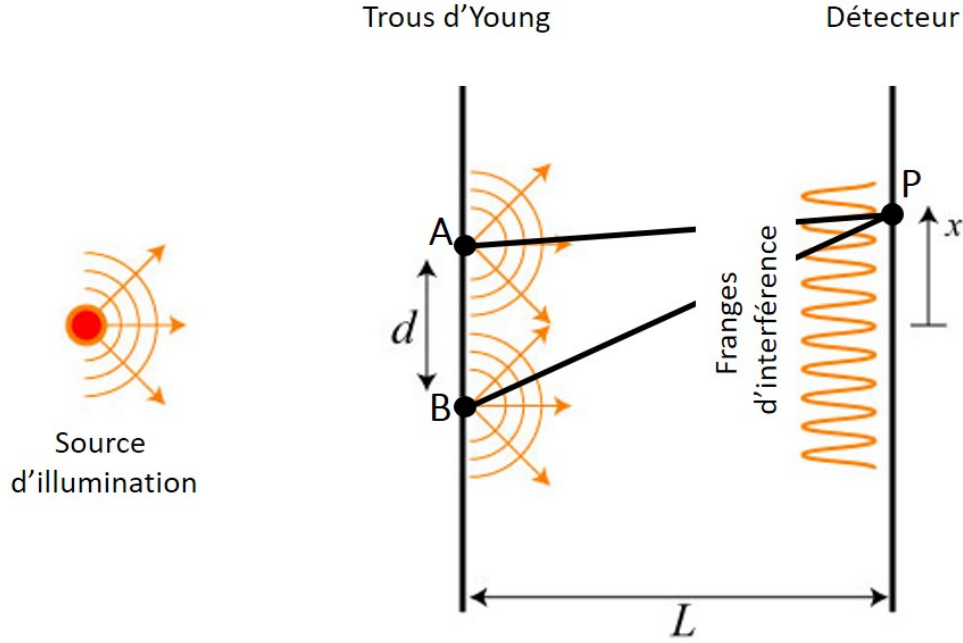
## 4.5 Caractérisation de la cohérence spatiale d'un faisceau XUV en simple tir

### 4.5.1 Introduction

Après avoir vu comment utiliser des procédés *hardware* ou *software* pour améliorer la qualité de la reconstruction, cette section détaille comment mesurer un autre paramètre critique de l'imagerie sans lentille : la cohérence spatiale de la source. Les sources XUV, qu'elles soient générées par HHG ou par FEL, possèdent une cohérence spatiale partielle [74, 75] et une cohérence temporelle inférieure à la durée de l'impulsion [76]. La plupart des dispositifs optiques utilisés pour caractériser de façon complète la cohérences des faisceaux laser classiques ne fonctionnent pas dans l'XUV. De plus, la durée ultra-courtes ( $t$ ) des impulsions requiert des méthodes de caractérisation de la cohérence

fonctionnant en simple tir et possédant une résolution temporelle proche de  $t$  afin d'étudier la statistique et la dynamique du processus de génération. La caractérisation de la cohérence est utilisée pour différentes raisons. D'abord, les propriétés du champ diffracté par l'échantillon dépendent de la cohérence spatiale de la source [77, 78]. C'est le cas de l'imagerie sans lentille où la qualité de la reconstruction est liée au degré de cohérence du faisceau [79–81]. De plus, la connaissance de la cohérence d'une source permet d'aider à la compréhension du processus physique de génération [75, 82]. Enfin, il est possible de prendre en compte la cohérence partielle de la source afin d'améliorer la qualité de la reconstruction 2D ou même 3D ([81, 83]). Expérimentalement on observe que les sources HHG et FEL présentent des variations tir à tir de cohérence, de flux, de pointé, de profil spatial, de front d'onde... Il est donc intéressant de pouvoir mesurer les fluctuations de la cohérence spatiale afin de pouvoir compenser ses effets sur les reconstructions, ou simplement pour avoir une plus grande connaissance de la stabilité de notre source. Il est nécessaire d'obtenir des mesures simple tir afin de pouvoir affirmer qui du processus de génération ou de l'instabilité du faisceau est responsable des fluctuations de cohérence. En effet, la méthode développée ici permet de mesurer la distribution spatiale de la cohérence et reconstruire le profil transverse d'intensité en simple tir simultanément. Si le pointé du faisceau harmonique fluctue cela signifie que le pointé du faisceau IR est instable. A l'inverse, si le pointé du faisceau harmonique reste stable tir à tir et le profil spatial de cohérence fluctue cela est dû au processus de génération (et donc aux variations d'intensité du faisceau harmonique). Les méthodes habituelles permettant de mesurer la cohérence en simple tir nécessitent une mesure en parallèle du profil spatial transverse du faisceau incident. Cependant, dans le domaine XUV, mesurer simultanément la distribution d'intensité et le degré de cohérence est difficile à cause du manque de séparateurs de faisceau efficaces. Dans cette section, nous présentons une méthode de caractérisation de la cohérence spatiale en simple tir qui nécessite seulement une acquisition d'une figure de diffraction. Cette méthode a été développée dans le cadre de la thèse de A.I.Gonzalez [5] et mise en place expérimentalement ici.

Soit une configuration classique de trou d'Young (cf figure 4.8). A et B sont deux sources secondaires, synchrones, ponctuelles et monochromatiques (de même polarisation) de longueurs d'onde  $\lambda$ . Si on détecte en un point P du détecteur l'intensité totale créée par l'interférence de ces deux sources et qu'on suppose que le temps de réponse du détecteur  $\tau \ll \frac{1}{\nu} = \frac{\lambda}{c}$  on a :



**Figure 4.8** Configuration trous d'Young. Les deux trous (A et B) agissent comme sources ponctuelles secondaires de la source principale. Ici on suppose que les angles sous lesquels on voit A et B depuis P sont tous deux très inférieurs à  $1\text{mrad}$ .

$$I^M = \left\langle |E_A(t) + E_B(t)|^2 \right\rangle_{\tau} = \left\langle |E_A(t)|^2 \right\rangle_{\tau} + \left\langle |E_B(t)|^2 \right\rangle_{\tau} + 2\text{Re} \left( \left\langle E_A E_B^* e^{i2\pi p} \right\rangle_{\tau} \right) \quad (4.16)$$

où  $p$  est l'ordre d'interférence, nombre sans dimension, donné par  $p = \frac{[AP] - [BP]}{\lambda}$ .

On peut écrire 4.16 en fonction de  $I_A = \left\langle |E_A(t)|^2 \right\rangle_{\tau}$  et  $I_B = \left\langle |E_B(t)|^2 \right\rangle_{\tau}$  :

$$I^M = (I_A + I_B)(1 + C^{coh} \times \text{Re}(\gamma_{AB} e^{i2\pi p})) \quad (4.17)$$

Avec :

$$\gamma_{AB} = \frac{\left\langle E_A E_B^* \right\rangle}{\sqrt{I_A I_B}} \quad (4.18)$$

le degré complexe de cohérence spatiale de la source (on y référera plus loin comme la cohérence spatiale) et  $C^{coh} = \frac{2\sqrt{I_A I_B}}{I_A + I_B}$  le contraste de la source dans le cas parfaitement cohérent. On peut montrer, grâce au théorème de Cauchy-Schwartz, que  $|\gamma_{AB}| \leq 1$ , donc le contraste effectif s'écrit :

$$C = C^{coh} |\gamma_{AB}| \quad (4.19)$$

$|\gamma_{AB}|$  vaut 1 dans le cas parfaitement cohérent et 0 dans le cas d'une source incohérente. On dit qu'une source possède une cohérence partielle si  $0 < |\gamma_{AB}| < 1$ . Il existe plusieurs méthodes pour caractériser la cohérence spatiale. Historiquement la première, démontrée par Young en 1801 et étudiée plus en détail par Zernike et Wolf, est l'interférence de deux faisceaux issus d'une même source. Une conséquence directe de l'équation 4.16 est que la cohérence spatiale dépend de la position dans l'espace des deux points sources  $A$  et  $B$  décrite par les vecteurs  $\vec{r}_a$  et  $\vec{r}_b$  respectivement. Plus exactement, elle dépend de la séparation vectorielle  $\vec{d}_{AB} = \vec{r}_a - \vec{r}_b$ . Donc caractériser complètement la cohérence spatiale nécessite de mesurer la valeur du degré de cohérence spatiale pour plusieurs séparations  $\vec{d}_{AB}$ . Les méthodes basés sur l'interférence entre deux sources [84] ne sont pas compatibles à la caractérisation de la cohérence en simple tir car elles nécessitent de changer la séparation entre les points sources entre chaque acquisition. Une autre méthode utilisant l'interférence entre plusieurs références ponctuelles permet une mesure de la cohérence spatiale plus complète grâce aux plusieurs séparation  $\vec{d}_{AB}$  entre les trous [85, 86]. Le Déroff *et al.* ont proposé une méthode de caractérisation complète de la cohérence spatiale d'une source harmonique XUV grâce à un miroir de Fresnel. Cependant, plusieurs acquisitions de figures de diffraction sont requises afin d'obtenir la valeur de  $|\gamma_{AB}|$  pour plusieurs séparations  $|\vec{d}_{AB}|$ . D'autres méthodes existent, basés sur la représentation du champ par la fonction de Wigner. En effet, il est possible de déterminer la cohérence d'une source à partir d'un masque transparent présentant une discontinuité de phase [87] et en analysant la propagation du champ électromagnétique partiellement cohérent grâce à la fonction de Wigner. Cependant, il est nécessaire de comparer la propagation avec et sans masque de phase, ce qui empêche cette technique de fonctionner en simple tir. Dans cette partie, on présente les résultats d'une nouvelle méthode pour caractériser la cohérence, développée par Aura Gonzalez dans sa thèse [5] et appliquée expérimentalement en simple tir ici. Cette méthode ne nécessite aucune mesure du profil spatial du faisceau, ce qui la rend particulièrement utile pour caractériser la cohérence spatiale d'une impulsion unique. De plus elle permet de reconstruire la distribution transverse de l'intensité du faisceau sur l'échantillon. Elle est basée sur la caractérisation de la cohérence par plusieurs références ponctuelles [85, 86] permettant de calculer la valeur du degré de cohérence pour plusieurs distances  $|\vec{d}_{nm}|$  à partir d'une seule figure de diffraction. On calcule le module de la cohérence spatiale en fonction de chaque valeur de  $|\vec{d}_{nm}|$  fixées par les distances entre les trous présents dans l'échantillon. Les références ponctuelles sont arrangées dans un tableau 2D de points non redondants

(ou *NRA* pour *non redundant array* en anglais). Les trous NRA permettent de générer un système d'équations linéaires permettant de calculer la cohérence spatiale et la distribution d'intensité du faisceau sur chaque référence. Cette technique n'est applicable que si  $|\gamma_{nm}|$  est invariant en décalage ou en pointé. C'est à dire que la cohérence spatiale est une fonction de  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$  et pas de  $d_{nm}^{\vec{r}}$ .

## 4.5.2 Caractérisation complète de la cohérence spatiale d'une impulsion unique d'un faisceau XUV

### 4.5.2.1 Méthode

Je reprends ici une partie du formalisme développé dans la thèse d'Aura Gonzalez [5]. L'utilisation d'un NRA de  $N$  trous permet de mesurer la cohérence pour toutes les paires de trous  $(n, m)$ ,  $\forall (n, m) \in [1, N]^2$  contenues dans le NRA. Les mesures de la cohérence se font à l'aide d'une simple transformée de Fourier de la figure de diffraction (soit l'autocorrélation de NRA de trous) générée par la diffraction du faisceau harmonique par le NRA. En effet, la transformée de l'interférogramme  $\tilde{I}(\vec{r}, z)$ , donne une distribution de pics, centrés sur les différents vecteurs de séparation des références  $d_{nm}^{\vec{r}}$  [5] :

$$\tilde{I}(\vec{r}, z) = \Gamma(\vec{r}) \otimes \left[ \sum_1^N I_n \delta(\vec{r}) + \sum_{n=m+1}^N \sum_{m=1}^{N-1} \sqrt{I_n I_m} \times \left( \gamma_{nm} \delta(\vec{r} - \vec{d}_{nm}) + \gamma_{nm}^* \delta(\vec{r} + \vec{d}_{nm}) \right) \right] \quad (4.20)$$

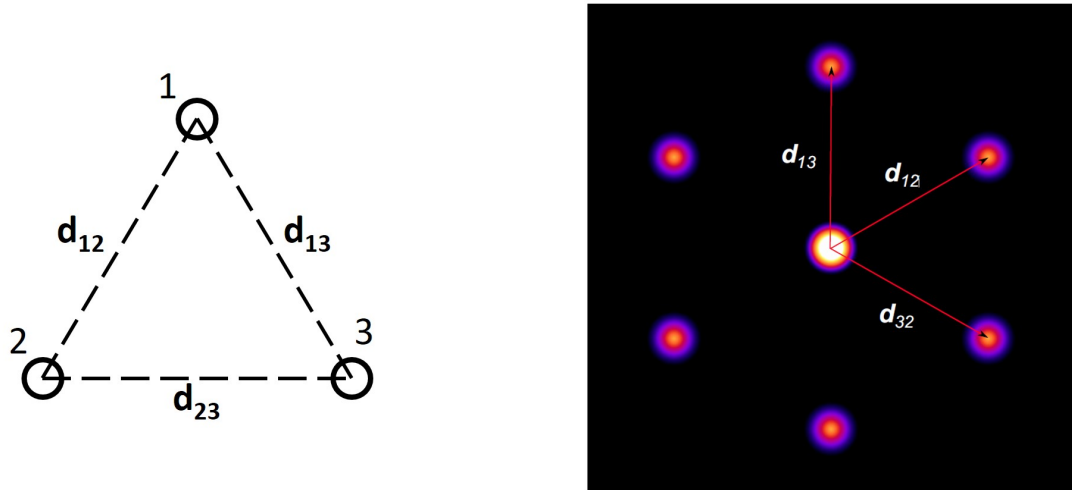
où  $\Gamma(\vec{r})$  est l'autocorrélation de la fonction  $h$  décrivant les références circulaires de diamètre  $a$  ( $h(\vec{r}) = \text{circ}(|\vec{r}|/a)$ ). L'amplitude de chaque pic présent dans la transformée de Fourier de la figure de diffraction est proportionnel au module de la cohérence spatiale  $|\gamma_{nm}|$  et à l'intensité  $(I_n, I_m)$  de la paire de trous séparés d'une distance  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$ .

On peut écrire la valeur de la cohérence ainsi :

$$|\gamma_{nm}| = \frac{|C_{nm}| I_{tot}}{\sqrt{I_i I_j} |C_0|} \quad (4.21)$$

où  $|C_{nm}|$  est l'amplitude du pic de la transformée de Fourier de l'autocorrélation, centré en  $d_{nm}^{\vec{r}} = \vec{r}_n - \vec{r}_m$ .  $I_{tot} = \sum I_n$  est l'intensité totale faisceau et  $|C_0|$  est l'amplitude du pic central de l'autocorrélation. Nous allons expliquer comment calculer la cohérence spatiale et les intensités sur les références ponctuelles à partir de l'exemple le plus simple : un

NRA de  $N = 3$  trous tous séparés de la même distance  $|d_{nm}^{\vec{}}|$ . La figure 4.9 illustre cet exemple. A partir de l'équation 4.21 on peut écrire le système à 3 équations suivant :



**Figure 4.9** A gauche, un NRA de 3 trous équidistants donc possédant un  $|d_{nm}^{\vec{}}|$  égal pour chaque paire de trous. A droite, la transformée de Fourier de la figure de diffraction obtenue à partir du NRA, c'est l'autocorrélation du NRA.

$$|\gamma_{12}| = \frac{|C_{12}| I_{tot}}{\sqrt{I_1 I_2} C_0}$$

$$|\gamma_{13}| = \frac{|C_{13}| I_{tot}}{\sqrt{I_1 I_3} C_0}$$

$$|\gamma_{23}| = \frac{|C_{23}| I_{tot}}{\sqrt{I_2 I_3} C_0}$$

On peut résoudre ce système d'équations si on suppose que  $|\gamma_{12}| = |\gamma_{13}| = |\gamma_{23}| = |\gamma|$ , c'est à dire que la cohérence est invariante par translation (ou *shift invariant* en anglais). Auquel cas on peut écrire les intensités de deux des trois trous en fonction de celle du troisième trou, choisit comme référence. Choisissons comme référence le trou 1, on a alors :

$$I_1 = \frac{C_{12} C_{13}}{C_{23}} \frac{I_{tot}}{C_0 |\gamma|}$$

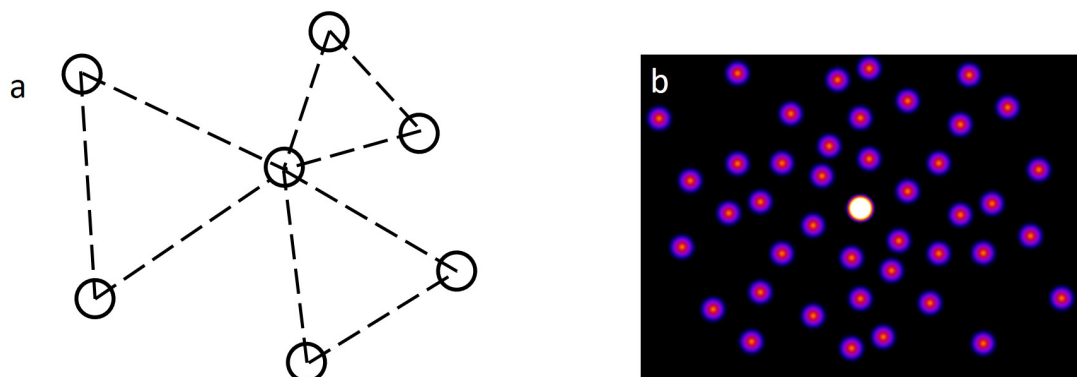
$$I_2 = I_1 \left( \frac{C_{23}}{C_{13}} \right)^2$$

$$I_3 = I_1 \left( \frac{C_{23}}{C_{12}} \right)^2$$



En réalité, même si on exprime la solution en fonction de la distribution d'intensité sur les références ponctuelles, la mesure de cette dernière n'est pas nécessaire. En effet, on peut normaliser les facteurs  $I_1$  et  $\frac{I_{tot}}{C_0}$  en réalisant une interpolation de la courbe de cohérence  $|\gamma_{nm}|$  en fonction de  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$  au point d'abscisse  $|d_{nm}^{\vec{r}}| = 0$  où la cohérence vaut par définition 1. En utilisant le cas  $N = 3$  on peut construire des NRA de  $N > 3$  références ponctuelles générés par la superposition de systèmes de 3 trous. Si tous les systèmes de 3 trous possèdent la même référence, la solution du système de  $N$  trous peut être donnée en fonction de l'intensité au travers de cette référence. Après normalisation, la cohérence spatiale est calculée pour  $N(N - 1)/2$  valeurs de  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$  -fixées par la distance entre chaque paire de trous- directement à partir de la figure de diffraction sans mesure de la distribution d'intensité du faisceau au niveau du NRA. La figure 4.10 de gauche montre une simulation d'un NRA à 7 trous et celle de droite présente l'autocorrélation de ce NRA possédant 21 pics (plus 21 autres pics conjugués et le pic central) correspondant aux 21  $d_{nm}^{\vec{r}}$  des paires de trous.

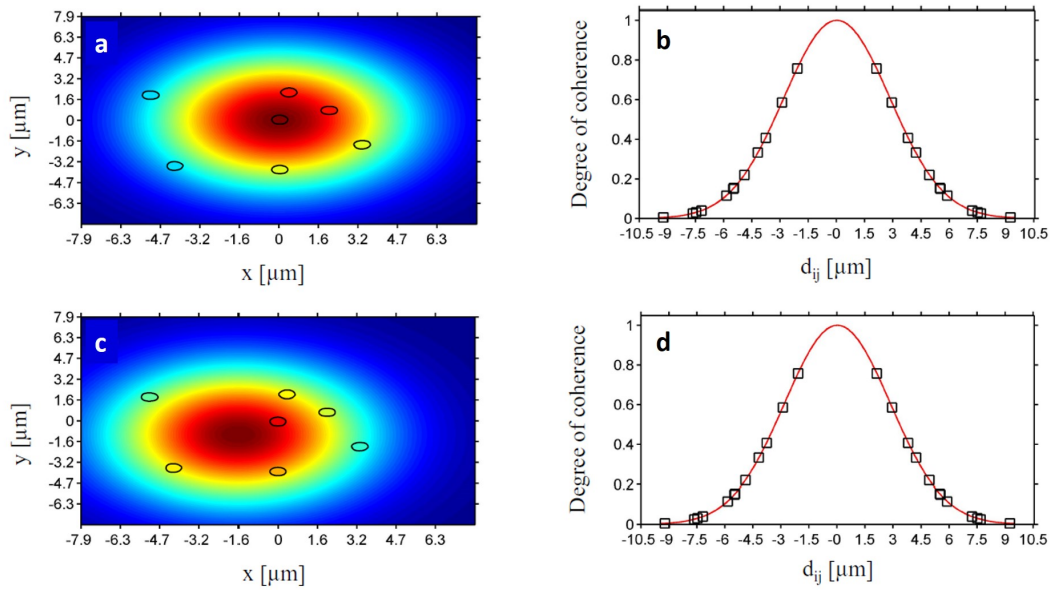
La figure 4.11 illustre un avantage inhérent à cette technique : sa stabilité à la fluc-



**Figure 4.10** A gauche, un NRA de 7 trous, possédant 3 jeux de 3 trous équidistants (donc possédant un  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$  égal pour chaque paire de trous dans un même triangle). A droite, la transformée de Fourier de la figure de diffraction obtenue à partir du NRA, c'est l'autocorrélation du NRA.

tuation de pointé du faisceau. Les simulations sont effectuées pour un faisceau gaussien ( $w_{beam} = 5.2\mu m$ ) et une distribution gaussienne de la cohérence ( $w_{coh} = 4\mu m$ ). On effectue une simulation pour une distribution d'intensité centrée sur le NRA et une autre pour une déviation de pointé de  $-1.6\mu m$  en  $x$  et  $-1.1\mu m$  en  $y$ . On peut alors calculer la valeur de la cohérence spatiale pour les 21  $d_{nm}^{\vec{r}}$  à partir des valeurs de  $C_{nm}$  simulées en normalisant le facteur d'intensité, sans faire de supposition sur la répartition d'intensité sur les références. Les images (a,c) présentent la simulation de la distribution d'intensité centrée sur le NRA et déviée respectivement. Les graphes (b,d) montrent les résultats

de la caractérisation de la cohérence dans les deux cas. On remarque que les valeurs de la cohérence sont identiques pour un faisceau centré et un faisceau présentant une déviation de pointé, ce qui illustre bien que cette méthode ne nécessite aucune supposition ou restriction sur la distribution de l'intensité du faisceau. Ce n'est pas le cas pour la caractérisation de la cohérence d'une impulsion unique XUV à l'aide de fentes d'Young par exemple, cas pour lequel il faut supposer une répartition d'intensité égale sur les deux fentes. Il a été montré que, dans ce cas, l'erreur expérimentale induite sur le calcul de la cohérence est extrêmement dépendante du pointé du faisceau [75]. Cependant, si cette déviation s'accompagne d'une fluctuation du profil spatial de la cohérence, il est impossible de corriger cette erreur dans le calcul du degré de cohérence.



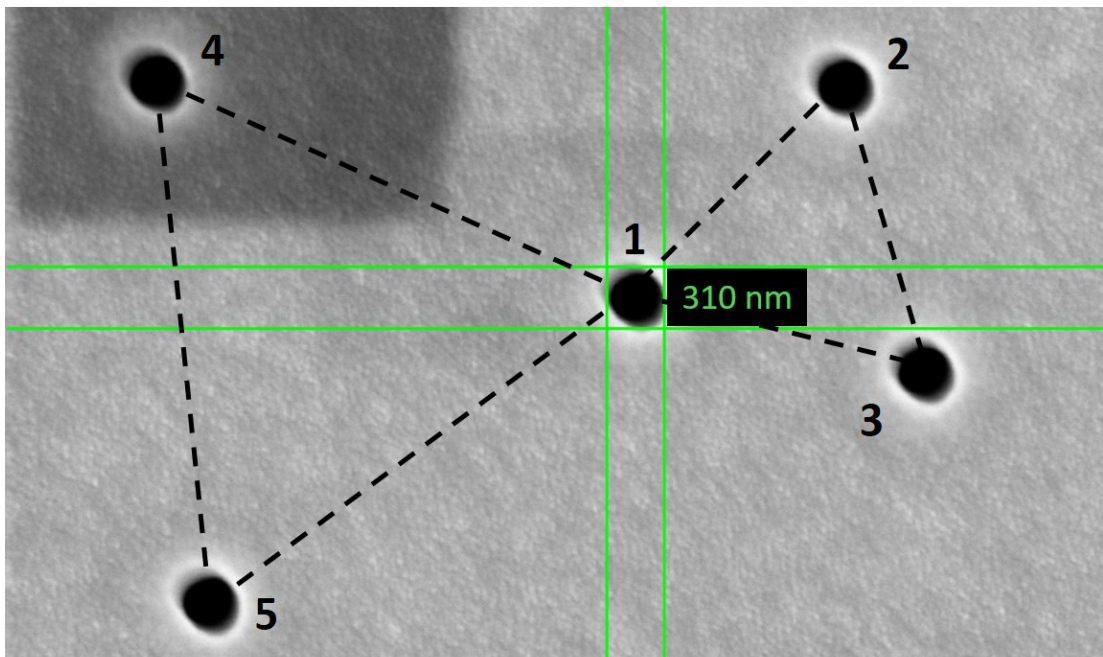
**Figure 4.11** (a,c) répartition d'intensité du faisceau gaussien par rapport au NRA. (a) est centrée, (c) est déviée de  $(-1.6\mu m, -1.1\mu m)$ . Les trous du NRA sont représentés par des cercles noirs. (b,d) Courbe de la cohérence en fonction des séparations  $|d_{nm}|$  pour chaque paire de trous. Le calcul de la cohérence est effectué après normalisation de l'intensité sans supposition sur la répartition d'intensité. La courbe rouge est la simulation de la cohérence et les carrés noirs sont les valeurs de la cohérence calculées. [5].

Parfois, une accumulation de tirs de diffraction est nécessaire pour reconstruire tout les pics de l'autocorrélation du NRA et il est impossible de mesurer la distribution d'intensité de chaque tir. C'est le cas lorsque nous étudions H33 généré dans le néon. Il est possible de montrer que l'erreur induite par l'accumulation sur le calcul de la cohérence lorsque le pointé du faisceau fluctue est moins grande avec l'utilisation de NRA de trous qu'avec des fentes ou trous d'Young [5]. Même si on était capable de mesurer au travers

des fentes, l'erreur induite par l'accumulation de tirs serait égale à celle obtenue avec la technique NRA ou aucune mesure d'intensité est nécessaire.

#### 4.5.2.2 Résultats expérimentaux avec une source d'harmoniques d'ordres élevés

On utilise un NRA de 5 références circulaires (voir figure 4.12) pour caractériser la cohérence spatiale de l'harmonique 25 de notre source harmonique générée dans l'argon. La taille totale du NRA fait  $4.5 \times 3.2 \mu m$ . On peut calculer la cohérence spatiale avec



**Figure 4.12** Image MEB de la face avant du NRA à 5 références ponctuelles utilisé pour caractériser la cohérence spatiale. Chaque trou fait environ  $310nm$  de diamètre.

l'équation 4.21 pour les 5 paires d'ouvertures possédant un  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$  différent. Cette géométrie résulte en 2 systèmes d'équations données par les deux jeux de références circulaires équidistantes ((1, 2, 3) et (1, 4, 5)) avec l'ouverture 1 utilisée comme référence commune. On résout les deux systèmes d'équations par la même méthode montrée précédemment, on a alors :

$$I_2 = I_1 \left( \frac{C_{23}}{C_{13}} \right)^2 \quad I_3 = I_1 \left( \frac{C_{23}}{C_{12}} \right)^2$$

$$I_4 = I_1 \left( \frac{C_{45}}{C_{15}} \right)^2 \quad I_5 = I_1 \left( \frac{C_{45}}{C_{14}} \right)^2$$

et, après normalisation des facteurs  $I_1$  et  $\frac{S_0}{C_0}$  on obtient :

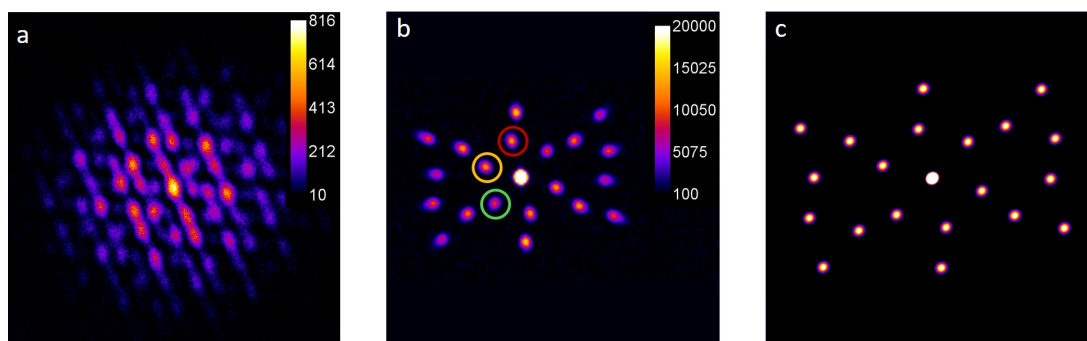
$$\begin{aligned} |\gamma_{23}| &= \frac{C_{12}C_{13}}{C_{23}} & |\gamma_{45}| &= \frac{C_{14}C_{15}}{C_{45}} \\ |\gamma_{24}| &= \frac{C_{24}C_{15}C_{13}}{C_{23}C_{45}} & |\gamma_{25}| &= \frac{C_{25}C_{14}C_{13}}{C_{23}C_{45}} \\ |\gamma_{34}| &= \frac{C_{34}C_{15}C_{12}}{C_{23}C_{45}} & |\gamma_{35}| &= \frac{C_{35}C_{14}C_{12}}{C_{23}C_{45}} \end{aligned}$$

Les paramètres de la sources harmoniques utilisée sont détaillés dans le tableau 3.14. On rappelle qu'on utilise une OAP à  $22.5^\circ$  avec une focale de  $10cm$  permettant de focaliser le faisceau en une tache focale de  $4.5\mu m$ . Il faut noter que la largeur de notre NRA est quasiment aussi grande que le diamètre du faisceau. On pourra donc calculer sa cohérence pour toute son étendue spatiale, du centre jusqu'au bord. On enregistre la figure de diffraction en champ lointain avec notre caméra CCD XUV à une distance  $z = 52mm$  de l'échantillon. Le capteur de la caméra possède  $2048 \times 2048$  pixels avec un pas pixel  $p = 13.5\mu m$ . On précise que notre faisceau harmonique est optimisé de manière à générer le maximum de flux au détriment de la stabilité tir à tir en intensité et en pointé du faisceau. La figure 4.13 montre une figure de diffraction expérimentale simple tir du NRA à 5 références (a), sa transformée de Fourier (b), donnant l'autocorrélation expérimentale du NRA illuminé par H25 et une simulation de l'autocorrélation du NRA en supposant un faisceau avec profil spatial uniforme et parfaitement cohérent. Dans ce cas précis, toutes les valeurs maximales des pics sont égales. La figure de diffraction est acquise avec une fréquence de lecture de  $100kHz$ , un facteur de binning  $4 \times 4$  et une caméra refroidie à  $-40^\circ C$ .

Les paramètres de génération de la source permettant d'obtenir (a) sont :  $19mm$  pour le diamètre du diaphragme IR,  $5.2cm$  pour la longueur de la cellule de gaz et  $2.1mbars$  pour la pression d'Argon au sein de la cellule. Dans l'image (b) on observe bien les 10 pics associés aux 10 paires de trous. On peut immédiatement conclure que la totalité du NRA a été illuminée et que la totalité de l'étendue spatiale du faisceau présente une cohérence non nulle. Si on suppose que la cohérence est parfaitement *shift invariant* et que sa distribution est centrée sur le NRA alors tous les pics associés à des paires de trous possédants la même séparation  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$  devrait posséder la même amplitude. Or, dans l'image (b), on peut observer des variations d'intensité entre certains de ces pics : le pic dans le cercle rouge est associé à la paire de trous (1, 2), celui dans le cercle orange à (1, 3) alors que le pic entouré du cercle vert est associé à la paire (2, 3). On remarque que

l'intensité du pic dans le cercle vert est moins grande que celle des pics rouge et orange. Quand on effectue la mesure des amplitudes de ces pics sur 100 reconstructions en simple tir on remarque qu'en moyenne le pic vert est 11% moins intense que le pic rouge, qui lui est 9% moins intense que le pic orange. Supposons que la répartition moyenne de la distribution de cohérence est une gaussienne centrée sur le NRA. Ces variations d'intensités sont alors dues au fait que le trou 1 est plus débouchant ou possède un diamètre plus grand que le trou 3 qui lui aussi est plus large que le trou 2. En effet, l'image MEB présentée en figure 4.12 montre la face avant du NRA. Il est donc possible que, en face arrière, les trous aient un diamètre différent. On effectue donc une correction moyenne sur les intensités de pics des autocorrélations, correspondant aux déviations mesurées pour des pics qui devraient, en moyenne, présenter la même intensité.

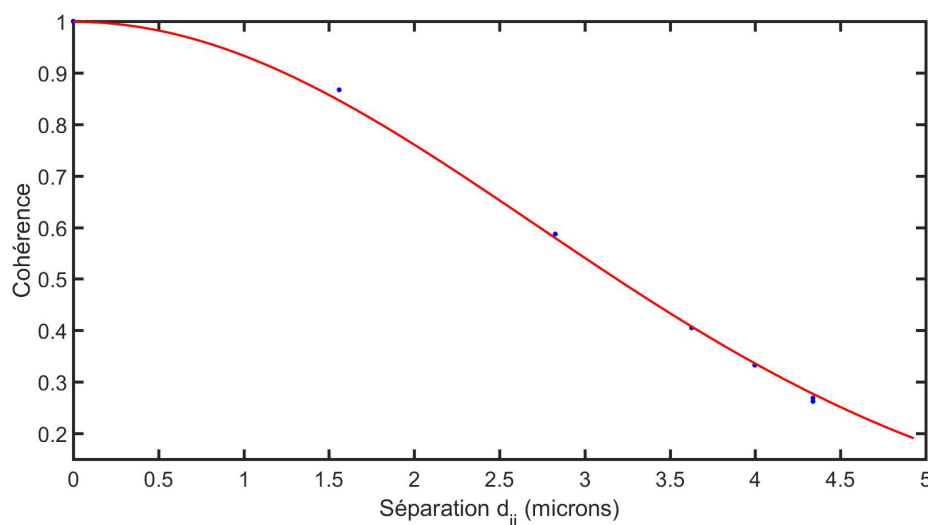
De manière plus générale, pour des mesures simple tir, la variation d'amplitudes des pics associés à des paires de trous possédant la même séparation  $|d_{nm}^{\vec{r}}|$  peut être due à deux raisons : des trous de diamètres différents ou une répartition non uniforme de la cohérence spatiale du faisceau (pas centrée sur le NRA, pas gaussienne ou pas *shift invariant*).



**Figure 4.13** (a) Figure de diffraction expérimentale simple tir obtenue par la diffraction de H25 traversant le NRA présenté en figure 4.12. La fenêtre fait  $400 \times 400$  pixels avec un binning  $2 \times 2$  (b) Transformée de Fourier de (a), on reconstruit les 10 pics associés aux 10 paires de références. (c) Simulation de l'autocorrélation du même NRA dans le cas où le faisceau possède une répartition d'intensité uniforme et une cohérence parfaite.

Le calcul du degré de cohérence est effectué à partir de l'image (b) de la figure 4.13 et des équations ???. Le résultat est présenté dans le graphe 4.14 où la courbe rouge est le fit gaussien des valeurs de cohérence calculées à partir de l'autocorrélation expérimentale du NRA (points bleus). Le rayon de la courbe de cohérence mesurée est de  $3.85\mu m \pm 0.1\mu m$ . Ce rayon est quasiment deux fois plus grand que le diamètre du faisceau harmonique ( $2.25\mu m$ ). La valeur de la cohérence spatiale entre le centre du faisceau et son bord

vaut 0.67. Entre deux points séparés d'une distance égale au diamètre du faisceau la cohérence vaut 0.26, ce qui est très faible. Il faut cependant noter que nous avons optimisé notre faisceau harmonique de manière à obtenir le maximum de flux tir par tir. La pression d'Argon étant élevée, ces paramètres ne maximise évidemment pas la cohérence spatiale du faisceau. On peut maintenant effectuer une étude statistique pour observer



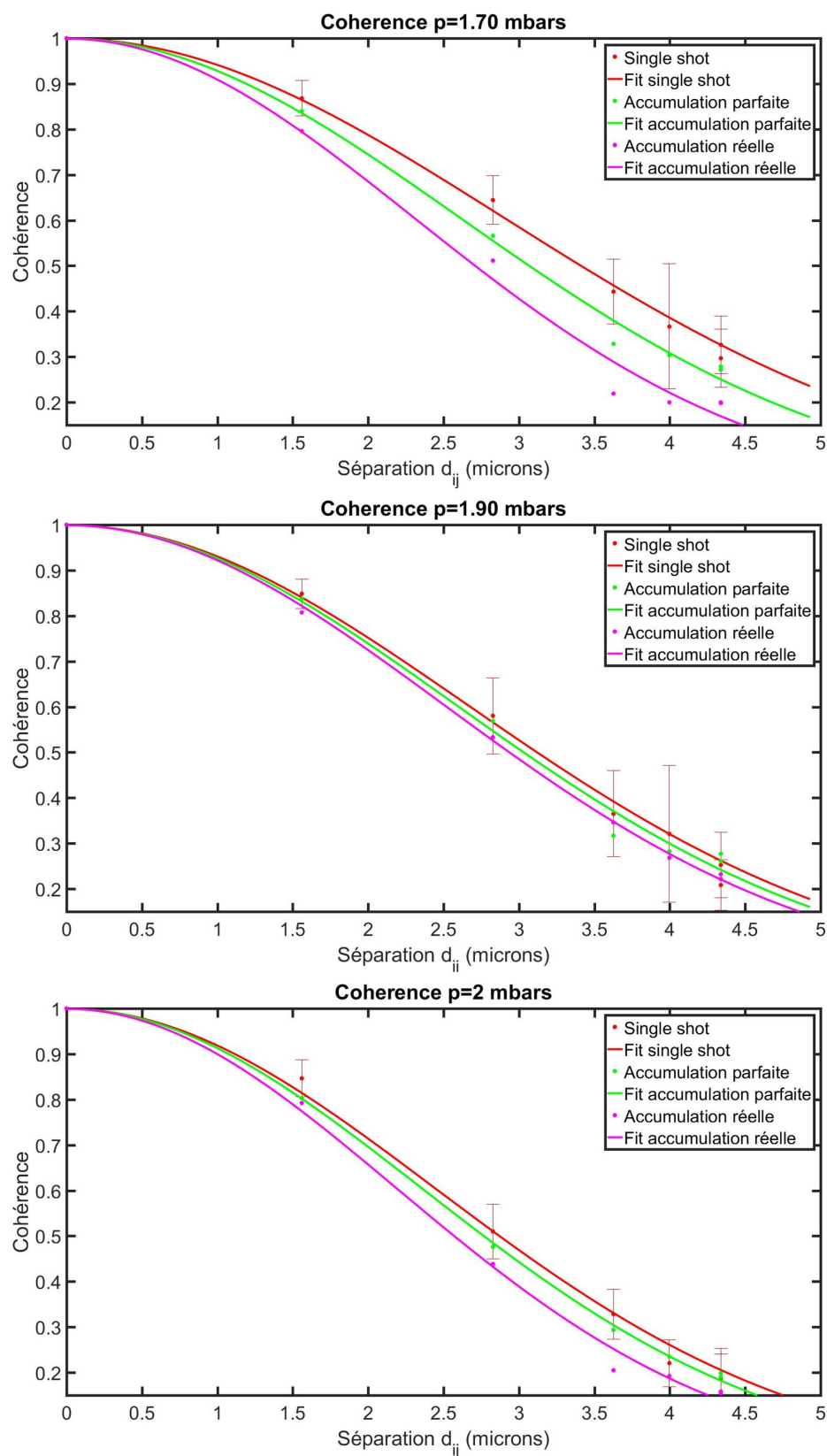
**Figure 4.14** En rouge : Courbe du degré de cohérence fitté à partir des valeurs  $|\gamma_{nm}|$  calculées (points bleus) pour les différents  $|d_{nm}|$  à partir de la figure de diffraction présentée dans la figure 4.13. On trouve un rayon expérimental de la courbe de cohérence qui vaut  $3.85\mu m \pm 0.1\mu m$ .

comment fluctue la cohérence tir à tir en fonction de différents paramètres de génération. Pour chaque condition expérimentale on enregistre 100 figures de diffraction simple tir. Les résultats sont présentés dans les figures 4.15 et 4.16. A partir des amplitudes du pic central des autocorrélations expérimentales du NRA, on peut calculer la valeur de l'intensité moyenne du faisceau et la fluctuation de l'intensité tir à tir (l'écart type des amplitudes du pic central) pour chaque condition expérimentale. La déviation du pointé du faisceau tir à tir est plus difficile à estimer. Le diamètre du faisceau étant quasiment égal à la taille du NRA, nous faisons l'hypothèse que c'est la déviation du pointé du faisceau sur le NRA qui empêche la reconstruction de tous les pics de l'autocorrélation. Ainsi, on estime la stabilité du pointé du faisceau à partir du pourcentage de NRA où l'on parvient à reconstruire tous les pics parmi les 100 figures de diffractions enregistrées pour chaque paramètre de génération. De plus, pour chaque paramètre de génération, on trace les courbes de cohérence fittées sur les  $|\gamma_{nm}|$  (points verts) calculées à partir de la transformée de Fourier de l'accumulation des figures de diffraction permettant de

reconstruire la totalité des pics de l'autocorrélation du NRA. Cette accumulation correspond au cas d'un faisceau parfaitement stable en pointé (la courbe est tracée en vert). Enfin, on trace aussi les courbes de cohérence qui correspondent à l'accumulation de toutes les figures de diffraction pour chaque condition expérimentale (courbes violettes), ce qui correspond à une accumulation réelle; quand on utilise l'harmonique H33 dans le néon par exemple. On appelle ici "accumulation" la somme numérique de figures de diffraction. En effet, dans le cas réel, une accumulation de plusieurs tirs de diffraction correspond à une superposition incohérente des figures de diffraction. Notre méthode est donc correcte d'un point de vue physique.

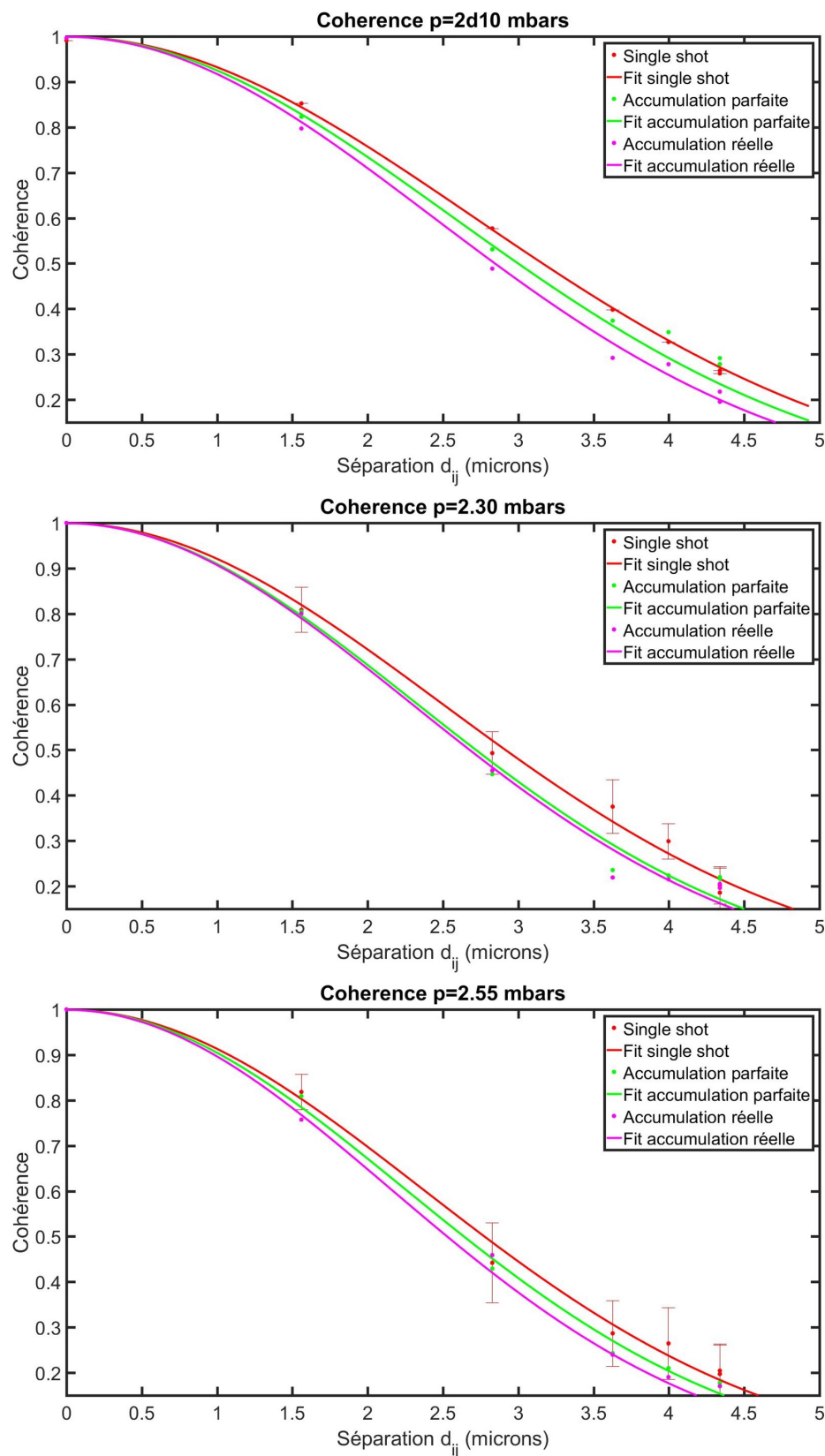
Pour une pression de  $1.70\text{mbar}$  on calcule une fluctuation de l'intensité du faisceau qui vaut  $\sigma_I = 42\%$ , une intensité moyenne qui vaut  $I_{moy} = 0.75I_{max}$  ( $I_{max}$  est la plus haute intensité moyenne enregistrée pour les différentes conditions expérimentales) et une stabilité du pointé du faisceau qui vaut  $21\%$ . Le rayon des courbes de cohérence est  $w_{red} = 4.1\mu\text{m}$ ,  $w_{green} = 3.6\mu\text{m}$  et  $w_{violet} = 3.3\mu\text{m}$  pour la courbe rouge, verte et violette respectivement. L'écart type moyen des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{moyen}} = 18\%$  alors que l'écart type maximum des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{max}} = 37\%$ . Quand on utilise une pression de génération de  $1.90\text{mbar}$ , la fluctuation de l'intensité du faisceau par rapport à la moyenne vaut  $\sigma_I = 50\%$ , l'intensité moyenne vaut  $I_{moy} = 0.87I_{max}$  et la stabilité du pointé du faisceau vaut  $19\%$ . Le rayon des courbes de cohérence est  $w_{red} = 3.72\mu\text{m}$ ,  $w_{green} = 3.64\mu\text{m}$  et  $w_{violet} = 3.53\mu\text{m}$  pour la courbe rouge, verte et violette respectivement. L'écart type moyen des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{moyen}} = 25\%$  alors que l'écart type maximum des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{max}} = 44\%$ . Pour une pression de  $2.00\text{mbar}$  on calcule une fluctuation de l'intensité du faisceau qui vaut  $\sigma_I = 55\%$ , une intensité moyenne qui vaut  $I_{moy} = I_{max}$  et une stabilité du pointé du faisceau qui vaut  $40\%$ . Le rayon des courbes de cohérence est  $w_{red} = 3.45\mu\text{m}$ ,  $w_{green} = 3.17\mu\text{m}$  et  $w_{violet} = 3.01\mu\text{m}$  pour la courbe rouge, verte et violette respectivement. L'écart type moyen des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{moyen}} = 23\%$  alors que l'écart type maximum des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{max}} = 32\%$ .

Pour une pression de  $2.10\text{mbar}$  on calcule une fluctuation de l'intensité du faisceau qui vaut  $\sigma_I = 41\%$ , une intensité moyenne qui vaut  $I_{moy} = 0.91I_{max}$  et une stabilité du pointé du faisceau qui vaut  $44\%$ . Le rayon des courbes de cohérence est  $w_{red} = 3.77\mu\text{m}$ ,



**Figure 4.15** Courbes du degré de cohérence obtenues pour une pression de 1.70mbar, 1.90mbar et 2mbar (graphe du haut, milieu et bas respectivement). En rouge : Courbe du degré de cohérence des valeurs  $|\gamma_{nm}|$  (points rouges) expérimentales simple tir. Les barres d'erreurs correspondent à l'écart type de  $|\gamma_{nm}|$ . En vert : courbe de cohérence fittée sur les  $|\gamma_{nm}|$  (points verts) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des figures de diffraction permettant de reconstruire la totalité des pics de l'autocorrélation du NRA. En violet : courbe de cohérence fittée sur les  $|\gamma_{nm}|$  (points violet) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des 100 figures de diffraction.





**Figure 4.16** Courbes du degré de cohérence obtenues pour une pression de  $2.10\text{mbar}$ ,  $2.30\text{mbars}$  et  $2.55\text{mbar}$  (graphe du haut, milieu et bas respectivement). En rouge : Courbe du degré de cohérence des valeurs  $|\gamma_{nm}|$  (points rouges) expérimentales simple tir. Les barres d'erreurs correspondent à l'écart type de  $|\gamma_{nm}|$ . En vert : courbe de cohérence fittée sur les  $|\gamma_{nm}|$  (points verts) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des figures de diffraction permettant de reconstruire la totalité des pics de l'autocorrélation du NRA. En violet : courbe de cohérence fittée sur les  $|\gamma_{nm}|$  (points violet) calculées à partir de la transformée de Fourier de la superposition incohérente des 100 figures de diffraction.

$w_{green} = 3.60\mu m$  et  $w_{violet} = 3.42\mu m$  pour la courbe rouge, verte et violette respectivement. L'écart type moyen des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{moyen}} = 19\%$  alors que l'écart type maximum des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{max}} = 30\%$ . Pour une pression de  $2.30mbar$  on calcule une fluctuation de l'intensité du faisceau qui vaut  $\sigma_I = 57\%$ , une intensité moyenne qui vaut  $I_{moy} = 0.81I_{max}$  et une stabilité du pointé du faisceau qui vaut  $24\%$ . Le rayon des courbes de cohérence est  $w_{red} = 3.51\mu m$ ,  $w_{green} = 3.27\mu m$  et  $w_{violet} = 3.22\mu m$  pour la courbe rouge, verte et violette respectivement. L'écart type moyen des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{moyen}} = 15\%$  alors que l'écart type maximum des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{max}} = 29\%$ . Pour une pression de  $2.55mbar$  on calcule une fluctuation de l'intensité du faisceau qui vaut  $\sigma_I = 65\%$ , une intensité moyenne qui vaut  $I_{moy} = 0.49I_{max}$  et une stabilité du pointé du faisceau qui vaut  $20\%$ . Le rayon des courbes de cohérence est  $w_{red} = 3.33\mu m$ ,  $w_{green} = 3.17\mu m$  et  $w_{violet} = 3.01\mu m$  pour la courbe rouge, verte et violette respectivement. L'écart type moyen des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{moyen}} = 23\%$  alors que l'écart type maximum des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  vaut  $\sigma_{\gamma_{max}} = 33\%$ . Le récapitulatif des mesures est présenté dans le tableau 4.17.

Pression (mbars)	$I_{moy}$	$\sigma_I$	$\sigma_{stab}$	$w_{red}$	$w_{green}$	$w_{violet}$	$\sigma_{\gamma_{moyen}}$	$\sigma_{\gamma_{max}}$
1.70	$0.75I_{max}$	41 %	21 %	$4.1\mu m$	$3.6\mu m$	$3.3\mu m$	18 %	37 %
1.90	$0.87I_{max}$	50 %	19 %	$3.72\mu m$	$3.64\mu m$	$3.53\mu m$	25 %	44 %
2	$I_{max}$	55 %	40 %	$3.45\mu m$	$3.17\mu m$	$3.01\mu m$	23 %	32 %
2.1	$0.91I_{max}$	41 %	44 %	$3.77\mu m$	$3.60\mu m$	$3.42\mu m$	19 %	30 %
2.3	$0.81I_{max}$	57 %	24 %	$3.51\mu m$	$3.27\mu m$	$3.22\mu m$	15 %	29 %
2.55	$0.49I_{max}$	65 %	20 %	$3.33\mu m$	$3.17\mu m$	$3.01\mu m$	23 %	33 %

**Figure 4.17** Récapitulatif des mesures de cohérence spatiale en fonction des paramètres de génération.

Tout d'abord, on note que l'augmentation de la pression du gaz dans la cellule se traduit par une diminution de la stabilité du faisceau en pointé et en intensité. En effet, la fluctuation de l'intensité du faisceau augmente de  $\sigma_I = 51\%$  à  $65\%$ , la stabilité du pointé diminue de  $44\%$  à  $20\%$  et l'intensité moyenne du faisceau diminue de  $51\%$  quand on augmente la pression de  $2.1mbar$  à  $2.55mbar$  ( $2.1mbar$  étant la pression maximisant le flux harmonique tir à tir). Cela confirme ce qu'on observe expérimentalement lors de l'optimisation du flux harmonique : une plus grande pression du gaz de génération permet l'obtention d'un maximum de l'intensité du faisceau harmonique plus élevé au détriment de sa stabilité en pointé et en intensité et de son intensité moyenne. Enfin,

quand on diminue la pression le faisceau devient plus stable : la fluctuation en intensité du faisceau diminue, tout comme l'intensité moyenne. On remarque aussi une diminution de valeur calculée pour la stabilité du faisceau lorsqu'on diminue la pression. Cependant, celle-ci est probablement due au fait que, dans ces conditions de génération, le nombre de photons présents sur les figures de diffraction simple tir est souvent inférieur à la limite basse permettant une reconstruction de tout les pics de l'autocorrélation du NRA par transformée de Fourier. Même en utilisant un facteur de binning  $4 \times 4$  le pourcentage de reconstructions complètes de l'autocorrélation du NRA n'augmente pas. Cette diminution du pourcentage n'est pas due à une plus grande instabilité du pointé du faisceau lorsqu'on baisse la pression mais bien à un flux de photons trop faible.

Par ailleurs, on remarque que le diamètre des courbes du degré de cohérence associées aux mesures simple tir (courbes rouges) diminue quand la pression du gaz augmente ( $w_{red} = 3.33\mu m$  pour une pression de  $2.55mbar$  et  $w_{red} = 4.1\mu m$  pour une pression de  $1.7mbar$ ). Ce comportement est en accord avec l'aspect macroscopique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. En effet, augmenter la pression du gaz dans la cellule de génération accroît le déphasage induit par l'ionisation du gaz. Non compensé, cela provoque un effet destructeur sur l'accord de phase limitant la construction efficace du rayonnement harmonique et diminuant donc globalement la cohérence spatiale du faisceau. La variation tir à tir moyenne de la distribution de la cohérence, donnée par  $\sigma_{\gamma_{moyen}}$ , reste relativement stable sur l'étendue des paramètres de génération (elle va de 15 à 25%). La valeur maximale de l'écart type des 6 valeurs de  $|\gamma_{nm}|$ , notée  $\sigma_{\gamma_{max}}$ , est comprise entre 29 et 44%, et ne présente pas de comportement clair en fonction de la pression. Cela signifie que la stabilité tir à tir du profil spatial de la cohérence ne dépend peu ou pas de la pression du gaz.

L'accumulation de plusieurs tirs lors de l'acquisition d'une figure de diffraction entraîne une diminution apparente du diamètre expérimental de la cohérence spatiale par rapport aux mesures simple tir. Le diamètre de la courbe de cohérence spatiale diminue de 5% en moyenne dans le cas d'un faisceau de pointé parfaitement stable (accumulation idéale) et de 11% en moyenne dans le cas d'une accumulation réelle. Lors d'une accumulation idéale, le faisceau est stable en pointé mais la distribution spatiale de l'intensité et de la cohérence varient tir à tir. Ceci entraîne une diminution des valeurs de  $|\gamma_{nm}|$  calculées à partir de la figure de diffraction sommée. C'est pourquoi la valeur expérimentale du diamètre de la courbe de cohérence verte apparaît comme plus petite que pour la moyenne des mesures simple tir. Lors d'une accumulation réelle, la déviation du pointé

du faisceau aussi induit une erreur sur le calcul de la courbe de cohérence, en plus de la variation du profil spatial de l'intensité et de la cohérence du faisceau tir à tir. De plus, la déviation du faisceau diminue la visibilité des franges de la figure de diffraction, particulièrement à haute pression ( $\geq 2.3mbar$ ) où l'instabilité du pointé tir à tir est grande. Ceci a pour effet de réduire encore le diamètre de la courbe de cohérence (courbe violette) par rapport à la moyenne des mesures simple tir. L'écart entre les courbes vertes et violette est uniquement dû à l'instabilité du pointé du faisceau tir à tir. On remarque que ce seul effet diminue la cohérence apparente de 6.3% en moyenne allant jusqu'à 39% dans certaines conditions de génération. Il est important de noter que la diminution du diamètre de la courbe de cohérence dans le cas d'une accumulation réelle pourrait être moins grande si nous avons optimisé le faisceau en stabilité et non pas en intensité crête. Cependant, il nous faut maximiser le flux de photons au détriment de la stabilité et ne sélectionnant que les tirs laser les plus intenses et centrés sur l'échantillon afin de réaliser des reconstructions simple tir. On peut représenter les effets conjoints de la déviation de pointé et de la fluctuation des profils spatiaux d'intensité et de cohérence comme une diminution de la cohérence spatiale "apparente" du faisceau. Ainsi, accumuler des tirs laser pour acquérir une figure de diffraction revient à diminuer la cohérence spatiale effective du faisceau. Par exemple, supposons qu'on utilise l'harmonique H25 générée dans l'argon avec une pression de  $2.55mbar$  pour imager un échantillon dont la taille totale fait  $3.5\mu m$ . D'après nos mesures, si on acquiert une figure de diffraction avec un temps d'acquisition de  $5s$  la cohérence spatiale du faisceau sur les bords de l'échantillon vaudra, en moyenne, 0.3, alors que pour une acquisition simple tir elle vaudra en moyenne 0.49. Ce qui signifie que la qualité des reconstructions obtenues à partir de figure de diffraction accumulées seront dégradées. Cependant, une accumulation est parfois inévitable pour parvenir à reconstruire l'objet, quand on utilise H33 générée dans le Néon par exemple.

En résumé cette technique a été validée avec un NRA de  $N = 5$  trous en utilisant l'harmonique 25 du laser  $Ti : Sa$  LUCA, générée dans l'argon. Les mesures ont été réalisées sous 6 paramètres de génération différents avec une longueur de cellule de  $5.2cm$  et une pression de gas allant de  $1.7mbar$  à  $2.55mbar$  changeant le diamètre de la courbe de cohérence spatiale de  $4.10\mu m$  à  $3.33\mu m$  respectivement. On observe clairement l'évolution du comportement gaussien et la fluctuation tir à tir de la cohérence spatiale de notre faisceau harmonique à l'aide de cette technique pour toutes les conditions de génération

présentées ici. On peut ajouter que des mesures similaires ont été réalisées pour des pressions plus élevées ( $p = 2.70\text{mbar}$  et  $p = 2.90\text{mbar}$ ), cependant nous reconstruisons moins de 2 autocorrélations de NRA complètes sur 100 dans ces conditions à cause de la fluctuation du faisceau en pointé et en intensité. De plus, pour ceux que nous arrivons à reconstruire, le profil spatial de la cohérence ne semble plus du tout gaussien ou *shift invariant*, rendant complexe l'exploitation de ces mesures afin de calculer le rayon de cohérence. Effectuer la mesure de la cohérence spatiale en simple tir permet de s'affranchir des erreurs induites par la déviation du pointé du faisceau qui lui même varie en fonction des paramètres de génération. A l'inverse, comparer la valeur de la cohérence mesurée en simple tir et celle mesurée à partir d'une figure de diffraction acquise avec plusieurs tirs laser permet d'estimer les effets qu'induisent la fluctuation du profil spatial de cohérence et d'intensité et la déviation de pointé sur la cohérence apparente du faisceau. Et ainsi obtenir une valeur "réelle" de la cohérence du faisceau qui serait utilisée pour effectuer une reconstruction lors d'une accumulation.

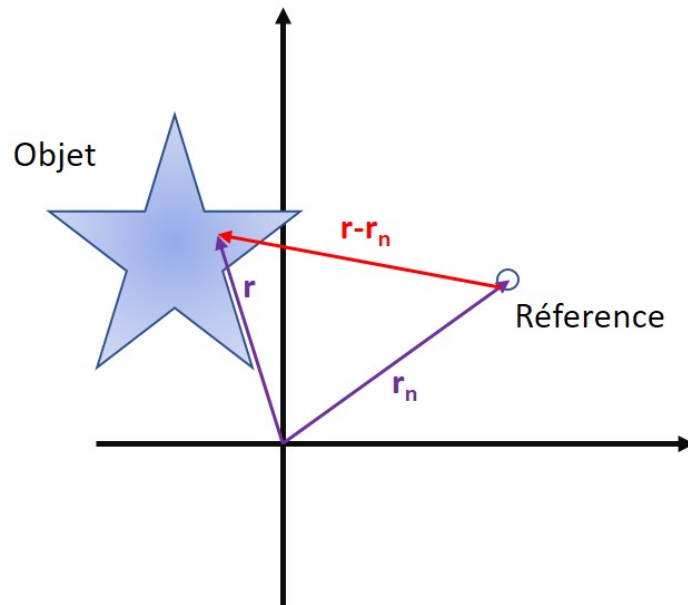
#### 4.5.2.3 Conclusion et perspective

Le but du travail présenté dans cette section a été de développer une nouvelle technique de mesure de la cohérence spatiale sans connaissance du profil transverse de l'intensité du faisceau, permettant ainsi une caractérisation complète de la cohérence en simple tir. La méthode proposée, tirée de [85, 86] utilise des NRA (pour *non redundant array* en anglais) de références circulaires pour échantillonner la cohérence à différentes distances entre les paires de références [5]. Ces dernières sont agencées de manière à pouvoir exprimer les degrés de cohérence en fonction de l'intensité au travers d'une seule ouverture. On peut ensuite normaliser cette intensité en tirant parti du fait que la cohérence entre deux points sources séparés d'une distance nulle vaut 1. Cette méthode ne fonctionne que si la cohérence de la source est invariante par translation (ou *shift invariant* en anglais). A l'inverse des autres techniques de caractérisation de la cohérence qui fonctionnent en simple tir comme les fentes d'Young, cette technique ne fait aucune supposition sur la répartition d'intensité entre les références. J'ai effectué des mesures de cohérence spatiale simple tir avec notre faisceau harmonique dans différentes conditions de génération et déduit de ces mesures l'évolution de la courbe de cohérence spatiale en fonction de la pression du gaz de génération et de la stabilité du faisceau. J'ai aussi analysé comment la cohérence spatiale est détériorée par une accumulation du signal lors de l'acquisition

d'une figure de diffraction. Il a été prouvé, dans ce chapitre et dans d'autres travaux [74, 82], que les sources HHG ne présentent qu'une cohérence spatiale partielle, tout comme les FEL [88]. Or, la cohérence spatiale a un impact critique sur la qualité de la reconstruction en imagerie sans lentille [79–81, 89]. La technique développée dans cette section permettrait de déterminer le profil transverse de la cohérence spatiale afin de compenser son effet sur la reconstruction dans des reconstructions simple tir. En effet, on peut écrire la reconstruction de l'objet,  $O_r$  sous la forme suivante [77] :

$$O_r = \gamma(r_n, \vec{r}) \sqrt{I(r_n)I(\vec{r})} o(\vec{r}) \quad (4.22)$$

où  $\vec{d}_n = \vec{r} - r_n$  est le vecteur de séparation entre le point  $n$  de la référence et l'objet (voir figure 4.18) et  $o(\vec{r})$  est la transmittance de l'objet. Si la référence est ponctuelle et la cohérence spatiale du faisceau est uniforme et vaut 1, la reconstruction de l'objet est directement déterminée par  $o(\vec{r})$ . En FTH, dans le cas où le faisceau présente une



**Figure 4.18** Illustration des vecteurs de séparation entre l'objet et la référence dans le cas FTH.

cohérence partielle avec une distribution non uniforme, toutes les combinaisons de distances  $(\vec{r} - r_n)$  entre la totalité de l'objet et la référence ne posséderont pas la même cohérence spatiale. Cela implique que la reconstruction de l'objet sera modulée par la distribution de la cohérence partielle sur l'objet dans le plan focal pouvant détériorer la reconstruction ou induire des artefacts. La connaissance complète de la distribution de la cohérence spatiale grâce à notre technique permettrait de compenser ces effets. Pour

---

réaliser cette correction, il faut s'assurer que la distribution de la cohérence spatiale est centrée de manière identique pour la mesure de la cohérence avec le NRA et pour l'imagerie de l'objet. Il est intéressant d'ajouter que la phase de la cohérence spatiale peut être négligée dans les reconstructions FTH d'amplitude. A l'inverse, lorsqu'on utilise des références étendues, l'amplitude de la reconstruction de l'objet sera modulée par la phase de la cohérence spatiale, qui peut dégrader la reconstruction.

Une autre application porte sur l'effet de la cohérence partielle sur les reconstructions ptychographiques. En 2013, P. Thibault et A. Menzel ont développé une technique de reconstruction permettant de compenser les effets de la décohérence sur des reconstructions ptychographiques [79]. La décohérence dans des expériences d'imagerie sans lentille peut être due, entre autre, à des états mixtes dans la source d'illumination se traduisant par une cohérence spatiale partielle. Elle peut aussi être provoquée par des processus stationnaires stochastiques rapides au sein de l'échantillon comme des vibrations. Ils compensent l'effet de la cohérence partielle en décomposant le faisceau en 12 modes indépendants et parviennent ainsi améliorer la qualité de la reconstruction CDI. Cependant, cette technique requiert un long temps d'acquisition, ce qui impose des contraintes sur la stabilité du montage (particulièrement de l'étape de détection) pour parvenir à une bonne reconstruction des modes du front d'onde incident. Une connaissance précise de la cohérence spatiale du faisceau à l'aide de notre méthode permettrait d'utiliser cette information pour une reconstruction des modes d'illumination plus rapide et plus précise. Cela pourrait permettre de diminuer la dose d'illumination que subissent les échantillons. La combinaison de ces deux techniques serait particulièrement intéressante dans des expériences de ptychographie d'échantillons biologiques sur synchrotron où la cohérence spatiale du faisceau est moins bonne que celle générée par HHG [90].

## 4.6 Imagerie CDI d'objets de phase

### 4.6.1 Introduction

Depuis le milieu des années 90 l'imagerie d'objets de phase par rayons X, grâce à la tomographie de phase par exemple, est un domaine qui s'est énormément développé. L'imagerie médicale et biologique en est la principale application. En effet, les rayons X permettent d'obtenir d'excellents contrastes avec des échantillons tels que les tissus mous biologiques, qui sont peu absorbants et diffractants et donc difficilement observables par des méthodes conventionnelles. Dans le domaines des rayons X, la section efficace du déphasage est bien plus grande que pour l'absorption (voir plus bas). Ainsi, l'utilisation de la phase dans la microscopie par rayons X permet d'observer des détails fins qui produisent un contraste plus grand qu'en utilisant l'absorption et avec une meilleure résolution [91–93]. En effet, on exprime la densité optique  $D(x, y)$ , qui est le logarithme de la transmittance et le déphasage  $\Phi(x, y)$ , comme :

$$D(x, y) = -\ln(T)(x, y) = \int \mu(x, y, z) dz$$

$$\Phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} \int \delta(x, y, z) dz$$

ou  $\lambda$  est la longueur d'onde de la source,  $\mu(x, y, z)$  et  $\delta(x, y, z)$  sont le coefficient d'absorption linéaire et le décrément à l'unité de l'indice de réfraction du matériau que traverse les rayons X, respectivement. On suppose ici que les rayons se propagent au travers du matériau selon l'axe  $z$ . D'un point de vue atomique, on peut réécrire l'équation précédente comme :

$$D(x, y) = \int \sum_k N_k(x, y, z) \mu_k^a dz$$

$$\Phi(x, y) = \int \sum_k N_k(x, y, z) p_k dz$$

Avec  $p_k = r_c \lambda (Z_k + f_{k'})$  qui est la section efficace du déphasage des rayons X.  $N_k(x, y, z)$ ,  $\mu_k^a$ ,  $Z_k$  et  $f_{k'}$  sont la densité atomique, la section efficace d'absorption (ou le coefficient d'absorption atomique), le numéro atomique et la partie réelle de la correction de la diffusion anormale de l'élément  $k$ , respectivement.  $r_c$  est le rayon classique de l'électron [93]. Ainsi, la différence de contraste entre  $D(x, y)$  et  $\Phi(x, y)$  est attribuée à la différence



entre  $\mu_k^a$  et  $p_k$ . Pour la grande majorité des rayons X  $\mu_k^a$  est plus grand que  $p_k$  et le ratio  $p_k/\mu_k^a$  peut atteindre  $10^3$  pour des éléments avec un faible  $Z$  avec  $\sim 10keV$  [94]. Ainsi, on peut améliorer le contraste d'un facteur 1000 pour ce type d'échantillon quand on utilise la phase à la place de l'amplitude. D'un point de vue macroscopique, l'indice de réfraction complexe ( $n = 1 - \delta + i\beta$ ) permet d'avoir une autre compréhension de ce phénomène. La relation entre  $\mu$  et  $\beta$  est donnée par :

$$\beta = \frac{\lambda}{4\pi}\mu \quad (4.23)$$

Par exemple, ratio  $\delta/\beta$  vaut  $\times 10^3$  pour l'eau à  $20keV$ . Il faut noter que ce ratio est moins élevé dans le domaine des rayons X "mous" (comme ceux générés par la HHG dans les gaz) et donc l'avantage des techniques de contraste de phase est moins important que pour les rayons X "durs". Ce ratio vaut 2.2 et 2.5 pour l'eau à  $68eV$  et  $80eV$ , respectivement. Pour le nitrure de silicium ( $Si_3N_4$ ),  $\delta/\beta$  vaut 2.7 et 3 à  $68eV$  et  $80eV$ , respectivement (données CXRO [95]). Ces deux énergies correspondent à celles qui peuvent être générées par la ligne harmonique sur laquelle est réalisée cette expérience. Néanmoins, cela reste un gain de sensibilité non négligeable. De nombreuses techniques d'imagerie de phase ont été développées durant la dernière décennie. Elles peuvent être classées en plusieurs catégories : les techniques interférométriques [96–101], les techniques utilisant un cristal analyseur [102, 103] et celles utilisant des propagateurs dans l'espace libre [104–106]. Il est possible de réaliser ce type d'imagerie de phase 2D avec des synchrotrons, mais aussi avec des sources à faibles flux comme des tubes à rayons X avec un spectre polychromatique [105]. Des méthodes comme l'imagerie par interférométrie par effet Talbot-Lau existent pour réaliser de l'imagerie de phase sans prérequis sur la cohérence spatiale ou temporelle de la source [107], rendant possible l'imagerie de contraste de phase avec des sources plus accessibles. Certaines ont été étendues en 3D pour réaliser de la tomographie de phase par rayons X par tomodensitométrie (CT-scan en anglais). Ces méthodes permettent d'obtenir d'excellents résultats avec des sources à fort flux comme des synchrotrons à l'aide de lentilles de Fresnel par exemple [108, 109] ou des ultra-microscopes par rayons X [110, 111]. En 2011, Guizar-Sicairos *et al.* ont prouvé qu'il était possible d'effectuer une reconstruction tomographique de phase 3D d'un objet de biologique en combinant des projections 2D reconstruites par algorithme de diffraction cohérente [112]. De plus, il est possible d'améliorer la résolution axiale et transverse au delà de  $100nm$  à l'aide la Ptychotomographie [113]. Cependant, aucune

expérience d'imagerie de phase n'a été réalisée à l'aide d'une source harmonique. Dans cette section, nous présentons les résultats d'une expérience d'imagerie d'objets de phase à l'aide d'une source harmonique fonctionnant à  $68.6eV$  réalisée à l'Institut Helmutz de Jena, dans le groupe de Jan Rothhardt.

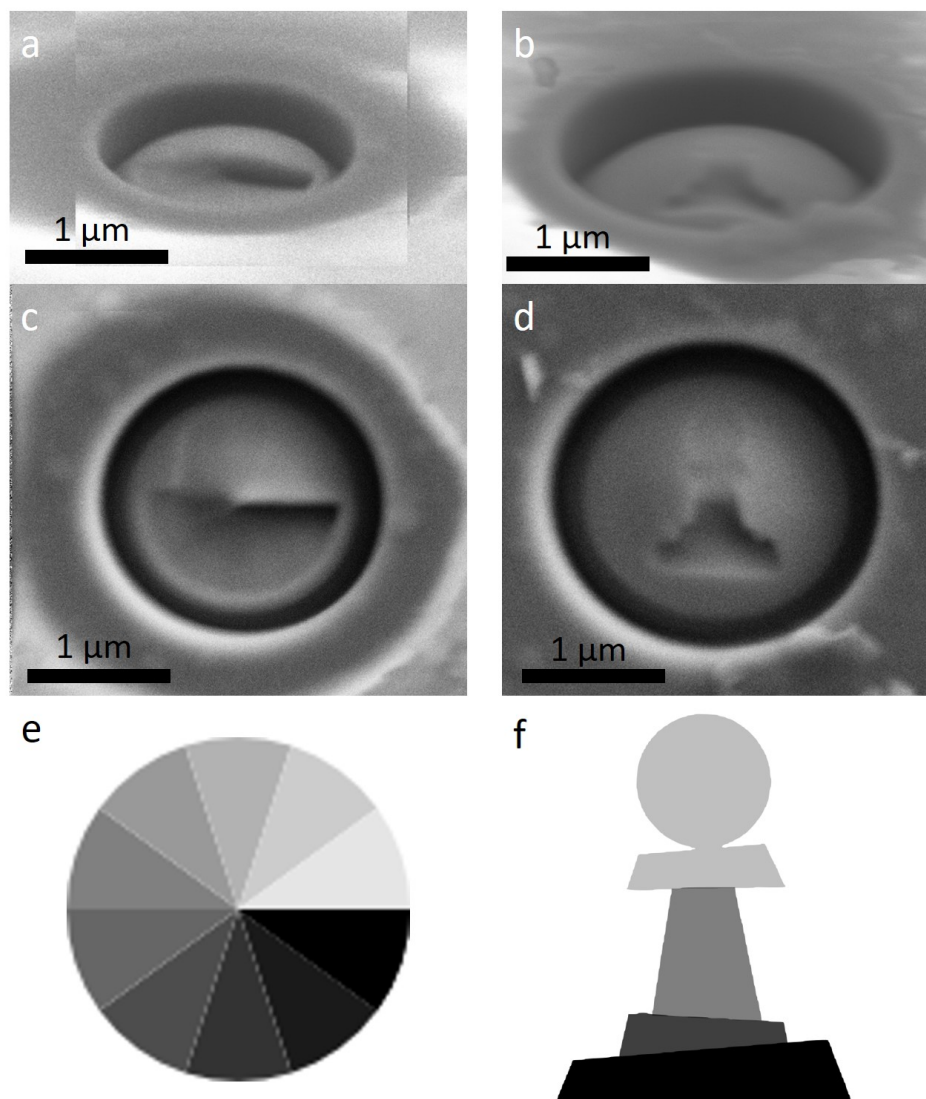
#### 4.6.2 Échantillons et montage

Pour cette expérience nous utilisons des échantillons dessinés sur des membranes de nitrure de silicium de  $500nm$  d'épaisseur. Le but est de dessiner des zones adjacentes de hauteurs différentes dans l'échantillon afin de créer des sauts de phase entre ces zones. A  $68.6eV$ , les valeurs de  $\delta$  et  $\beta$  valent  $0.060$  et  $0.022$ , respectivement. La transmission de la membrane de  $500nm$  vaut  $T = 4 \times 10^{-4}$ . La membrane est donc quasiment opaque à notre source d'illumination. On peut calculer le déphasage  $\Delta\phi$  d'une épaisseur  $z$  de  $Si_3N_4$  pour une source de longueur d'onde  $\lambda$  par :

$$\Delta\phi = \frac{2\pi \times \delta \times z}{\lambda} \quad (4.24)$$

On calcule donc un déphasage de  $1.05\pi$  radians pour une épaisseur de  $10nm$ . On dessine 2 types d'échantillons différents, dont les images MEB sont présentées en figure 4.19. Au préalable, on dessine un cercle de  $2\mu m$  de diamètre et de  $400nm$  de profondeur autour de l'objet afin de réduire uniformément l'épaisseur de  $Si_3N_4$ . L'objet est ensuite dessiné au milieu de ce cercle pour pouvoir contrôler précisément la hauteur des sauts de phase. Cela permet aussi d'augmenter la transmission de l'échantillon. On varie les doses (ou TPP pour temps de pause par point) des échantillons de manière à créer des sauts de phase de différentes hauteurs et donc des déphasages différents. Les TPP varient entre  $0.14\mu s$  et  $2\mu s$ . Les objets ont une épaisseur de  $50nm$  typiquement, c'est à dire que la partie la plus fine de l'objet fait  $40nm$  et la plus épaisse fait  $90nm$ . On estime la hauteur des sauts de phase de l'échantillon avec le MEB. Cependant, il est impossible d'en mesurer l'épaisseur exacte. Nous avons prévu d'utiliser un AFM pour faire des mesures plus précises et vérifier les valeurs du déphasage trouvés dans l'expérience. L'échantillon "Pion" est séparé en 4 parties correspondant à 4 épaisseurs différentes de  $Si_3N_4$ . L'échantillon "roue" est un gradient de phase circulaire séparé en 10 quartiers d'épaisseurs différentes. Il faut noter que notre échantillon n'étant pas conducteur, un effet de charge est présent sur les images MEB et potentiellement aussi sur les gravures. Ainsi, les images MEB

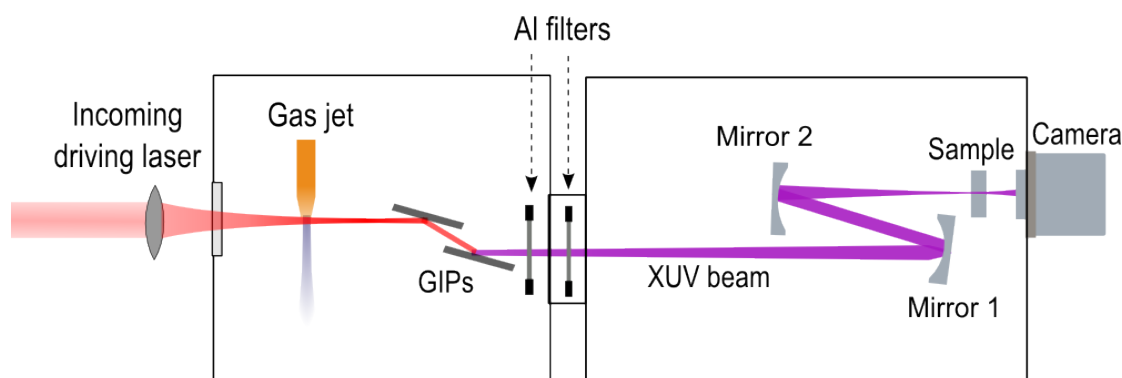
présentés dans la figure 4.19 peuvent être différentes de l'échantillon réel. La ligne de



**Figure 4.19** (a, c et e) Images de l'échantillon "roue" prises à  $60^\circ$ , vue du dessus et modèle inkscape, respectivement. Le TPP utilisée ici est  $0.8\mu s$ . (b, d et f) Images de l'échantillon "Pion" prises à  $60^\circ$ , vue du dessus et modèle inkscape, respectivement. Le TPP utilisée ici est  $2\mu s$ .

lumière harmonique est détaillée dans la référence [114]. Le système laser délivre des impulsions contenant peu de cycles optiques (sub- $8fs$ ) avec une énergie de  $353\mu J$  et une puissance crête de  $25GW$  à  $1028nm$ , pour un taux de répétition allant jusqu'à  $150kHz$ . Cette puissance est obtenue par amplification à l'aide de fibres LPF (pour *large pitch fiber* en anglais) en combinant de façon cohérente deux impulsions provenant de deux amplificateurs fibrés dopés Yb. Les deux impulsions sont recombinaées avec un polariseur et une boucle de rétroaction permet de contrôler le déphasage entre elles. Le détail du processus d'amplification laser est présenté en référence [115]. Deux étapes de

post-compression utilisant deux fibres creuses remplies d'argon et des miroirs chirpés permettent de réduire la durée de l'impulsion à  $7.8fs$ . Une lentille sphérique de focale  $f = 200mm$  focalise le faisceau IR en une tache focale de  $\sim 45\mu m$  de diamètre. Quand on focalise le faisceau dans un jet d'hélium, plus de  $3 \times 10^8 photons/s$  peuvent être générés à  $180eV$  ou plus de  $10^7 photons/s$  à  $215eV$ , calculé pour une bande spectrale de 1% [114]. Dans notre expérience, nous travaillons avec l'harmonique 57 du faisceau fondamental, soit une longueur d'onde de  $18nm$  (ou une énergie de  $68.6eV$ ) générée dans un jet de néon et permettant d'obtenir environ  $10^9 photons/s$  avec un taux de répétition de 100 kHz. La largeur spectrale de l'harmonique 57 vaut  $\delta\lambda/\lambda = 1/200$ . Le faisceau fondamental est séparé du faisceau harmonique à l'aide de lames en incidence rasante (GIPs pour *grazing incidence plates* en anglais) réfléchissant 40% de l'XUV mais transmettant la grande majorité de l'infrarouge. Le montage expérimental est présenté en figure 4.20 et est décrit plus en détail dans la référence [27] où est démontrée une résolution transverse record de  $15nm$  avec une source harmonique à  $68.6eV$ . Deux miroirs sphériques, de focale  $1.2m$  et  $50cm$ , sélectionnent et focalisent l'harmonique 57 du faisceau fondamental. Le traitement multi-couche de la parabole permet d'avoir une réflectivité de 50% à  $68.6eV$  après les deux miroirs et de supprimer la contribution des ordres harmoniques voisins. Le diamètre de la tache focale est de  $10\mu m$  FWHM.



**Figure 4.20** Schéma du montage expérimental de génération d'harmoniques d'ordres élevés et d'imagerie sans lentille. Les lames en incidences rasantes sont placées à  $11mm$  l'une de l'autre à un angle de  $82^\circ$ .

L'échantillon, situé dans le plan focal, diffracte le faisceau et une caméra CCD- XUV (Andor iKon-L), placée à une distance  $z = 14mm$  de l'échantillon, enregistre la figure de diffraction en champ lointain. La caméra possède un capteur de  $2048 \times 2048$  pixels qui font une taille de  $13.5\mu m$ . Il est intéressant de noter que le pointé du faisceau est extrêmement stable, et qu'une accumulation de plus de  $100s$  permet d'obtenir une figure

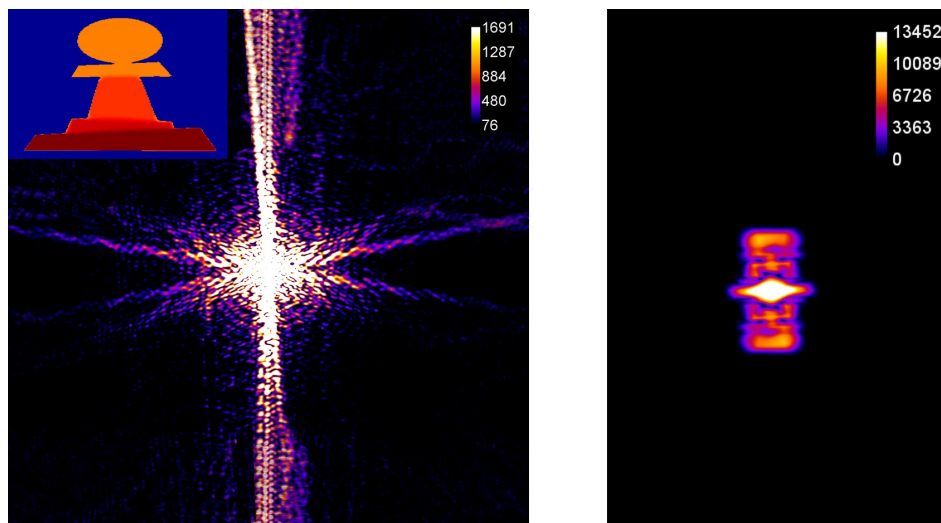
de diffraction avec un RSB très élevé et un excellent contraste des franges de diffraction (voir figures de diffraction expérimentales).

### 4.6.3 Reconstructions

Les reconstructions présentés ici sont obtenues avec l'algorithme *difference map* détaillé dans la partie 2.3.1 du chapitre 2.

#### 4.6.3.1 Simulations

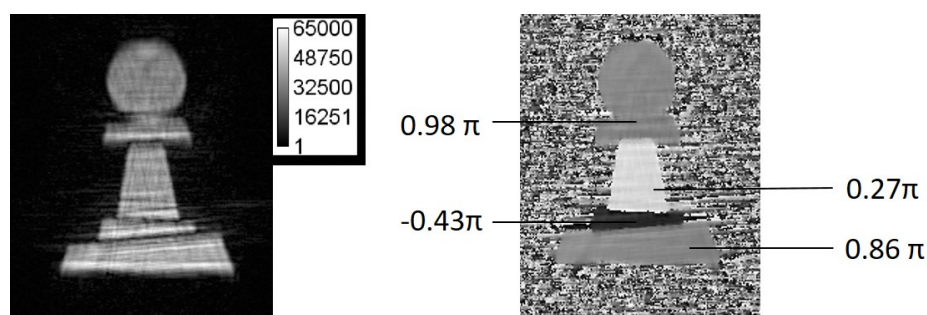
Dans cette section, nous souhaitons vérifier, grâce à des figures de diffraction simulées, si notre algorithme de reconstruction est capable de reconstruire des objets de phase possédant des sauts de phase inférieur à  $2\pi$ . Les paramètres de la simulation correspondent aux paramètres réels expérimentaux. L'épaisseur minimale de l'échantillon fait  $50nm$ , l'épaisseur maximale fait  $87.5nm$  et chaque niveau fait  $12.5nm$  de plus d'épaisseur que celui du dessous. Ainsi le déphasage entre chaque niveau vaut  $1.3\pi$ . Le cercle de  $2\mu m$  autour de l'objet fait  $100nm$  d'épaisseur et la partie de l'échantillon extérieure au cercle représente la membrane et fait  $500nm$  d'épaisseur. A  $18nm$  la transmission d'une épaisseur de  $100nm$  de nitrure de silicium vaut  $T = 2 \times 10^{-1}$ . Pour que l'échantillon soit fidèle à celui dessiné au MEB, j'ai appliqué un filtre gaussien à la séparation des différents niveaux d'épaisseur. En effet, dans l'image (b et d) de la figure 4.19 on voit que les marches ne sont pas nettes et ressemblent plus à un gradient vertical d'épaisseur. Cela est dû au diamètre du faisceau d'ions qui est plus grand que le pas de la gravure. On ne peut pas graver les marches de hauteur avec plus de précisions que le diamètre du FIB (qui est d'environ  $50nm$ ). Le filtre permet ainsi de "flouter" les marches nettes. Afin d'étudier l'effet du faisceau direct transmis par le cercle de 2 microns et de vérifier que l'algorithme de reconstruction de phase peut reconstruire nos échantillons, j'ai réalisé une première simulation avec un échantillon parfaitement isolé. On suppose ici que le cercle autour de l'objet est parfaitement opaque (voir insert de l'image de gauche de la figure 4.21). L'image de gauche de la figure 4.21 est la figure de diffraction enregistrée pour un temps d'acquisition de 20s. Ici, on suppose un faisceau parfaitement stable en pointé et en intensité. Le nombre de photons diffractés détectés par le capteur est  $1.07 \times 10^9 photons$ , ce qui correspond à une efficacité de diffraction de l'échantillon d'environ 5.53%. On remarque ici que la figure de diffraction n'est pas centro-symétrique



**Figure 4.21** A gauche : Figure de diffraction de l'échantillon "Pion" isolé (voir insert) simulée pour un temps d'acquisition de 20s. A droite : Transformée de Fourier de l'image de gauche correspondant à l'autocorrélation de l'échantillon Pion.

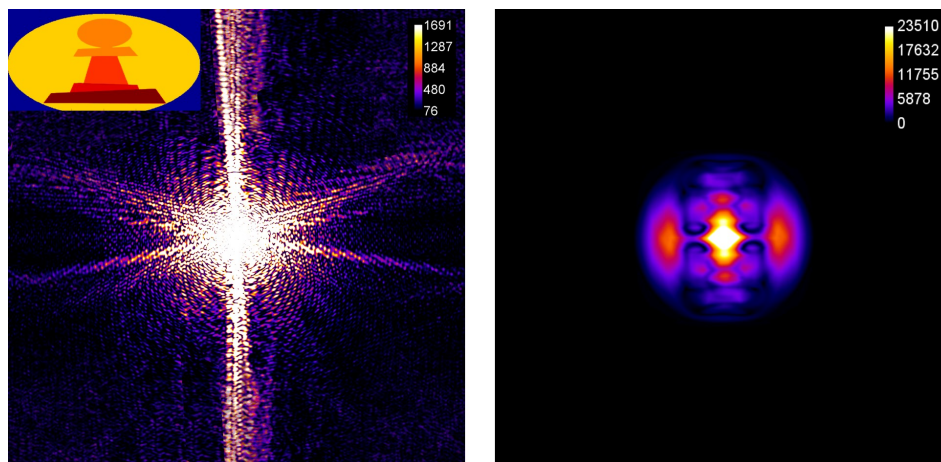
grâce au dessin de notre échantillon. Afin de faciliter la reconstruction, je n'ai pas considéré la limite de la dynamique de la caméra et je n'ai pas pris en compte le bruit de lecture. Cependant, comme nous utilisons un bloqueur de faisceau et la méthode HDR pour traiter les figures de diffraction expérimentales, la figure de diffraction simulée correspond à l'assemblage HDR de plusieurs temps d'acquisition (par exemple 3s et 20s). La figure de droite est l'autocorrélation de l'objet obtenue par la transformée de Fourier de la figure de diffraction. L'autocorrélation de l'objet est bien contrastée et il est facile d'obtenir une reconstruction de l'objet en phase et en amplitude par algorithmes itératifs comme le montre la figure 4.22. Pour reconstruire l'objet, il faut supprimer la contrainte de positivité de la phase qui est traditionnellement appliquée à chaque itération de l'algorithme. En effet, de par la nature de nos échantillons, cette contrainte empêche la convergence des reconstructions. On note cependant que la convergence de l'algorithme est plus lente que lorsque l'objet est d'amplitude pure (avec la contrainte de positivité). En effet, dans le cas où l'objet est purement d'amplitude, l'algorithme commence à converger après environ 70 itérations alors que lorsqu'il est complexe 120 itérations sont nécessaires pour observer un début de convergence. Dans le cas complexe, la convergence se stabilise après 350 itérations environ. Les images de gauche et de droite sont l'amplitude et la phase reconstruites minimisant le critère d'erreur d'un lancement unique de l'algorithme itératif. Ici, il n'est pas nécessaire de moyenner plusieurs reconstructions compte tenu de la qualité d'une reconstruction unique. On sélectionne une ROI de  $1200 \times 1200$  sur la figure de diffraction pour effectuer la reconstruction et on utilise

un facteur 2 de binning. La fenêtre de reconstruction fait donc  $600 \times 600$  avec une taille de pixel de  $18nm$ . On note que les déphasages entre les zones de l'objet ( $1.3\pi radians$ ) correspondent bien aux variations de hauteurs ( $12.5nm$ ). L'algorithme itératif permet donc la reconstruction d'un objet même si son déphasage total excède  $2\pi radians$ . La coupure calculée avec le critère  $1/e$  de la PRTF est obtenue à  $13.2\mu m^{-1}$  ce qui correspond à une résolution de  $38nm$ . Il faut noter que simuler un objet avec des sauts de phase entre zones adjacentes supérieurs à  $2\pi$  permet d'obtenir des reconstructions mais induit un effet d'enroulement de phase. Il est alors impossible de quantifier la valeur réelle du saut de phase dans la reconstruction.



**Figure 4.22** Amplitude (à gauche) et phase (à droite) de l'image reconstruite de l'objet, obtenue à partir de l'image de diffraction simulée présentée en figure 4.21. L'image est issue d'un lancement unique de l'algorithme itératif. L'échantillon fait  $1\mu m$  de largeur.

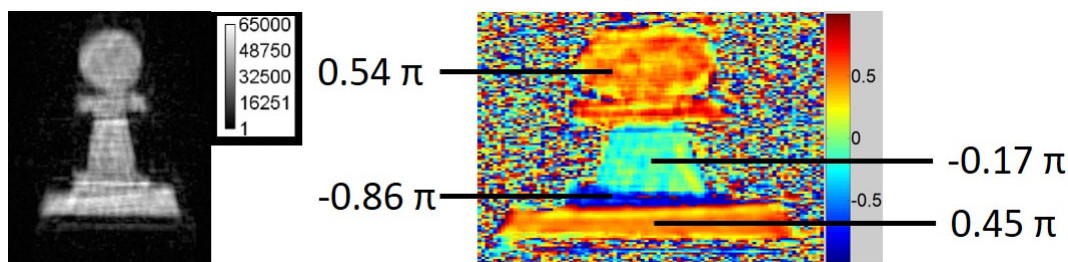
Simulons maintenant le cas réel, c'est à dire en ajoutant autour de l'objet un cercle de  $2\mu m$  de diamètre de  $100nm$  d'épaisseur de nitrure de silicium. Dans ce cas, le nombre de photons diffractés détectés par le capteur est  $2.55 \times 10^9 photons$ , ce qui correspond à une efficacité de diffraction de l'échantillon d'environ 13.1%. La figure de droite est l'autocorrélation de l'objet obtenue par la transformée de Fourier de l'image de gauche. La contribution du cercle de  $\mu m$  à l'autocorrélation de l'échantillon objet + cercle se trouve des deux cotés du centre. Elle provient uniquement du faisceau direct partiellement transmis par les  $100nm$  de  $Si_3N_4$ . On note qu'elle est moins intense que l'autocorrélation de l'objet, au centre. Elle est environ 2 fois plus large que celle de l'objet car le diamètre du disque est 2 fois celle de la largeur du pion. On peut comparer cette autocorrélation avec celle obtenue dans le cas où l'objet "Pion" est parfaitement isolé. On rappelle que c'est en effectuant un seuillage de l'autocorrélation qu'on construit une image binaire utilisée comme support initial dans l'espace réel pour l'algorithme. Cela signifie qu'on peut isoler la contribution du disque dans l'autocorrélation et choisir comme support initial



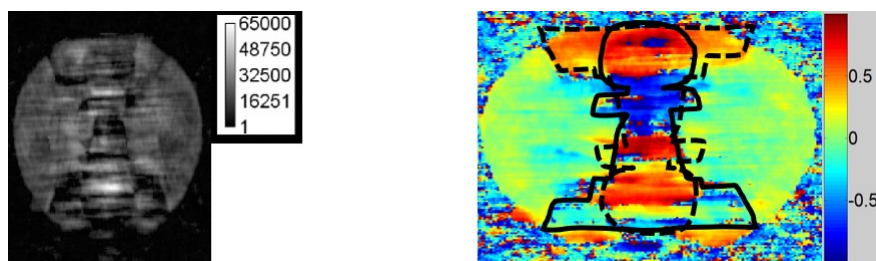
**Figure 4.23** A gauche : Figure de diffraction de l'échantillon "Pion" réel (voir insert) simulée pour un temps d'acquisition de 20s. A droite : Transformée de Fourier de l'image de gauche correspondant à l'autocorrélation de l'échantillon Pion.

de la reconstruction itérative uniquement la contribution du "Pion". La figure 4.24 présente la phase (à gauche) et l'amplitude (à droite) de l'image que l'on peut reconstruire en isolant la contribution du disque lors du seuillage de l'autocorrélation. Pour cela on choisit comme seuil 8% de l'intensité maximale de l'autocorrélation. L'image reconstruite minimise le critère d'erreur d'un lancement unique de l'algorithme itératif. La coupure calculée avec le critère  $1/e$  de la PRTF est obtenue à  $11.3\mu m^{-1}$  ce qui correspond à une résolution de  $44nm$ . On remarque que même si on peut isoler la contribution du cercle dans le seuillage de l'autocorrélation, celle-ci diminue légèrement la résolution de la reconstruction. On note aussi que la phase reconstruite semble plus modulée que dans le cas où l'objet est isolé. On peut compenser cela en moyennant plusieurs reconstructions issues de lancement indépendant de l'algorithme. De plus la convergence de l'algorithme est plus longue que dans le cas parfaitement isolé, elle prend environ 550 itérations pour se stabiliser complètement. Cependant, on parvient bien à reconstruire les déphasages de  $1.3\pi radians$  entre chaque niveau adjacent. Si on diminue le seuil définissant le support d'autocorrélation, on reconstruit le cercle autour du Pion, mais l'algorithme semble mal séparer l'objet du cercle et la qualité de la reconstruction est extrêmement détériorée (voir figure 4.25). Dans ce cas, il semble que l'inclusion de la contribution du cercle dans le support d'autocorrélation rende l'objet total cercle+Pion trop centro-symétrique. En effet, on remarque qu'on reconstruit l'objet Pion et son complexe conjugué (image tournée de  $180^\circ$ ) au sein du cercle de  $2\mu m$ , ce qui rend l'image difficile à analyser. Il faut donc exclure la contribution du cercle dans le support d'autocorrélation afin de reconstruire correctement l'objet. En conclusion, le cercle de  $2\mu m$  de diamètre et de  $100nm$  d'épais-





**Figure 4.24** Amplitude (à gauche) et phase (à droite) de l'image de l'objet reconstruites, obtenues à partir de l'image de diffraction simulée présentée en figure 4.23. L'image est issue d'un lancement unique de l'algorithme itératif et la valeur du seuil de l'autocorrélation est 9%. L'échantillon fait  $1\mu\text{m}$  de largeur.



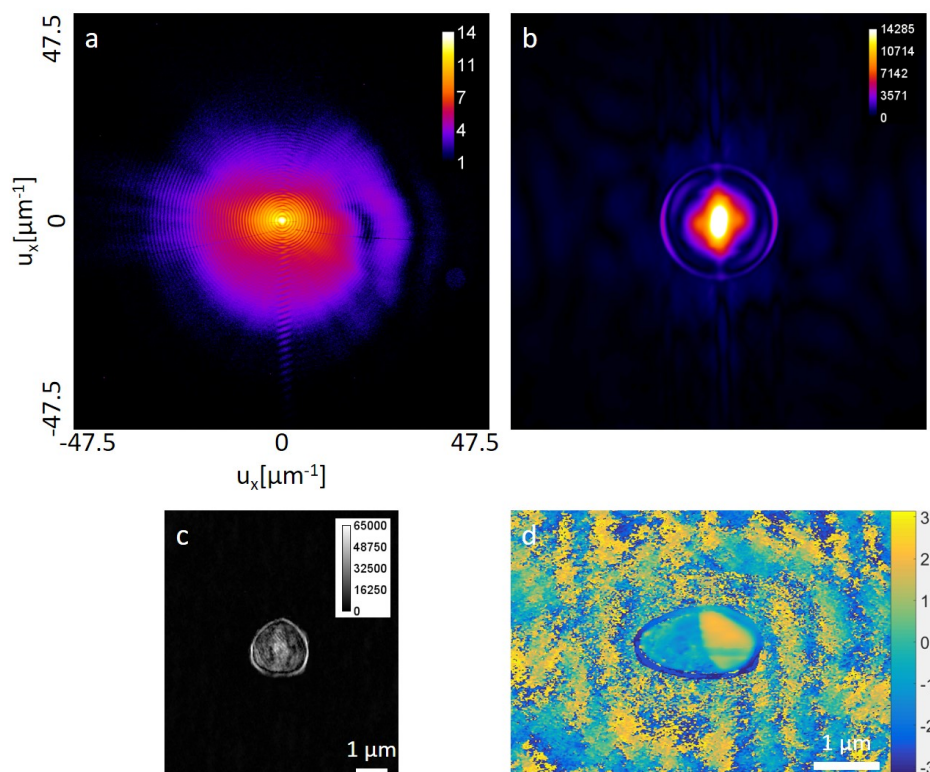
**Figure 4.25** Amplitude (à gauche) et phase (à droite) de l'image de l'objet reconstruites, obtenues à partir de l'image de diffraction simulée présentée en figure 4.23. L'image est issue d'un lancement unique de l'algorithme itératif et la valeur du seuil de l'autocorrélation est 4.5%. Les traits noir et noir pointillé dans l'image de droite tracent le contour de l'objet Pion et son complexe conjugué. L'échantillon fait  $1\mu\text{m}$  de largeur et le disque fait  $2\mu\text{m}$ .

seur transmet une partie du faisceau direct et détériore la résolution. Cependant, cela n'empêche pas d'effectuer une reconstruction de l'objet par algorithme itératif. Ainsi, on peut retrouver la valeur du déphasage induit par les différentes épaisseurs de l'objet.

#### 4.6.3.2 Résultats expérimentaux

La figure 4.26 (a) présente la figure de diffraction de l'échantillon "roue" (visible dans la figure 4.19) en échelle logarithmique, obtenue en effectuant un assemblage HDR de 3 temps d'expositions : 3.3s, 20s et 120s. On utilise un bloqueur de faisceau placé juste devant le capteur CCD pour masquer la saturation du centre de la figure de diffraction pour les temps d'acquisition de 20s et 120s. Un facteur de *binning* 2 est utilisé lors de l'acquisition, ce qui donne un facteur de sur-échantillonnage linéaire de 5.4. Les deux lignes fines quasi-horizontales masquant le signal de diffraction proviennent du câble maintenant le bloqueur de faisceau au centre de la figure de diffraction. Le nombre de photons diffractés détectés sur la figure de diffraction HDR est  $2.07 \times 10^8$ . C'est moins que le nombre que nous obtenons avec nos simulations. Cette différence est probablement

due au fait que l'on utilise la valeur du flux maximale atteignable dans nos simulations, qui est supérieure à celle utilisée dans l'expérience. Il faut noter que la stabilité du faisceau harmonique étant extrêmement bonne, nous n'observons aucune diminution de la visibilité des franges des figures de diffraction lors d'une accumulation. La figure 4.26 (b)

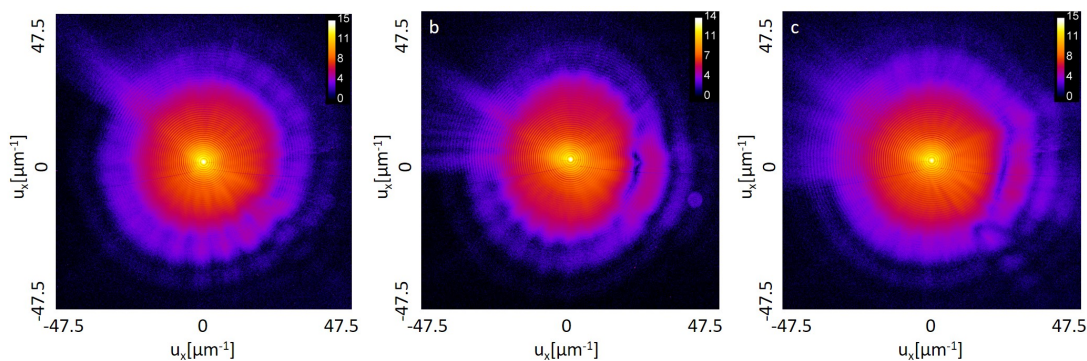


**Figure 4.26** (a) Figure de diffraction expérimentale en échelle logarithmique de l'objet "roue" obtenue par assemblage HDR de 3 temps d'acquisitions :3.3s, 20s et 120s. (b) Transformée de Fourier de (a), autocorrélation de l'objet. (c) et (d) sont l'amplitude et la phase de l'image de l'objet reconstruite, respectivement, issue d'une moyenne de 25 reconstructions minimisant le critère d'erreur de lancements indépendants de l'algorithme.

est la transformée de Fourier du signal de diffraction, c'est l'autocorrélation de l'objet. On effectue la reconstruction de l'image grâce à l'algorithme itératif HIO *difference map* à partir de la figure de diffraction présentée dans l'image (a), en sélectionnant la totalité de la figure de diffraction avec un facteur de *binning software* de 2. Un support initial est généré en effectuant un seuillage de l'autocorrélation expérimentale à une valeur égale à 2% de son intensité maximale. La reconstruction de l'amplitude et de la phase est issue d'une moyenne de 25 reconstructions minimisant le critère d'erreur de lancements indépendants de l'algorithme. La convergence de l'algorithme est difficile : elle se stabilise après 1000 itérations environ, et lors de certains lancements de l'algorithme nous ne parvenons à reconstruire que partiellement l'objet. La résolution calculée avec le critère

$1/e$  de la PRTF est  $43.2nm$  et le RSB calculé dans le module de l'image reconstruite vaut 73. L'amplitude et la phase de l'image finale reconstruite sont présentées dans l'image (c) (d) de la figure 4.26, respectivement. Le saut de phase maximal présent dans l'image de phase vaut environ  $1.25\pi radians$ . Malheureusement, nous ne pouvons pas savoir si cette valeur du déphasage équivaut à une différence d'épaisseur de  $12nm$  ou un multiple de cette valeur. Cependant, le fait qu'il ne semble pas y avoir de *phase wrapping* (ou enroulement de phase) semble signifier que la différence d'épaisseur est bien de  $12nm$ . De plus, on observe un léger déphasage horizontal sur la partie droite de la reconstruction de phase provoqué par une fine différence d'épaisseur sur l'échantillon visible dans l'image (c) de la figure 4.19. Elle correspond à un déphasage de environ  $0.47\pi radians$  soit  $4.5nm$ . Dans l'image de phase et d'amplitude de l'image reconstruite on observe des modulations qui sont probablement dues la structure de l'échantillon qui n'est pas une réplique exacte de celui présenté dans l'image (e) de la figure 4.19. On remarque qu'il est impossible d'observer la discontinuité de phase dans le module de l'image reconstruite, ce qui prouve bien que, pour cet échantillon la phase apporte un meilleur contraste. Afin de vérifier les valeurs de déphasage calculées, il faut mesurer l'épaisseur de l'échantillon avec un AFM, ce qui est prévu dans un institut voisin de l'Université de Jena. Les mesures AFM seront effectuées sur des échantillons dessinés directement à coté de la membrane (sur du silicium) avec les mêmes TPP que ceux dessinés sur la membrane. La figure 4.27 présente trois figures de diffraction expérimentales de l'échantillon "Pion" en échelle logarithmique. La figure de diffraction (b) provient d'un échantillon dessiné avec un TPP de  $0.23\mu s$ , obtenue à partir d'un assemblage HDR de 3 temps d'acquisitions ( $5s$ ,  $30s$  et  $240s$ ) et un facteur de binning  $2 \times 2$ . Le nombre de photons diffractés détectés sur la figure de diffraction est  $3.32 \times 10^8$ . Les figures de diffraction (a et c) proviennent d'un échantillon dessiné avec un TPP de  $0.14\mu s$  et  $0.37\mu s$ , respectivement. Elles sont obtenues à partir d'un assemblage HDR de 3 temps d'acquisitions ( $5s$ ,  $30s$  et  $300s$ ) et un facteur de binning  $2 \times 2$ . Le nombre de photons utiles détectés sur les figures de diffraction (a et c) est  $4.15 \times 10^8$  et  $7.7 \times 10^8$ , respectivement. On remarque que les hautes fréquences spatiales provenant de l'objet Pion sont plus visibles quand le TPP (et donc la dose) utilisée pour le dessiner augmente. En effet quand on augmente la dose, l'objet transmet plus de photons, les différences d'épaisseur augmentent, tout comme l'efficacité de diffraction de l'objet. De plus, certaines fréquences spatiales (en haut à droite) apparaissent quand la dose augmente. Cela implique que des structures de l'objet ne sont présentes que pour ceux dessinés avec des doses plus importantes. Enfin,

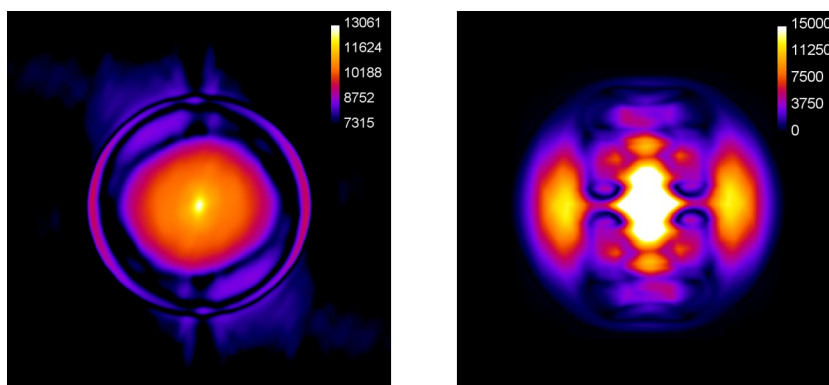
on remarque que la contribution du disque semble bien plus importante dans les figures de diffraction expérimentales que dans celle-simulée (voir figure 4.23). En effet, pour un nombre de photons diffractés équivalent, les franges d'Airy générées par la diffraction du disque sont plus intenses et sont visibles à des plus hautes fréquences spatiales (jusqu'à  $31\mu\text{m}^{-1}$  pour l'expérience et  $17.5\mu\text{m}^{-1}$  pour la simulation).



**Figure 4.27** (a et c) Figures de diffraction de l'échantillon "Pion" dessiné avec un TPP de  $0.14\mu\text{s}$  et  $0.37\mu\text{s}$ , respectivement et obtenues après assemblage HDR de trois temps d'acquisitions différents :  $5\text{s}$ ,  $30\text{s}$  et  $300\text{s}$ . (b) Figure de diffraction qui provient d'un échantillon dessiné avec un TPP de  $0.23\mu\text{s}$ , obtenue à partir d'un assemblage HDR de 3 temps d'acquisitions ( $5\text{s}$ ,  $30\text{s}$  et  $240\text{s}$ ). Les trois figures de diffraction sont enregistrées avec une facteur de binning  $2 \times 2$ .

La figure 4.28 compare l'autocorrélation expérimentale (image de gauche) et simulée (image de droite) de l'objet obtenue par une transformée de Fourier de figures de diffraction enregistrées avec un temps d'acquisition de  $240\text{s}$ . L'image de gauche est la transformée de Fourier de la figure de diffraction présentée dans l'image (b) de la figure 4.27. On remarque qu'il est impossible de séparer la contribution du cercle de la contribution de l'objet dans l'autocorrélation expérimentale, à l'inverse de celle simulée. On ne distingue pas l'autocorrélation de l'objet au centre de l'image dans l'image de gauche. Cela est probablement dû au dessin de l'échantillon qui possède une efficacité de diffraction moins importante que celle prévue dans la simulation (13% pour la simulation contre environ 4% expérimentalement). On conclut que l'échantillon "pion" dessiné n'est donc pas identique à celui simulé et nous ne pouvons pas reconstruire l'objet au sein du disque de  $2\mu\text{m}$  de diamètre. Il est impossible de reconstruire l'objet seul avec un seuillage approprié, comme montré dans la figure 4.24, ou de reconstruire l'objet au sein du disque, comme montré dans la figure 4.25. Nous sommes actuellement entrain d'essayer de reconstruire l'objet avec un autre type d'algorithme itératif utilisé par nos collaborateurs à Jena. Ils utilisent une version "guidée" [116] de l'algorithme RAAR (paramètre  $\beta = 0.95$ )

[117] en combinaison avec une méthode "shrink-wrap" pour dynamiquement modifier le support dans l'espace réel après chaque itération.



**Figure 4.28** A gauche : Autocorrélation de l'objet réel "Pion" obtenue à partir de la transformée de Fourier du signal de diffraction expérimental (b) de la figure 4.27 (240s de temps d'acquisition). A droite : Autocorrélation de l'objet réel "Pion" obtenue à partir de la transformée de Fourier d'une figure de diffraction simulée avec un temps d'acquisition de 240s.

#### 4.6.4 Conclusion et perspectives

Dans la section précédente nous avons montré qu'il est possible de reconstruire des objets de phase et d'amplitude grâce à la technique CDI avec une source harmonique. Des simulations ont montrées que notre algorithme itératif HIO pouvait reconstruire des objets complexes avec des sauts de phases inférieurs à  $2\pi radians$  entre zones adjacentes. Dans nos échantillons, une grande partie du faisceau direct est transmis par un disque de  $2\mu m$  de nitrure de silicium autour de l'objet. Dans nos simulations, nous parvenons à reconstruire l'objet en excluant la contribution du cercle dans le seuillage binaire de l'autocorrélation de l'objet utilisé comme support initial dans l'espace réel pour la reconstruction itérative. Bien que la qualité de la reconstruction est diminuée par le faisceau direct transmis, on parvient à mesurer le déphasage associé au différences d'épaisseurs. Expérimentalement, nous parvenons à reconstruire un disque de  $2\mu m$  présentant deux discontinuités de phase de  $1.25\pi radians$ , ce qui correspond à une différence d'épaisseur de  $12nm$  et à un déphasage de environ  $0.47\pi radians$  soit  $4.5nm$ . Il reste à utiliser un AFM pour valider le déphasage mesuré expérimentalement. A notre connaissance c'est la première reconstruction par méthode CDI d'objets de phase avec une source harmonique. Cependant, pour la majorité des données expérimentales on ne parvient pas à reconstruire l'échantillon. En effet si on compare les figures de diffraction expérimentales et simulées et les autocorrélations associées, il semble que la contribution

du disque est plus importante dans l'expérience que dans la simulation. Ainsi, dans les figures de diffraction expérimentales les franges d'Airy produites par la diffraction du disque, sont plus intenses et présentes à des fréquences spatiales plus élevées que dans la simulation. De plus, dans les autocorrélations expérimentales de l'échantillon "pion" il est impossible d'utiliser un seuillage approprié afin d'exclure la contribution du disque, ce qui nous empêche d'obtenir une reconstruction de l'objet seul ou de l'objet au sein du disque. Afin d'améliorer les reconstructions il faudrait isoler l'objet à l'aide d'une couche d'or opaque à notre source harmonique. Par exemple, en dessinant les objets sur une membrane de  $50nm$  d'or et  $75nm$  de nitrure de silicium, en retirant la totalité de la couche d'or sur les objets, mais en la laissant intacte autour, on pourrait supprimer la contribution du faisceau direct. Il suffirait alors de dessiner l'objet en réalisant différentes marches d'épaisseur sur le  $Si_3N_4$  seul. Nous avons tenté de créer de tels échantillons à l'aide du FIB au CSNSM. Cependant, il est difficile de retirer de façon précise et uniforme une couche d'or de cette épaisseur. Des renflements d'ors sont présents un peu partout sur l'échantillon, comme le montre la figure 4.29, ce qui le rend inutilisable pour de l'imagerie de phase.



**Figure 4.29** Image MEB de l'échantillon Pion prise à  $60^\circ$ . Il reste de fines zones d'or disséminées sur l'échantillon.

De manière similaire à l'expérience effectuée par Guizar-Sicairos *et al.* sur synchrotron en 2011, avec un échantillon possédant une plus grande efficacité de diffraction et une structure tri-dimensionnelle plus prononcée que ceux utilisés ici, il serait possible de réaliser de la tomographie d'objet de phase en combinant des projections 2D reconstruites par algorithme de diffraction cohérente [112].

La section 5.3 porte sur la classification de figures de diffraction selon l'orientation de l'échantillon en régime de faible flux. Or, avec la source harmonique développée par Rothhardt *et al.*, il est possible de générer plus de  $10^7 photons/s$  à  $215eV$  et environ

$10^6 \text{photons/s}$  dans la fenêtre de l'eau ( $10^5 \text{photons/s}$  à  $350 \text{eV}$  avec 1% de largeur spectrale) [114]. A cette énergie il est possible de réaliser de l'imagerie d'échantillons biologiques, car l'eau est transparente mais pas les structures composées de carbones qui sont absorbantes . A l'aide du travail développé dans la section 5.3, cette source rendrait possible la cryptotomographie de phase d'un objet biologique avec une source harmonique. Une publication basée sur les travaux présentés dans cette section est en cours de rédaction.

## Chapitre 5

# Imagerie sans lentille 3D

### 5.1 Introduction

Dans la nature, la plupart des matériaux possèdent des structures tri-dimensionnelles. La capacité d'obtenir des informations à l'échelle nanométrique sur la structure 3D de systèmes biologiques ou artificiels est d'importance critique dans de très nombreux domaines, de la médecine à la bio-physique et passant par les nano-technologies. La plupart des techniques d'imageries sans lentille fournissent une image bi-dimensionnelle représentant une projection de la transmission de l'objet étudié sur un plan, ce qui rend difficile l'obtention d'une information 3D détaillée. La technique la plus utilisée dans le domaine des X pour réaliser une imagerie 3D d'un objet est la tomographie [118, 119]. Cette méthode fonctionne avec le même arrangement expérimental que l'imagerie sans lentille. Elle nécessite d'enregistrer une figure de diffraction en champ lointain sur un capteur CCD pour de multiples orientations (typiquement plusieurs centaines, variable selon l'échantillon) de l'objet étudié en le faisant tourner par rapport à la source d'illumination. Une fois tous les angles scannés, et toutes les tranches 2D - projections de la transmission et de la phase selon une direction- du volume enregistrées, on peut reconstruire le volume 3D grâce à une transformée inverse (*filtered-back projection* en anglais, rapide mais produisant plus d'erreurs) ou par algorithmes itératifs de reconstruction basés sur une représentation discrète du problème (plus lourds d'un point de vue computationnel mais introduisant moins d'artefacts). Cependant, la reconstruction 3D du volume nécessite un grand nombre de projections à des angles différents et d'acquisitions (plus d'une centaine au minimum). Par conséquent, l'échantillon est soumis à une



forte dose d'irradiation totale, ce qui peut l'endommager ou même le détruire, particulièrement s'il est biologique et qu'on utilise une source X "dur". Ceci peut entraîner une réduction de la résolution spatiale effective de la reconstruction [32]. L'utilisation de rayonnement X durs (plusieurs keV) provenant de synchrotrons permet d'obtenir des résolutions nanométriques isotropiques 3D d'objets étendus en combinant tomographie et ptychographie, technique appelée ptychotomographie [43, 113, 120]. Il faut noter que cette technique, bien qu'elle permette d'imager des objets étendus spatialement et d'améliorer la résolution axiale et transverse, requiert un nombre encore plus important de projections et résulte en une plus forte dose totale [121]. L'imagerie avant destruction d'une particule isolée, rendue possible par les sources ultra-haute intensité avec des impulsions ultra-courtes que sont les X-FELs, permet de contourner le problème de l'irradiation. En effet, une durée d'impulsion suffisamment courte ( $< 50fs$ ), permet de récupérer l'information de transmission de l'échantillon biologique et de diffracter le front d'onde incident avant que l'échantillon ne soit détruit ou endommagé [14, 21, 22]. Cependant l'application de cette méthode à la tomographie nécessite un très grand nombre d'échantillons identiques (quelques milliers) et génère une quantité extrêmement importante de figures de diffraction qui doivent être classifiées par orientations afin de fournir une reconstruction 3D complète. Une démonstration expérimentale de cette méthode a été obtenue par Ekerbeg *et al.* au XFEL LCLS [7] en utilisant un injecteur afin de faire intercepter de façon aléatoire plusieurs milliers de mimi-virus avec le faisceau. Ainsi, ils obtiennent une reconstruction 3D tomographique sans connaissance *a priori* de l'orientation de l'échantillon. De plus, si l'on souhaite étudier des phénomènes dynamiques en 3D avec un montage pompe-sonde, l'échantillon est susceptible d'être endommagé ou détruit après avoir été excité par la pompe. Dans ce cas, il est impossible d'effectuer une reconstruction 3D avec une résolution temporelle puisque la structure de l'échantillon est modifiée dès la première mesure. Seuls les phénomènes réversibles peuvent être ainsi étudiés. Une solution à cette limitation serait de posséder un nombre suffisant d'échantillons identiques, et de relancer une acquisition sur un échantillon intact avec un délai pompe sonde identique avec une orientation différente et répéter ce processus jusqu'à ce que l'on ait acquis un nombre d'orientations suffisant pour pouvoir effectuer une reconstruction 3D puis varier le délai pompe-sonde. Cependant c'est extrêmement contraignant expérimentalement à réaliser et reproduire à l'identique un grand nombre d'échantillons n'est pas toujours possible, en bio-moléculaire par exemple.

---

Pour contourner tout ces problèmes il est nécessaire de récupérer l'information 3D en une seule acquisition. L'expérience qui sera détaillée dans ce chapitre (le développement d'une méthode d'imagerie 3D en simple tir 5.2) suit ce principe. Notre technique se base sur l'imagerie stéréo : on sépare notre source XUV en deux, on illumine l'objet étudié sous deux angles différents et on récupère les deux figures de diffraction simultanément sur une seule caméra CCD. Après reconstruction des deux images, on construit une "difference map" en comparant les distances en pixel entre des points similaires de l'objet dans les deux images. Puis en tenant compte de la géométrie de notre système d'imagerie (angle entre les deux faisceaux, distance caméra-échantillon, taille des pixels et nombre de pixels dans le détecteur) on reconstruit le volume 3D à partir de cette carte de différence. Cette technique possède l'avantage d'être peu coûteuse, facile à implémenter lorsqu'il est possible de séparer le faisceau en deux et de fonctionner avec tout type d'échantillon (de phase ou d'amplitude) tant que l'on est capable de reconnaître des parties identiques de l'objet reconstruit dans les deux images.

L'autre partie de ce chapitre porte sur la première étape nécessaire à la tomographie d'un échantillon biologique en utilisant la HHG : la classification des figures de diffraction par orientation dans un régime de faible flux de photons. Cette expérience est pertinente pour plusieurs raisons. Tout d'abord, il est parfois impossible de placer un échantillon de manière à changer son orientation par rapport au faisceau incident après chaque tir et/ou chaque orientation. Cela peut être dû à des raisons pratiques (ex : échantillon trop fragile pour être placé sur un porte échantillon ou pour être cryogénisé) ou l'objet étudié est endommagé ou détruit après chaque tir laser. Dans ce cas, il est nécessaire de déterminer l'orientation de l'échantillon en comparant les figures de diffraction provenant d'orientations inconnues d'échantillons identiques. L'autre aspect intéressant de cette expérience est le faible nombre de photons utiles présents sur chaque figure de diffraction. En effet, la plupart des matériaux constituant les échantillons biologiques sont trop absorbants aux longueurs d'ondes avec lesquelles nous travaillons habituellement. Dans cette expérience on travaille avec H33, soit à  $24.24nm$ . L'idée originale, proposée par Duane Loh de l'Université de Singapour, était d'étudier des nano-structures de chitine, présentes sur les écailles qui se chevauchent pour former les ailes des papillons. La chitine possède une transmission de  $0.31^{-5}$  et induit un déphasage optique de  $\pi$  pour une épaisseur de  $500nm$  à  $24.24nm$ . Sachant qu'une écaille fait typiquement  $10\mu m$  d'épaisseur il est clair que l'échantillon est trop absorbant pour notre longueur d'onde. On peut

se placer sur les bords des écailles ou les casser en utilisant de l'azote liquide et une contrainte mécanique pour obtenir des morceaux plus fins. Si on parvenait à obtenir des morceaux de  $500\text{nm}$ , l'efficacité de diffraction serait si faible qu'on obtiendrait moins de  $1000\text{photons/impulsion}$  diffractés sur notre capteur CCD. Ce nombre de photons est insuffisant pour obtenir une reconstruction de l'objet ( $10^7\text{photons}$  est le nombre minimum de photons diffractés sur la caméra permettant une reconstruction, bien que ce nombre dépende de l'objet) et pour comparer les orientations entre les figures de diffractions. Il faut donc corrélérer l'information entre des centaines de figures de diffraction provenant d'une même orientation de manière à pouvoir correctement déterminer l'orientation de cette série de données. De plus, le régime de faible flux dans lequel on se place nous permet de simuler les paramètres d'une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau. Cousinet *al.* [26] obtiennent  $1.85 \times 10^7\text{photons/s}$  à  $300\text{eV}$  juste après génération. C'est environ 2 ordres de grandeur de moins que ce qu'on obtient dans le néon avec H33. On choisira donc volontairement un temps d'acquisition 100 fois plus faible que celui qui serait utilisé pour obtenir une reconstruction correcte de l'objet (moins de 10 tirs laser). En résumé, le but de cette expérience est de vérifier si l'on peut utiliser l'algorithme EMC (*Expand Maximise Compress* en anglais) développé par Duane Loh et Veit Elser [122, 123] pour déterminer l'orientation de l'objet en corrélant l'information de multiples (une centaine) figures de diffraction pour chaque orientation comportant environ 1000 photons utiles détectés par la caméra CCD. Ce régime nous permet de simuler les paramètres d'une source HHG fonctionnant dans la fenêtre de l'eau ou notre source harmonique à H33 quand on étudie un échantillon biologique (par exemple la chitine). Après avoir trié les figures de diffractions selon l'orientation, il reste à assembler l'espace tri-dimensionnel de diffraction et effectuer la reconstruction itérative pour reconstruire le volume 3D. Ainsi cette expérience est une preuve de concept de la faisabilité de la cryptomotomographie d'un échantillon biologique avec une source harmonique.

## 5.2 Imagerie sans lentille stéréo simple tir

### 5.2.1 Principe

L'imagerie par diffraction cohérente est une technique parfaitement adaptée à l'utilisation de sources à courtes longueurs d'ondes qui sont disponibles dans des synchrotrons

[124], des FELs [125] et des sources HHG [28, 126] et permet d'atteindre des résolutions meilleures que la longueur d'onde [127]. Plusieurs techniques ayant pour but d'étendre l'imagerie par diffraction cohérente à la 3D ont été développées. Comme détaillé précédemment, la tomographie est la plus utilisée et permet de reconstruire l'échantillon en 3D avec une très bonne résolution. Cependant, elle n'est applicable sur FEL ou synchrotron seulement si l'échantillon n'est pas sensible aux dégâts d'irradiation ou si on possède plusieurs milliers d'échantillons identiques. En 2002, Miao *et al.* [128] ont développé une méthode, appelée "ankylographie", qui permet d'obtenir une reconstruction 3D d'un objet à partir d'une seule figure de diffraction et la mesure de la courbure de la sphère d'Ewald associée, une mesure qui peut être effectuée en simple tir. Cependant l'application expérimentale de cette méthode est difficile, voir impossible avec des objets complexes. En effet, la reconstruction itérative 3D n'est généralement pas unique et n'est possible que dans des conditions très limitantes (ex : objet quasi-plan ou présentant une forte symétrie, nano-cristaux typiquement) [129] [130] [131] et n'est pas exploitable pour des échantillons biologiques. Une autre méthode d'imagerie 3D est la stéréo-microscopie, qui peut être mise en place sur des microscopes à balayage électronique (MEB), [132]. Le principal défaut de cette technique est de n'obtenir qu'un effet 3D physiologique, rendant impossible l'extraction d'une information axiale quantitative. De plus l'angle de vue maximal entre les deux chemins optiques est proche de celui de la vision humaine et reste faible (environ  $5^\circ$ ) limitant l'information structurelle que l'on peut obtenir. En 2008, Schmidt *et al.* [133] proposent une méthode utilisant un nano-crystal pour diviser un faisceau FEL en deux sous-faisceaux et usant de deux caméras CCD pour récupérer les deux figures de diffractions. Cependant, leurs travaux sont théoriques et ne précisent pas comment obtenir une reconstruction 3D à partir de ces deux images. Plusieurs expériences [134] [135] [136] étudiant des nano-tubes, des particules d'hématite et des nanostructures de nickel respectivement ont été réalisées sur des lignes de lumière synchrotron en utilisant l'imagerie stéréo. Mais aucune d'elles n'est applicable en simple tir. En 2014, Gallagher-Jones *et al.* ont sondé la structure 3D d'une micro-éponge d'acide nucléique interférent en combinant des reconstructions CDI obtenues à partir de figures de diffraction simple tir sur FEL et de multiples figures de diffraction obtenues sur synchrotron. Néanmoins, leur technique requiert de nombreux angles de diffraction et donc plusieurs acquisitions rendant impossible l'étude de phénomènes dynamique 3D. De plus aucune reconstruction 3D n'a été obtenue à partir des figures de diffraction simple tir enregistrées. Enfin en 2014, Xu *et al.* [137] ont réalisé la reconstruction de la structure

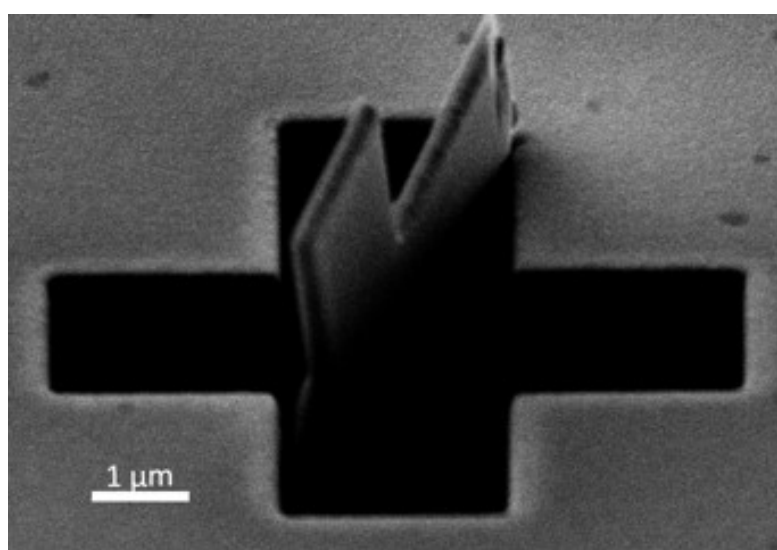
3D de nano-cristaux d'or à partir de figures de diffraction simple tir obtenues sur FEL. Cependant, la technique utilisée pour obtenir la reconstruction 3D utilise très fortement la symétrie des échantillons et emploie des connaissances *a priori* sur l'objet étudié comme hypothèses de départ de l'algorithme itératif, ce qui limite son utilisation aux nano-cristaux et des échantillons présentant de très fortes symétries.

La méthode présentée ici permet de réaliser une reconstruction stéréo 3D en simple tir. Nous avons développé un montage expérimental simple permettant de séparer un faisceau harmonique XUV en deux sous-faisceaux cohérents illuminant un échantillon sous deux angles différents et contrôlables indépendamment. Au lieu de construire un anaglyphe à partir de la reconstruction des deux projections 2D, comme on le fait en stéréo-microscopie, on combine les deux vues en une matrice 3D contenant des informations de profondeur quantitatives. C'est la première expérience permettant une reconstruction 3D à partir d'une seule acquisition, avec une résolution spatiale axiale et transverse nanométrique et une résolution temporelle femtoseconde, sans formuler d'hypothèses ou utiliser de connaissances *a priori* sur l'objet étudié. Cette technique possède un spectre d'application très large, particulièrement pour l'étude structurale d'échantillons biologiques sensibles aux dégâts d'irradiation et des phénomènes 3D non réversibles. Elle peut être facilement applicable à des FELs et synchrotrons pour obtenir de meilleures résolutions axiales et transverses. Dans les cas particuliers où la reconstruction 3D avec notre méthode n'est pas possible, on peut aussi utiliser le montage expérimental pour réaliser de la stéréo-microscopie pour obtenir une perspective 3D de notre échantillon.

### 5.2.2 Montage

La ligne harmonique est détaillée dans la partie 3.3.1. On rappelle qu'on génère le faisceau harmonique en utilisant un laser Ti :Sa amplifié qui délivre des impulsions de  $30mJ$ ,  $60fs$  avec un taux de répétition de  $20Hz$  qu'on focalise dans une cellule de gaz à l'aide d'une lentille longue focale de  $5.65m$ . Une parabole hors axe à  $22.5^\circ$ , de focale  $f = 20cm$ , sélectionne l'harmonique 33 (généré dans le néon) et focalise le faisceau XUV sur une tache focale de  $5\mu m$  de diamètre. Cette expérience a été réalisée avec H33 car le traitement multi-couches de la parabole permettant de sélectionner H25 dans l'argon était fortement dégradé. Le flux est donc deux ordres de grandeur plus faible qu'il pourrait l'être avec H33. Après optimisation de H33 ( $\lambda = 24.24nm$ ) on

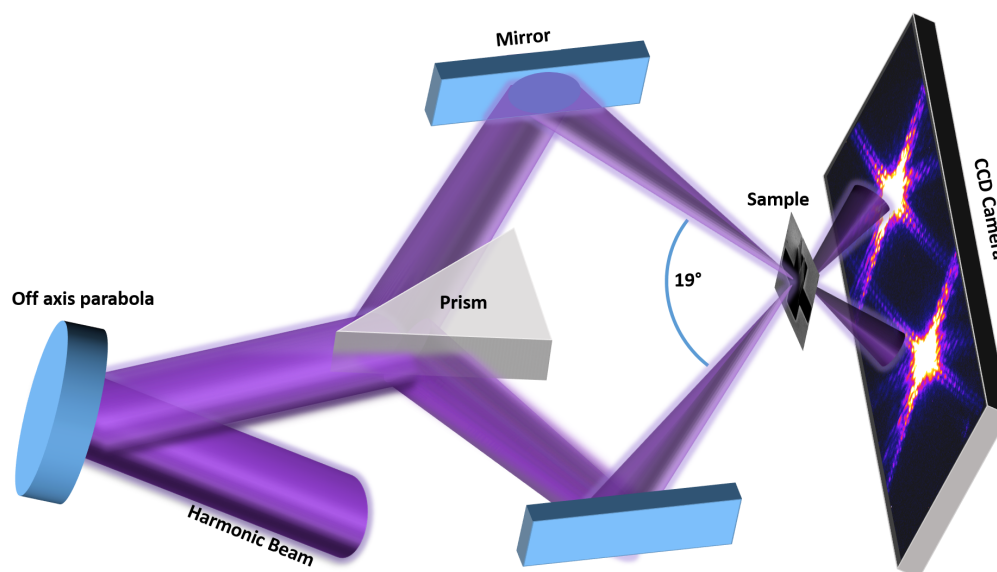
atteint  $4.10^9 \text{ photons/tir}$  après génération avec une finesse de  $N = 120$  et une durée d'impulsion estimée à  $20 \text{ fs}$ . La position de l'échantillon est contrôlée par des piezo-contrôleurs permettant de le placer dans le plan focal de la parabole. La caméra CCD, composée d'une matrice de  $2048 \times 2048$  pixels de taille  $\Delta_k = 13.5 \mu\text{m}$ , est positionnée à  $z = 26 \text{ mm}$  de l'échantillon en champ lointain (on a  $F = \frac{r^2}{\lambda z} = 2.5 \times 10^{-2} \ll 1$ ). Une image MEB de l'échantillon est visible dans la figure 5.1. On dessine l'échantillon à l'aide d'un faisceau d'ion focalisé (FIB en anglais) sur une membrane de  $150 \text{ nm}$  d'or au CSNSM à Orsay. Il est donc totalement opaque à la longueur d'onde que nous utilisons, c'est un objet d'amplitude purement binaire (transmission 0 ou 1).



**Figure 5.1** Image MEB de l'échantillon. La taille du contour de la croix fait  $6 \times 7 \mu\text{m}$ . La membrane fait  $150 \text{ nm}$  d'or,  $75 \text{ nm}$  de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  et  $4 \text{ nm}$  de Cr pour faciliter l'adhésion des deux couches. On dessine l'échantillon avec un faisceau d'ion focalisé. Les forces électrostatiques empêchent l'intérieur de la croix de tomber, l'attachant de façon permanente à la membrane.

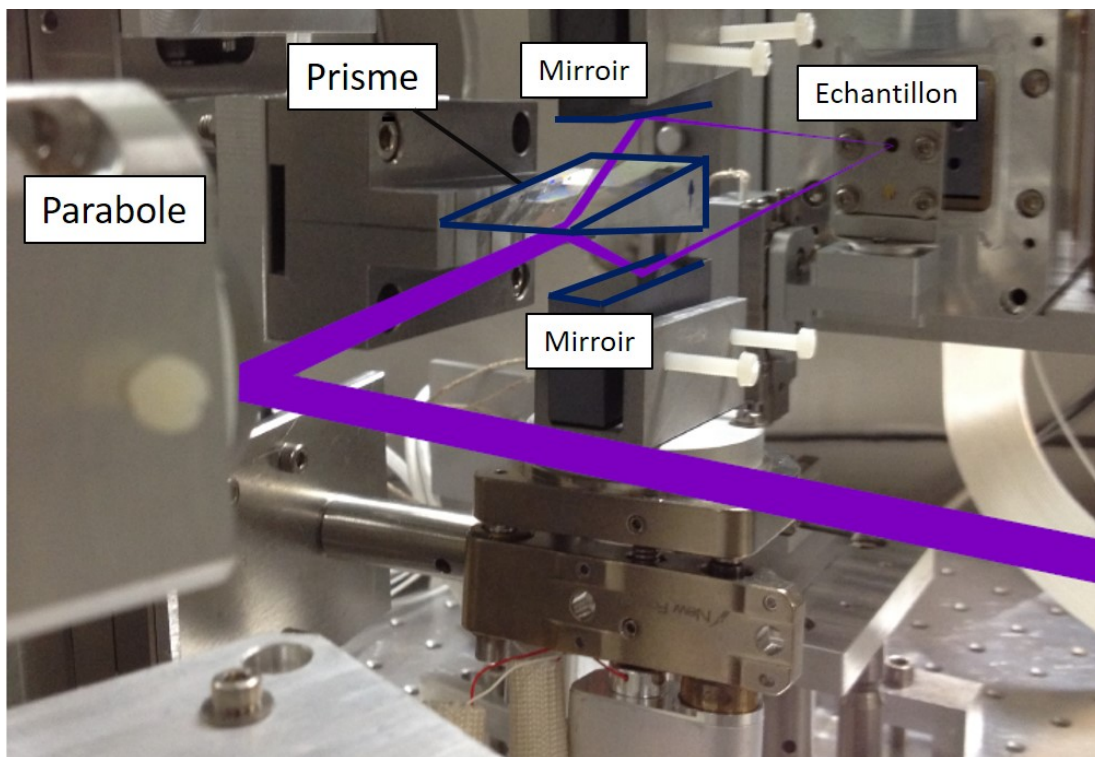
Le schéma du montage expérimental stéréo est détaillé en figure 5.2 et une photo est présentée en 5.3 . Pour générer les deux faisceaux harmoniques à partir du faisceau principal on utilise les bords d'un prisme en silice en incidence rasante, placé entre l'OAP et l'échantillon. Chaque sous-faisceau est réfléchi vers l'échantillon par une lame de silicium ajustable permettant la superposition des deux foyers sur l'échantillon. Pour éviter que le diamètre de la parabole hors axe limite l'angle entre les deux faisceaux on choisit de placer le montage prisme/lames après et non pas avant l'OAP. La position et le tilt des lames étant contrôlés par des moteurs, on a un contrôle très fin de la superposition des faisceaux et de l'angle entre ces derniers. De plus, la distance relative entre les lames et le prisme permet un réglage précis du délai temporel entre les deux

impulsions, ce qui rendrait possible des expériences de type pompe XUV-sonde XUV résolues en temps. A cause du faible angle de déviation de la parabole hors axe, le faisceau incident et celui réfléchi sont proche spatialement. Cela limite la distance maximale possible entre le prisme et les lames de silicium, limitant ainsi l'angle maximal entre les deux faisceau. Pour cette raison nous avons implémenté le montage verticalement. On estime la transmission du montage à 75%, à partir du nombre moyen de photons par tir sur la caméra en champ lointain, avec une répartition de 50% du flux total par sous-faisceaux. Les deux faisceaux XUV sont diffractés par l'échantillon et on enregistre les figures de diffraction en champ lointain par la caméra XUV-CCD. Dans notre cas, l'angle entre les deux faisceaux est de  $19^\circ$ . Il est choisi le plus grand possible pour éviter le chevauchement des deux figures de diffractions tout en évitant de couper trop de hautes fréquences spatiales par la caméra CCD.



**Figure 5.2** Montage expérimental pour l'imagerie stéréo 3D. Une parabole hors axe (OAP) sélectionne l'harmonique 33 ( $\lambda = 24.24nm$ ) généré dans le néon grâce à un traitement multi-couches. Un prisme en silice en incidence rasante inséré après l'OAP sépare le faisceau harmonique en deux. Des lames de silicium contrôlables permettent de dévier chaque sous-faisceau sur l'échantillon. On récupère les deux figures de diffractions simultanément sur une unique caméra CCD.

Un premier alignement a été réalisé avec le faisceau infrarouge incident pour vérifier la superposition et l'angle entre les deux sous-faisceaux. Pour contrôler et améliorer la superposition temporelle et spatiale de l'IR on utilise un cristal de BBO et on mesure la génération de seconde harmonique non colinéaire. L'alignement final est effectué avec



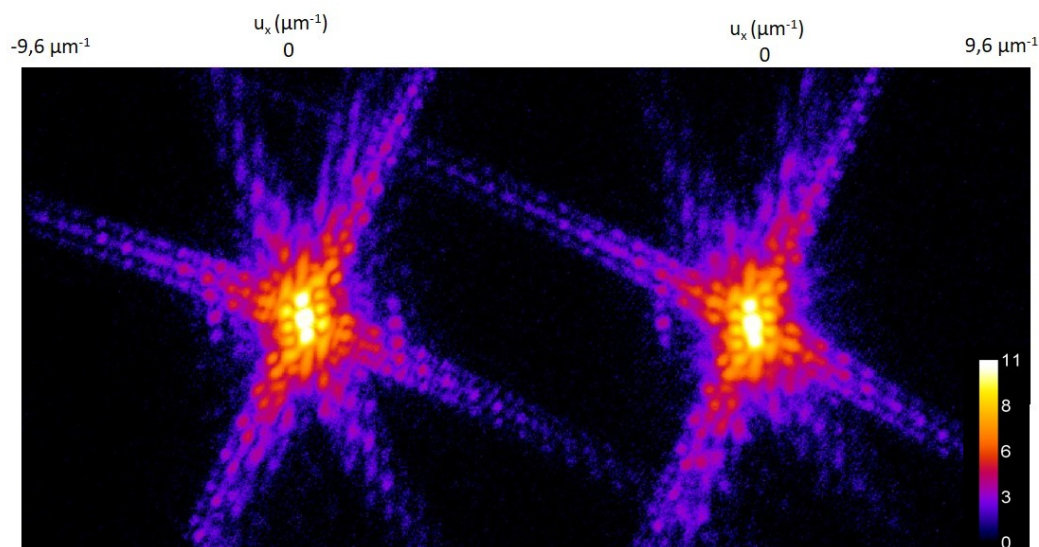
**Figure 5.3** Photo du montage expérimental pour l'imagerie stéréo 3D. Pour améliorer la visibilité le trajet du faisceau harmonique est tracé en violet et les contours du prisme et des miroirs sont tracés en bleu.

l'XUV en contrôlant la hauteur du prisme pour vérifier la répartition entre les deux sous-faisceau. On place l'échantillon dans le plan focal et on optimise en premier la superposition entre le faisceau du haut (provenant de la lame du haut, fixe) et l'échantillon puis on change la position et l'angle de la lame du bas jusqu'à optimiser la superposition entre le faisceau du bas et l'échantillon à la même position que pour le faisceau du haut. Dans nos conditions expérimentales, le facteur de sur-échantillonnage linéaire vaut  $O = \frac{\lambda z}{a \Delta_k} = 8$ , avec  $a = 5 \mu m$  et on est bien en champ lointain car  $z = 26 mm \gg \frac{a^2}{\lambda} = 1 mm$ , les conditions requises pour effectuer une reconstruction CDI sont donc remplies.

### 5.2.3 Reconstruction 2D et 3D CDI

La figure 5.4 montre une figure de diffraction en échelle logarithmique typique obtenue pour une acquisition unique de 180s sur un capteur CCD avec un binning de  $2 \times 2$  lors de l'acquisition. Le nombre de photons diffractés présents sur chaque figure de diffraction est équivalent ( $\sim 5 \times 10^7 photons$ ). On note que les deux figures de diffractions se chevauchent légèrement en 2 points. On peut exclure cette partie là de la figure de diffraction sans détériorer la résolution de la reconstruction car le chevauchement a

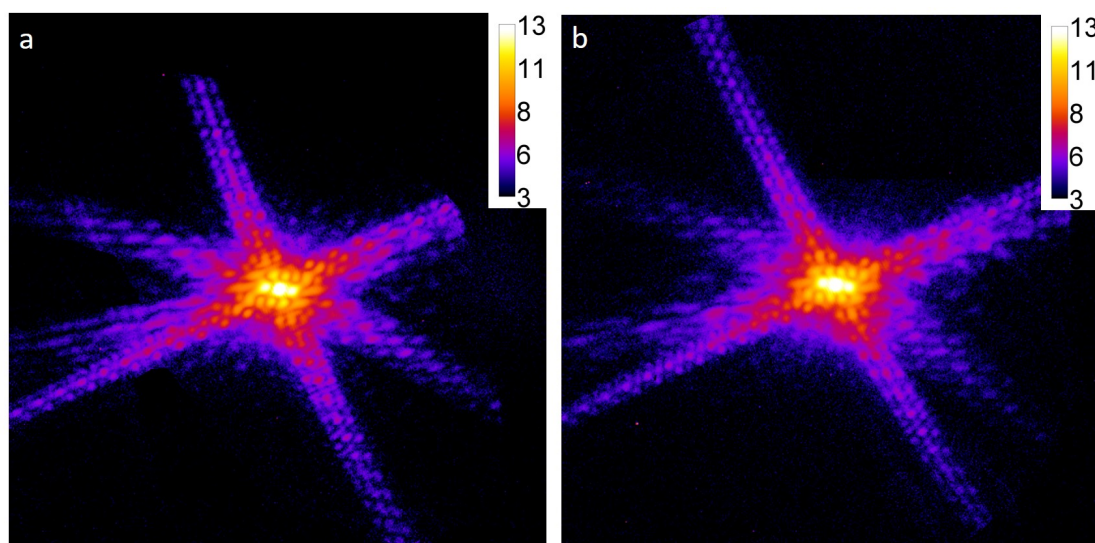




**Figure 5.4** Les deux figures de diffraction simple acquisition, en échelle logarithmique (tournées de  $90^\circ$  dans le sens horaire) enregistrées simultanément sur une seule caméra CCD avec un temps d'acquisition de  $180s$ . La figure de diffraction de gauche provient du faisceau réfléchi par la lame du haut et celle de droite provient de celui réfléchi par la lame du bas. On observe que la répartition en intensité est égale entre les deux figures de diffraction.

lieu pour des fréquences spatiales supérieures ou égales à  $6.6\mu m^{-1}$ , ce qui correspond à une résolution théorique de  $75nm$ . L'objet ne possédant aucun détail aussi petit, on peut utiliser uniquement les fréquences spatiales des figures de diffraction inférieures à  $6.6\mu m^{-1}$ ) sans détériorer la qualité de la reconstruction.

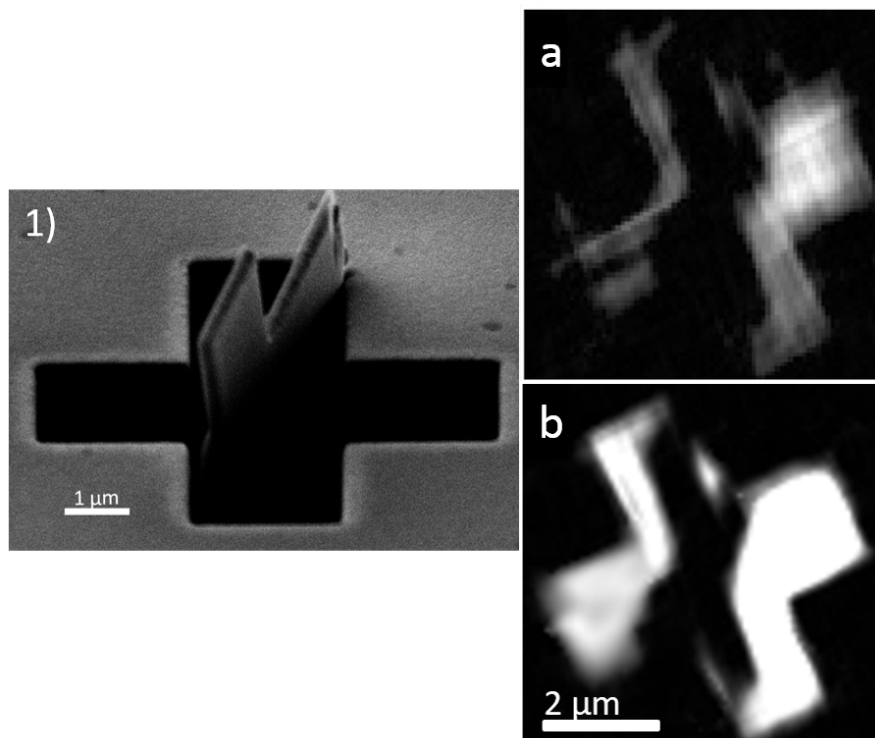
A l'inverse de H25 généré dans l'argon, H33 dans le néon ne permet pas de réaliser des reconstructions CDI à partir de figures de diffraction simple tir. En effet, le nombre de photons/tir est deux ordres de grandeur plus faible pour H33 dans le néon que pour H25 dans l'argon. Pour compenser le faible flux de photons disponible et pour dépasser la limite imposée par la dynamique du détecteur (16 bits) nous utilisons une méthode HDR ( détaillée en 4.3.1 ). On enregistre les figures de diffraction pour différents temps d'acquisition allant de  $30s$  pour une figure de diffraction proche de la saturation de la dynamique de la caméra à  $240s$  pour le temps d'exposition maximal (figure de diffraction saturée) avant de les recombinaison. On choisit judicieusement le filtre gaussien qu'on applique au masque binaire qui définit la zone saturée à remplacer dans la figure de diffraction saturée pour que l'assemblage des deux zones n'induisse pas de saut en amplitude et crée des fréquences artificielles. Les figures de diffraction correspondants aux deux vues sont isolées puis assemblées en HDR. La figure 5.5 montre les deux figures de diffraction en échelle logarithmique après l'étape HDR.



**Figure 5.5** a) Figure de diffraction provenant du faisceau du haut isolée et traitée par HDR avec des temps d'intégration de 30s et 240s. b) Figure de diffraction provenant du faisceau du bas isolée et traitée par HDR avec des temps d'intégration de 35s et 240s.

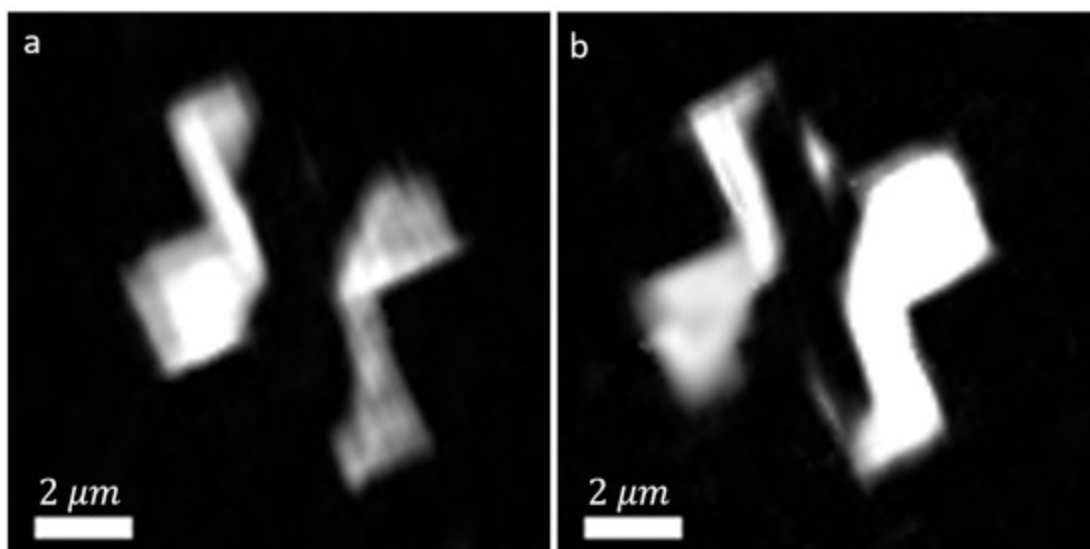
On utilise l'algorithme itératif HIO "difference map" pour effectuer les reconstructions des deux figures de diffraction. On lance 1000 itérations de l'algorithme et on récupère la reconstruction qui minimise la fonction d'erreur  $\epsilon_n = \sqrt{\sum_{i=1}^N |d_i(x_n)|^2}$  calculée à chaque itération. On peut alors les superposer de façon cohérente à l'aide de l'algorithme "DFT registration" [73]. On superpose 40 reconstructions issues de lancements indépendants de l'algorithme pour les deux projections. La figure 5.6 montre l'amélioration de la qualité de la reconstruction "vue du haut" grâce à la superposition cohérente. La valeur du RSB pour une seule reconstruction vaut  $RSB_1 = 34$  et dans le cas de 40 superpositions cohérente, on a  $RSB_{40} = 148$ .

La figure 5.7 montre les reconstructions des deux figures de diffraction provenant d'une superposition cohérente de 40 reconstructions provenant de lancements indépendants de l'algorithme. On peut déjà observer des informations structurelles pertinentes sur l'objet à partir de ces deux projections : les positions de la croix opaque au milieu sont différentes, on voit un espace entre la croix et la membrane sur la vue du dessous et pas avec la vue du dessus. On calcule notre résolution spatiale avec le critère 10 – 90% : une coupe est réalisée sur notre reconstruction. La résolution est alors définie comme l'écart en pixel entre 10% et 90% de la valeur maximale de la coupe de l'objet. On comprend alors que plus les contours sont nets et bien définis, meilleure sera cette valeur. La résolution est estimée à 3 pixels comme le montre la figure 5.8, soit  $127nm$ . On estime la résolution pour le cas d'une reconstruction après superposition cohérente. Cependant

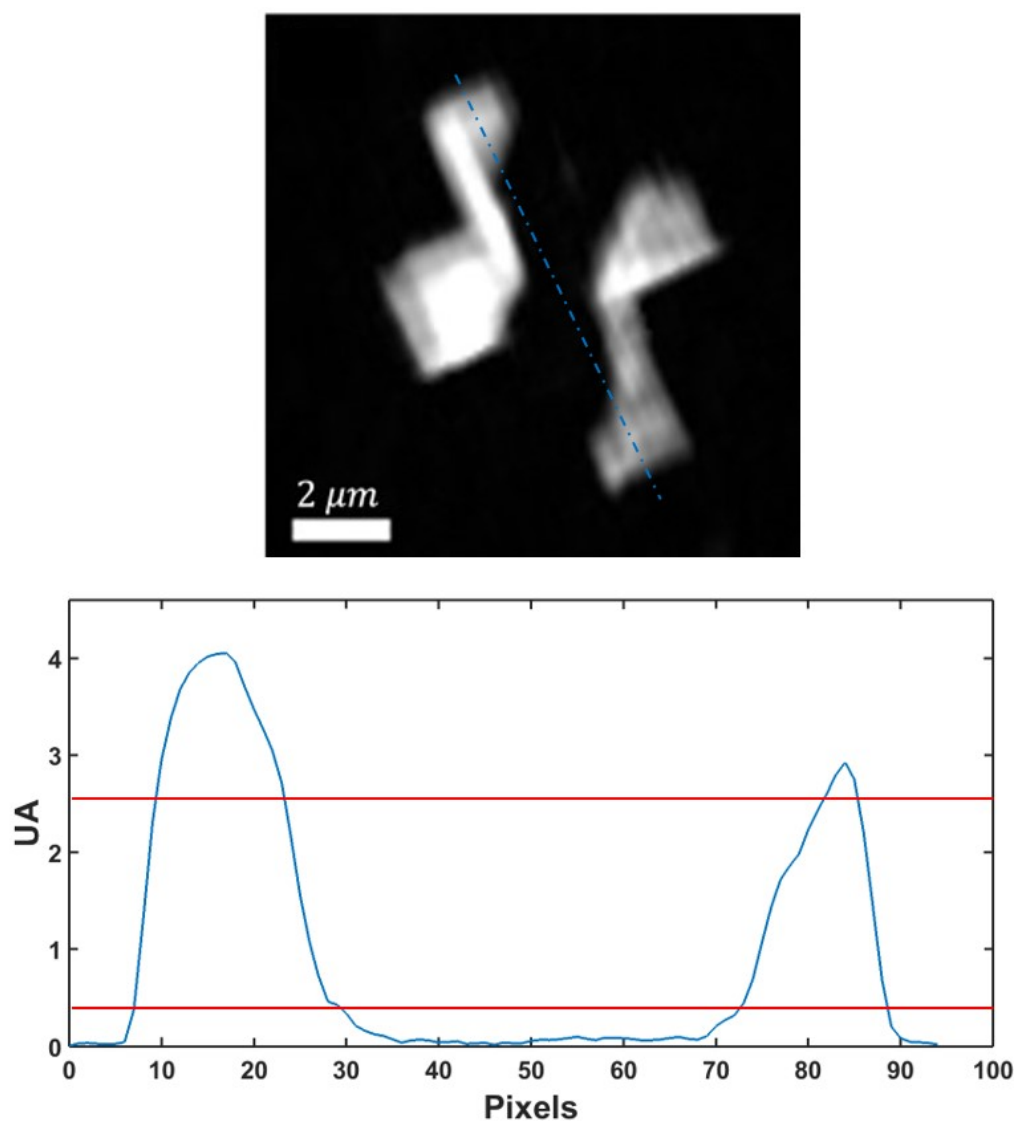


**Figure 5.6** a) est une reconstruction expérimentale de l'objet 1) "vue du bas" minimisant la fonction d'erreur issue d'un lancement unique de l'algorithme et b) est le résultat d'une superposition de 40 reconstructions provenant de lancements indépendants de l'algorithme avec une phase initiale différente à chaque départ.

nous avons trouvé que la valeur de la résolution reste identique entre une reconstruction provenant d'un seul lancement de l'algorithme et une obtenue après superposition, seul change le RSB et la fidélité de la reconstruction.



**Figure 5.7** a) : Reconstruction de l'objet "vue du haut" provenant d'une superposition cohérente de 40 reconstructions provenant de lancements indépendants de l'algorithme avec une phase initiale différente à chaque départ. b) Idem pour "la vue du bas".



**Figure 5.8** Coupe de la reconstruction "vue du haut" après superposition cohérente et estimation de la résolution par critère 10% – 90%. Le pas pixel est de  $42.4nm$  et la résolution est estimée à 3 pixels, soit  $127nm$ .

Cette méthode permet d'acquérir des informations qualitatives sur la structure de l'objet en une unique acquisition. Cependant, il est possible d'aller plus loin et de récupérer des informations quantitatives de profondeur sur l'objet. En effet, à partir de la paire d'images reconstruites correspondant aux deux vues de l'objet on peut construire une carte des disparités. La disparité correspond à la distance entre deux points correspondant au même détail de l'objet dans la paire d'image. En faisant correspondre tout les pixels d'une image avec ceux de l'autre on peut calculer la distance entre chaque pixel correspondant. On construit ainsi une image où la valeur de chaque pixel est la disparité calculée à ce pixel à partir de la paire d'images. La carte des disparités peut être convertie en information de profondeur à partir d'une simple équation donnée par

la géométrie de notre montage :

$$z(P, \theta) = \frac{d(P)}{\tan \theta_1 + \tan \theta_2} \quad (5.1)$$

Dans l'équation 5.1,  $z$  est la profondeur relative du point  $P$  de l'échantillon,  $d(P)$  est la valeur de la disparité du point  $P$  dans la carte de disparité et  $\theta_1, \theta_2$  sont les angles entre le plan de la CCD et les deux faisceaux stéréo. A partir de l'équation 5.1 on remarque que la valeur de la résolution en profondeur (ou résolution axiale) diminue quand l'angle entre les deux faisceaux augmente. On pourrait supposer qu'il est possible d'augmenter l'angle entre les deux faisceaux jusqu'à obtenir la meilleure résolution axiale possible. Cependant, il existe une limite qui dépend de la structure de l'échantillon. En effet, cette technique nécessite qu'il existe des détails caractéristiques de l'objet présents dans la paire d'images stéréo et qu'on puisse les faire correspondre à l'aide d'outils de traitement d'image. C'est à partir de ces correspondances qu'on peut calculer la carte des disparités et donc reconstruire le volume 3D. L'étape de correspondance entre pixels identiques dans la paire d'images stéréo est critique et extrêmement sensible aux variations d'intensité des pixels. Pour éviter des erreurs dans l'étape de détection de détails de l'objet provenant d'algorithmes de "*feature matching*" ou des conditions expérimentales (profil en intensité du faisceau non-uniforme, faible cohérence spatiale...), les deux images reconstruites sont converties en images binaires. Avant la conversion, on applique un filtre passe-bas gaussien pour réduire le bruit. On seuille les images afin de les convertir en images binaires et on utilise des outils morphologiques pour parfaitement isoler l'objet dans la reconstruction et éviter des erreurs dans la l'étape de correspondance. Pour des objets non-binaires, il s'agira de faire correspondre des valeurs de niveaux de gris entre pixels correspondant. Avant de calculer la carte de disparité une étape de rectification est nécessaire [138]. La rectification a pour but de corriger l'inclinaison de la caméra CCD par rapport au plan de référence utilisé dans le calcul de la disparité et permet d'identifier précisément le centre de la paire d'images stéréo. Ce dernier problème provient de l'algorithme de reconstruction CDI qui ne centre pas forcément la reconstruction de l'objet au sein de l'image. L'étape de rectification requiert la reconnaissance de détails dans l'objet pour effectuer des correspondances entre les deux vues. Pour cela on utilise une combinaison d'algorithmes de détection de zones d'intérêt ou *feature detection* en anglais. [139], [140],[141], [142] [143], *feature matching* [144], [145] , [146] et de sélection manuelle pour effectuer la correspondance des pixels. A partir des

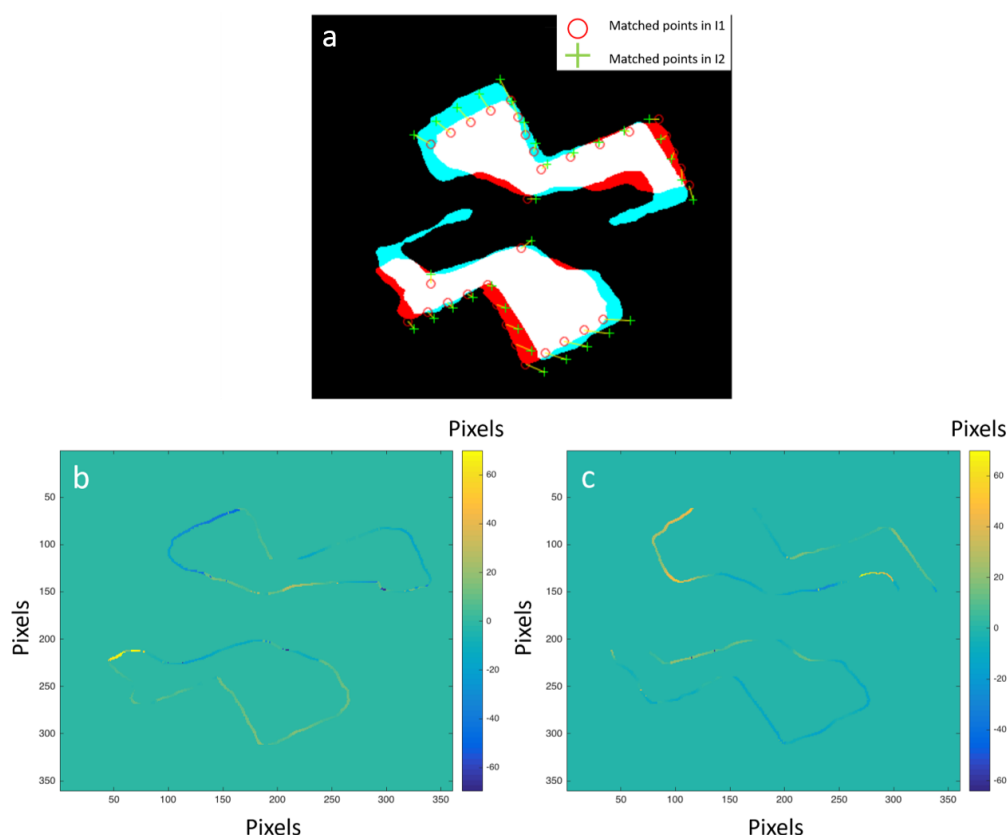
13 points sélectionnés, on calcule la matrice fondamentale en utilisant l'algorithme *Normalized Eight-Point Algorithm* [147]. Puis, on re-projette les deux images, de manière à ce que les pixels correspondants entre les deux images aient une disparité présente sur l'axe horizontal.

La carte des disparités est calculée à l'aide d'une routine de *block matching* : chaque image est divisée en blocs de  $3 \times 3$  pixels et pour chaque bloc d'une image on scanne horizontalement l'autre image avec des blocs de la même taille. A l'aide d'une somme des différences absolues (ou SAD en anglais) ajoutée à un terme de pondération prenant en compte la proximité entre les pixels correspondants on réalise une fonction d'optimisation utilisée pour trouver les pixels correspondants entre les deux images stéréo. Notre échantillon étant un objet binaire (transmission de 0 ou 1) aucun photon n'est transmis par la croix du centre et la membrane d'or, on doit donc calculer la disparité uniquement pour les pixels situés sur les bords de notre structure 3D. La figure 5.9 montre les deux images rectifiées et centrées dans un anaglyphe (a) à partir duquel on calcule la carte de disparité (b et c).

L'information 3D de notre échantillon est extraite de la carte de disparité à l'aide de l'équation 5.1. Pour faire correspondre les informations des deux cartes de disparités, il faut appliquer un changement de coordonnées. Les coordonnées  $x_1$  et  $x_2$  de la carte de disparité du haut et du bas respectivement sont converties en coordonnées objet  $x$  à l'aide de ces relations :

$$x(x_1, z, \theta_1) = x_1 - z \tan \theta_1 \quad \text{et} \quad x(x_2, z, \theta_2) = x_2 - z \tan \theta_2 \quad (5.2)$$

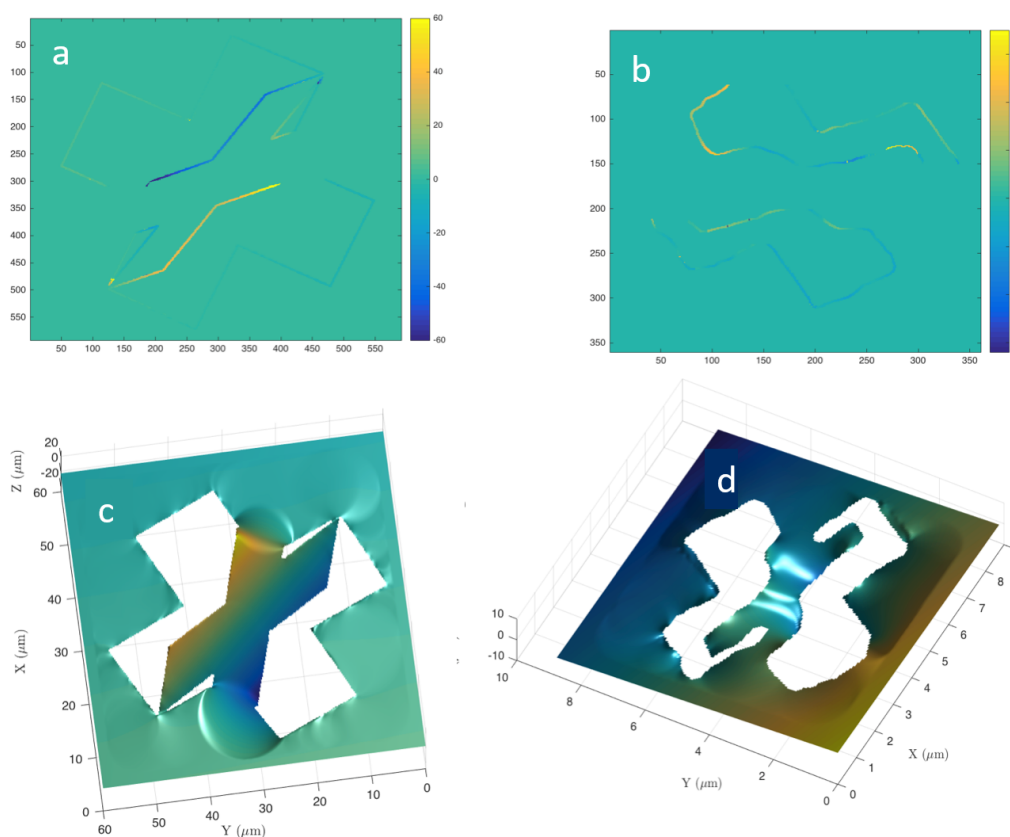
Après avoir obtenu toutes les coordonnées 3D disponibles des points de notre objet, on compare la robustesse des deux cartes de disparités et on supprime tous points 3D qui ne possèdent pas de coordonnées qui correspondent dans les deux cartes de disparités. Avec les points restants, on crée un nuage de points 3D nous permettant de voir la structure de notre échantillon. Seule la bordure de la croix et de la membrane sont reconstruites à ce stade. Pour reconstruire complètement la structure 3D de l'échantillon on doit corrélérer les informations présentes dans les images stéréo et dans la reconstruction 3D. On réalise cela en faisant un fit d'une surface 3D pour la croix au milieu de la membrane avec comme limite les bords définis par la reconstruction 3D. Une interpolation nous donne la valeur de ces pixels. Puis en combinant les informations données par les zones



**Figure 5.9** a) Anaglyphe stéréo, obtenu après rectification, à partir duquel la carte des disparités est calculée. Les parties rouges et cyan de l'image correspondent aux régions de l'objet transmettant des photons pour la vue du haut et du bas respectivement. Les régions qui transmettent pour les deux images sont représentées en blanc. b et c) Cartes de disparités calculées à partir de la vue du bas et du haut respectivement. Elles sont calculées après le redimensionnement des images stéréo, la valeur réelle en pixel de la disparité est divisée par un facteur 2.

où la transmission de l'échantillon vaut 1 (zones en blanc sur l'anaglyphe figure 5.9) et les bordures de la membrane d'or on obtient la reconstruction complète de la membrane et de notre échantillon. La figure 5.10 montre la reconstruction finale de l'objet (c) avec une reconstruction 3D du même objet obtenue à l'aide d'une simulation de la paire d'images stéréo (d). Grâce à la meilleure qualité des images simulées on obtient une carte de disparité précise (a) et une reconstruction 3D parfaite de l'objet. L'équation 5.1 nous donne la taille du voxel de la reconstruction qui est de  $43 \times 43 \times 65nm$ . Il faut noter que le temps d'acquisition nécessaire pour acquérir les images de diffraction permettant de reconstruire l'objet est particulièrement long (240s). Ainsi, à cause de la dérive et les fluctuations du pointé du faisceau, la paire de reconstructions 2D est de moins bonne qualité que l'on pourrait espérer avec un temps d'acquisition plus court et

un nombre de photons diffractés total équivalent [148]. Cela détériore la qualité de la reconstruction 3D expérimentale et nous empêche de calculer la valeur de la résolution axiale expérimentale. Par ailleurs, des artefacts apparaissent dans les reconstructions expérimentale et simulée aux deux zones où la croix est située au dessus et en dessous de la membrane. On l'observe aussi sur la carte des disparités où aucune information n'est présente dans ces régions. C'est la transmission binaire (0 ou 1) de l'objet qui est responsable de ces artefacts : aucun photon n'est transmis par la croix centrale et la membrane dans cette région, il est donc impossible d'y définir des coordonnées de profondeur et de savoir à quels plans ils appartiennent. On peut dire que la membrane opaque "cache" l'information provenant de la diffraction de la croix dans cette région. Cependant, c'est l'objet qui est responsable de ces erreurs. Pour montrer qu'il est possible

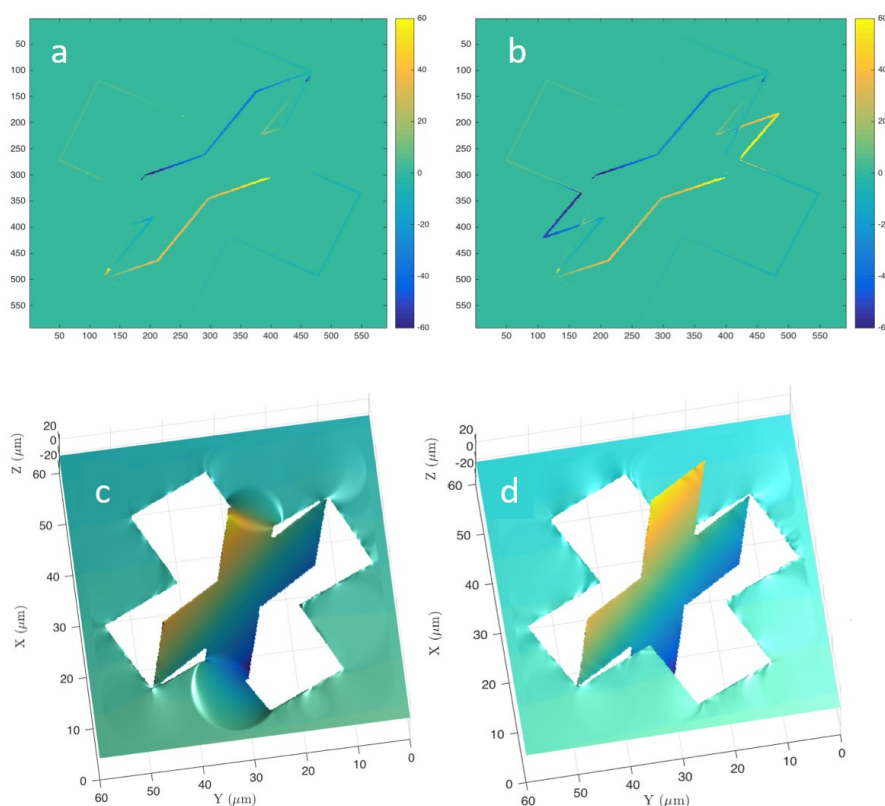


**Figure 5.10** a) b) carte de disparité obtenue pour l'objet d'amplitude pure simulée et expérimentale, respectivement c) d) Reconstruction 3D obtenue après fit et interpolation.

de s'affranchir de ces artefacts on simule un objet de phase et d'amplitude identique, à



savoir un ensemble croix + membrane pour lequel la membrane a transmission partielle. Il est alors possible, grâce aux deux vues stéréo, de calculer la disparité des bords de la croix situées au dessus et en dessous de la membrane et de définir leurs coordonnées dans la reconstruction 3D. On peut ainsi reconstruire la croix sans les artefacts comme le montre la figure 5.11. On comprend ainsi que le *feature matching* (le fait de pouvoir faire correspondre les pixels appartenant à différentes régions de l'objet) est essentiel à l'obtention d'une reconstruction 3D complète. Certains échantillons sont susceptibles de



**Figure 5.11** a) b) carte de disparité obtenue pour l'objet simulé d'amplitude pure et d'amplitude et de phase respectivement c) d) Reconstruction 3D obtenue après fit et interpolation. Les cercles rouges montre les différences qu'apportent une transmission partielle de la membrane dans la carte de disparité et dans la reconstruction 3D.

poser des problèmes aux algorithmes de détections de zones d'intérêt et au calcul de la carte de disparité. Prenons l'exemple d'une sphère avec une certaine transmission  $< 1$ . Les deux projection 2D reconstruites à partir des deux figures de diffraction donnent deux images identiques : des disques avec une intensité radiale décroissante correspondants à la sphère vue sous deux angles. La construction de la carte de disparité est alors impossible car pour les algorithmes de *feature matching* il n'existe aucune disparité entre les pixels des deux images reconstruites. Les objets d'amplitudes et de phases à forme sphérique

rendront difficile la correspondance entre régions d'intérêt et doivent être observés à l'aide d'une autre méthode comme la stéréo-microscopie.

#### 5.2.4 Reconstructions HERALDO et stéréo-microscopie

Dans les rare cas particuliers où il est difficile d'obtenir une reconstruction 3D complète de l'échantillon à l'aide de la méthode décrite dans la section précédente, on peut utiliser ce montage expérimental pour réaliser de la stéréo-microscopie. Ainsi on peut obtenir un aperçu 3D de l'objet en simple tir. La stéréo-microscopie utilise la vision humaine comme outil pour observer l'effet 3D. Cette méthode repose sur la construction d'un anaglyphe à partir d'une paire d'images stéréo afin que notre cerveau les combine, donnant une perspective 3D de l'objet. On construit un anaglyphe en plaçant deux images d'un objet prises sous deux angles de vue différents, dans deux plans d'une images RGB (pour Red-Green-Blue) ou CYM (Cyan Yellow Magenta). Il est aussi possible de construire un anaglyphe en utilisant différentes polarisations pour les deux plans de l'image. Pour observer l'anaglyphe on utilise des lunettes avec un filtre (de couleur ou polarisant) devant chaque oeil de manière à associer une image à un oeil et obtenir l'effet 3D. On appelle angle parallaxique l'angle entre les deux vues. Il doit être compris entre 1 et 5° selon la distance d'observation de l'anaglyphe pour pouvoir confortablement observer l'effet stéréo. La figure 5.12 présente une image stéréo de nano-planctons obtenue à l'aide d'un microscope à balayage électronique (MEB) réalisée par Andruleit *et al.* [132]. L'échantillon est tournée de 5 degrés entre les deux prises d'images.

Pour cette raison il est impossible de réaliser un bon anaglyphe à partir des images 2D reconstruites dans la section précédente. L'angle entre les faisceaux est trop grand (19°), ce qui place l'objet bien trop devant la fenêtre stéréoscopique (la fenêtre virtuelle au travers de laquelle la scène où l'image stéréo est observée) rendant impossible l'observation de l'effet 3D. Cette technique d'imagerie est parfaitement compatible avec l'imagerie CDI ou holographique.

Dans cette expérience on modifie le montage de manière à réduire au maximum l'angle entre les deux faisceaux et le rapprocher de 5°. L'échantillon utilisé est présenté en figure 5.13. Comme l'objet 5.1, il est dessiné à l'aide d'un FIB sur une membrane d'or de 150nm d'épaisseur, le rendant opaque à notre longueur d'onde. On réalise l'objet 3D avec une fenêtre contenant la structure 2D déviée de 2.6° par rapport au reste de la

## Plate 3

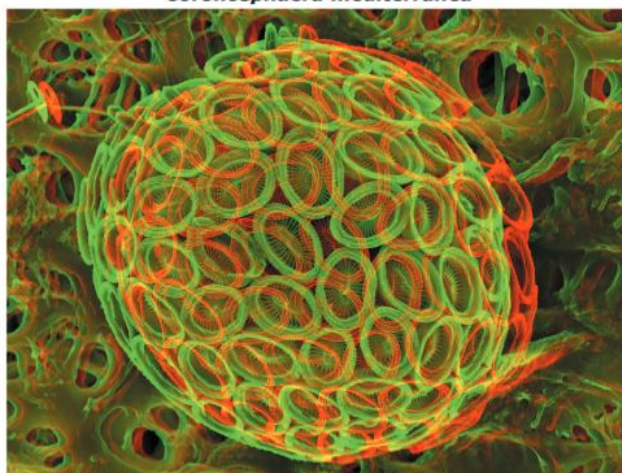
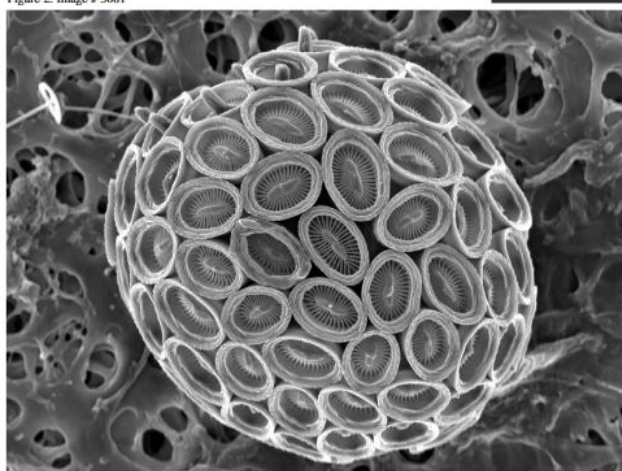
*Coronosphaera mediterranea*

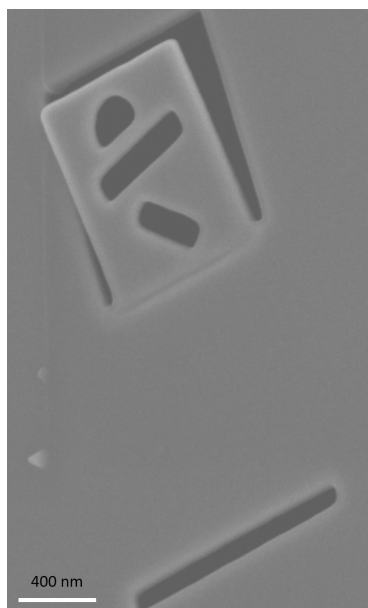
Figure 1: Image # 5082

Figure 2: Image # 5081



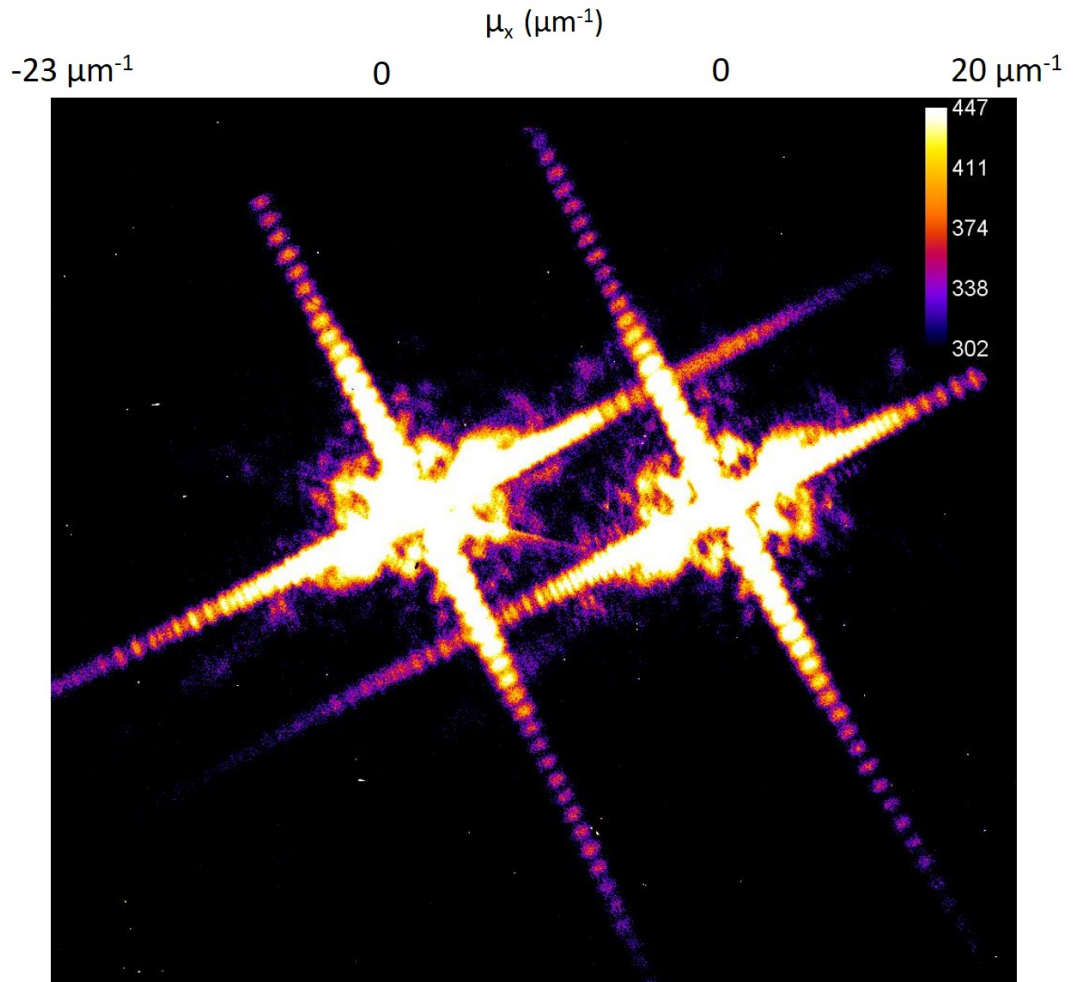
**Figure 5.12** Figure 1 : Anaglyphe rouge-vert d'un nano-plancton obtenu à partir d'images MEB (Figure 2) prises avec une rotation de 5 degrés entre les prises de vues.

membrane d'or. La taille totale de la fenêtre est de  $1\mu m$ . On souhaite reconstruire l'objet avec la technique holographique HERALDO : on place donc une référence étendue de  $100nm$  de largeur et de  $1.2\mu m$  de long à  $1.3\mu m$  du bord de l'objet. La nouvelle distance échantillon-CCD est de  $z = 18mm$  et l'angle entre les deux faisceaux et le plan de l'échantillon vaut  $4.4^\circ$ . Il est impossible de descendre en dessous de cette valeur à cause du chevauchement des deux figures de diffraction et de la perte des fréquences spatiales que cela entraînerait. L'objet étudié présente de fortes composantes fréquentielles verticales provenant de l'interférence entre la référence et le bord de la fenêtre. Nous avons donc incliné l'échantillon d'un angle de  $\alpha = 27^\circ$  dans le sens trigonométrique, en gardant l'échantillon perpendiculaire à l'axe optique, afin d'éviter une forte superposition de ces fréquences spatiales verticales.



**Figure 5.13** Échantillon 3D utilisé pour l'expérience de stéréo-microscopie. L'angle entre la membrane et la fenêtre est de  $2.6^\circ$

La figure 5.14 montre une figure de diffraction enregistrée avec un temps d'acquisition de 540s en échelle logarithmique. Les deux figures de diffraction possèdent environ  $2 \times 10^8$  photons utiles diffractés, celle de droite (provenant de la lame du haut) possède 10% de photons en plus à cause d'un alignement imprécis du montage séparateur de faisceau. On note immédiatement qu'il existe un fort chevauchement des figures de diffraction ce qui nous force à limiter les fréquences spatiales qu'on utilise pour la reconstruction de l'objet. La plus grande fréquence spatiale des figures de diffraction pour laquelle il n'existe pas de chevauchement vaut  $f_{max} = 9.3\mu m$  (soit  $r_{max} = 150pixels$ ) à partir du centre de la figure de diffraction, ce qui correspond à une résolution théorique de  $54nm$ . Avant d'effectuer la transformée de Fourier inverse, afin d'obtenir l'autocorrélation de l'objet, il faut appliquer un opérateur linéaire à la figure de diffraction pour permettre la séparation entre la corrélation de l'objet et de la référence en forme de fente. Dans notre cas il s'agit d'effectuer une dérivation dans la direction de la longueur de la fente [37, 149]. La figure 5.15 illustre la nécessité de cette étape de dérivation : la reconstruction de l'objet est impossible à distinguer à cause de l'intégration par le rectangle de la fente. Cette image est la transformée de Fourier du signal de diffraction de gauche (vue du haut de l'objet) de la figure 5.14 après traitement de la tache centrale saturée à l'aide d'un filtre passe-haut gaussien de 11 pixels de rayon.



**Figure 5.14** Figure de diffraction en échelle logarithmique (tournée de  $90^\circ$ ) obtenue pour un temps d'acquisition de 540s. La figure de diffraction provenant de la lame du haut est à gauche.

L'opérateur à appliquer à la figure de diffraction est :

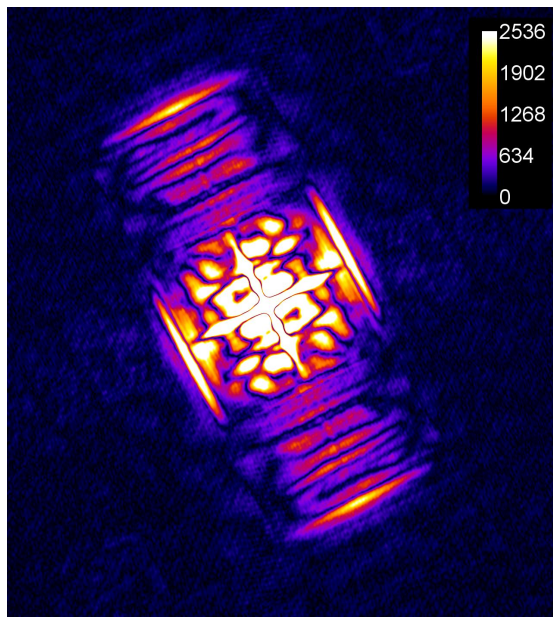
$$F_{2,r,\alpha}(\nu_x, \nu_y) = (G_2 \times U_\alpha(\nu_x, \nu_y)) \quad (5.3)$$

avec  $r$  le rayon du filtre gaussien d'ordre 2  $G_{2,n}$ ,  $(\nu_x, \nu_y)$  les coordonnées fréquentielles dans l'espace de diffraction et  $\alpha$  l'angle de l'inclinaison de l'échantillon (évalué grâce au sinus cardinal provenant de la diffraction par la fente). Et :

$$G_2(\nu_x, \nu_y) = \exp\left(-\frac{1}{2}\left[\frac{\nu_x^2 + \nu_y^2}{r^2}\right]^2\right) \quad (5.4)$$

$$U_\alpha(\nu_x, \nu_y) = \nu_x \cos \alpha + \nu_y \sin \alpha \quad (5.5)$$

Le filtre  $F_{2,r,\alpha}$  présente un double intérêt : il permet d'effectuer une dérivation avec un



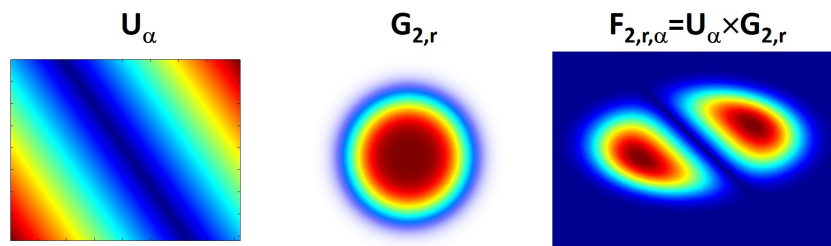
**Figure 5.15** Transformée de Fourier du signal de diffraction de droite de la figure 5.14. Au dessus de la tache centrale, correspondant à l'autocorrélation de l'objet et celle de la fente, on trouve la corrélation de l'objet et de la fente rectangulaire. Pour obtenir la reconstruction de l'objet il faut appliquer un opérateur linéaire dérivant la reconstruction dans la direction de la fente.

angle  $\alpha$  dans l'espace réel grâce à la propriété de la transformée Fourier suivante pour toutes fonctions  $f : \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{C}$  de classe  $C^1$  :

$$\tilde{f}'(\nu) = 2i\pi\nu\tilde{f}(\nu) \quad (5.6)$$

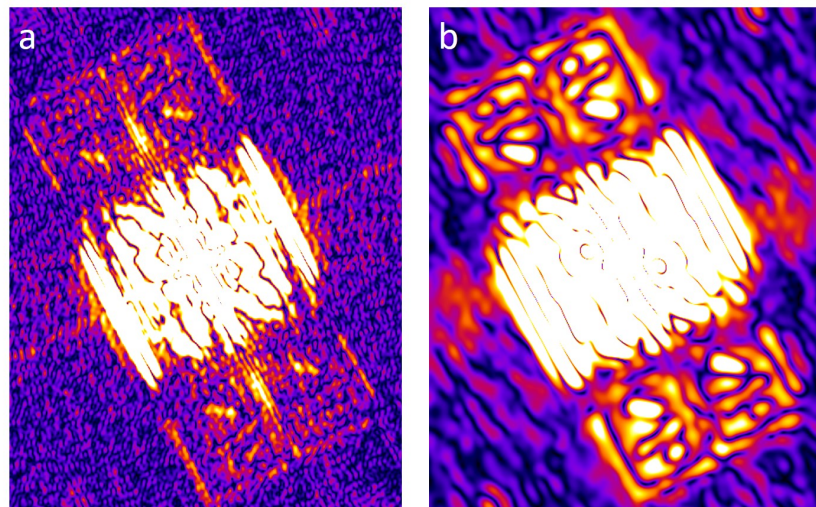
Et il permet aussi, grâce au filtre passe-bas gaussien, d'augmenter le RSB de la reconstruction. Le rayon  $r$  du filtre est un paramètre à optimiser pour chaque reconstruction. Si on choisit  $r$  trop petit, on coupe trop de hautes fréquences et la reconstruction est floutée. Si  $r$  est trop grand, on conserve les hautes fréquences, les détails de l'image sont visibles, mais la contribution du bruit dans la reconstruction est trop importante entraînant l'apparition d'artefacts, la diminution du RSB et plus généralement une dégradation de la qualité de la reconstruction. La figure 5.16 représente  $U, G$  et  $F$  en 2D.

Dans notre cas, si on élargit le diamètre du filtre super-gaussien au delà de la fréquence spatiale maximale sans chevauchement  $f_{max}$ , on obtient une reconstruction de mauvaise qualité. La figure 5.17 illustre ce problème ; elle compare deux reconstructions, a et b, effectuées avec un filtre gaussien de rayon 300 pixels (plus grand que  $r_{max}$ ) et 130 pixels



**Figure 5.16** Représentation de l'opérateur  $F$  (à droite) qu'on applique à la paire de figures de diffraction stéréo expérimentales avant d'effectuer une transformée de Fourier pour obtenir la reconstruction de l'objet.  $F$  est le produit de l'opérateur linéaire de dérivation  $U$  et du filtre gaussien d'ordre 2  $G$ .

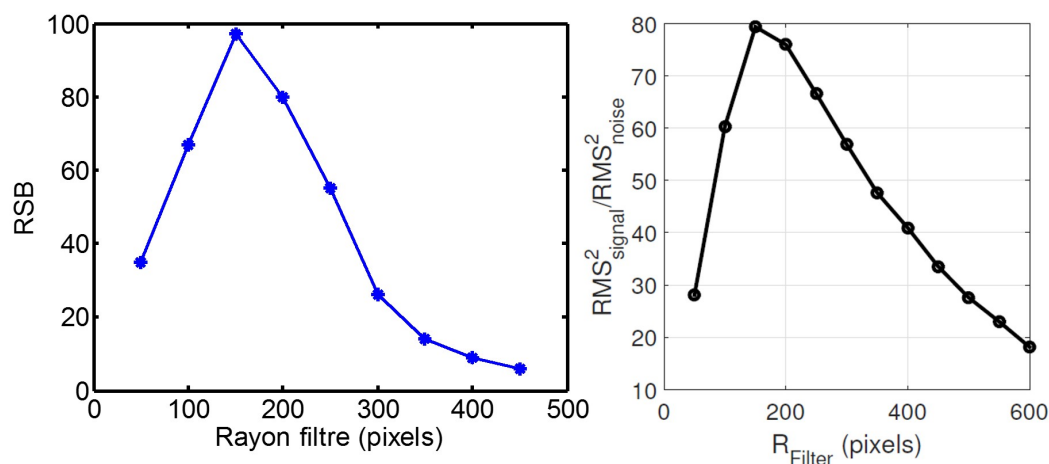
(plus petit que  $r_{max}$ ) respectivement, ce qui correspond à une fréquence spatiale de  $8.6\mu m^{-1}$  et  $18.6\mu m^{-1}$  respectivement.



**Figure 5.17** a : Reconstruction HERALDO obtenue à partir du signal de diffraction de droite de la figure 5.14 avec un filtre super-gaussien de rayon  $r = 300pixels$ . b : Reconstruction HERALDO obtenue de la même figure de diffraction que a, mais en utilisant un filtre super-gaussien de rayon  $r = 140pixels$ .

On remarque que la reconstruction de l'objet est bien moins bonne pour celle réalisée avec un filtre de 300 pixels : il est quasiment impossible de distinguer les détails présents dans la fenêtre et de nombreux artefacts sont présents dans l'image. Il est cependant possible d'affirmer que, ici, la dégradation de qualité de la reconstruction est due majoritairement à la diminution du RSB dans les hautes fréquences induite par l'augmentation du rayon du filtre gaussien et non pas à l'inclusion d'une partie de la figure de diffraction de la deuxième image. En effet, nous n'observons pas de dégradation soudaine du RSB et de la qualité globale de la reconstruction quand le rayon  $r$  du filtre devient supérieur à  $r_{max}$ . On explique dans le chapitre 4 comment mesurer le RSB. Le

graphe de gauche de la figure 5.18 montre l'évolution du RSB de l'image reconstruite en fonction du rayon  $r$  du filtre  $G$  pour notre signal de diffraction où il existe une superposition des figures de diffraction (cf figure 5.14) et la compare au même graphe obtenu pour un signal de diffraction classique (sans chevauchement, tiré de [6]). On effectue des reconstructions de l'objet pour des valeurs de  $r$  allant de 50 à 450 pixels. Au delà de 500 pixels il est impossible de distinguer l'objet dans la reconstruction. On note que l'évolution de la courbe du RSB en fonction de  $r$  est très similaire à celui d'une reconstruction HERALDO classique. Il n'y a donc pas d'effet notable de la superposition sur la qualité de la reconstruction. Le rayon du filtre gaussien optimal est  $r = 140\text{pixels}$ , c'est celui qui maximise le RSB (on a alors  $RSB = 97$ ) et permet d'obtenir une résolution satisfaisante ( $85\text{nm}$ ). Après avoir isolé les deux figures de diffraction et masqué la saturation

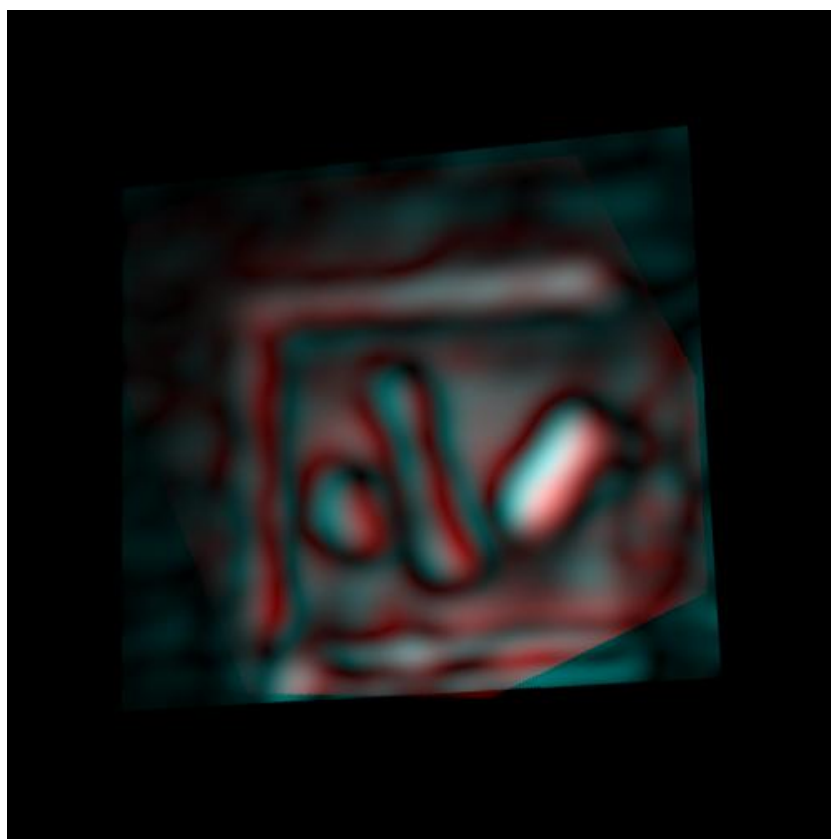


**Figure 5.18** Le graphe de gauche montre l'évolution du RSB de l'image reconstruite en fonction du rayon  $r$  du filtre  $G$  pour notre signal de diffraction où il existe une superposition des figures de diffraction (cf figure 5.14). Le graphe de droite compare la même évolution pour un signal de diffraction HERALDO classique tiré de [6]). On note que le comportement des courbes est similaire.

centrale avec un filtre passe haut gaussien on reconstruit les deux paires d'images stéréo. Afin d'améliorer le RSB de la paire d'images reconstruites, on effectue une superposition cohérente de 6 reconstructions issues de figures de diffractions de temps d'acquisitions allant de 300 à 540s. La résolution calculée à l'aide du critère 10 – 90% pour les deux reconstructions est  $85\text{nm}$ . On effectue une rectification pour les deux images de manière à les centrer et à s'assurer qu'elles sont sur le même plan horizontal. Puis on construit un anaglyphe rouge-vert en plaçant une image dans le plan rouge et une autre dans le plan bleu. La figure 5.19 présente l'anaglyphe obtenu. L'effet 3D n'est pas confortable à observer car l'angle de parallaxe est trop important par rapport à celui de la vision



humaine ( $9.8^\circ$  pour environ  $5^\circ$ ). Pour l'observer il faut décaler latéralement son champ de vision. Il serait souhaitable de diminuer l'angle entre les deux faisceaux afin d'obtenir



**Figure 5.19** Anaglyphe construit à partir de la paire d'image stéréo reconstruites avec la technique HERALDO. On place la vue du haut dans le plan rouge et la vue du bas dans le plan bleu. L'effet 3D est difficile à observer car l'angle de parallaxe est trop grand ( $9.8^\circ$ ), causant une violation de la fenêtre stéréo.

un meilleur effet 3D mais le chevauchement entre les figures de diffraction nous limite. En réalité diminuer l'angle entre les faisceaux est réalisable mais limiterait la résolution atteignable en réduisant la fréquence spatiale maximale utile (sans chevauchement des figures de diffraction). Cela dépend donc de l'objet étudié. Ici, diviser par deux l'angle entre les deux faisceaux reviendrait à diviser par deux la valeur de la plus grande fréquence spatiale utile. On aurait alors  $f_{max} = 4.65\mu m^{-1}$  et la résolution théorique serait de  $r = 108nm$ , ce qui la rendrait supérieure à la taille des détails les plus fins de l'objet ( $100nm$ ).

### 5.2.5 Conclusion

Nous avons démontré une méthode qui permet d'obtenir des reconstructions 3D quantitatives d'un objet de taille micrométrique en une seule acquisition en développant un séparateur de faisceau versatile. L'angle entre les deux faisceaux ainsi créés peut facilement être modifié pour s'adapter à la géométrie de l'échantillon étudié. Le montage permet aussi de contrôler le délai entre les deux faisceaux, avec une précision femtoseconde, rendant possible des études pompe XUV-sonde XUV. De plus, la géométrie du séparateur de faisceau peut être adapté à des longueurs d'onde plus faibles à l'aide de cristaux, permettant l'imagerie 3D d'échantillons biologiques fragiles en diminuant de façon drastique la dose totale irradiant l'échantillon. Afin d'obtenir une reconstruction 3D de qualité il faut s'assurer de construire une carte de disparités réaliste et précise. Il faut pour cela que chaque image de la paire stéréo contienne de nombreux détails similaires de l'objet. Réduire l'angle entre les deux faisceaux ou corrélérer les informations de plus de deux images stéréo (en obtenant plus que deux sous-faisceaux, possible sur FEL par exemple) est un moyen d'y parvenir. A cause de la dégradation de l'OAP sélectionnant H25 dans l'argon au moment où l'expérience a été réalisée, nous avons été forcé d'enregistrer les figures de diffraction pendant de longs temps d'acquisition et d'utiliser un échantillon d'amplitude binaire. Néanmoins, ce n'est pas une limite intrinsèque de la technique et nous démontrons à l'aide d'une simulation que réaliser une reconstruction 3D d'un échantillon d'amplitude et de phase est possible. A l'aide d'un plus grand flux de photons cela permettra l'imagerie 3D d'échantillons biologiques sensibles aux dégâts d'irradiation, rendant cette méthode particulièrement intéressante pour la science des matériaux, les nanosciences et pour la biologie macromoléculaire. Dans les rares cas où notre méthode de reconstruction 3D n'est pas applicable (échantillon très sphérique, ou avec une surface très lisse) ce montage permet de réaliser facilement de la stéréo microscopie en simple tir. Cependant pour observer confortablement l'effet 3D de l'anaglyphe, il faut que l'angle entre les deux faisceaux soit inférieur à  $5^\circ$ , ce qui peut entraîner un fort chevauchement des figures de diffractions si l'objet possède beaucoup de détails fins.

## 5.3 Classification angulaire des figures de diffraction avec un faible flux de photons

### 5.3.1 Introduction

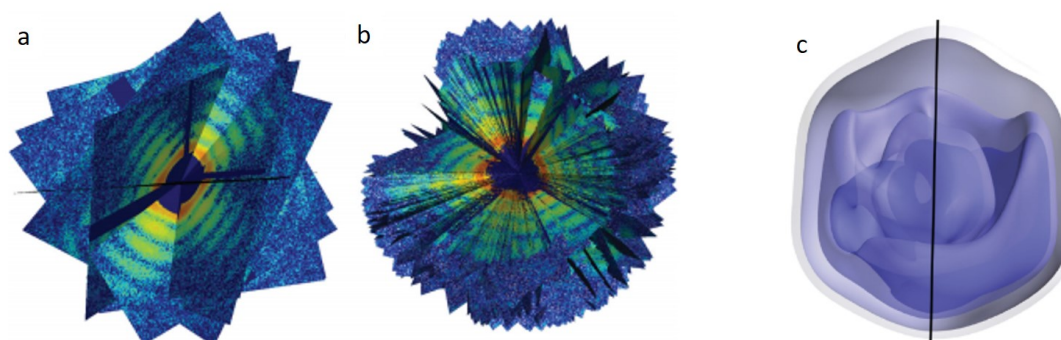
Les lasers à électrons libres (FEL pour le sigle anglais) fournissent des impulsions de rayons-X "durs" avec un éclairement pouvant aller jusqu'à  $10^{20} W/cm^2$  [20]. En 2007, Neutze *et al.* [22] suggèrent que de telles impulsions ultra-courtes pourraient devancer la majorité des processus de destruction et permettre la récupération de l'information structurelle de l'objet sans le cristalliser. C'est le principe de l'imagerie avant destruction. Une validation expérimentale de ce principe est obtenue en 2006 avec la reconstruction d'une nano-structure de  $Si_3N_4$  illuminée par des impulsions du FEL FLASH à Hambourg [41]. Jusqu'à présent, les applications d'imagerie aux FELs ont été principalement limitées à la nano-cristallographie et aux projections bi-dimensionnelles de particules uniques. La nano-cristallographie est une extension de la cristallographie de protéines où la haute intensité et la durée ultra courte des impulsions du FEL permettent l'utilisation de cristaux de très petite taille. Cependant, certains échantillons sont difficiles ou impossibles à cristalliser, rendant attrayante la possibilité de réaliser l'imagerie de particules uniques avec les FELs. L'imagerie bi-dimensionnelle CDI avec des FELs de cellules vivantes [16, 17], d'organelles [18] et de virus [15] est une méthode prometteuse et permet de reconstruire des échantillons non reproductibles. Développer une méthode systématique d'imagerie 3D de particules uniques présente plusieurs difficultés. Premièrement, réaliser une reconstruction 3D nécessite d'assembler des centaines de figures de diffraction provenant de copies identiques d'un objet. La plupart des échantillons étudiés par l'imagerie 2D sur FEL possèdent une structure unique (comme des cellules ou des macromolécules). De plus, il n'existe aucun moyen de mesurer directement l'orientation des échantillons lorsqu'ils sont traversés par l'impulsion laser. Il est donc nécessaire de déterminer l'orientation de l'objet en comparant les figures de diffraction. Surmonter ces difficultés ne permet pas seulement d'obtenir plus d'informations sur l'échantillon en reconstruisant sa structure 3D, c'est aussi indispensable dans certains cas où l'efficacité de diffraction de l'échantillon est très faible (protéines par exemple). Avec ce type d'échantillon, le nombre de photons diffractés à partir d'une particule unique est parfois trop faible pour effectuer une reconstruction 2D. Grouper l'information de plusieurs figures de

diffraction acquises pour la même orientation de l'échantillon pourrait permettre d'augmenter le RSB de la figure de diffraction et de reconstruire l'image 2D de la projection de l'objet. Une solution à ce problème a été trouvée par Duane Loh et Veit Elser, grâce à l'algorithme EMC (pour *Expand Maximize and Compress* en anglais), qui a été testé avec des figures de diffraction simulées [122] puis avec des échantillons artificiels [123] et enfin avec un échantillon biologique (mimivirus) au LCLS [7]. La méthode repose sur le principe qu'un nombre suffisant de figures de diffraction provenant d'un ensemble d'échantillons identiques et d'orientations aléatoires permet une sur-détermination de l'échantillonnage de l'espace de Fourier 3D de la particule. Il est alors possible d'inverser cet espace afin d'obtenir une reconstruction de son volume 3D. L'algorithme construit un modèle de l'intensité 3D de l'échantillon à partir d'un grand nombre de figures de diffraction limitées par le bruit de photons et non classées par orientation. La classification de l'orientation des données est probabiliste : on assigne des distributions de probabilités au sein d'un jeu de figures de diffraction qu'on affine afin de maximiser la fonction de vraisemblance du modèle d'intensité 3D. Les 3 étapes de l'algorithme sont :

- L'étape "E" : expansion de la grille des intensités vers la représentation tomographique redondante (ou modèle) :  $W[\mathbf{q}] \rightarrow W_{ij}$ . Où  $W[\mathbf{q}]$  est l'intensité du signal de diffraction enregistré sur le détecteur à la fréquence spatiale  $\mathbf{q}$  quand l'échantillon est dans une orientation donnée.  $W_{ij}$  est le nombre de photons moyen détecté sur le pixel  $i$  du capteur pour une orientation donnée  $j$ . Le but est de faciliter l'étape "M".
- L'étape "M" : actualisation de la classification probabiliste des figures de diffraction et assemblage de ces dernières dans un modèle tomographique en maximisant la fonction de vraisemblance :  $W_{ij} \rightarrow W'_{ij}$ .
- L'étape "C" : compresse à nouveau le modèle tomographique en un modèle de grille :  $W'_{ij} \rightarrow W'[\mathbf{q}]$

Une description complète de cet algorithme et du pseudo-code associé se trouve en référence [122]. Cette méthode d'imagerie 3D, appelée cryptotomographie, s'apparente à une tomographie sans connaissance *a priori* de l'orientation de l'échantillon. Des simulations montrent que le volume 3D peut être reconstruit même lorsque les figures de diffractions 2D sont extrêmement bruitées ou avec un niveau de signal très faible [122, 150, 151]. Cependant, cela nécessite un nombre important de figures de diffraction pour chaque orientation, ce qui génère une quantité totale de données particulièrement lourdes. Par

exemple, une molécule biologique de  $500kD$  qui intercepte un faisceau XFEL de nouvelle génération avec une tache focale  $100nm$  de diamètre donnera un nombre moyen de photons diffractés par tir par pixel (ou MPC pour *mean photon count* en anglais) de  $\sim 5^{-2}photons/tir/pixel$  pour une résolution de  $1.8\text{\AA}$ . Selon la taille du détecteur utilisé, il faut accumuler un minimum de 100 tirs de diffraction pour obtenir un nombre de photons diffractés suffisant permettant d'obtenir une reconstruction de la projection 2D de l'objet (quelques  $10^7$  photons diffractés). Ainsi, Fung *et al.* ont simulé 3000 figures de diffraction pour 120 angles différents [151] afin de réaliser une reconstruction 3D d'un échantillon biologique, la protéine chignoline, avec un niveau de signal similaire. La reconstruction 3D du mimivirus a été obtenue à partir de 198 figures de diffraction triées par orientation avec l'algorithme EMC (voir figure 5.20). Dans ce cas, le MPC était suffisant pour obtenir une reconstruction 2D à partir de chaque figure de diffraction.



**Figure 5.20** (a,b) Assemblage 3D des figures de diffraction. (a) 10 figures de diffraction présentées selon l'orientation calculée par l'algorithme EMC. Chaque figure de diffraction représente une coupe du module au carré de la transformée de Fourier 3D de la densité électronique du mimivirus. (b) La totalité des 198 figures de diffraction avec une vue sur le centre de l'espace 3D de diffraction. (c) Densité électronique 3D du mimivirus reconstruite à partir de (b) avec une résolution de  $125nm$ . [7]

Jusqu'à ce jour, aucune reconstruction tomographique d'échantillon biologique ou artificiel n'a été effectuée avec une source harmonique. Originellement, l'idée de l'expérience présentée dans cette section, réalisée en collaboration avec Duane Loh, était d'étudier la structure 3D des nanostructures biophotoniques qui produisent les couleurs vives des ailes de papillons grâce à la tomographie sur une source harmoniques. L'arrangement et la morphologie de ces structures reste relativement inconnu [25, 152] et de fort intérêt pour la biologie de l'évolution [153], pour la recherche sur les méta-matériaux [154, 155] et pour des applications originales comme la création de points de Weyl [156]. Il est aussi possible de synthétiser des cristaux photoniques à partir d'ailes de papillons en remplaçant la chitine qui compose les écailles des ailes de papillons par

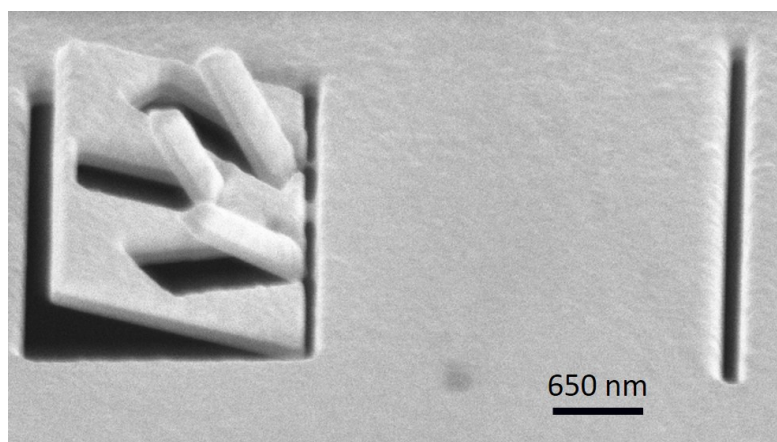
des métaux pour ajuster les propriétés photoniques des cristaux [157, 158]. Cependant, ces nanostructures sont composées de réseaux chitineux qui est un matériau très absorbant aux longueurs d'ondes avec lesquelles nous travaillons habituellement. En effet, elle possède une transmission de  $0.31^{-5}$  et induit un déphasage optique de  $\pi$  pour une épaisseur de  $500nm$  à  $24.24nm$  (H33). Sachant qu'une écaille fait typiquement  $10\mu m$  d'épaisseur et  $100\mu m$  de long, il est clair que, en l'état, l'échantillon est bien trop absorbant pour être étudié à notre longueur d'onde. Bien qu'il soit possible de casser des petits morceaux d'écailles après utilisation d'azote liquide, même des morceaux très fins de  $500nm$  auraient une efficacité de diffraction si faible qu'on obtiendrait moins de  $1000photons/impulsion$  diffractés sur notre capteur CCD. Le but de cette expérience est de tester expérimentalement s'il est possible d'utiliser l'algorithme EMC avec des figures de diffractions possédant un niveau de signal extrêmement faible, comme supposé par Elser [150] et simulé par Fung *et al.* [151]. Pour cela, il faut classer les figures de diffraction en fonction de l'orientation de l'échantillon en corrélant l'information de nombreuses figures de diffraction. De plus, il faut réussir à attribuer des valeurs ADU de pixels à des fréquences spatiales de l'objet dans la figure de diffraction. On réalise cela en comparant les figures de diffraction d'une même orientation. Puis, on estime la probabilité qu'un changement de position de ces fréquences spatiales sur le détecteur correspond à un changement de l'orientation de l'échantillon. Lorsque cette probabilité est suffisamment élevée on peut trier l'ensemble des figures de diffraction selon leur orientation. Cette expérience est la première étape de la cryptotomographie par HHG. Lorsque l'on a enregistré assez de figures de diffraction pour suffisamment échantillonner l'espace de Fourier 3D, l'étape suivante consiste à reconstruire le volume 3D de l'échantillon. Dans un premier temps, nous avons travaillé avec un échantillon d'or (opaque à notre longueur d'onde d'illumination). On utilise un temps d'acquisition permettant d'obtenir un niveau de signal proche de celui utilisé dans les simulations de Fung ou encore de celui que l'on obtiendrait en utilisant H33 pour imager les nano-structures de chitine ( $MPC \sim 9.10^{-2}photons/pixel$ ). De plus, le régime de faible flux dans lequel on se place nous permet de simuler les paramètres d'une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau. En effet, Cousin *et al.* [26] obtiennent  $1.85 \times 10^7photons/s$  à  $300eV$  juste après génération (avec une largeur spectrale de 1%). C'est environ 2 ordres de grandeur de moins que ce qu'on obtient dans le néon avec H33. Bien évidemment, les échantillons biologiques tels que les cellules, ou protéines, possèdent une transmission bien plus élevée à ces longueurs d'ondes. Ceci rend théoriquement possible l'imagerie

par diffraction d'échantillons biologiques dans la fenêtre de l'eau avec un très long temps d'acquisition (plusieurs dizaines de minutes). Ainsi, le temps d'acquisition utilisé simule les paramètres d'une expérience de cryptotomographie d'un échantillon biologique avec une source harmonique générée dans la fenêtre de l'eau.

Cette expérience est donc une preuve de concept validant la faisabilité de la cryptotomographie avec une source harmonique dans un régime de faible flux.

### 5.3.2 Montage et traitement des figures de diffraction

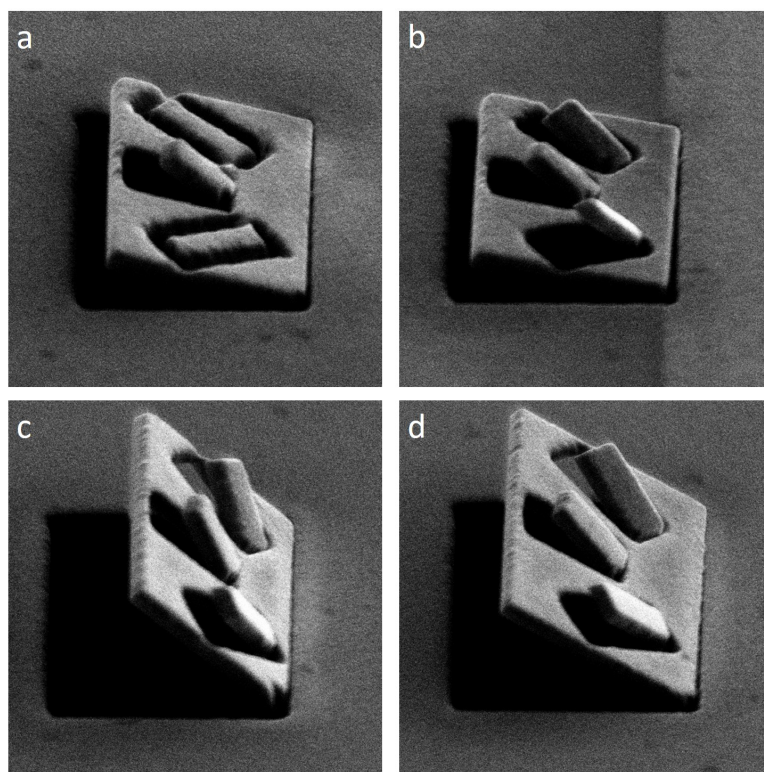
Pour cette expérience, on utilise le même dispositif expérimental que dans la section précédente, sans l'utilisation du séparateur de faisceau. Une parabole hors axe (OAP) de longueur focale  $f = 20\text{cm}$  à  $22.5^\circ$  sélectionne l'harmonique 33 de notre faisceau IR généré dans l'argon grâce à un traitement multi-couches. Les paramètres du faisceau harmonique sont précisés dans le tableau 3.13 du chapitre 3. On rappelle que l'OAP focalise le faisceau en une tache focale de  $5\mu\text{m}$  et que le flux de photons de H33 vaut  $\sim 10^7 \text{ photons/pulse}$ . L'échantillon étudié est présenté en figure 5.21. Il est opaque à la longueur d'onde de notre source. La taille de la fenêtre principale fait  $2.1 \times 4\mu\text{m}$ , les 3 rectangles découpés dans la membrane font  $600\text{nm}$  de largeur et  $800\mu\text{m}$  de longueur. La référence rectangulaire est à  $3\mu\text{m}$  de l'objet. Le capteur CCD est placé à une distance  $z = 24\text{mm}$  de l'échantillon. Il fait  $2048 \times 2048$  avec des pixels de  $13.5\mu\text{m}$ . L'échantillon



**Figure 5.21** Échantillon utilisé dans l'expérience de détermination de l'orientation en régime de faible flux. L'angle entre la membrane et la fenêtre principale est de  $5^\circ$ .

est dessiné à l'aide d'un faisceau d'ion focalisé (FIB) au CSNSM, à Orsay. On parvient à dévier les rectangle par rapport a la fenêtre principale et cette dernière par rapport à la membrane à l'aide d'une technique que nous avons développé. Avec le FIB, on

découpe totalement les 3 cotés de la structure que l'on souhaite dévier, puis, avec une dose moins importante que celle précédemment utilisée, on fraise le quatrième coté. La contrainte mécanique appliquée par le faisceau va forcer la zone fraisée à se redresser, plus ou moins selon la dose utilisée pour fraiser le quatrième coté. La figure 5.22 montre 4 échantillons dessinés avec différents temps de pose entrainant une déviation plus ou moins importantes des rectangles et de la fenêtre principale.



**Figure 5.22** Illustration de la technique de dessin des échantillons : (a) et (b) sont dessinés avec la même dose pour la fenêtre principale et une dose plus importantes pour les rectangles dans (b). (c) et (d) sont dessinés avec la même dose pour les rectangles mais avec une dose plus importante pour la fenêtre dans (c).

On optimise les paramètres de génération de façon à avoir le faisceau le plus stable possible. Il est typiquement généré dans une cellule de  $5\text{cm}$  de long, remplie de néon avec une pression de  $5.6\text{mbars}$  et une taille de diaphragme IR de  $14.5\text{mm}$ . La stabilité du faisceau est primordiale car on souhaite corrélérer les informations des fréquences spatiales entre les figures de diffraction. C'est à dire qu'il faut associer une partie de l'objet qui diffracte le faisceau à une fréquence spatiale de la figure de diffraction. Si le pointé du faisceau sur l'échantillon est instable, la position de cette fréquence spatiale sur le détecteur va changer tir à tir et nous serons alors incapable d'affirmer avec certitude quand ce déplacement sera dû à un changement de l'orientation de l'échantillon. Afin



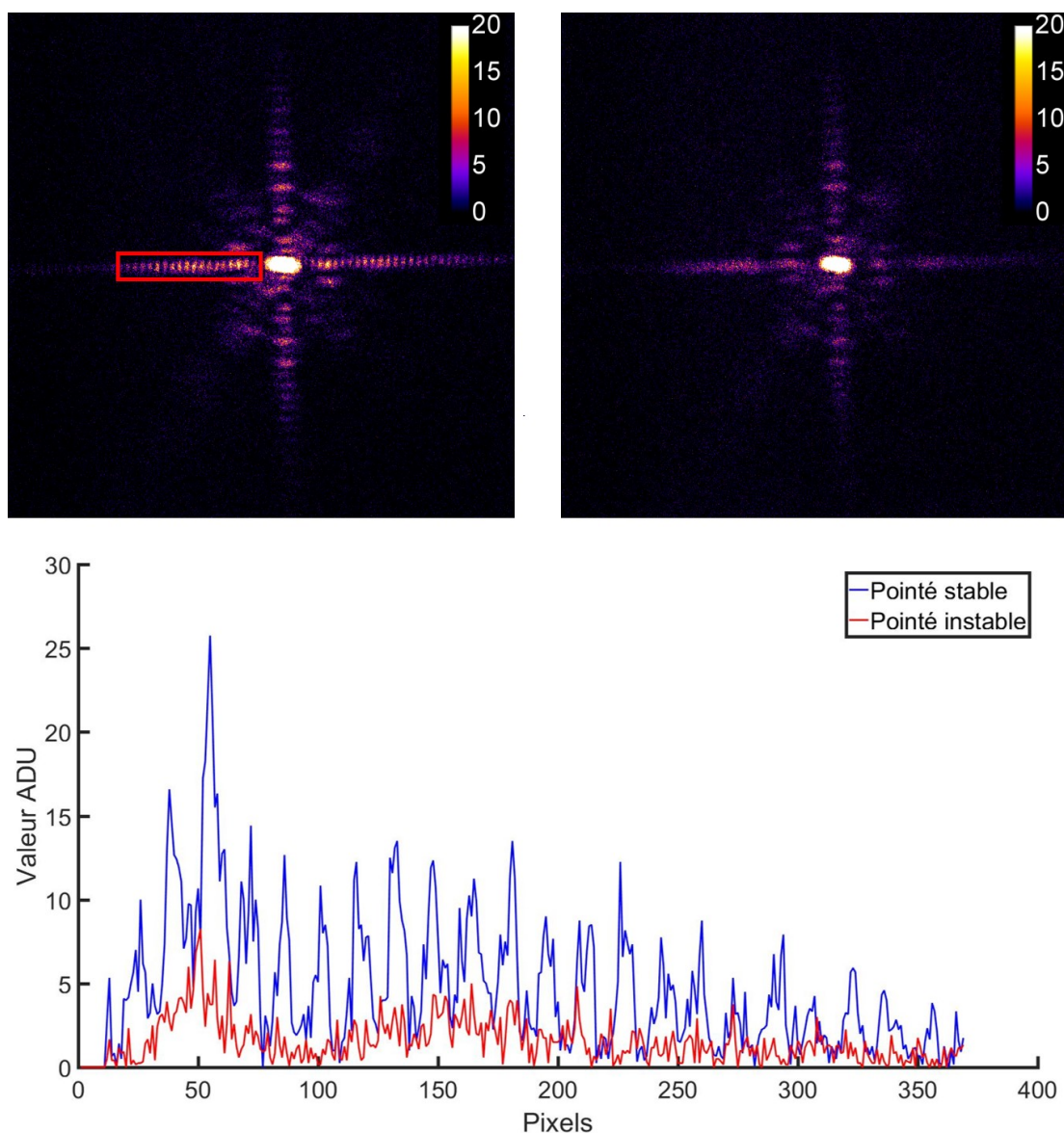
de se placer dans les conditions souhaitées de faible signal, on enregistre les figures de diffraction en accumulant 10 tirs laser, soit un temps d'acquisition de 0.5s. Pour chaque orientation nous avons enregistré 100 figures de diffraction, une ROI identique de  $1050 \times 1050$  pixels, sans binning hardware. En tomographie, le nombre minimum d'angles ou d'orientations de l'échantillon à enregistrer pour effectuer une reconstruction 3D est donnée par  $N$  :

$$N > \frac{\pi D}{r} \quad (5.7)$$

où  $D$  est la taille caractéristique de l'échantillon et  $r$  la résolution souhaitée. Cette borne inférieure est une règle générale et dépend en réalité de la complexité de l'échantillon étudié. Si on souhaite avoir une résolution de  $200nm$ , il faut plus de 80 angles pour échantillonner correctement l'espace 3D de diffraction. Nous avons collectés 90 angles avec un pas de  $2^\circ$ . Cela fait donc un ensemble d'environ 900 figures de diffraction à trier. Le MPC moyen de l'ensemble des figures de diffraction vaut  $8.75 \times 10^{-2} photons/pixel$ , avec un écart type de 12%.

La figure 5.23 montre deux figures de diffraction obtenue pour une accumulation de 50 tirs, sans utiliser de binning, dans une fenêtre de  $1050 \times 1050$  pixels. Elle présente aussi le profil d'intensité des franges d'interférence entre la fenêtre de l'objet et la référence (voir image 5.21). La figure de diffraction de gauche est obtenue avec une fluctuation du pointé du faisceau minimisée et celle de droite avec un pointé instable tir à tir. Le MPC de la figure de diffraction de gauche vaut  $5.21 \cdot 10^{-1} photons/pixel$ , celui de la figure de droite vaut  $4.87^{-1} photons/pixel$ . A cause de la fluctuation du pointé du faisceau, la visibilité des franges diminue et la position des fréquences spatiales correspondant aux mêmes détails de l'échantillon changent sur le détecteur (courbe rouge). Dans le cas d'un faisceau stable (courbe bleu) la visibilité des franges est bien meilleure. C'est typiquement le cas de figure qui va diminuer l'efficacité de la détermination de l'orientation. Il faut donc trouver un autre moyen de traiter des figures de diffraction après enregistrement pour éliminer celles qui sont floues et ainsi séparer nos données en un "bon" et un "mauvais" jeu de données.

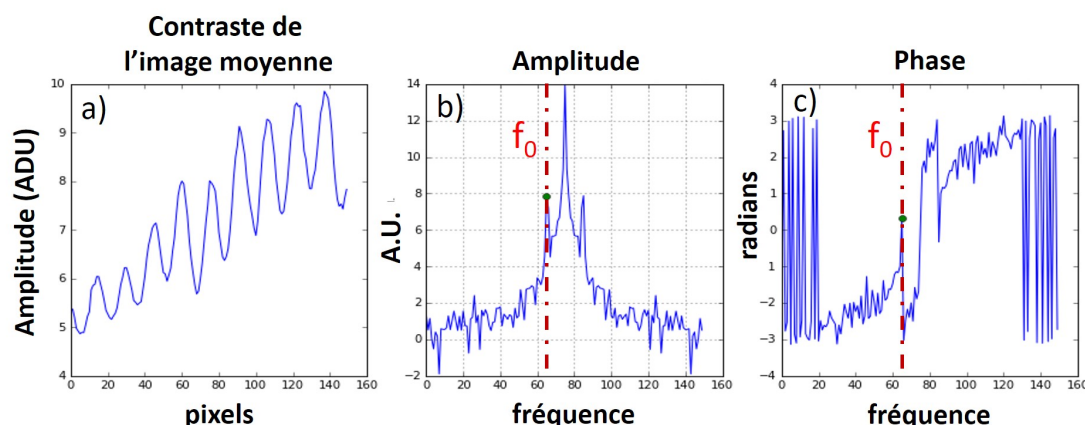
Pour cela on sélectionne une région d'intérêt de la figure de diffraction où les franges sont bien résolues et localisées. On choisit la zone correspondant au rectangle rouge dans la figure 5.23. Les franges sont issues de l'interférence entre la fenêtre de l'objet et la référence rectangulaire. Puis on effectue les étapes suivantes :



**Figure 5.23** L'image en haut à droite montre une figure de diffraction accumulée sur 50 tirs pour l'objet HERALDO avec une fluctuation de pointé tir à tir. L'image en haut à gauche est une figure de diffraction sur 50 tirs recueillie avec un pointé de faisceau stable. Le graphe du bas montre la coupe des franges d'interférences horizontales en rouge pour un pointé instable et en bleu pour le faisceau stable.

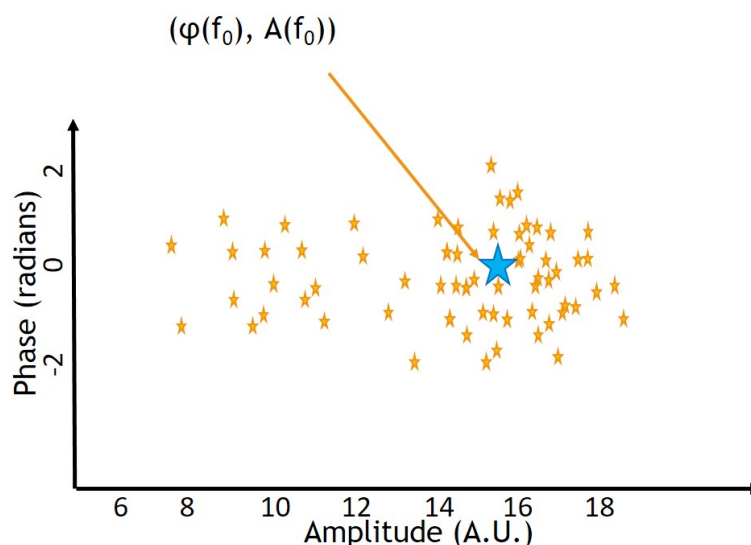
- Sur la ROI choisie, on effectue une moyenne verticale afin d'obtenir un profil d'intensité des franges d'interférence plus fiable. On calcule la moyenne de tous les profils d'intensité des franges pour les figures de diffraction obtenues dans une même orientation (voir image (a) de la figure 5.24).
- On effectue la transformée de Fourier (TF) 1D du profil de la moyenne des franges du jeu de donnée total et on sélectionne le premier maximum d'amplitude après

le pic central, obtenu pour une fréquence appelée  $f_0$  (voir image (b) de la figure 5.24).



**Figure 5.24** a) Profil d'intensité des franges d'interférence entre la fenêtre de l'objet et la référence rectangulaire. Ce profil est obtenu en sommant puis moyennant 230 figures de diffraction recueillis pour l'échantillon tourné de  $3^\circ$  autour d'un axe de rotation vertical perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau. b et c) Module et phase de la transformée de Fourier de a) respectivement. La ligne pointillé rouge est placée sur la fréquence  $f_0$ , premier maximum de la première fréquence non nulle présente dans le profil a).

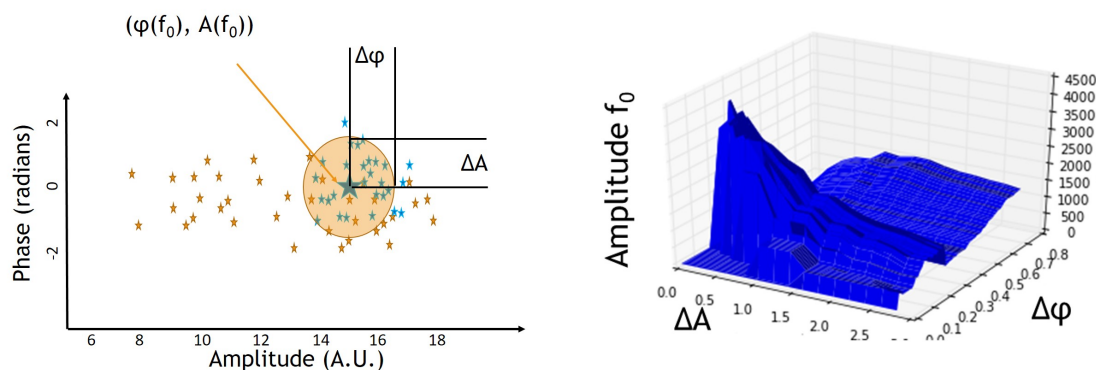
- On observe la variation d'amplitude et de phase de  $f_0$  dans toutes les figures de diffraction obtenues pour une orientation d'échantillon donnée. Pour l'ensemble des données, on trace la valeur de la phase et de l'amplitude du maximum d'amplitude de la première fréquence non nulle du module de la TF du profil des franges (voir 5.25). Cela permet d'obtenir une représentation des données à trier.
- On définit  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  qui sont des distances par rapport à  $\phi(f_0)$  et  $A(f_0)$ , la phase et l'amplitude du premier maximum après le pic central dans le module de la TF du profil de la moyenne des franges du jeu de donnée total, respectivement. On choisit des valeurs de  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  appropriées pour exclure des données les figures de diffraction que l'on considère enregistrées avec un pointé de faisceau instable. Pour cela, on utilise les valeurs qui maximisent l'amplitude de  $f_0$  dans la moyenne des images incluses dans le "bon" jeu de données (voir figure 5.26). En effet, quand on augmente trop la valeur de  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$ , on inclut trop de figures de diffraction enregistrées avec un pointé instable, la visibilité des franges de la moyenne des images incluses dans le "bon" jeu de données diminue, diminuant ainsi l'amplitude  $f_0$ . Exclure beaucoup de figures de diffraction permet d'obtenir un



**Figure 5.25** Exemple de représentation de la phase et l'amplitude du premier maximum d'amplitude de la première fréquence non nulle d'un ensemble de données. L'étoile bleu représente la position de la phase et l'amplitude de  $f_0$ .

jeu de donnée fiable mais avec trop peu de statistique pour pouvoir attribuer avec certitude une fréquence spatiale de l'échantillon à un pixel  $i$  du capteur pour une orientation donnée. Ce qui peut diminuer la probabilité de pouvoir déterminer un changement dans l'orientation de l'échantillon. A l'inverse, inclure la majorité des figures de diffractions permet d'avoir une statistique suffisante mais trop de variations dans la position des fréquences spatiales de l'échantillon sur le capteur, diminuant la probabilité de pouvoir attribuer une orientation à ce jeu de donnée. A noter qu'on peut exclure directement les figures de diffraction dont le premier maximum d'amplitude n'est pas située en  $f_0$ .

Les valeurs de  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  optimales changent pour chaque orientation de l'échantillon et chaque jour, les paramètres du faisceau n'étant pas identiques de jour en jour. Une fois qu'on a optimisé les paramètres  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  en maximisant l'amplitude de  $f_0$ , on peut comparer les "bonnes données et les "mauvaises", comme on le fait dans la figure 5.27. Le jeu de données total comporte 230 figures de diffraction enregistrées pour l'échantillon tourné de  $3^\circ$ . En optimisant  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  on exclut 76 mauvaises figures de diffraction du jeu de "bonnes" données, soit 33% du jeu de données total. On remarque que le contraste moyen des bonnes figures de diffraction (courbe bleu figure, figure 5.27 (a)) est bien supérieur à celui des mauvaises données ( courbe verte de la même figure). De même l'amplitude de  $f_0$ , calculée à partir de la figure de diffraction moyenne du bon jeu de données (croix bleus dans l'image (c)) augmente d'un facteur deux par rapport à celle



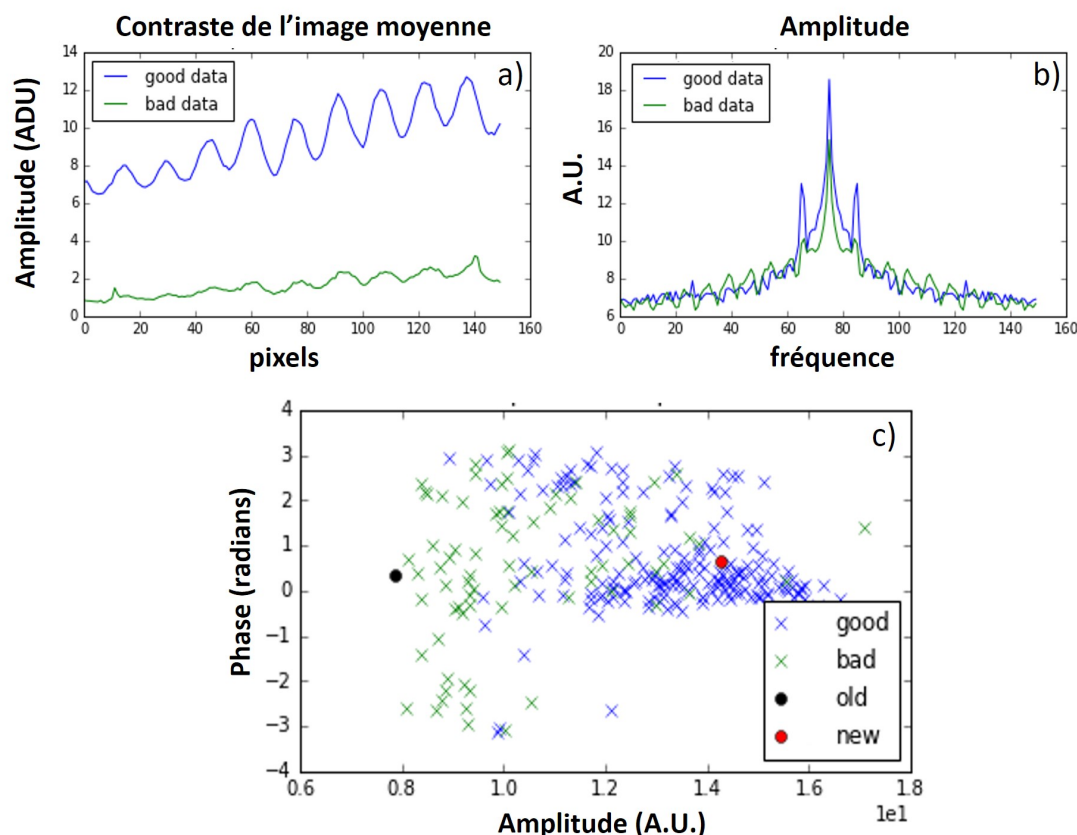
**Figure 5.26** A gauche : Exemple de représentation des données avec les paramètres  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  permettant de trier les "bonnes" figures de diffraction des "mauvaises". Les étoiles oranges sont les positions des maximums d'amplitude qui ne sont pas situés en  $f_0$ , les bleus sont les maximums situés exactement en  $f_0$ . On peut directement exclure les figures de diffraction dont proviennent les maximums orange. Le cercle orange inclut tout les maximums provenant des "bonnes" figures de diffraction. Changer  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  change le nombre de figures de diffraction sélectionnées. A droite : Évolution de l'amplitude de  $f_0$  en fonction de  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$ . Ici  $f_0$  est l'amplitude du premier maximum calculé à partir de la moyenne des figures de diffraction sélectionnés par  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  (inclut dans le cercle orange de la figure du haut). On considère que les valeurs de  $\Delta\phi$  et  $\Delta A$  optimales sont celles qui maximisent l'amplitude de  $f_0$ . Les données expérimentales utilisées pour le graphe de droite sont les mêmes que celles utilisées pour la figure 5.27

calculée à partir du jeu de donnée total (croix vertes dans l'image (c)). L'amplitude  $f_0$  du bon jeu de données est représentée par le point rouge alors que celui du mauvais jeu de donnée est représenté par le point noir.

Après avoir exclu les figures diffraction enregistrées avec un pointé de faisceau instable il faut maintenant se poser la question : est-ce que le signal est suffisant pour différencier les orientations de l'échantillon dans les figures de diffraction ? Cela revient à poser la question : quelle est la probabilité de correctement identifier l'orientation d'une image quand on la compare aux autres orientations ?

### 5.3.3 Méthode de classification par orientation

Il est possible de classer les figures de diffraction par orientation de l'échantillon en réalisant un produit de convolution avec l'ensemble des données. Cette méthode a été testée par Huld et *al.* avec des données simulées de la diffraction d'une molécule biologique avec des rayons-X [159]. En effet, la manière la plus directe de mesurer la similarité entre deux images de diffraction est de calculer leur produit de convolution. Cependant, à cause de la fluctuation du signal de diffraction due à la distribution Poissonienne des photons sur le détecteur, la statistique du produit de convolution doit être prise en



**Figure 5.27** Comparaison des données "bonnes" et "mauvaises" après tri. a) Contraste des franges d'interférences. Les profils d'intensité vert et bleu sont le contraste moyen des mauvaises et des bonnes données respectivement. b) Module de la transformée de Fourier des profils d'intensité présentés en a). Les courbes verte et bleu correspondent aux mauvaises et des bonnes données respectivement. c) Représentation de la phase et de l'amplitude du premier maximum de la première fréquence non nulle. Les points verts sont les positions des maximums d'amplitude qui ne sont pas situés en  $f_0$ , les bleus sont les maximums situés exactement en  $f_0$ . Les points noir et rouge sont la position du  $f_0$  calculée à partir de la moyenne de toutes les données et de toutes les bonnes données respectivement.

compte. On estime qu'il est possible de déterminer les orientations des figures de diffraction à l'aide de techniques basées sur le produit de convolution seulement si le nombre moyen de photons diffractés par figure de diffraction,  $N$ , satisfait [159] :

$$N \gg \sqrt{M_{pix}} \quad (5.8)$$

avec  $M_{pix}$  le nombre de pixel du capteur CCD. Dans notre expérience, cela signifierait avoir un MPC largement supérieur à  $1\text{photon}/\text{pixel}$  ce qui est loin d'être le cas ici. L'autre problème est le coût de calcul engendré par l'utilisation du produit de convolution sur un si grand nombre de figures de diffraction. En effet, le nombre de paires où l'on doit

effectuer un produit de convolution augmente selon le carré du nombre de figures de diffraction présentes dans le jeu de données. Cependant, Bortel *et al.* ont montré qu'il était possible de réduire le temps de calcul de façon drastique en sélectionnant une seule figure de diffraction représentative d'une classe d'orientation [160]. La méthode EMC a l'avantage de ne pas être limitée par le critère (5.8) et de posséder un temps de calcul linéaire et non pas quadratique au nombre de figures de diffraction [122]. Afin de vérifier si le signal est suffisant pour déterminer l'orientation de l'échantillon on teste plusieurs hypothèses. De façon plus précise, pour chaque figure de diffraction on détermine la probabilité qu'elle corresponde à la moyenne des figures de diffractions pour la même orientation, comparé aux moyennes des figures de diffraction dans d'autres orientations. Avec un signal suffisamment fort cette probabilité devrait être proche de 1, ce qui indique une forte probabilité de pouvoir identifier l'orientation de l'échantillon à partir de cette figure de diffraction. En effet, bien qu'on suppose que la reconstruction de la moyenne des figures de diffraction est possible avec un MPC suffisamment élevé, on ne peut pas prédire quand la reconstruction va échouer. Cela dépend, entre autre, de l'efficacité de diffraction de l'échantillon et de sa structure 3D. Pour réaliser l'analyse des jeux de données, on convertit la valeur ADU des pixels en photons détectés. Avec l'harmonique 33 on a : on a  $I_{adu} = 3N_{photon}$ . Voici les hypothèses qui sont faites pour analyser les images enregistrées pour différentes orientations de l'échantillon :

- I Le pointé du faisceau ne dérive pas et l'orientation de l'échantillon ne change pas de façon considérable pendant l'acquisition d'un jeu de donnée pour une orientation.
- II Pour une orientation  $\Omega$  donnée, on assume que le nombre moyen de photons diffractés sur un pixel  $i$  du détecteur est décrit par une distribution gaussienne de moyenne  $W_i(\Omega)$  et d'écart type  $\sigma_i(\Omega)$ . Ainsi, la probabilité de détecter  $K_i$  photons sur le pixel  $i$  suit la distribution :

$$P(K_i|W_i(\Omega), \sigma_i(\Omega)) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_i(\Omega)^2}} \exp\left(-\frac{(K_i - W_i(\Omega))^2}{2\sigma_i(\Omega)^2}\right) \quad (5.9)$$

On estime  $W_i(\Omega)$  et  $\sigma_i(\Omega)$  à partir de la moyenne et de l'écart type des figures de diffraction pour chaque orientation. C'est une approximation grossière qui n'est réellement valable qu'à fort flux de photons, où on peut approximer la statistique de Poisson d'arrivée des photons par une gaussienne. A fort flux on aurait  $W_i(\Omega) \rightarrow \sigma_i(\Omega)^2$ .

Ainsi, si un jeu de donnée est enregistré avec un faisceau très stable en pointé et

en intensité, la variation de la valeur affichée par les pixels actifs de la figure de diffraction par rapport à la moyenne sera très faible. Les pixels actifs sont les pixels qui détectent des photons diffractés par l'échantillon et dont la valeur ADU n'est pas due au bruit de lecture.

III On simplifie le modèle de bruit gaussien précédent afin d'éviter les problèmes de débordements lors du calcul de la probabilité. On calcule la probabilité qu'une figure de diffraction soit dans une orientation donnée à partir de la statistique moyenne des pixels actifs au sein de figures de diffraction de même orientation :

$$\langle P(K_i|W_i(\Omega), \sigma_i(\Omega)) \rangle = \left\langle \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_i(\Omega)^2}} \right\rangle_i \exp\left(-\left\langle \frac{(K_i - W_i(\Omega))^2}{2\sigma_i(\Omega)^2} \right\rangle_i\right) \quad (5.10)$$

Où  $\langle \cdot \rangle_i$  représente la moyenne sur les  $i$  pixels actifs de chaque figure de diffraction. Ici encore, un faisceau parfaitement stable permet d'avoir une probabilité proche de 1.

IV On assume que les pixels que l'on peut utiliser pour calculer la probabilité avec l'équation 5.10, les pixels actifs, sont ceux avec un écart type  $\sigma_i(\Omega) \neq 0$ . Naturellement, cette moyenne sera différente selon les orientations de l'échantillon. Cependant, cela permet de comparer les  $W_i(\Omega)$  et  $\sigma_i(\Omega)$  sur les mêmes pixels et d'éviter d'effectuer des comparaisons avec certains pixels ayant trop peu de statistiques pour certaines orientations. En réalité, on considère qu'un pixel est actif si  $|\sigma_i(\Omega)| \geq s$ , avec  $s$  un seuil de notre choix. On optimise  $s$  selon le jeu de données.

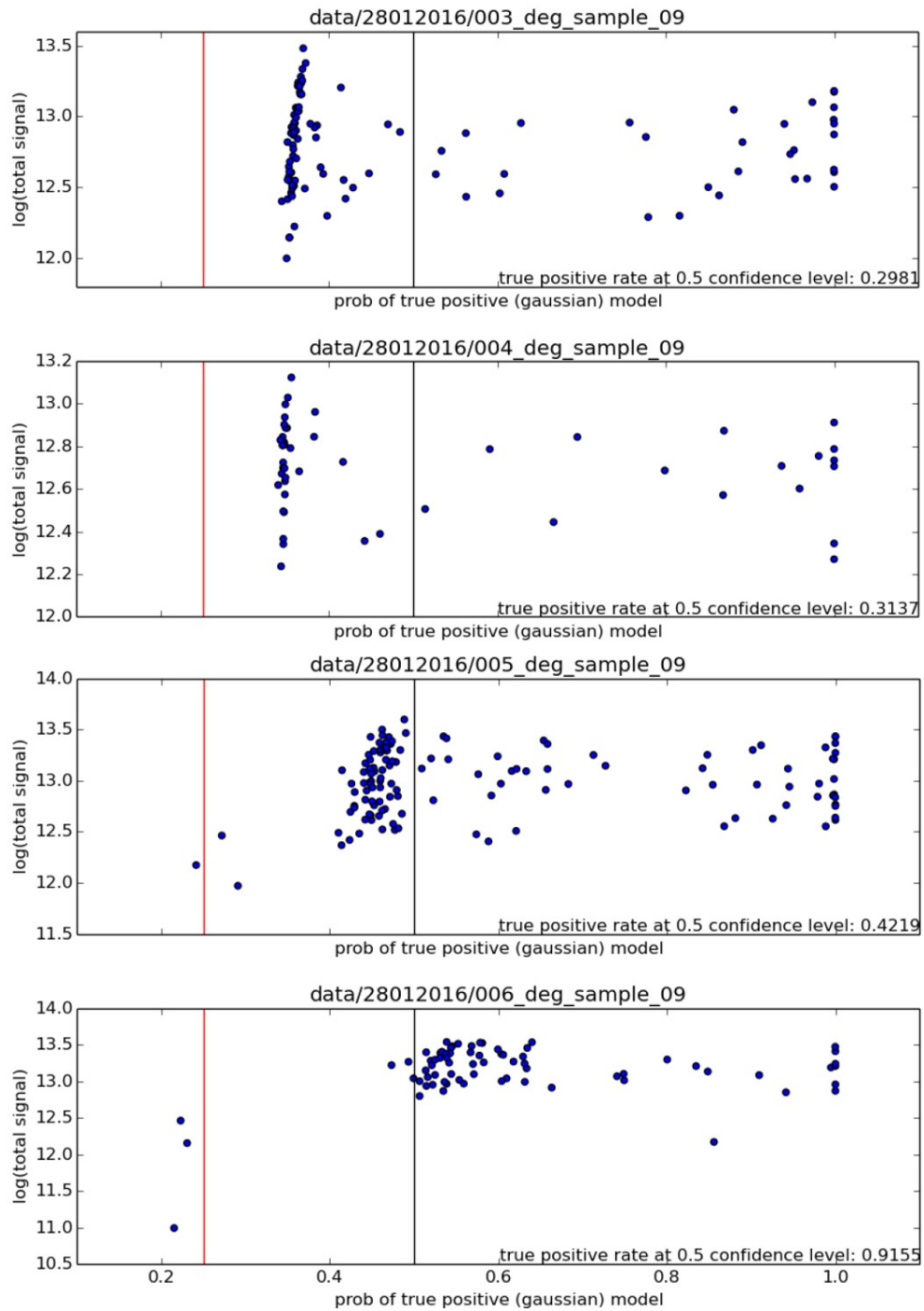
Je présente des résultats préliminaires sur 4 jeux de données distincts dans la figure 5.28. Les graphes (a,b,c,d) sont obtenus à partir de 70, 105, 80 et 130 figures de diffraction pour des orientations de l'échantillon valant  $3^\circ$ ,  $4^\circ$ ,  $5^\circ$  et  $6^\circ$ , respectivement. En ordonnée on affiche le logarithme du nombre de photons détectés sur les pixels actifs. En abscisse, on calcule la probabilité de correctement identifier l'orientation d'un détail de l'objet grâce au pixel correspondant dans le jeu de donnée. Ce calcul est effectué grâce au modèle défini dans l'hypothèse III. Toutes les figures de diffraction sont enregistrées pour le même temps d'acquisition (0.5s). Les deux graphes du haut (a et b) sont tirés de figures de diffraction enregistrées avec un faisceau optimisé en flux alors que ceux du bas (c et d) sont obtenus avec un faisceau optimisé en stabilité. Les valeurs de stabilité du faisceau en intensité et en pointé de (a et b) et (c et d) sont, en écart type, 21% et 12% de la valeur en intensité moyenne et  $0.29\sigma$  et  $0.18\sigma$  de la position centrale moyenne (en champ lointain, mesuré à 26 mm du plan focal), respectivement. Le faisceau utilisé pour



obtenir (c et d) est donc bien plus stable que celui utilisé pour obtenir (a et b). Le MPC moyen des figures de diffraction vaut  $9.7 \times 10^{-2} \text{photons/pixel}$ ,  $9.2 \times 10^{-2} \text{photons/pixel}$ ,  $10.1 \times 10^{-1} \text{photons/pixel}$  et  $11.2 \times 10^{-1} \text{photons/pixel}$ , l'écart type du MPC vaut 22%, 24%, 13%, 10% pour (a, b, c et d), respectivement. Avec un faisceau instable (a et b), bizarrement, on n'observe pas de corrélation claire entre le signal de photon des pixels et la probabilité d'identifier l'orientation d'un détail de l'objet à partir de ces pixels. Cela peut-être dû au modèle de bruit utilisé dans l'hypothèse IV, qui serait inapproprié. Ce comportement peut être aussi provoqué par une dérive du pointé du faisceau sur l'objet au cours de l'enregistrement des figures de diffraction pour une orientation, ou plus simplement par la nature de profil de diffraction de l'échantillon. Avec un faisceau stable, on remarque une nette amélioration du niveau de confiance d'identifier l'orientation des détail de l'objet à partir des pixels actifs correspondant par rapport au faisceau optimisé en flux. Ainsi pour le graphe (d) (avec une faisceau stable en pointé) 91.6% des pixels actifs permettent d'identifier une orientation d'un détail de l'objet avec un niveau de confiance supérieur à 50% alors que seulement 29.8% des pixels actifs le permettent avec une faisceau instable (graphe (a)). Les jeux de données des graphes (c) et (d) possèdent donc suffisamment de signal pour correctement identifier l'orientation de l'objet.

En conclusion, il est préférable d'avoir un faisceau optimisé en stabilité plutôt qu'en flux afin d'augmenter la probabilité d'identifier correctement l'orientation de l'objet. On conclut aussi que le niveau de signal des figures de diffraction est suffisant pour pouvoir identifier l'orientation de l'objet dans les conditions expérimentales appropriées (graphe (d)). Avec suffisamment de figures de diffraction enregistrées dans ces conditions, non triées par orientation et pour suffisamment d'orientations de l'objet, on pourrait donc utiliser l'algorithme EMC pour classer ces figures de diffraction et reconstruire le volume 3D de l'objet. En effet, l'algorithme utilise une version très proche du modèle probabiliste développé dans l'hypothèse III pour déterminer les orientations et calculer la fonction de vraisemblance (c'est le logarithme de ce modèle) [122]. La fonction de vraisemblance compare une figure de diffraction donnée avec toutes les autres figures de diffraction et détermine son orientation la plus probable quand elle est maximum. Elle est calculée à chaque itération dans l'étape "M".

Dans cette section nous avons montré qu'il était possible d'utiliser l'algorithme EMC pour reconstruire l'objet étudié en 3D avec un MPC inférieur à  $1 \times 10^{-2} \text{photons/pixel}$  à



**Figure 5.28** Dans chaque graphe, on affiche le logarithme du nombre de photons détectés sur les pixels actifs en ordonnée et en abscisse, on calcule la probabilité de correctement identifier l'orientation d'un détail de l'objet grâce au pixel correspondant dans le jeu de donnée. On calcule cette probabilité grâce au modèle défini dans l'hypothèse III. (a,b,c,d) sont obtenus pour des orientations de l'échantillon valant  $3^\circ$ ,  $4^\circ$ ,  $5^\circ$  et  $6^\circ$ , respectivement. La ligne rouge montre le seuil d'une probabilité aléatoire d'identification d'orientation. La ligne noire représente le niveau de confiance 50% d'identifier correctement une orientation.

partir de figures de diffraction dont on ne connaît pas l'orientation, à condition d'avoir un faisceau suffisamment stable. Dans le cas où le faisceau est instable, on peut utiliser la méthode présentée en section 5.3.2 afin de trier les jeux de données et séparer les "mauvaises" figures de diffraction des "bonnes". Ainsi on pourrait augmenter la probabilité d'identifier l'orientation de l'objet à partir des figures de diffraction et améliorer la classification de ces dernières. La quantification de l'apport de la technique de tri, décrite dans la section 5.3.2, sur le niveau de confiance d'identification d'une orientation est actuellement en cours. Une perspective d'application de ce travail est la cryptotomographie avec l'algorithme EMC d'un objet biologique d'amplitude et de phase avec source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau [26, 114] où le MPC sera similaire à celui utilisé ici. Ces résultats, bien qu'ils doivent être encore poussés, sont prometteurs pour l'imagerie de particule unique avec une source HHG.

## Chapitre 6

# Conclusion et perspectives

### Conclusion

L'objectif de cette thèse aura été de développer des nouvelles méthodes d'imagerie sans lentille 2D et 3D, en simple tir afin de trouver de nouvelles applications aux sources harmoniques. Le **Chapitre 2** introduit la théorie de l'imagerie dans lentille et détaille les méthodes utilisées au cours de cette thèse pour reconstruire le champ diffracté par l'objet que l'on souhaite imager. Les techniques d'imagerie sont séparées en deux catégories : les algorithmes itératifs et les méthodes holographiques. Les techniques itératives de reconstruction de phase utilisent des contraintes dans l'espace de Fourier et l'espace réel pour reconstruire la phase du front d'onde diffracté. Les méthodes holographiques encodent la phase directement dans les franges d'interférence entre la référence et l'objet dans la figure de diffraction. J'ai précisé les conditions expérimentales nécessaires pour parvenir à reconstruire l'image de l'objet et discuté des avantages et inconvénient des deux types de méthodes.

Dans le **Chapitre 3**, j'ai détaillé les aspects pratiques du faisceau XUV généré par harmoniques d'ordre élevé et couvert brièvement la théorie associée à ce processus. Je détaille l'arrangement expérimental de la ligne de lumière LUCA sur laquelle sont réalisées la plupart des expériences de cette thèse et je précise les paramètres d'optimisation du faisceau harmonique pour l'imagerie sans lentille.

Le **Chapitre 4** discute des paramètres et des techniques de traitement des données influant sur la qualité de l'image reconstruite en imagerie sans lentille. Ce chapitre rassemble les résultats d'imagerie bi-dimensionnelle obtenus au cours de cette thèse. Dans

la première partie j'ai présenté différentes stratégies visant à améliorer la résolution et le rapport signal sur bruit dans les reconstructions HERALDO dans un régime de faible flux de photons. Dans ce régime, le bruit de lecture est majoritaire aux hautes fréquences spatiales et est susceptible de détériorer la qualité de la reconstruction. Le filtre multiplicatif à appliquer sur la figure de diffraction avec la technique HERALDO agit comme un filtre passe haut, amplifiant le bruit aux hautes fréquences spatiales, détériorant la reconstruction. Ajouter un filtre passe bas de diamètre adapté à l'opérateur de dérivation permet de réduire cet effet. L'optimisation de l'étape de détection peut aussi améliorer la qualité de la reconstruction. En effet, on a vu qu'augmenter le facteur de binning *hardware* et diminuer la fréquence de lecture permet d'augmenter le rapport signal sur bruit de la figure de diffraction. Enfin, l'accumulation de plusieurs tirs laser pendant un long temps d'acquisition augmente le nombre de photons diffractés utiles à la reconstruction et améliore globalement la qualité de l'image reconstruite. Le signal est alors généralement limité par le bruit de photon. Cependant afin d'observer une amélioration nette de la qualité de la reconstruction et d'éviter une perte de contraste des franges d'interférences du signal accumulé, il faut travailler dans des conditions de stabilité de faisceau optimales (stabilité de pointé de faisceau, stabilité du profil et de la phase spatiale, du front d'onde, de la cohérence spatiale...). Une publication a été publiée sur ces travaux [29].

La deuxième partie du chapitre présente des résultats d'une technique de caractérisation complète de la cohérence d'un faisceau XUV spatiale en simple tir. En règle générale, dans les expériences d'imagerie sans lentille avec une source harmonique, on suppose que le faisceau possède une cohérence spatiale uniforme et égale à 1 sur la totalité du diamètre du faisceau. A l'aide d'un tableau non redondant de références ponctuelles on mesure la cohérence spatiale pour chaque distance entre les références, sans aucune mesure du profil spatial du faisceau. On a montré que la distribution de la cohérence est gaussienne et que son diamètre dépend des conditions de génération du faisceau harmonique. Quand on dégrade l'accord de phase, le diamètre du profil transverse de la cohérence diminue. On étudie aussi quantitativement comment l'accumulation de plusieurs tirs de diffraction diminue la cohérence apparente du faisceau. La dernière partie du **Chapitre 4** présente les résultats d'une expérience réalisée à l'Institut Helmholtz de Jena, dans le groupe de Jan Rothhardt. C'est une expérience d'imagerie d'objets de phase avec une source harmonique fonctionnant à  $68.6\text{eV}$ . Par des simulations, j'ai montré que l'algorithme itératif HIO *difference map* pouvait reconstruire des objets de phase

possédant des sauts de phases inférieurs à  $2\pi$  radians entre zones adjacentes de l'objet. Expérimentalement, nous parvenons à reconstruire un disque de  $2\mu m$  présentant deux discontinuités de phase de  $1.25\pi$  radians, ce qui correspond à une différence d'épaisseur de  $12nm$  et un autre déphasage de  $0.47\pi$  radians soit  $4.5nm$ . A notre connaissance c'est la première reconstruction par méthode CDI d'objets de phase avec une source harmonique. Cependant, les reconstructions d'autres échantillons plus complexe ont échouées car une grande partie du faisceau direct est transmis par un disque de  $2\mu m$  de nitrure de silicium autour de l'objet. Nous prévoyons maintenant de vérifier les valeurs de différence d'épaisseur à l'aide d'un AFM. Une perspective d'application de ces résultats serait une expérience de tomographie d'objet de phase biologique avec une source harmonique. Deux publication sur les deux expériences précédentes sont en cours de rédaction.

Le **Chapitre 5** présente les résultats de deux expériences visant à réaliser de l'imagerie 3D à l'échelle nanométrique avec une source harmonique. La première, détaillée en section 5.2, est une technique d'imagerie 3D simple tir. Nous avons développé un montage expérimental simple permettant de séparer un faisceau harmonique XUV en deux sous-faisceaux cohérents, focalisés sur un échantillon avec deux angles différents et contrôlables. A partir de la reconstruction des deux projections 2D, on crée une matrice 3D contenant des informations de profondeur quantitatives. C'est la première expérience permettant une reconstruction 3D à partir d'une seule acquisition, avec une résolution spatiale axiale et transverse nanométrique et une résolution temporelle femtoseconde, sans formuler d'hypothèses ou utiliser des connaissances *a priori* sur l'objet étudié. Cette technique possède un vaste spectre d'application, particulièrement pour l'étude structurale d'échantillons biologiques sensibles aux dégâts d'irradiation et des phénomènes 3D non réversibles. De plus, en adaptant le séparateur de faisceau, cette technique peut être facilement applicable à des FELs et synchrotrons pour obtenir de meilleures résolution axiales et transverses. Certains types d'échantillons (structures lisses et sphériques) ne sont pas adaptés à notre méthode et peuvent être observés par stéréo-microscopie avec le même montage. Une publication sur ces travaux est soumise. Enfin la deuxième expérience du **Chapitre 5** est une preuve de concept validant la faisabilité de la cryptotomographie avec une source harmonique dans un régime de faible flux. Pour reconstruire le volume 3D de l'échantillon, la cryptotomographie utilise des figures de diffraction qui sont acquises pour des orientations de l'échantillon inconnues et non triées. La méthode repose sur le principe qu'un nombre suffisant de figures de diffraction provenant d'un ensemble

de d'échantillons identiques et d'orientations aléatoires permet d'obtenir une reconstruction de son volume 3D. Le régime de faible flux dans lequel on se place nous permet de simuler les paramètres d'une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau. De cette expérience on a conclu que le niveau du signal de diffraction était suffisant pour pouvoir identifier l'orientation de l'objet à partir des figures de diffraction enregistrées dans des conditions expérimentales appropriées. Avec suffisamment de figures de diffractions enregistrées dans ces conditions, non triées par orientation et pour suffisamment d'orientations de l'objet, on pourrait alors utiliser l'algorithme EMC pour classer ces figures de diffractions et reconstruire le volume 3D de l'objet. Nous avons développé une méthode pour exclure les figures de diffraction enregistrées avec un faisceau instable, qui rendent le modèle probabiliste utilisé pour trier par orientation les figures de diffraction moins fiable et efficace. Une publication sur ces travaux est en cours de rédaction. Ces résultats impliquent qu'une expérience de cryptotomographie d'objet de phase biologique avec une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau serait réalisable.

## Perspectives

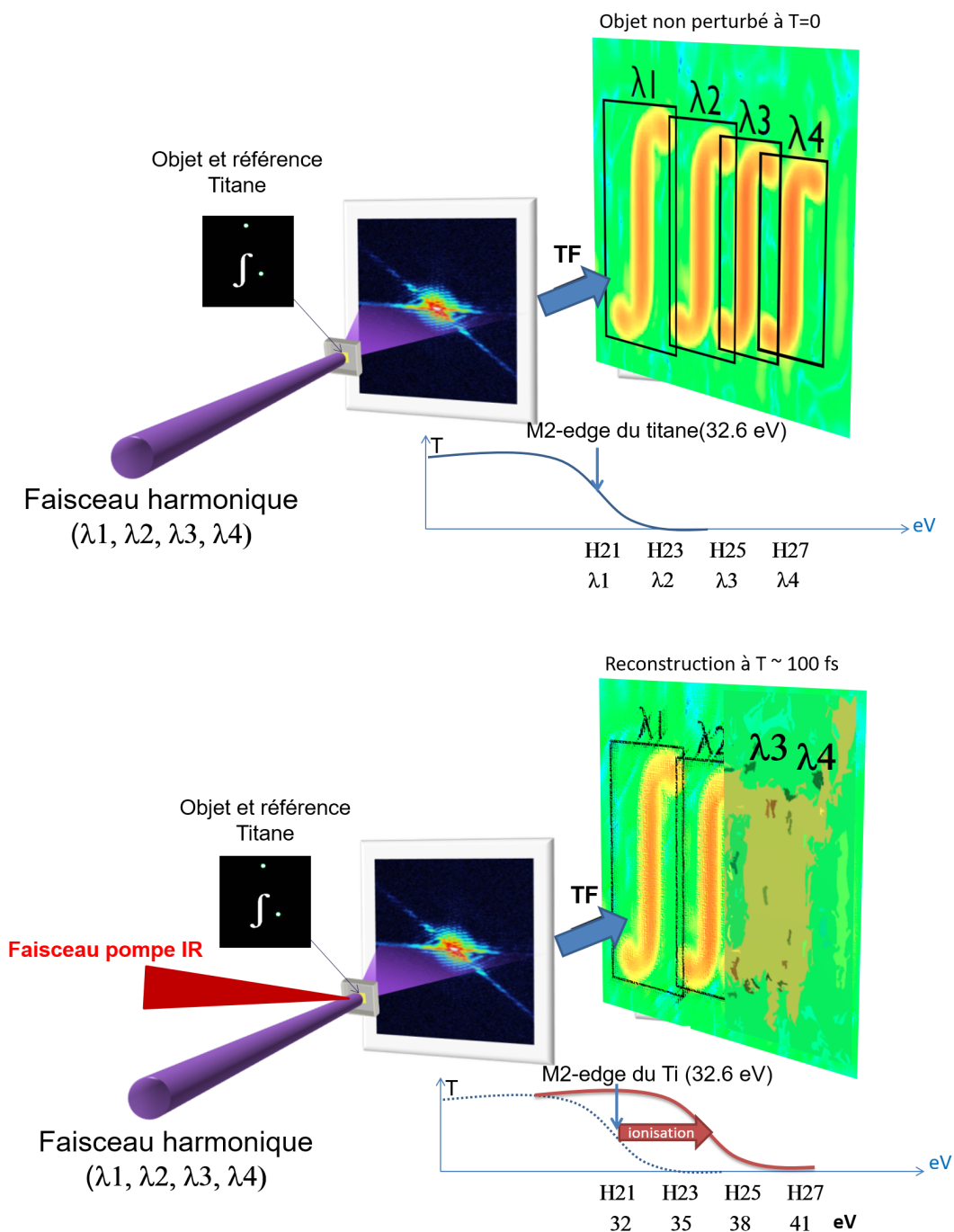
### **Imagerie nanométrique avec résolution temporelle et spectrale : Étude de la transparence induite dans le Titane**

Des travaux ont montrés qu'il était possible de réaliser des reconstructions en imagerie sans lentille avec une source non-monochromatique [161, 162]. De plus, utiliser une source XV avec une grande largeur spectrale pour sonder la matière présente un fort intérêt dans beaucoup de domaines de la physique (plasma, transitions de phase, nano-domaines magnétiques..) et de la biologie (imagerie d'échantillons biologiques dans la fenêtre de l'eau par exemple). Supposons que notre source comporte plusieurs ordres harmoniques, chacun ayant une grande finesse. Grâce à la FTH, on peut reconstruire les images de l'objet correspondant aux différentes longueurs d'onde de la source, si la distance holographique (distance entre la référence ponctuelle et l'objet) est appropriée [161]. Je présente ici une expérience qui aurait due être mise en place au cours de ma thèse mais qui n'a pas été effectuée à cause de retard de livraison de l'optique de focalisation. Cette expérience de type pompe-sonde utilise l'imagerie multi-longueurs d'onde pour mettre en évidence le phénomène de transparence induite dans le titane (voir Fig.6.1). Ici, nous

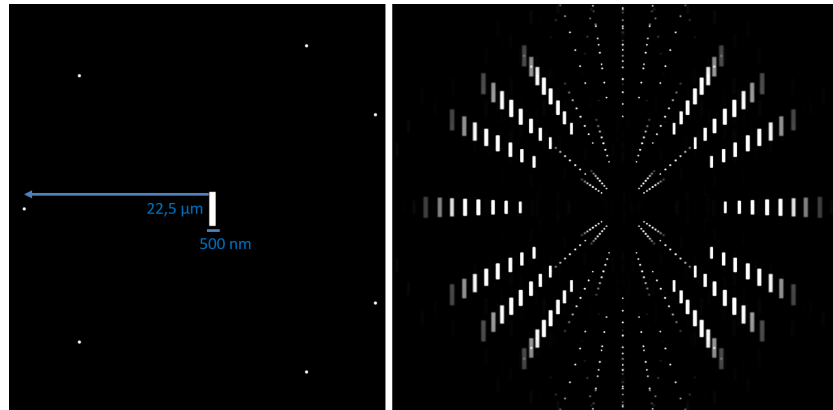
prévoyons d'utiliser un faisceau sonde composé de plusieurs harmoniques pour mesurer simultanément les propriétés d'un matériau (le titane) au dessus et en dessous d'un seuil d'absorption (seuil M2) et d'observer la dynamique d'un nano-plasma. Le seuil d'absorption M2 du titane est situé à  $32.5eV$ . Soit un faisceau XUV composé de 4 harmoniques H21, H23, H25 et H27. L'harmonique H21 ( $32.6eV$ ) est situé juste au dessus du seuil M2 du titane. Ainsi, à l'état initial, la membrane de titane est opaque pour toutes les harmoniques.

Le faisceau harmonique XUV *sonde* est focalisé sur une feuille de titane sur laquelle est gravé un objet et plusieurs références holographiques ponctuelles (voir la figure 6.2). On utilise des références multiples afin de superposer toutes les reconstructions en phase et en amplitude et d'améliorer le RSB de la reconstructions finale (voir annexe 6). Les harmoniques ont été choisies afin de simuler un spectre harmonique généré dans l'argon. A  $t = 0$ , si la séparation holographique (distance objet-référence) le permet, on peut reconstruire les 4 images de l'objet correspondant aux 4 longueurs d'ondes du faisceau harmonique par FTH de la figure de diffraction enregistrée par le capteur CCD en champ lointain (figure 6.1). La séparation entre les 4 reconstructions dans l'image reconstruite dépend de la distance entre l'objet et la référence. On calcule que, pour un objet d'une taille de  $1\mu m$ , il faut que la distance référence-objet fasse au moins  $13\mu m$  afin d'éviter un chevauchement des reconstructions aux différentes longueurs d'onde. A  $t = t_0$  on focalise un faisceau intense IR « pompe » sur l'échantillon à un éclairement d'environ  $10^{14}W/cm^2$  qui va chauffer la feuille de titane. L'énergie laser va alors créer un plasma et l'excitation électronique va décaler le niveau d'énergie du seuil M du titane de plusieurs électronvolts. Ainsi, les harmoniques situées en dessous du niveau seuil d'absorption du titane ionisé commenceront à être transmises par la membrane de titane. La reconstruction de l'objet pour ces harmoniques sera alors impossible. Simultanément, le plasma créé sur l'échantillon va se détendre et remplir l'espace vide de l'objet où les harmoniques sont transmis. L'expansion du plasma, entre les fentes de  $1\mu m$  de l'objet, va modifier dynamiquement l'indice du milieu où les harmoniques se propagent et dégrader les reconstructions de l'objet. Or on sait que le plasma se détend à une vitesse d'environ  $1nm/fs$ . Donc la collision entre les nano-plasmas aura lieu au bout d'environ  $500fs$ . La résolution temporelle de cette expérience est donnée par la durée des impulsions laser ( $60fs$ ). On pourrait alors observer la dynamique d'expansion depuis le chauffage par le





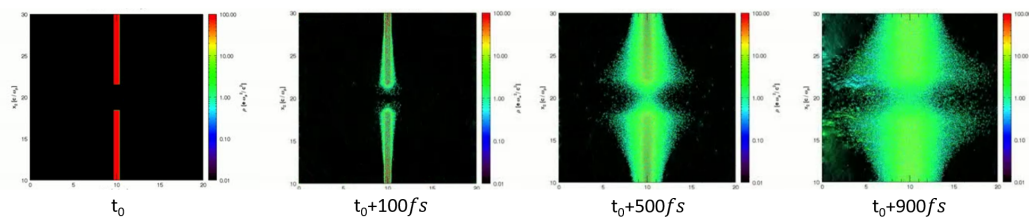
**Figure 6.1** Schéma présentant l'expérience de transparence induite du titane et les images reconstruites. L'image du haut est obtenue à  $T = 0$  en faisant la TF de l'hologramme et celle du bas est obtenue après chauffage de l'échantillon par le faisceau pompe infrarouge à  $T = 100\text{fs}$ .



**Figure 6.2** Simulation de l'image reconstruite avec un spectre d'harmoniques allant de H15 à H29. L'objet est une fente de  $500\text{nm}$  de largeur et 7 références sont placées autour à une distance de  $22.5\mu\text{m}$

faisceau pompe jusqu'aux collisions des nano-plasmas et observer comment son confinement modifie son évolution.

Une simulation PIC 2D (pour *Particle In Cell*), réalisée à l'Institut de Plasmas et de



**Figure 6.3** Simulations PIC de l'expansion du plasma dans une membrane de titane. On affiche ici la densité des protons dans le vide.

Fusion Nucléaire à l'IST de Lisbonne est présentée dans la figure 6.3. Elle montre l'expansion du plasma depuis sa création  $t_0$  jusqu'à  $t_0 + 1\text{ps}$  avec un échantillon type "fente" de  $1\mu\text{m}$  de largeur avec une membrane de  $200\text{nm}$  d'épaisseur.  $100\text{fs}$  après l'impulsion pompe IR on observe déjà l'expansion du plasmas. Après  $500\text{fs}$  on voit que les plasmas des deux cotés de la fente ont parcouru environ  $500\text{nm}$ . Après  $900\text{fs}$  on remarque que l'expansion des plasmas est majoritairement transverse et qu'on observe pas de collision entre les deux nano-plasmas. Cela est peut être dû à la géométrie de l'échantillon qui ne favorise pas le confinement du plasma. Un échantillon avec un plus fort degré de confinement permettrait de faciliter les collisions entre les plasmas et de potentiellement induire une résonance plasmonique augmentant le chauffage de la cible de titane et éjectant des protons à hautes vitesses. Alternativement, l'absence de collisions entre les plasmas peut être due aux paramètres du code PIC. Plus d'études sont nécessaires pour lever cette indétermination.

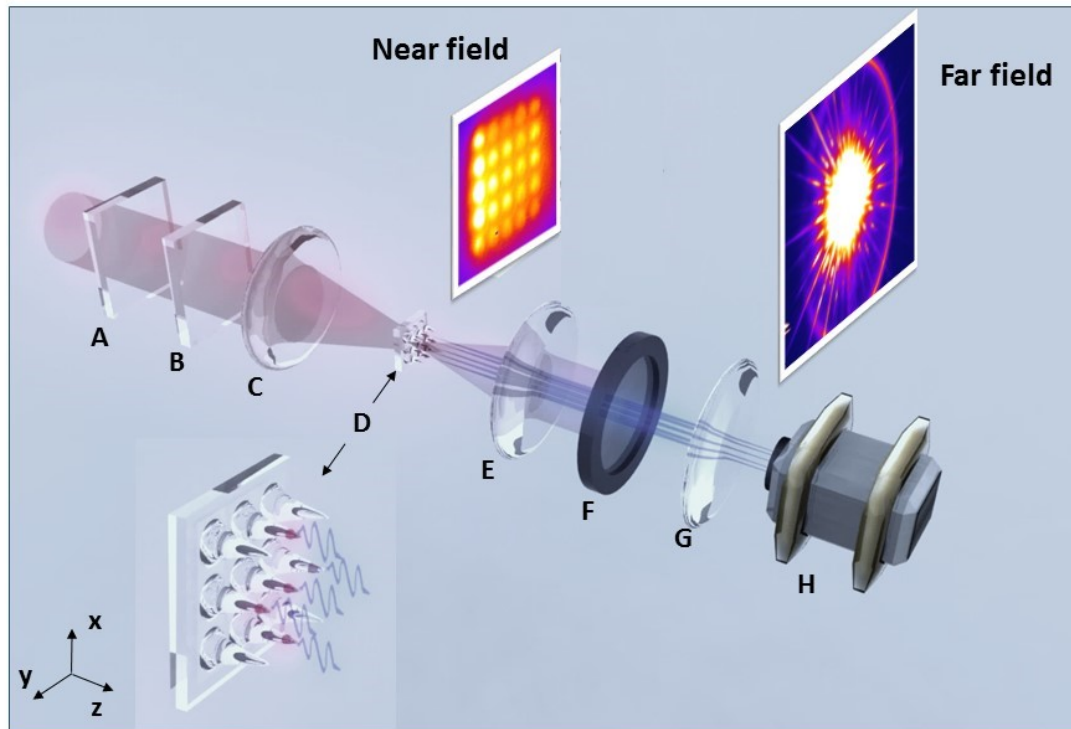
Le principal obstacle à cette expérience est qu'elle doit être réalisée en simple tir. Or après chauffage par le faisceau pompe, la cible sera détruite. Il faudra donc créer suffisamment d'échantillons afin d'avoir de reconstruire un nombre suffisant d'images pour correctement échantillonner temporellement la dynamique des plasmas. De plus, comme expliqué précédemment la séparation holographique doit être supérieure à  $13\mu m$ . Une distance objet-référence suffisamment grande permet aussi au faisceau pompe d'induire un plasma seulement sur l'objet et de ne pas affecter les références. Cela nous oblige à avoir un diamètre de faisceau sonde supérieur ou égal à  $13\mu m$ , ce qui diminue l'éclairement du faisceau sur l'échantillon d'environ un facteur 10 par rapport aux conditions expérimentales habituelles. En effet, nous utilisons un faisceau de  $4\mu m$  de diamètre, tripler le diamètre équivaut à diviser l'éclairement par 9. Ce qui nous place dans la limite basse de flux pour réaliser de l'imagerie simple tir. En conclusion, nous avons présenté une technique d'imagerie multi-longueurs d'ondes très élégante permettant de résoudre temporellement, spectralement et spatialement la dynamique de nano-plasmas peu denses et le processus de transparence induite dans un film de titane. La résolution spectrale est donnée par l'écart d'énergie entre les harmoniques ( $3.1eV$ ), la résolution temporelle est donnée par la durée de l'impulsion IR (environ  $60fs$ ) et la résolution spatiale est donnée par la résolution transverse de l'image reconstruite (environ  $50nm$ ).

### **Une nouvelle source harmonique pour l'imagerie ? : La HHG dans les solides amplifiée par confinement du champ laser.**

La génération d'harmoniques dans les cristaux amplifiés par effet plasmonique est une thématique nouvelle et à fort potentiel étudiée dans le groupe ATTO, via les projets de thèse de Dominik Franz et Shatha Kaassamani. L'amplification à l'échelle nanométrique de processus non linéaires dans des solides ouvre de nouvelles applications dans la nano-électronique et la nano-médecine par exemple. Amplifier des champs électrique extrêmement intenses dans des systèmes photoniques nano-structurés a le potentiel de créer des sources nano-localisés de photons de hautes énergies. Au sein de ces sources, la génération d'harmoniques d'ordre élevé est une des plus prometteuse. Cette technologie est susceptible de non seulement révolutionner le domaine de la physique attoseconde mais aussi de paver la voie à une nouvelle génération de systèmes optoélectroniques. La haute intensité nécessaire pour produire des harmoniques dans les solides requiert

l'utilisation de systèmes d'amplification laser coûteux et parfois complexes [163–167]. Cependant, l'amplification du champ à l'échelle nanométrique est une technique qui peut être utilisée pour stimuler les processus physiques de champs fort [168, 169]. Les solides sont des candidats prometteurs pour l'obtention efficace d'harmoniques assistés par amplification du champ, de par la haute densité des atomes dans les solides et des plus faibles intensités laser nécessaires afin de générer des harmoniques [166, 167, 170]. Notre groupe parvient à obtenir une amplification des harmoniques dans des semi-conducteurs nano-structurés grâce à l'exaltation à l'échelle nanométrique du champ d'un laser IR moyen dans l'échantillon. L'amplification est obtenue par confinement du champ lumineux dans les guides d'onde semi-conducteurs 3D. Les harmoniques sont produites dans des nano-cônes d'oxyde de zinc (ZnO). Ils obtiennent un large volume d'amplification sans dégât thermique observable. L'amplification des harmoniques est observée en couplant dans chaque nano-cône une énergie modeste ( $5nJ$ ) d'un OPCPA laser de haut taux de répétition. L'amplification observée (jusqu'à un facteur 30) dépend de l'énergie, de la longueur d'onde du laser incident et de la géométrie des nano-cônes. La figure 6.4 présente l'arrangement expérimental. Le faisceau laser IR moyen est focalisé par une lentille plano-convexe de  $CaF_2$  (C) de focale  $f = 20cm$  en une tache focale de  $80\mu m$  de diamètre FWHM du côté non nano-structuré de l'échantillon. Une lame demi-onde (A) et un polariseur (B) permettent d'ajuster l'énergie laser tout en préservant la polarisation linéaire du laser selon l'axe x. L'insert est un zoom de la cible nano-structurée (D) et montre l'amplification harmonique produite par les nano-cônes (ondes bleues). Le rayonnement harmonique émit par les nano-cônes est imagé par une paire de lentilles (E) et (G) et détecté par une caméra CCD (H). L'imagerie de l'émission harmonique en champ proche et champ lointain illustre les différents plans des mesures. La figure de diffraction en champ lointain prouve la cohérence partielle de la source alors que celle en champ proche montre la localisation de l'émission harmonique amplifiée. L'harmonique 7 est sélectionné par un filtre passe bande (F).

Le processus de génération non perturbatif d'harmoniques dans les cristaux est encore très nouveau et les théories le décrivant divergent [171–175]. En observant la figure de diffraction en champ lointain présentée dans l'insert de la figure 6.4, on voit que le faisceau harmonique possède une cohérence spatiale non nulle. Étudier la distribution du profil transverse de la cohérence spatiale du faisceau et son évolution en fonction des



**Figure 6.4** Arrangement expérimental de l'expérience de l'amplification de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des guides d'ondes 3D semi-conducteurs [8].

paramètres de génération (intensité du faisceau incident, polarisation, longueur d'onde) pourrait permettre d'obtenir des renseignements supplémentaires sur le mécanisme de génération. Après avoir caractérisé la cohérence du faisceau, on souhaite réaliser des expériences d'imagerie sans lentille avec ce nouveau type de source harmonique compact. Des figures de diffraction ont été enregistrées avec un échantillon similaire à celui utilisé dans la partie 5.2. Cependant, nous sommes incapables de reconstruire l'objet à cause d'un niveau de bruit très élevé et non uniformément réparti sur l'image. Des études sont en cours pour améliorer les conditions d'acquisition de la figure de diffraction.

# Annexe

## Superposition des reconstructions [2, 6]

Il est intéressant de superposer les reconstructions issues de lancement indépendant de l'algorithme de reconstruction itératif. Avec un faisceau de bonne qualité, la phase joue un rôle crucial : elle est bien définie dans la région de l'objet mais aléatoire en dehors. Ainsi, elle contribue à augmenter le RSB lors d'une superposition. Notons  $H_k(x, y)$  la  $k$ -ième reconstruction complexe (phase et amplitude). On peut alors écrire :

$$H_k(x, y) = A_k(x, y) \cdot e^{i\phi_k(x, y)} \quad (6.1)$$

Il est possible de décomposer chaque reconstruction en la somme de deux signaux : le signal « utile », noté  $H_{s,k}(x, y)$ , et le signal bruité, noté  $H_{b,k}(x, y)$ . Ces deux grandeurs sont définies par :

$$H_{s,k}(x, y) = H_k(x, y) \text{ si } A_k(x, y) \geq A_{th}, 0 \text{ sinon} \quad (6.2)$$

$$H_{b,k}(x, y) = H_k(x, y) \text{ si } A_k(x, y) < A_{th}, 0 \text{ sinon} \quad (6.3)$$

Avec  $A_{th}$  une amplitude « seuil » fixée au préalable. Le signal « utile » correspondra aux valeurs complexes dont le module est supérieur ou égal à ce seuil, et inversement pour le signal bruité.

La superposition des reconstructions peut se faire de deux manières : soit on les additionne en amplitude et en phase (superposition *cohérente*), soit on additionne seulement les amplitudes (superposition *incohérente*).

### Somme cohérente

La somme cohérente des reconstructions est simplement :

$$S_{\text{cohérent}} = \sum_k H_k(x, y) \quad (6.4)$$

On additionne en amplitude et en phase l'ensemble des reconstructions et du bruit associé. A l'aide de la décomposition en signaux utile et bruité, on peut écrire :

$$S_{\text{cohérent}} = \sum_k H_{k,s}(x, y) + \sum_k H_{k,b}(x, y) \quad (6.5)$$

### Somme incohérente

Dans ce cas, on superpose l'amplitude (ou module) des reconstructions :

$$S_{\text{incohérent}} = \sum_k |H_k(x, y)| = \sum_k A_k(x, y) \quad (6.6)$$

Cela revient à écrire :

$$S_{\text{incohérent}} = \sum_k (A_{k,s}(x, y) + A_{k,b}(x, y)) = \sum_k A_{k,s}(x, y) + \sum_k A_{k,b}(x, y) \quad (6.7)$$

### Comparaison

Pour souligner l'avantage de la superposition cohérente par rapport à la superposition incohérente, rappelons l'inégalité triangulaire sur les complexes :

Pour tous complexes  $z_1, z_2, \dots, z_n$ , on a

$$\left| \sum_{k=1}^n z_k \right| \leq \sum_{k=1}^n |z_k| \quad (6.8)$$

Ce qui donne, dans notre cas :

$$|S_{\text{coherent}}| \leq |S_{\text{incoherent}}| \quad (6.9)$$

On comprend alors que pour améliorer le rapport signal sur bruit, effectuer une somme cohérente du signal bruité aura pour effet de diminuer son module par rapport à une somme incohérente. Cela est d'autant plus pertinent que la phase du signal bruité est aléatoire en dehors de la région de l'objet, ce qui l'atténue d'autant plus. Le même principe s'applique évidemment au signal utile, mais la phase y étant normalement bien définie, la diminution du signal liée à la somme complexe seront négligeables devant celle du bruit. Ainsi on augmente bien globalement le rapport signal sur bruit de la reconstruction issue de la somme complexe.



# Bibliographie

- [1] Xunyou Ge. *Ultrafast nanoscale coherent XUV diffractive imaging*. PhD thesis, Université Paris Sud 11, 2012.
- [2] David Gauthier. *Ultrafast nanoscale coherent diffractive imaging using X rays produced by high-harmonic generation*. PhD thesis, Université Paris Sud 11, 2012.
- [3] James R Fienup. Reconstruction of an object from the modulus of its fourier transform. *Optics letters*, 3(1) :27–29, 1978.
- [4] Manuel Guizar Sicaïros. *Methods for coherent lensless imaging and X-ray wavefront measurements*. University of Rochester, 2010.
- [5] Aura Inés Gonzalez Angarita. *Single shot lensless imaging with coherence and wavefront characterization of harmonic and FEL sources*. PhD thesis, Université Paris Sud-Paris XI, 2015.
- [6] Julien Samaan. *Study and applications of lensless imaging by coherent diffraction*. Theses, Université Paris-Saclay, December 2016. URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01480706>.
- [7] Tomas Ekeberg, Martin Svenda, Chantal Abergel, Filipe RNC Maia, Virginie Seltzer, Jean-Michel Claverie, Max Hantke, Olof Jönsson, Carl Nettelblad, Gijs Van Der Schot, et al. Three-dimensional reconstruction of the giant mimivirus particle with an x-ray free-electron laser. *Physical review letters*, 114(9) :098102, 2015.
- [8] Dominik Franz, Rana Nicolas, Willem Boutu, Liping Shi, Quentin Ripault, Maria Kholodtsova, Bianca Iwan, Ugaitz Elu Etxano, Milutin Kovacev, Jens Biegert, et al. Amplification of high harmonics in 3d semiconductor waveguides. *arXiv preprint arXiv :1709.09153*, 2017.

- [9] D Sayre. The squaring method : a new method for phase determination. *Acta Crystallographica*, 5(1) :60–65, 1952.
- [10] J. R. Fienup. Reconstruction of a complex-valued object from the modulus of its Fourier transform using a support constraint. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(1) :118–123, January 1987. doi : 10.1364/JOSAA.4.000118. URL <http://josaa.osa.org/abstract.cfm?URI=josaa-4-1-118>.
- [11] JN Cederquist, JR Fienup, JC Marron, and RG Paxman. Phase retrieval from experimental far-field speckle data. *Optics letters*, 13(8) :619–621, 1988.
- [12] Jianwei Miao, Pambos Charalambous, Janos Kirz, and David Sayre. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens. *Nature*, 400(6742) :342, 1999. URL <http://search.proquest.com/openview/0401f74d7dd7433635f453f986f662ba/1?pq-origsite=gscholar&cbl=40569>.
- [13] S Eisebitt, J Lüning, WF Schlotter, M Lörger, O Hellwig, W Eberhardt, and J Stöhr. Lensless imaging of magnetic nanostructures by X-ray spectro-holography. *Nature*, 432(7019) :885–888, 2004.
- [14] Henry N. Chapman, Anton Barty, Michael J. Bogan, Sebastien Boutet, Matthias Frank, Stefan P. Hau-Riege, Stefano Marchesini, Bruce W. Woods, Sasa Bajt, W. Henry Benner, Richard A. London, Elke Plonjes, Marion Kuhlmann, Rolf Treusch, Stefan Dusterer, Thomas Tschentscher, Jochen R. Schneider, Eberhard Spiller, Thomas Moller, Christoph Bostedt, Matthias Hoener, David A. Shapiro, Keith O. Hodgson, David van der Spoel, Florian Burmeister, Magnus Bergh, Carl Caleman, Gosta Huldt, M. Marvin Seibert, Filipe R. N. C. Maia, Richard W. Lee, Abraham Szoke, Nicusor Timneanu, and Janos Hajdu. Femtosecond diffractive imaging with a soft-x-ray free-electron laser. *Nat Phys*, 2(12) :839–843, December 2006. ISSN 1745-2473. URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphys461>.
- [15] M Marvin Seibert, Tomas Ekeberg, Filipe RNC Maia, Martin Svenda, Jakob Andreasson, Olof Jönsson, Duško Odić, Bianca Iwan, Andrea Rocker, Daniel Westphal, et al. Single mimivirus particles intercepted and imaged with an x-ray laser. *Nature*, 470(7332) :78, 2011.

- [16] Gijs Van Der Schot, Martin Svenda, Filipe RNC Maia, Max Hantke, Daniel P DePonte, M Marvin Seibert, Andrew Aquila, Joachim Schulz, Richard Kirian, Mengning Liang, et al. Imaging single cells in a beam of live cyanobacteria with an x-ray laser. *Nature communications*, 6 :5704, 2015.
- [17] Takashi Kimura, Yasumasa Joti, Akemi Shibuya, Changyong Song, Sangsoo Kim, Kensuke Tono, Makina Yabashi, Masatada Tamakoshi, Toshiyuki Moriya, Tairo Oshima, et al. Imaging live cell in micro-liquid enclosure by x-ray laser diffraction. *Nature communications*, 5, 2014.
- [18] Max F Hantke, Dirk Hasse, Filipe RNC Maia, Tomas Ekeberg, Katja John, Martin Svenda, N Duane Loh, Andrew V Martin, Nicusor Timneanu, Daniel SD Larsson, et al. High-throughput imaging of heterogeneous cell organelles with an x-ray laser. *Nature Photonics*, 8(12) :943–949, 2014.
- [19] Boris Vodungbo, Julien Gautier, Guillaume Lambert, Anna Barszczak Sardinha, Magali Lozano, Stéphane Sebban, Mathieu Ducouso, Willem Boutu, Kaigong Li, Bharati Tudu, and others. Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network. *Nature communications*, 3 :999, 2012. URL <http://search.proquest.com/openview/b23815d8bb50090dd4714a714d943d83/1?pq-origsite=gscholar&cbl=546298>.
- [20] Hitoki Yoneda, Yuichi Inubushi, Makina Yabashi, Tetsuo Katayama, Tetsuya Ishikawa, Haruhiko Ohashi, Hirokatsu Yumoto, Kazuto Yamauchi, Hidekazu Mimura, and Hikaru Kitamura. Saturable absorption of intense hard x-rays in iron. *Nature communications*, 5 :5080, 2014.
- [21] Henry N Chapman, Petra Fromme, Anton Barty, Thomas A White, Richard A Kirian, Andrew Aquila, Mark S Hunter, Joachim Schulz, Daniel P DePonte, Uwe Weierstall, and others. Femtosecond X-ray protein nanocrystallography. *Nature*, 470(7332) :73–77, 2011.
- [22] Richard Neutze, Remco Wouts, David van der Spoel, Edgar Weckert, and Janos Hajdu. Potential for biomolecular imaging with femtosecond x-ray pulses. *Nature*, 406(6797) :752, 2000.
- [23] Henry N Chapman, Anton Barty, Stefano Marchesini, Aleksandr Noy, Stefan P Hau-Riege, Congwu Cui, Malcolm R Howells, Rachel Rosen, Haifeng He, John CH

- Spence, and others. High-resolution ab initio three-dimensional x-ray diffraction microscopy. *JOSA A*, 23(5) :1179–1200, 2006.
- [24] Anton Barty, Sébastien Boutet, Michael J Bogan, Stefan Hau-Riege, Stefano Marchesini, Klaus Sokolowski-Tinten, Nikola Stojanovic, Henri Ehrke, Andrea Cavalleri, Stefan Düsterer, et al. Ultrafast single-shot diffraction imaging of nanoscale dynamics. *Nature photonics*, 2(7) :415–419, 2008.
- [25] Andrej Singer, Leandra Boucheron, Sebastian H Dietze, Katharine E Jensen, David Vine, Ian McNulty, Eric R Dufresne, Richard O Prum, Simon GJ Mochrie, and Oleg G Shpyrko. Domain morphology, boundaries, and topological defects in biophotonic gyroid nanostructures of butterfly wing scales. *Science advances*, 2(6) :e1600149, 2016.
- [26] SL Cousin, F Silva, S Teichmann, M Hemmer, B Buades, and Jens Biegert. High-flux table-top soft x-ray source driven by sub-2-cycle, cep stable, 1.85- $\mu\text{m}$  1-khz pulses for carbon k-edge spectroscopy. *Optics letters*, 39(18) :5383–5386, 2014.
- [27] Getnet K Tadesse, R Klas, S Demmler, S Hädrich, I Wahyutama, M Steinert, C Spielmann, M Zürich, T Pertsch, A Tünnermann, et al. High speed and high resolution table-top nanoscale imaging. *Optics letters*, 41(22) :5170–5173, 2016.
- [28] A. Ravasio, D. Gauthier, F. R. N. C. Maia, M. Billon, J-P. Caumes, D. Garzella, M. Géléoc, O. Gobert, J-F. Hergott, A-M. Pena, H. Perez, B. Carré, E. Bourhis, J. Gierak, A. Madouri, D. Mailly, B. Schiedt, M. Fajardo, J. Gautier, P. Zeitoun, P. H. Bucksbaum, J. Hajdu, and H. Merdji. Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser-Harmonics Source. *Phys. Rev. Lett.*, 103(2) :028104, July 2009. doi : 10.1103/PhysRevLett.103.028104. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.103.028104>.
- [29] W Boutu, D Gauthier, X Ge, R Cassin, M Ducouso, AI Gonzalez, B Iwan, J Saamaan, F Wang, M Kovačev, et al. Impact of noise in holography with extended references in the low signal regime. *Optics express*, 24(6) :6318–6327, 2016.
- [30] Veit Elser. Phase retrieval by iterated projections. *JOSA A*, 20(1) :40–55, 2003.
- [31] Joseph W Goodman. *Introduction to Fourier optics*. Roberts and Company Publishers, 2005.

- [32] Malcolm R Howells, Tobias Beetz, Henry N Chapman, C Cui, JM Holton, CJ Jacobsen, J Kirz, Enju Lima, Stefano Marchesini, Huijie Miao, et al. An assessment of the resolution limitation due to radiation-damage in x-ray diffraction microscopy. *Journal of electron spectroscopy and related phenomena*, 170(1) :4–12, 2009.
- [33] J. R. Fienup. Reconstruction of a complex-valued object from the modulus of its fourier transform using a support constraint. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(1) :118–123, Jan 1987. doi : 10.1364/JOSAA.4.000118. URL <http://josaa.osa.org/abstract.cfm?URI=josaa-4-1-118>.
- [34] Ian McNulty, Chris Jacobsen, et al. High-resolution imaging by fourier transform x-ray holography. *Science*, 256(5059) :1009, 1992.
- [35] R Bates. Fourier phase problems are uniquely solvable in more than one dimension. i : Underlying theory. *Optik (Stuttgart)*, 61 :247–262, 1982.
- [36] S Roy, D Parks, KA Seu, Run Su, JJ Turner, Weilun Chao, EH Anderson, Stefano Cabrini, and SD Kevan. Lensless x-ray imaging in reflection geometry. *Nature Photonics*, 5(4) :243–245, 2011.
- [37] SG Podorov, KM Pavlov, and DM Paganin. A non-iterative reconstruction method for direct and unambiguous coherent diffractive imaging. *Optics express*, 15(16) : 9954–9962, 2007.
- [38] Manuel Guizar-Sicairos and James R Fienup. Holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation. *Optics express*, 15(26) :17592–17612, 2007.
- [39] Fenglin Martin, Andrew V, Richard Bean, Flavio Capotondi, Richard A Kirian, Emmanuele Pedersoli, Lorenzo Raimondi, Francesco Stellato, Chun Hong Yoon, et al. X-ray holography with a customizable reference. *Nature communications*, 5, 2014.
- [40] PP Ewald. Introduction to the dynamical theory of x-ray diffraction. *Acta Crystallographica Section A : Crystal Physics, Diffraction, Theoretical and General Crystallography*, 25(1) :103–108, 1969.
- [41] Henry N Chapman, Anton Barty, Stefano Marchesini, Aleksandr Noy, Stefan P Hau-Riege, Congwu Cui, Malcolm R Howells, Rachel Rosen, Haifeng He, John CH

- Spence, et al. High-resolution ab initio three-dimensional x-ray diffraction microscopy. *JOSA A*, 23(5) :1179–1200, 2006.
- [42] Akihiro Suzuki, Shin Furutaku, Kei Shimomura, Kazuto Yamauchi, Yoshiki Kohmura, Tetsuya Ishikawa, and Yukio Takahashi. High-resolution multislice x-ray ptychography of extended thick objects. *Physical review letters*, 112(5) :053903, 2014.
- [43] Martin Dierolf, Pierre Thibault, Andreas Menzel, Cameron M Kewish, Konstantins Jefimovs, Ilme Schlichting, Konstanze Von Koenig, Oliver Bunk, and Franz Pfeiffer. Ptychographic coherent diffractive imaging of weakly scattering specimens. *New Journal of Physics*, 12(3) :035017, 2010.
- [44] Claude Elwood Shannon. Communication in the presence of noise. *Proceedings of the IRE*, 37(1) :10–21, 1949.
- [45] Harry Nyquist. Certain topics in telegraph transmission theory. *Transactions of the American Institute of Electrical Engineers*, 47(2) :617–644, 1928.
- [46] David Sayre. Some implications of a theorem due to shannon. *Acta Crystallographica*, 5(6) :843–843, 1952.
- [47] Adriaan Walther. The question of phase retrieval in optics. *Journal of Modern Optics*, 10(1) :41–49, 1963.
- [48] Yu M Bruck and LG Sodin. On the ambiguity of the image reconstruction problem. *Optics communications*, 30(3) :304–308, 1979.
- [49] Jean-Pierre Delmas. *Éléments de théorie du signal : Les signaux déterministes*. Ellipses, 1991.
- [50] Ralph W Gerchberg. A practical algorithm for the determination of the phase from image and diffraction plane pictures. *Optik*, 35 :237–246, 1972.
- [51] Stefano Marchesini, H He, Henry N Chapman, Stefan P Hau-Riege, Aleksandr Noy, Malcolm R Howells, U Weierstall, and John CH Spence. X-ray image reconstruction from a diffraction pattern alone. *Physical Review B*, 68(14) :140101, 2003.

- [52] Xunyou Ge. *Ultrafast nanoscale coherent XUV diffractive imaging*. PhD thesis, Université Paris Sud 11, 2012.
- [53] Pierre Thibault. *Algorithmic methods in diffraction microscopy*. Cornell University, 2007.
- [54] David Shapiro, Pierre Thibault, Tobias Beetz, Veit Elser, Malcolm Howells, Chris Jacobsen, Janos Kirz, Enju Lima, Huijie Miao, Aaron M Neiman, et al. Biological imaging by soft x-ray diffraction microscopy. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 102(43) :15343–15346, 2005.
- [55] H He, U Weierstall, JCH Spence, M Howells, HA Padmore, S Marchesini, and HN Chapman. Use of extended and prepared reference objects in experimental Fourier transform x-ray holography. *Applied physics letters*, 85(13) :2454–2456, 2004.
- [56] Olav Hellwig, Stefan Eisebitt, Wolfgang Eberhardt, William F Schlotter, Jan Lüning, and Joachim Stöhr. Magnetic imaging with soft x-ray spectroholography. *Journal of applied physics*, 99(8) :08H307, 2006.
- [57] WF Schlotter, R Rick, K Chen, A Scherz, J Stöhr, J Lüning, S Eisebitt, Ch Günther, W Eberhardt, O Hellwig, and others. Multiple reference Fourier transform holography with soft x rays. *Applied Physics Letters*, 89(16) :163112, 2006.
- [58] M.Boutet Sebastien Sakdinawat Anne E. Bogan Michael J. Bajt Sasa Barty Anton Chapman Henry N. Frank Matthias Hau-Riege Stefan P. Szoke Abraham Cui Congwu Shapiro David A. Howells Malcolm R. Spence John C. H. Shaevitz Joshua W. Lee Joanna Y. Hajdu Janos Seibert Marvin M. Marchesini, Stefano Boutet. Massively parallel x-ray holography. *Nat Photon*, 2(9) :560–563, September 2008. doi : 10.1038/nphoton.2008.154. URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2008.154>.
- [59] Lorenz-M Stadler, Christian Gutt, Tina Autenrieth, Olaf Leupold, Stefan Rehbein, Yuriy Chushkin, and Gerhard Grübel. Hard x ray holographic diffraction imaging. *Physical review letters*, 100(24) :245503, 2008.
- [60] Henry N Chapman, Petra Fromme, Anton Barty, Thomas A White, Richard A Kirian, Andrew Aquila, Mark S Hunter, Joachim Schulz, Daniel P DePonte, Uwe

- Weierstall, et al. Femtosecond x-ray protein nanocrystallography. *Nature*, 470 (7332) :73–77, 2011.
- [61] Henry N Chapman, Stefan P Hau-Riege, Michael J Bogan, Saša Bajt, Anton Barty, Sébastien Boutet, Stefano Marchesini, Matthias Frank, Bruce W Woods, W Henry Benner, et al. Femtosecond time-delay x-ray holography. *Nature*, 448(7154) :676–679, 2007.
- [62] Willem Boutu. *DYNAMIQUE DE LA GENERATION D’HARMONIQUES DANS LES ATOMES ET LES MOLECULES*. PhD thesis, Université Paris Sud-Paris XI, 2007.
- [63] M Ferray, Anne L’Huillier, XF Li, LA Lompre, G Mainfray, and C Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3) :L31, 1988.
- [64] A McPherson, G Gibson, H Jara, U Johann, Ting S Luk, IA McIntyre, Keith Boyer, and Charles K Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *JOSA B*, 4(4) :595–601, 1987.
- [65] Paul B Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71(13) :1994, 1993.
- [66] KJ Schafer, Baorui Yang, LF DiMauro, and KC Kulander. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Physical review letters*, 70(11) :1599, 1993.
- [67] P \_ M Paul, ES Toma, P Breger, Genevive Mullot, F Augé, Ph Balcou, HG Muller, and P Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292(5522) :1689–1692, 2001.
- [68] Jeffrey L. Krause, Kenneth J. Schafer, and Kenneth C. Kulander. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.*, 68 :3535–3538, Jun 1992. doi : 10.1103/PhysRevLett.68.3535. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.68.3535>.
- [69] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L’Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*,



- 49 :2117–2132, Mar 1994. doi : 10.1103/PhysRevA.49.2117. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.49.2117>.
- [70] E Constant, D Garzella, P Breger, E Mével, Ch Dorrer, C Le Blanc, F Salin, and P Agostini. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases : Model and experiment. *Physical Review Letters*, 82(8) :1668, 1999.
- [71] J-F Hergott, M Kovacev, H Merdji, C Hubert, Y Mairesse, E Jean, P Breger, P Agostini, B Carré, and P Salières. Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range. *Physical Review A*, 66(2) :021801, 2002.
- [72] Sophie Kazamias, Frederick Weihe, D Douillet, Constance Valentin, T Planchon, Stéphane Sebban, G Grillon, F Augé, D Hulin, and Ph Balcou. High order harmonic generation optimization with an apertured laser beam. *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 21(3) :353–359, 2002.
- [73] Manuel Guizar-Sicairos, Samuel T. Thurman, and James R. Fienup. Efficient subpixel image registration algorithms. *Optics letters*, 33(2) :156–158, 2008. URL <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?uri=ol-33-2-156>.
- [74] L Le Déroff, P Salières, B Carré, D Joyeux, and D Phalippou. Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a fresnel-mirror interferometer. *Physical Review A*, 61(4) :043802, 2000.
- [75] IA Vartanyants, A Singer, AP Mancuso, OM Yefanov, A Sakdinawat, Y Liu, E Bang, Garth J Williams, G Cadenazzi, B Abbey, et al. Coherence properties of individual femtosecond pulses of an x-ray free-electron laser. *Physical review letters*, 107(14) :144801, 2011.
- [76] M Bellini, C Lyngå, A Tozzi, MB Gaarde, TW Hänsch, Anne L’Huillier, and C-G Wahlström. Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses. *Physical Review Letters*, 81(2) :297, 1998.
- [77] Joseph W Goodman. *Statistical optics*. John Wiley & Sons, 2015.
- [78] Joseph W Goodman. *Introduction to Fourier optics*. Roberts and Company Publishers, 2005.
- [79] Pierre Thibault and Andreas Menzel. Reconstructing state mixtures from diffraction measurements. *Nature*, 494(7435) :68, 2013.

- [80] LW Whitehead, GJ Williams, HM Quiney, DJ Vine, RA Dilanian, S Flewett, KA Nugent, Andrew Gareth Peele, Eugeniu Balaur, and I McNulty. Diffractive imaging using partially coherent x rays. *Physical review letters*, 103(24) :243902, 2009.
- [81] Garth J Williams, Harry M Quiney, Andrew G Peele, and Keith A Nugent. Coherent diffractive imaging and partial coherence. *Physical Review B*, 75(10) : 104102, 2007.
- [82] L Le Déroff, P Salières, B Carré, D Joyeux, D Phalippou, P Monot, P D'OLIVEIRA, T Auguste, H Merdji, and J-F Hergott. Temporal and spatial coherence of high order harmonics. *Laser physics*, 10(1) :294–302, 2000.
- [83] JN Clark, X Huang, R Harder, and IK Robinson. High-resolution three-dimensional partially coherent diffraction imaging. *Nature communications*, 3 : 993, 2012.
- [84] Massimo Santarsiero and Riccardo Borghi. Measuring spatial coherence by using a reversed-wavefront young interferometer. *Optics letters*, 31(7) :861–863, 2006.
- [85] Aura I González and Yobani Mejía. Nonredundant array of apertures to measure the spatial coherence in two dimensions with only one interferogram. *JOSA A*, 28 (6) :1107–1113, 2011.
- [86] Yobani Mejía and Aura Inés González. Measuring spatial coherence by using a mask with multiple apertures. *Optics Communications*, 273(2) :428–434, 2007.
- [87] Seongkeun Cho, Miguel A Alonso, and Thomas G Brown. Measurement of spatial coherence through diffraction from a transparent mask with a phase discontinuity. *Optics letters*, 37(13) :2724–2726, 2012.
- [88] I. a. Vartanyants, A. Singer, a. P. Mancuso, O. M. Yefanov, A. Sakdinawat, Y. Liu, E. Bang, G. J. Williams, G. Cadenazzi, B. Abbey, H. Sinn, D. Attwood, K. a. Nugent, E. Weckert, T. Wang, D. Zhu, B. Wu, C. Graves, A. Scherz, J. J. Turner, W. F. Schlotter, M. Messerschmidt, J. Lüning, Y. Acremann, P. Heilmann, D. C. Mancini, V. Joshi, J. Krzywinski, R. Soufli, M. Fernandez-Perea, S. Hau-Riege, a. G. Peele, Y. Feng, O. Krupin, S. Moeller, and W. Wurth. Coherence Properties of Individual Femtosecond Pulses of an X-Ray Free-Electron

- Laser. *Physical Review Letters*, 107(14) :144801, September 2011. ISSN 0031-9007. doi : 10.1103/PhysRevLett.107.144801. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.107.144801>.
- [89] X Ge, W Boutu, D Gauthier, F Wang, A Borta, B Barbrel, M Ducouso, AI Gonzalez, B Carré, D Guillaumet, et al. Impact of wave front and coherence optimization in coherent diffractive imaging. *Optics express*, 21(9) :11441–11447, 2013.
- [90] R Coisson. Spatial coherence of synchrotron radiation. *Applied optics*, 34(5) : 904–908, 1995.
- [91] Richard Fitzgerald. Phase-sensitive x-ray imaging. *Phys. Today*, 53(7) :23–26, 2000.
- [92] Atsushi Momose, Shinya Kawamoto, Ichiro Koyama, Yoshitaka Hamaishi, Kengo Takai, and Yoshio Suzuki. Demonstration of x-ray talbot interferometry. *Japanese journal of applied physics*, 42(7B) :L866, 2003.
- [93] Atsushi Momose. Phase-sensitive imaging and phase tomography using x-ray interferometers. *Optics Express*, 11(19) :2303–2314, 2003.
- [94] Atsushi Momose and Jun Fukuda. Phase-contrast radiographs of nonstained rat cerebellar specimen. *Medical physics*, 22(4) :375–379, 1995.
- [95] Burton L Henke, Eric M Gullikson, and John C Davis. X-ray interactions : photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at e= 50-30,000 ev, z= 1-92. *Atomic data and nuclear data tables*, 54(2) :181–342, 1993.
- [96] UetMHART Bonse and M Hart. An x-ray interferometer. *Applied Physics Letters*, 6(8) :155–156, 1965.
- [97] Ulrich Bonse and Frank Busch. X-ray computed microtomography ( $\mu$ ct) using synchrotron radiation (sr). *Progress in biophysics and molecular biology*, 65(1-2) : 133–169, 1996.
- [98] A Momose. Demonstration of phase-contrast x-ray computed tomography using an x-ray interferometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 352 (3) :622–628, 1995.

- [99] Atsushi Momose, Tohoru Takeda, Yuji Itai, and Keiichi Hirano. Phase-contrast x-ray computed tomography for observing biological soft tissues. *Nature medicine*, 2(4) :473–475, 1996.
- [100] Felix Beckmann, Ulrich Bonse, Frank Busch, and Olaf Günnewig. X-ray microtomography ( $\mu$ ct) using phase contrast for the investigation of organic matter. *Journal of computer assisted tomography*, 21(4) :539–553, 1997.
- [101] F Beckmann, K Heise, B Kölsch, U Bonse, MF Rajewsky, M Bartscher, and T Biermann. Three-dimensional imaging of nerve tissue by x-ray phase-contrast microtomography. *Biophysical journal*, 76(1) :98–102, 1999.
- [102] Dean Chapman, W Thomlinson, RE Johnston, D Washburn, E Pisano, N Gmür, Z Zhong, R Menk, F Arfelli, and D Sayers. Diffraction enhanced x-ray imaging. *Physics in medicine and biology*, 42(11) :2015, 1997.
- [103] TJ Davis, D Gao, TE Gureyev, AW Stevenson, SW Wilkins, et al. Phase-contrast imaging of weakly absorbing materials using hard x-rays. *Nature*, 373(6515) :595–598, 1995.
- [104] A Snigirev, I Snigireva, V Kohn, S Kuznetsov, and I Schelokov. On the possibilities of x-ray phase contrast microimaging by coherent high-energy synchrotron radiation. *Review of scientific instruments*, 66(12) :5486–5492, 1995.
- [105] SW Wilkins, T Ei Gureyev, D Gao, A Pogany, and AW Stevenson. Phase-contrast imaging using polychromatic hard x-rays. *Nature*, 384(6607) :335, 1996.
- [106] KA Nugent, TE Gureyev, DF Cookson, D Paganin, and Z Barnea. Quantitative phase imaging using hard x rays. *Physical review letters*, 77(14) :2961, 1996.
- [107] Franz Pfeiffer, Timm Weitkamp, Oliver Bunk, and Christian David. Phase retrieval and differential phase-contrast imaging with low-brilliance x-ray sources. *Nature physics*, 2(4) :258–261, 2006.
- [108] Andrei V Bronnikov. Reconstruction formulas in phase-contrast tomography. *Optics Communications*, 171(4) :239–244, 1999.

- [109] Marco Stampanoni, Rajmund Mokso, Federica Marone, Joan Vila-Comamala, Sergey Gorelick, Pavel Trtik, Konstantin Jefimovs, and Christian David. Phase-contrast tomography at the nanoscale using hard x rays. *Physical Review B*, 81(14) :140105, 2010.
- [110] David Paganin, SC Mayo, Tim E Gureyev, Peter R Miller, and Steve W Wilkins. Simultaneous phase and amplitude extraction from a single defocused image of a homogeneous object. *Journal of microscopy*, 206(1) :33–40, 2002.
- [111] SC Mayo, TJ Davis, TE Gureyev, PR Miller, D Paganin, A Pogany, AW Stevenson, and SW Wilkins. X-ray phase-contrast microscopy and microtomography. *Optics Express*, 11(19) :2289–2302, 2003.
- [112] Manuel Guizar-Sicairos, Ana Diaz, Mirko Holler, Miriam S Lucas, Andreas Menzel, Roger A Wepf, and Oliver Bunk. Phase tomography from x-ray coherent diffractive imaging projections. *Optics express*, 19(22) :21345–21357, 2011.
- [113] Ana Diaz, Pavel Trtik, Manuel Guizar-Sicairos, Andreas Menzel, Pierre Thibault, and Oliver Bunk. Quantitative x-ray phase nanotomography. *Physical Review B*, 85(2) :020104, 2012.
- [114] Jan Rothhardt, Steffen Hädrich, Arno Klenke, Stefan Demmler, Armin Hoffmann, Thomas Gotschall, Tino Eidam, Manuel Krebs, Jens Limpert, and Andreas Tünnermann. 53 w average power few-cycle fiber laser system generating soft x rays up to the water window. *Optics letters*, 39(17) :5224–5227, 2014.
- [115] Arno Klenke, Sven Bretkopf, Marco Kienel, Thomas Gottschall, Tino Eidam, Steffen Hädrich, Jan Rothhardt, Jens Limpert, and Andreas Tünnermann. 530 w, 1.3 mj, four-channel coherently combined femtosecond fiber chirped-pulse amplification system. *Optics letters*, 38(13) :2283–2285, 2013.
- [116] Jianwei Miao, Chien-Chun Chen, Changyong Song, Yoshinori Nishino, Yoshiki Kohmura, Tetsuya Ishikawa, Damien Ramunno-Johnson, Ting-Kuo Lee, and Subhash H Risbud. Three-dimensional gan- ga 2 o 3 core shell structure revealed by x-ray diffraction microscopy. *Physical review letters*, 97(21) :215503, 2006.
- [117] D Russell Luke. Relaxed averaged alternating reflections for diffraction imaging. *Inverse problems*, 21(1) :37, 2004.

- [118] Yoshinori Nishino, Yukio Takahashi, Naoko Imamoto, Tetsuya Ishikawa, and Kazuhiro Maeshima. Three-Dimensional Visualization of a Human Chromosome Using Coherent X-Ray Diffraction. *Physical Review Letters*, 102(1) :018101, January 2009. doi : 10.1103/PhysRevLett.102.018101. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.102.018101>.
- [119] Yukio Takahashi, Nobuyuki Zettsu, Yoshinori Nishino, Ryosuke Tsutsumi, Eiichiro Matsubara, Tetsuya Ishikawa, and Kazuto Yamauchi. Three-Dimensional Electron Density Mapping of Shape-Controlled Nanoparticle by Focused Hard X-ray Diffraction Microscopy. *Nano Letters*, 10(5) :1922–1926, May 2010. ISSN 1530-6984. doi : 10.1021/nl100891n. URL <http://dx.doi.org/10.1021/nl100891n>.
- [120] M Holler, A Diaz, M Guizar-Sicairos, P Karvinen, Elina Färm, Emma Härkönen, Mikko Ritala, A Menzel, J Raabe, and O Bunk. X-ray ptychographic computed tomography at 16 nm isotropic 3d resolution. *Scientific reports*, 4 :3857, 2014.
- [121] M. Holler, J. Raabe, A. Diaz, M. Guizar-Sicairos, C. Quitmann, A. Menzel, and O. Bunk. An instrument for 3d x-ray nano-imaging. *Review of Scientific Instruments*, 83(7) :073703, 2012. URL <http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.4737624>.
- [122] Ne-Te Duane Loh and Veit Elser. Reconstruction algorithm for single-particle diffraction imaging experiments. *Physical Review E*, 80(2) :026705, 2009.
- [123] ND Loh, Michael J Bogan, Veit Elser, Anton Barty, Sébastien Boutet, Saša Bajt, Janos Hajdu, Tomas Ekeberg, Filipe RNC Maia, Joachim Schulz, et al. Cryptotomography : reconstructing 3d fourier intensities from randomly oriented single-shot diffraction patterns. *Physical review letters*, 104(22) :225501, 2010.
- [124] Miao et al. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens. *Nature*, 1999.
- [125] Tetsuya Ishikawa, Hideki Aoyagi, Takao Asaka, Yoshihiro Asano, Noriyoshi Azumi, Teruhiko Bizen, Hiroyasu Ego, Kenji Fukami, Toru Fukui, Yukito Furukawa, and others. A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-angstrom region. *nature photonics*, 6(8) :540–544, 2012. URL <https://www.nature.com/articles/nphoton.2012.141>.

- [126] Richard L. Sandberg, Changyong Song, Przemyslaw W. Wachulak, Daisy A. Raymondson, Ariel Paul, Bagrat Amirbekian, Edwin Lee, Anne E. Sakdinawat, La-O. Chan, Mario C. Marconi, and others. High numerical aperture tabletop soft x-ray diffraction microscopy with 70-nm resolution. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 105(1) :24–27, 2008. URL <http://www.pnas.org/content/105/1/24.short>.
- [127] M. Zürch, J. Rothhardt, S. Hädrich, S. Demmler, M. Krebs, J. Limpert, A. Tünnermann, A. Guggenmos, U. Kleineberg, and C. Spielmann. Real-time and Sub-wavelength Ultrafast Coherent Diffraction Imaging in the Extreme Ultraviolet. *Scientific Reports*, 4 :srep07356, December 2014. ISSN 2045-2322. doi : 10.1038/srep07356. URL <https://www.nature.com/articles/srep07356>.
- [128] Kevin S. Raines, Sara Salha, Richard L. Sandberg, Huaidong Jiang, Jose A. Rodriguez, Benjamin P. Fahimian, Henry C. Kapteyn, Jincheng Du, and Jianwei Miao. Three-dimensional structure determination from a single view. *Nature*, 463(7278) : 214–217, January 2010. ISSN 0028-0836. doi : 10.1038/nature08705. URL <https://www.nature.com/nature/journal/v463/n7278/full/nature08705.html>.
- [129] Chien-Chun Chen, Huaidong Jiang, Lu Rong, Sara Salha, Rui Xu, Thomas G. Mason, and Jianwei Miao. Three-dimensional imaging of a phase object from a single sample orientation using an optical laser. *Physical Review B*, 84(22) :224104, 2011. URL <https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.84.224104>.
- [130] Haiqing Wei. Fundamental limits of /‘ankylography/’ due to dimensional deficiency. *Nature*, 480(7375) :E1–E1, December 2011. ISSN 0028-0836. doi : 10.1038/nature10634. URL <https://www.nature.com/nature/journal/v480/n7375/full/nature10634.html>.
- [131] Ge Wang, Hengyong Yu, Wenxiang Cong, and Alexander Katsevich. Non-uniqueness and instability of ‘ankylography’. *Nature*, 480 (7375) :E2, 2011. URL <http://search.proquest.com/openview/a99e4029a5bc5f43c52950c03b670e02/1.pdf?pq-origsite=gscholar&cbl=40569>.

- [132] Harald Andruleit, Markus Geisen, and Sabine Stäger. Stereo-microscopy of coccolithophores-modern applications for imaging and morphological analysis. *Journal of nanoplankton research*, 28(1) :1–16, 2006. URL <http://epic.awi.de/13878/1/And2005j.pdf>.
- [133] K. E. Schmidt, J. C. H. Spence, U. Weierstall, R. Kirian, X. Wang, D. Starodub, H. N. Chapman, M. R. Howells, and R. B. Doak. Tomographic femtosecond X-ray diffractive imaging. *Physical review letters*, 101(11) :115507, 2008. URL <https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.101.115507>.
- [134] M. Hoshino, K. Uesugi, J. Pearson, T. Sonobe, M. Shirai, and N. Yagi. Development of an X-ray real-time stereo imaging technique using synchrotron radiation. *Journal of Synchrotron Radiation*, 18(4) :569–574, July 2011. ISSN 0909-0495. doi : 10.1107/S0909049511017547. URL <http://scripts.iucr.org/cgi-bin/paper?mo5011>.
- [135] S.-C. Gleber, J. Thieme, W. Chao, and P. Fischer. Stereo soft X-ray microscopy and elemental mapping of haematite and clay suspensions. *Journal of Microscopy*, 235(2) :199–208, August 2009. ISSN 1365-2818. doi : 10.1111/j.1365-2818.2009.03202.x. URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1111/j.1365-2818.2009.03202.x/abstract>.
- [136] Jianwei Miao, Tetsuya Ishikawa, Bart Johnson, Erik H Anderson, Barry Lai, and Keith O Hodgson. High resolution 3d x-ray diffraction microscopy. *Physical review letters*, 89(8) :088303, 2002.
- [137] Rui Xu, Huaidong Jiang, Changyong Song, Jose A. Rodriguez, Zhifeng Huang, Chien-Chun Chen, Daewoong Nam, Jaehyun Park, Marcus Gallagher-Jones, Sangsoo Kim, Sunam Kim, Akihiro Suzuki, Yuki Takayama, Tomotaka Oroguchi, Yukio Takahashi, Jiadong Fan, Yunfei Zou, Takaki Hatsui, Yuichi Inubushi, Takashi Kameshima, Koji Yonekura, Kensuke Tono, Tadashi Togashi, Takahiro Sato, Masaki Yamamoto, Masayoshi Nakasako, Makina Yabashi, Tetsuya Ishikawa, and Jianwei Miao. Single-shot three-dimensional structure determination of nanocrystals with femtosecond X-ray free-electron laser pulses. 5 :4061, June 2014. URL <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms5061>.



- [138] Demetrios V. Papadimitriou and Tim J. Dennis. Epipolar line estimation and rectification for stereo image pairs. *IEEE transactions on image processing*, 5(4) :672–676, 1996. URL <http://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/491345/>.
- [139] Chris Harris and Mike Stephens. A combined corner and edge detector. In *Alvey vision conference*, volume 15, pages 10–5244. Manchester, UK, 1988. URL [http://courses.daiict.ac.in/pluginfile.php/13002/mod\\_resource/content/0/References/harris1988.pdf](http://courses.daiict.ac.in/pluginfile.php/13002/mod_resource/content/0/References/harris1988.pdf).
- [140] Jianbo Shi and C. Tomasi. Good features to track. In *1994 Proceedings of IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition*, pages 593–600, June 1994. doi : 10.1109/CVPR.1994.323794.
- [141] S. Leutenegger, M. Chli, and R. Y. Siegwart. BRISK : Binary Robust invariant scalable keypoints. In *2011 International Conference on Computer Vision*, pages 2548–2555, November 2011. doi : 10.1109/ICCV.2011.6126542.
- [142] Herbert Bay, Tinne Tuytelaars, and Luc Van Gool. SURF : Speeded Up Robust Features. In *Computer Vision – ECCV 2006*, Lecture Notes in Computer Science, pages 404–417. Springer, Berlin, Heidelberg, May 2006. ISBN 978-3-540-33832-1 978-3-540-33833-8. doi : 10.1007/11744023\_32. URL [https://link.springer.com/chapter/10.1007/11744023\\_32](https://link.springer.com/chapter/10.1007/11744023_32).
- [143] Edward Rosten and Tom Drummond. Machine learning for high-speed corner detection. *Computer Vision–ECCV 2006*, pages 430–443, 2006. URL <http://www.springerlink.com/index/y11g42n05q626127.pdf>.
- [144] David G. Lowe. Distinctive image features from scale-invariant keypoints. *International journal of computer vision*, 60(2) :91–110, 2004. URL <http://www.springerlink.com/index/H4L02691327PX768.pdf>.
- [145] Marius Muja and David G. Lowe. Fast approximate nearest neighbors with automatic algorithm configuration. *VISAPP (1)*, 2(331-340) :2, 2009. URL <http://www.dl.icdst.org/pdfs/files/2f628fbb65c275bf17893f404e10d0d.pdf>.
- [146] M. Muja and D. G. Lowe. Fast Matching of Binary Features. In *2012 Ninth Conference on Computer and Robot Vision*, pages 404–410, May 2012. doi : 10.1109/CRV.2012.60.

- [147] Masayuki Kanbara, Takashi Okuma, Haruo Takemura, and Naokazu Yokoya. A stereoscopic video see-through augmented reality system based on real-time vision-based registration. In *Virtual Reality, 2000. Proceedings. IEEE*, pages 255–262. IEEE, 2000. URL <http://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/840506/>.
- [148] Xunyou Ge. *Ultrafast nanoscale coherent XUV diffractive imaging*. PhD thesis, Université Paris Sud 11, 2012.
- [149] Manuel Guizar-Sicairos and James R Fienup. Holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation. *Optics express*, 15(26) :17592–17612, 2007.
- [150] Veit Elser. Noise limits on reconstructing diffraction signals from random tomographs. *IEEE Transactions on Information Theory*, 55(10) :4715–4722, 2009.
- [151] Russell Fung, Valentin Shneerson, Dilano K Saldin, and Abbas Ourmazd. Structure from fleeting illumination of faint spinning objects in flight. *Nature Physics*, 5(1) : 64, 2009.
- [152] Vinodkumar Saranathan, Chinedum O Osuji, Simon GJ Mochrie, Heeso Noh, Suresh Narayanan, Alec Sandy, Eric R Dufresne, and Richard O Prum. Structure, function, and self-assembly of single network gyroid (i4132) photonic crystals in butterfly wing scales. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 107(26) : 11676–11681, 2010.
- [153] Robert D Reed, Riccardo Papa, Arnaud Martin, Heather M Hines, Brian A Counterman, Carolina Pardo-Diaz, Chris D Jiggins, Nicola L Chamberlain, Marcus R Kronforst, Rui Chen, et al. Optix drives the repeated convergent evolution of butterfly wing pattern mimicry. *Science*, 333(6046) :1137–1141, 2011.
- [154] Oscar Painter, J Vučković, and Axel Scherer. Defect modes of a two-dimensional photonic crystal in an optically thin dielectric slab. *JOSA B*, 16(2) :275–285, 1999.
- [155] Matthias Saba, Michael Thiel, Mark D Turner, ST Hyde, Min Gu, Karsten Grosse-Brauckmann, Dragomir N Neshev, Klaus Mecke, and Gerd E Schröder-Turk. Circular dichroism in biological photonic crystals and cubic chiral nets. *Physical Review Letters*, 106(10) :103902, 2011.

- [156] Ling Lu, Liang Fu, John D Joannopoulos, and Marin Soljačić. Weyl points and line nodes in gyroid photonic crystals. *Nature photonics*, 7(4) :294–299, 2013.
- [157] Christian Mille, Eric C Tyrode, and Robert W Corkery. 3d titania photonic crystals replicated from gyroid structures in butterfly wing scales : approaching full band gaps at visible wavelengths. *RSC Advances*, 3(9) :3109–3117, 2013.
- [158] Jingyun Huang, Xudong Wang, and Zhong Lin Wang. Controlled replication of butterfly wings for achieving tunable photonic properties. *Nano letters*, 6(10) : 2325–2331, 2006.
- [159] GSAHJ Huldt, A Szőke, and Janos Hajdu. Diffraction imaging of single particles and biomolecules. *Journal of structural biology*, 144(1) :219–227, 2003.
- [160] G Bortel and G Faigel. Classification of continuous diffraction patterns : A numerical study. *Journal of structural biology*, 158(1) :10–18, 2007.
- [161] Gareth O Williams, AI Gonzalez, S Künzel, L Li, M Lozano, E Oliva, B Iwan, Sameh Daboussi, W Boutu, H Merdji, et al. Fourier transform holography with high harmonic spectra for attosecond imaging applications. *Optics Letters*, 40(13) : 3205–3208, 2015.
- [162] Brian Abbey, Lachlan W Whitehead, Harry M Quiney, David J Vine, Guido A Cadenazzi, Clare A Henderson, Keith A Nugent, Eugeniu Balaur, Corey T Putkunz, Andrew G Peele, et al. Lensless imaging using broadband x-ray sources. *Nature Photonics*, 5(7) :420–424, 2011.
- [163] Tran Trung Luu, M Garg, S Yu Kruchinin, Antoine Moulet, M Th Hassan, and Eleftherios Goulielmakis. Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids. *Nature*, 521(7553) :498–502, 2015.
- [164] Yong Sing You, David A Reis, and Shambhu Ghimire. Anisotropic high-harmonic generation in bulk crystals. *Nature Physics*, 2016.
- [165] A L’Huillier, K J Schafer, and K C Kulander. Theoretical aspects of intense field harmonic generation. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 24(15) :3315, 1991. URL <http://stacks.iop.org/0953-4075/24/i=15/a=004>.

- [166] Shambhu Ghimire, Anthony D DiChiara, Emily Sistrunk, Pierre Agostini, Louis F DiMauro, and David A Reis. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal. *Nature physics*, 7(2) :138–141, 2011.
- [167] Georges Ndabashimiye, Shambhu Ghimire, Mengxi Wu, Dana A Browne, Kenneth J Schafer, Mette B Gaarde, and David A Reis. Solid-state harmonics beyond the atomic limit. *Nature*, 534(7608) :520–523, 2016.
- [168] Jon A Schuller, Edward S Barnard, Wenshan Cai, Young Chul Jun, Justin S White, and Mark L Brongersma. Plasmonics for extreme light concentration and manipulation. *Nature materials*, 9(3) :193–204, 2010.
- [169] Dmitri K Gramotnev and Sergey I Bozhevolnyi. Plasmonics beyond the diffraction limit. *Nature photonics*, 4(2) :83–91, 2010.
- [170] G Vampa, TJ Hammond, N Thiré, BE Schmidt, F Légaré, CR McDonald, T Brabec, and PB Corkum. Linking high harmonics from gases and solids. *Nature*, 522(7557) :462–464, 2015.
- [171] G Vampa, CR McDonald, G Orlando, PB Corkum, and T Brabec. Semiclassical analysis of high harmonic generation in bulk crystals. *Physical Review B*, 91(6) :064302, 2015.
- [172] AF Kemper, B Moritz, JK Freericks, and TP Devereaux. Theoretical description of high-order harmonic generation in solids. *New Journal of Physics*, 15(2) :023003, 2013.
- [173] CR McDonald, G Vampa, G Orlando, PB Corkum, and T Brabec. Theory of high-harmonic generation in solids. In *Journal of Physics : Conference Series*, volume 594, page 012021. IOP Publishing, 2015.
- [174] G Vampa, CR McDonald, G Orlando, DD Klug, PB Corkum, and T Brabec. Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids. *Physical review letters*, 113(7) :073901, 2014.
- [175] G Vampa and T Brabec. Merge of high harmonic generation from gases and solids and its implications for attosecond science. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 50(8) :083001, 2017.

# Publications

# Impact of noise in holography with extended references in the low signal regime

W. Boutu,<sup>1,\*</sup> D. Gauthier,<sup>1</sup> X. Ge,<sup>1</sup> R. Cassin,<sup>1</sup> M. Ducouso,<sup>1</sup> A.I. Gonzalez,<sup>1</sup> B. Iwan,<sup>1</sup> J. Samaan,<sup>1</sup> F. Wang,<sup>1</sup> M. Kovačev,<sup>2,3</sup> and H. Merdji<sup>1</sup>

<sup>1</sup>LIDYL, CEA, CNRS, Université Paris-Saclay, CEA Saclay 91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>Leibniz Universität Hannover, Institut für Quantenoptik, Welfengarten 1, D-30167 Hannover, Germany

<sup>3</sup>QUEST, Centre for Quantum Engineering and Space-Time Research, Hannover, Germany  
[willem.boutu@cea.fr](mailto:willem.boutu@cea.fr)

**Abstract:** Signal-to-noise ratio is a key factor in lensless imaging, particularly for low diffraction signal experiments in the single shot regime. We present our recent study of the noise impact on holography with extended references. Experimental data have been measured in single shot acquisition using an intense coherent soft X-ray high harmonic source. The impact of hardware and software noise under various detection conditions is discussed. A final comparison between single shot and multi-shot regimes is given.

©2016 Optical Society of America

**OCIS codes:** (140.7090) Ultrafast lasers; (140.7240) UV, EUV, and X-ray lasers; (340.7480) X-rays, soft x-rays, extreme ultraviolet (EUV); (340.7440) X-ray imaging.

---

## References and links

1. R. L. Sandberg, A. Paul, D. A. Raymondson, S. Hädrich, D. M. Gaudiosi, J. Holtsnider, R. I. Tobey, O. Cohen, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, C. Song, J. Miao, Y. Liu, and F. Salmassi, "Lensless diffractive imaging using tabletop coherent high-harmonic soft-X-ray beams," *Phys. Rev. Lett.* **99**(9), 098103 (2007).
2. A. Rivasio, D. Gauthier, F. R. N. C. Maia, M. Billon, J.-P. Caumes, D. Garzella, M. Géléoc, O. Gobert, J.-F. Hergott, A.-M. Pena, H. Perez, B. Carré, E. Bourhis, J. Gierak, A. Madouri, D. Maily, B. Schiedt, M. Fajardo, J. Gautier, P. Zeitoun, P. H. Bucksbaum, J. Hajdu, and H. Merdji, "Single-shot diffractive imaging with a table-top femtosecond soft x-ray laser-harmonics source," *Phys. Rev. Lett.* **103**(2), 028104 (2009).
3. D. Gauthier, M. Guizar-Sicairos, X. Ge, W. Boutu, B. Carré, J. R. Fienup, and H. Merdji, "Single-shot femtosecond x-ray holography using extended references," *Phys. Rev. Lett.* **105**(9), 093901 (2010).
4. A. Barty, S. Boutet, M. J. Bogan, S. Hau-Riege, S. Marchesini, K. Sokolowski-Tinten, N. Stojanovic, R. Tobey, H. Ehrke, A. Cavalleri, S. Dusterer, M. Frank, S. Bajt, B. W. Woods, M. M. Seibert, J. Hajdu, R. Treusch, and H. N. Chapman, "Ultrafast single-shot diffraction imaging of nanoscale dynamics," *Nat. Photonics* **2**(7), 415–419 (2008).
5. D. Gabor, "A new microscopic principle," *Nature* **161**(4098), 777–778 (1948).
6. M. Bartels, M. Krenkel, J. Haber, R. N. Wilke, and T. Salditt, "X-ray holographic imaging of hydrated biological cells in solution," *Phys. Rev. Lett.* **114**(4), 048103 (2015).
7. S. Eisebitt, J. Lüning, W. F. Schlotter, M. Lörger, O. Hellwig, W. Eberhardt, and J. Stöhr, "Lensless imaging of magnetic nanostructures by X-ray spectro-holography," *Nature* **432**(7019), 885–888 (2004).
8. S. G. Podorov, K. M. Pavlov, and D. M. Paganin, "A non-iterative reconstruction method for direct and unambiguous coherent diffractive imaging," *Opt. Express* **15**(16), 9954–9962 (2007).
9. M. Guizar-Sicairos and J. R. Fienup, "Holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation," *Opt. Express* **15**(26), 17592–17612 (2007).
10. M. Guizar-Sicairos and J. R. Fienup, "Direct image reconstruction from a Fourier intensity pattern using HERALDO," *Opt. Lett.* **33**(22), 2668–2670 (2008).
11. M. Guizar-Sicairos, "Methods for coherent lensless imaging and X-ray wavefront measurement," thesis work at *The Institute of Optics Arts, Sciences and Engineering, Edmund A. Hajim School of Engineering and Applied Sciences, University of Rochester, Rochester, New York* (2010).
12. X. Ge, W. Boutu, D. Gauthier, F. Wang, A. Borta, B. Barbrel, M. Ducouso, A. I. Gonzalez, B. Carré, D. Guillaumet, M. Perdrix, O. Gobert, J. Gautier, G. Lambert, F. R. N. C. Maia, J. Hajdu, P. Zeitoun, and H. Merdji, "Impact of wave front and coherence optimization in coherent diffractive imaging," *Opt. Express* **21**(9), 11441–11447 (2013).
13. M. R. Howells, T. Beetz, H. N. Chapman, C. Cui, J. M. Holton, C. J. Jacobsen, J. Kirz, E. Lima, S. Marchesini, H. Miao, D. Sayre, D. A. Shapiro, J. C. H. Spence, and D. Starodub, "An assessment of the resolution limitation

due to radiation-damage in X-ray diffraction microscopy,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **170**(1-3), 4–12 (2009).

14. A. Schropp and C. G. Schroer, “Dose requirements for resolving a given feature in an object by coherent X-ray diffraction imaging,” *New J. Phys.* **12**(3), 035016 (2010).
- 

## 1. Introduction

In the last decade, lensless imaging has shown spectacular advances. Researchers have demonstrated the capability of imaging nano-scale objects with nanometer scale spatial resolution and on femtosecond time scales using coherent diffractive imaging (CDI) or holographic techniques. Powerful free-electron laser (FEL) sources are the best candidates to answer exciting challenges, such as tracking in real space and time the ultrafast motion of electrons, atoms and nanoscale objects. Thanks to the remarkable progresses in ultrafast laser sources, high order harmonics (HH) sources have proven to be good alternatives for lensless imaging experiments. Due to the low output of HH sources, first demonstrations of CDI on HH sources required hours of signal accumulation [1]. However, thanks to femtosecond laser developments, single shot femtosecond nanoscale imaging is now available using intense table-top HH source [2]. Subsequently, single-shot femtosecond X-ray holography with extended references has also been demonstrated using an HH source [3]. High resolution lensless imaging with HH sources is limited by the amount of photons (i.e. the dose), and requires the investigation of techniques that provide a sufficient robustness to noise. This is especially relevant for transient ultrafast nanoscale imaging, as signals tend to be very low while accumulation is not always possible [4]. Imaging techniques have various sensitivities to signal to noise ratio impact on the reconstruction process especially when the information tends to be low or sparse.

In this work, we analyze an extension of Fourier Transform Holography (FTH) to the case of extended references (HERALDO) in the low signal regime. Holography [5] is inspired by the idea of “full recording”: the spatial amplitude and phase of the sample are encoded in the interferences between light diffracted by the object and by a reference. Then, a direct and non-iterative mathematic transform is required to reconstruct the object image. This makes holography very robust to noise errors. The direct in-line scheme proposed by Gabor is now applied to X-ray imaging, reaching sub 50 nm spatial resolution [6]. In Fourier transform holography, the field diffracted by a point like reference in the vicinity of the sample interferes in the far field with the diffraction from the sample. A simple Fourier transform then gives directly the object complex image [7]. In HERALDO, the image reconstruction is based on a differential operator applied to the registered hologram [3,8–10]. Sharp edges of the extended references act as Dirac functions ensuring a high spatial resolution. The resolution is no longer limited by the reference size (like in FTH) but by the quality of its edges, so one can increase the diffraction signal without affecting the resolution. However, sources of noise, coming from the diffracted photons or due to the detector itself, can have an impact on the image reconstruction process. An analysis of the photon noise influence in the HERALDO technique can be found in the work of M. Guizar-Sicairos [11]. The findings, in photon-limited statistics, are that the HERALDO technique is robust to the photon noise. The bulk of noise contribution by the extended reference is filtered during the reconstruction procedure. However, in many experiments, the signal-to-noise ratio of the diffraction patterns is not only limited by the photon statistic, but includes also a noise contribution from the detector. This can be particularly critical for low photon energy, low scattering efficiency single particle imaging at FELs or HH beamlines. Using our soft X-ray HH beamline [12] in the single and multi-shot regimes, we have investigated the influence of detection noises on the image reconstruction and the best achievable spatial resolution.

## 2. Experimental arrangement

For a quantitative comparison, all the measurements have been conducted using the same test object. It consists in a geometrical pattern of 1  $\mu\text{m}$  x 1  $\mu\text{m}$  in size (see Fig. 1) with a

significant level of details. Note that in the low signal regime, the weak contribution to the hologram from each detail of the object complicates significantly the possibility of reconstruction and the spatial resolution accessible [13, 14]. Various references (i.e. the squares in Fig. 1) are etched next to the test object at a distance larger than the minimum holographic separation (about 1  $\mu\text{m}$ , in accordance with the holographic separation condition [8]) so that the total pattern “object + reference” is contained in a box of about 3  $\mu\text{m}$  x 3  $\mu\text{m}$ . Two HERALDO configurations have been studied: two slits (one dimensional reference) or two squares (two dimensional references). For FTH, two pinholes of about 100 nm diameter act as holographic references. For all techniques, the diffraction patterns are obtained using the same harmonic beam in the femtosecond single-shot regime. The experimental setup is described in our previous work [2,3,12]. Briefly, the soft X-ray harmonic beam, monochromatized at a wavelength of 32 nm, is focused on a 5  $\mu\text{m}$  diameter spot. The sample is illuminated with about  $10^9$  to  $10^{10}$  photons in a single shot with pulse duration of 20 fs. The experimental data were acquired with a back-illuminated cooled CCD PI-MTE from Princeton Instruments, 19 mm after the sample. The CCD has two readout frequencies, 100 kHz and 1 MHz. The pixel size is of 13.5  $\mu\text{m}$ . The hardware binning option enables the possibility to combine charges from adjacent pixels into a single effective pixel during the readout process. At the photon energy used for this experiment (~40 eV), taking into account the quantum efficiency (~40%), one photon hitting the CCD chip creates about 4 photon-electrons. With the amplifier gain setting and the 16 bits dynamics of the CCD, these photo-electrons are converted approximately to the same number of counts.

### 3. Impact of detector noises and reconstruction filters in HERALDO

In our experiment, the signal is not photon-limited due to the low photon energy and the modest flux. As a consequence, the detector noise has a large contribution to the noise in the hologram. In general, noise can be separated into four independent components according to their nature: 1) Photon noise, directly related to the diffraction signal and obeying a Poisson distribution with the signal-to-noise ratio  $SNR = \frac{N}{\sqrt{N}} = \sqrt{N}$ , where N is the photon number;

2) Readout noise, related here to the CCD camera readout quality, which is the uncertainty introduced during the process of quantifying the electronic signal. The readout noise mainly arises from the on-chip preamplifier. It is characterized by its standard deviation  $\sigma_{readout}$  (or its variance  $\sigma_{readout}^2$ ); 3) Dark noise (also called dark current), introduced by the thermally generated electrons within the silicon layers of the CCD. The dark current describes the statistical variation of the thermal electrons at a given CCD temperature and a given exposure duration, obeying also a Poisson law. It is characterized by electrons/pixel/s; 4) Parasite light noise, due to scattering during the light transport from the source to the object.

Usually, with a low diffraction signal, the noise is dominated by the readout noise, which is called readout-noise limited; with a high diffraction signal, the photon noise is dominant, which is called photon-limited. Here the number of electrons generated by one photon is comparable to the readout noise at 1 MHz. As a consequence, the measured diffraction patterns are mainly influenced by the readout noise and the photon noise. The SNR of the diffraction pattern is then

$$SNR_{\text{diffraction pattern}} = \frac{N_{\text{detected signal}}}{\sqrt{N_{\text{detected signal}} + \sigma_{\text{readout}}^2}}.$$

Overall, we distinguish in the holograms two regions: the region of low spatial frequencies is photon limited and the region of high spatial frequencies is readout-noise limited. We will present here different strategies to optimize the image reconstruction process in such context.



HERALDO requires application of a linear differential operator associated to the reference shape in object space. This step, in practice, is realized by a point-by-point multiplicative filter,  $W_{p,q}$ , in the Fourier domain (the hologram), at the  $p$  and  $q$  pixel coordinates. Then, the object image is reconstructed by applying an inverse Fourier transform on the filtered diffraction pattern.  $W_{p,q}$  is a high-pass filter, which also amplifies the high spatial frequency region, dominated by the noise. An additional low-pass filter is used to eliminate the amplified readout noise. In the following example, we show that the low-pass filter is essential to the HERALDO reconstruction process, especially with diffraction patterns significantly influenced by noise.

The test object used in this study (Fig. 1 left) contains two squared references. In the HERALDO process, these two squares can provide eight independent reconstructions (associated with each of the eight corners) in a single hologram acquisition. Figure 1 (right) represents a typical single-shot diffraction pattern acquired with a readout frequency of 100 kHz and within a window size of  $600 \times 600$  pixels with  $2 \times 2$  hardware binning ratio. The measured diffraction signal is  $\sim 6 \times 10^7$  photons. The noise around the diffraction signal is here dominated by the readout noise, which leads to a background level of 14 counts and a noise level of 4 counts, measured in the red square (Fig. 1 right).

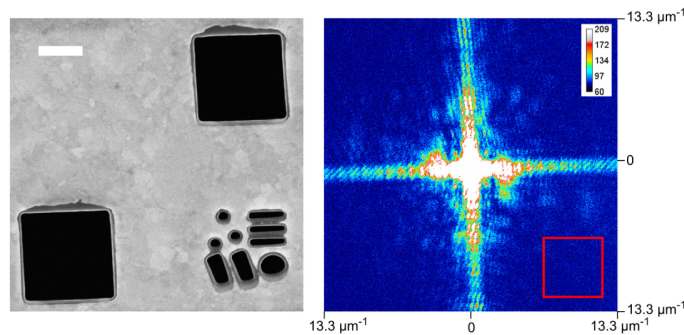


Fig. 1. (left) SEM image of the geometric grid object with two square references. White scale bar: 500 nm. (right) Corresponding experimental single-shot diffraction pattern (log. scale).

Figure 2 presents the effect of the low-pass filter during the reconstruction process. When no low-pass filter is used (top line), the high spatial frequencies of the hologram are significantly amplified after applying the multiplicative filter. The reconstructions are strongly affected by the noise. When applying a low-pass filter, whose diameter is too large (800 pixels, not shown) to eliminate all the readout noise, the object is reconstructed but with a low quality. Applying a suitable low-pass filter (bottom line), with a diameter (400 pixels) small enough to eliminate most detection noise at high spatial frequencies, the object is then clearly reconstructed. To quantify the noise contribution, we can use the power SNR of the reconstructed image [11]:

$$SNR_r = \frac{\sum_{p,q}^{N_o} |o_{p,q}|^2}{N_o \langle |\sigma_{p,q}|^2 \rangle}$$

$SNR_r$  is the ratio between the signal energy and the noise energy presented in the reconstruction image. The signal energy  $\sum_{p,q}^{N_o} |o_{p,q}|^2$  is calculated by integrating the signal inside the object region  $N_o$  (blue square in Fig. 2), and the noise energy is the multiplication of  $N_o$  and its variance calculated in the region without signals (white square in Fig. 2). Here, the noise energy is the total contribution of photon noise and readout noise. Note that  $SNR_r$  only

accounts for the statistical noise and does not include the effects of resolution loss. In particular,  $SNR_r$  does not integrate the local modulations of the hologram, i.e., the fringes.

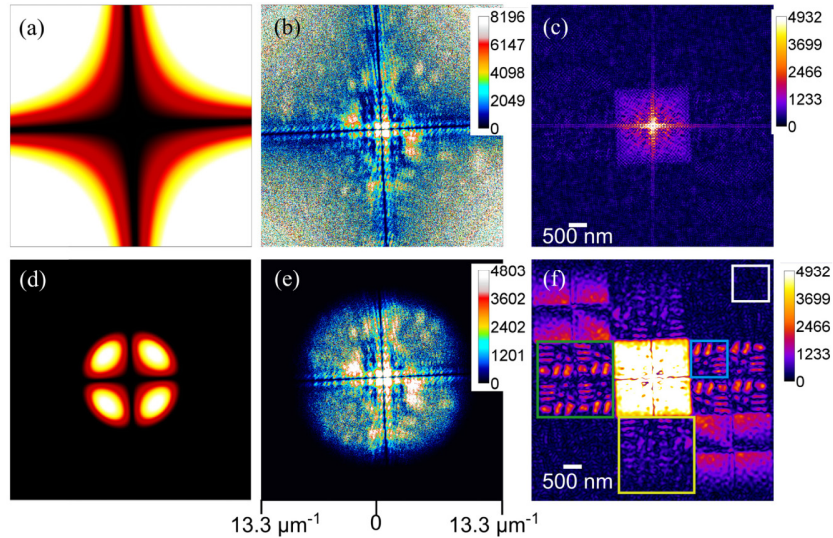


Fig. 2. Influence of the low-pass filter during the reconstruction process. (a,d) Multiplicative filter without (a) and with super Gaussian (order 3) low-pass filter (d: 400 pixels diameter). (b,e) Results of the multiplication (in Fourier space) of the measured diffraction pattern by the HERALDO multiplicative filter (a,d respectively). (c,f) Inverse Fourier transform of (b,e) respectively, giving the object reconstructions. While (c) is drowned in noise, the eight independent reconstructions in (f) are within the green and the yellow squares (each associated to a square reference, see text for details). The fact that the reconstructions in the yellow square are of low quality is due to a misalignment of the XUV beam (the corresponding reference was not sufficiently illuminated). Note that the multiplicative filter is slightly tilted to agree with the diffraction axis.

Figure 3 emphasizes the effect of the low-pass filter diameter. We used the diffraction pattern presented in Fig. 1 and varied the filter diameter from 900 to 200. While an image reconstruction can be obtained without the low-pass filter, Fig. 3 shows that optimizing its diameter leads to a better contrast. This is a direct consequence of the competition between different factors. First, the smaller the filter diameter is, the more the  $SNR_r$  at high spatial frequencies (region where the readout noise tends to dominate) is reduced. However, the measured contrast of the image, related to the resolution of the reconstructions, decreases for small values, meaning that the spatial resolution does not depend only on the  $SNR_r$ . Note that the smallest filter diameter imposes a resolution limit of 113 nm, close to the period of the three horizontal slits of the object (190 nm), which explains the loss of resolution when the filter diameter gets smaller.

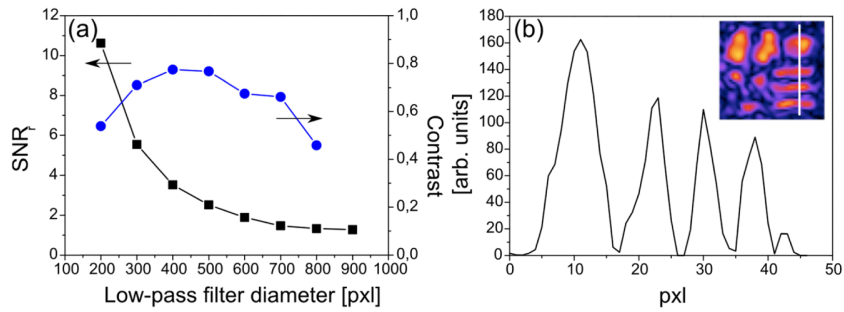


Fig. 3. (a) Evolution of the reconstruction  $SNR_r$  and contrast with the low-pass filter diameter. (b) Illustration contrast measurements. For each filter diameter, a lineout of the object reconstruction is taken as shown in the inset. The contrast is the mean value of the successive peaks contrasts. (b) was obtained for a filter diameter of 400 pixels.

#### 4. Effect of the readout frequency and hardware binning

We have shown that detector noises are a major constraint for low-signal experiments. However, reconstructions can be improved by applying either software or hardware procedures. In this section, we present experimental results and analysis of different signal to noise ratio improvement strategies during the detection stage. We first study the evolution of the noise with the CCD readout frequency. The diffraction pattern recorded from the object presented in Fig. 1(d) with 1 MHz and 100 kHz readout frequencies are shown in Fig. 4. The two diffraction patterns have equivalent signals ( $4.8 \times 10^6$  at 1 MHz and  $5 \times 10^6$  at 100 kHz). The other conditions are similar. After applying a super Gaussian filter, we clearly see the influence of readout noise in regions where the detected signal is low. This effect is reduced when working at 100 kHz. The background level, which can be adjusted by the CCD settings, is of around 30 counts in both cases. The noise level is 10 counts and 4 counts for 1 MHz and 100 kHz respectively. The  $SNR_r$  is increased by a factor of about 2 for 100 kHz reconstructions, and the resolution is clearly improved. Thanks to the reduced noise level, the reconstructions associated to the second reference, which are difficult to be resolved due to bad illumination of the reference, are better reconstructed (Figs. 4(a) and 4(b)). In this configuration, we can estimate the relative influence from the photon noise and the readout noise in the reconstruction. It turns out that, for a readout frequency of 1 MHz and a large filter diameter, the influence of the readout noise is larger than that of the photon noise. An optimal reconstruction should then find a compromise between image quality and resolution as illustrated in Fig. 3.

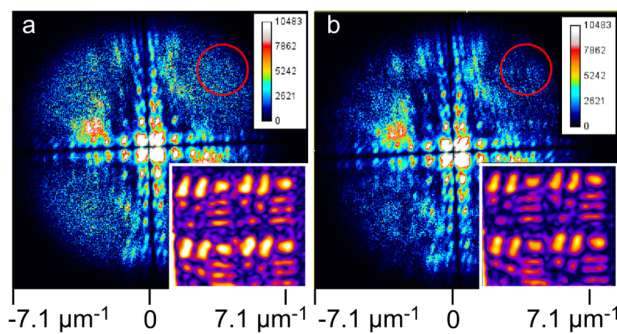


Fig. 4. Effect of the CCD readout frequency. (a,b) Single shot diffraction pattern from the object of Fig. 1(d) with a 1 MHz and 100 kHz respectively, after applying the HERALDO multiplicative and super Gaussian (320 pixels diameter) filters. In inset, the corresponding reconstruction from one of the reference.

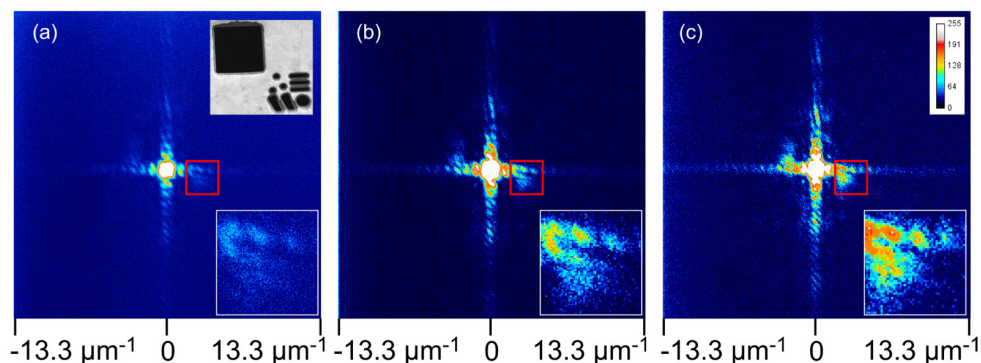


Fig. 5. Effect of hardware binning. Single shot diffraction pattern from the object in the inset (total size:  $2 \times 2 \mu\text{m}$ ) for  $1 \times 1$  (a),  $2 \times 2$  (b) and  $3 \times 3$  (c) hardware binning factor. The zoom-in insets correspond to the red square in each image and show the signal enhancement. The window size for each hologram is  $1200 \times 1200$ ,  $600 \times 600$  and  $467 \times 467$  pixels from a) to c) respectively. All the images are presented with the same color scale.

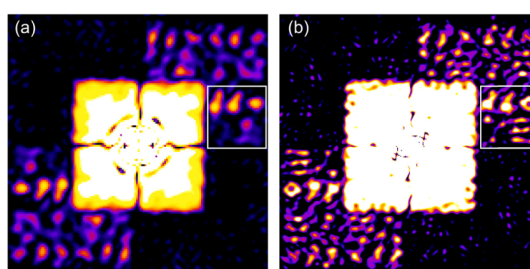


Fig. 6. HERALDO reconstruction of the holograms from in Fig. 5(a) and 5(c). The white squares emphasize the best reconstructed image from one of the square reference. The size of the squares is  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ .

Another possibility to increase the signal-to-noise ratio, when the oversampling is larger than required, is to use the hardware binning option to increase the effective pixel size. In the ideal case, the SNR enhancement is equal to the binning ratio. Figure 5 shows the diffraction patterns for  $1 \times 1$ ,  $2 \times 2$  and  $3 \times 3$  binning ratios of a test object (a grid similar to Fig. 3 with a single square reference that can provide three independent reconstructions). When no binning is applied, the weak diffraction signal associated with the object is buried in the noise (the white squares in the bottom right corners of Figs. 5(a)-5(c) show a zoom into the red squares of the diffraction pattern). When the binning factor is increased, more signal is extractable from the high frequencies content of the hologram, even when the number of photons on the detector is smaller. Keeping the same filter equivalent diameter for the three binning factors, the reconstruction  $SNR_r$  is improved by a factor three, and the resolution is improved in general. Figure 6 shows the object reconstruction from the holograms presented in Fig. 5 (with  $1 \times 1$  and  $3 \times 3$  binning factors) and using optimum algorithm parameters for each case (low pass filter diameter of 400 pixels and 200 pixels, respectively). The three horizontal bars and the three small holes that are not reconstructed when no binning is used are clearly visible with binning. We conclude that a proper hardware binning can clearly improve the reconstruction quality. However, there is a binning ratio limit given by the fact that the sampling ratio of the diffraction pattern has to be respected. The other advantage of hardware binning is to reduce the long readout time when using 100 kHz readout frequency.

## 5. Comparison between various reference shapes

Using optimized data collection and data analysis, we now compare HERALDO with slits and square references to Fourier Transform Holography. The point reference has a diameter of 110 nm giving a resolution limit of 80 nm. In the HERALDO procedure, a slit reference requires a 1D derivation step along the slit direction. The resolution is then limited by the transverse size of the slit, as it is not affected by the derivation. In the present case, the slit width is 115 nm, limiting the resolution to 82 nm. In the case of a square reference, a 2D derivation along the two edges orthogonal directions is needed. The resolution is not related to the size of the square but to quality of the etched corners. All the data are taken using a hardware binning of 3 and an acquisition frequency of 1 MHz. Figure 7 shows the test samples, the measured diffraction pattern and the reconstructed images. The total number of photons measured on the CCD in the point (FTH), slit and square (HERALDO) reference configurations is respectively  $3.3 \times 10^5$ ,  $1.1 \times 10^6$  and  $2.1 \times 10^6$ . We used different filter diameters in order to independently optimize each reconstruction. As shown in Fig. 7(b), the slit reference clearly gives the best result.

However, to get a more quantitative image reconstruction criterion, we plot the image profile along the direction of the object with the hole and three slits. It is shown in Fig. 8. The plot profiles confirm the qualitative observation: we get highest contrast in the image reconstruction for the slit reference (95%). The square references give a good contrast (80%) but the signal is lower in the three slits part of the image. The FTH point reference has even lower contrast (65%). This is mainly due to the fact that the hologram contains a lower total number of photons because of the limited size of the point reference compared to extended references. As a consequence, high frequency photons are in the background. Note that the derivative filter lowers the SNR<sub>r</sub> in the reconstruction by amplifying the high frequency noise from the hologram. It is even more pronounced in the case of a square reference as a second order polynomial is necessary. This is correlated to the fact that at low photon energy and low flux, the readout noise tends to dominate the far field diffraction pattern. The best compromise is found with a slit reference which geometry reduces the effect of noise amplification. However, the resolution given by a slit reference is limited by the slit width, while the resolution of the two-dimensional reference is theoretically non-limited.

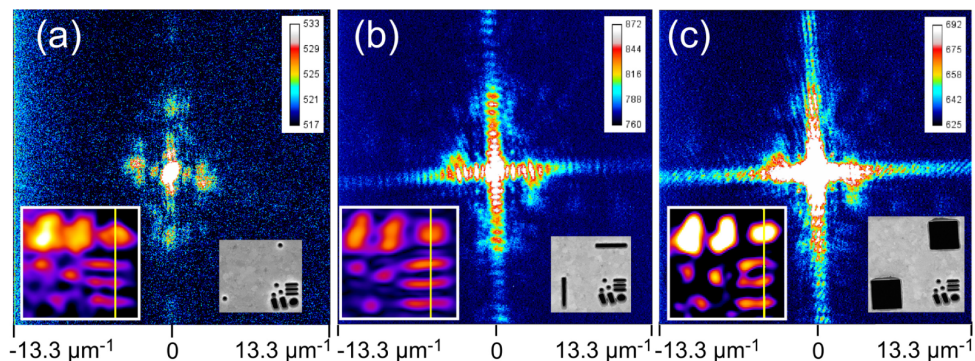


Fig. 7. Comparison between FTH (a), HERALDO with slit (b) and square (c) references. The diffraction images were acquired in single shot with a times 3 hardware binning factor. In insets, corresponding SEM images of the sample and references and image reconstructions (the size of the white box is  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ ). The filter parameters were optimized independently.

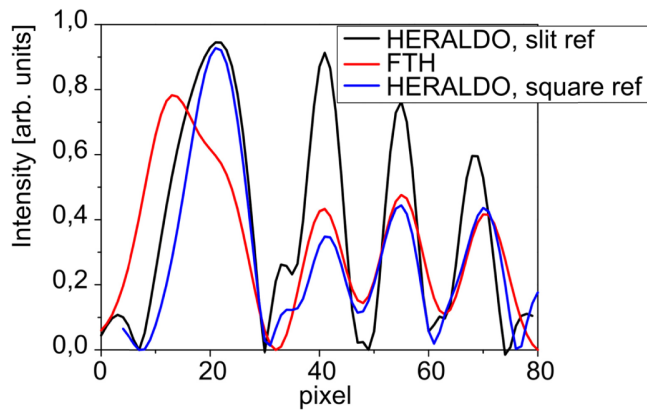


Fig. 8. Lineout of the three reconstructions from Fig. 7(a)-7(c) along the yellow lines.

## 6. Multiple-shot acquisition

As demonstrated in the previous examples, the reconstruction of the diffraction pattern is mainly limited by the amplified readout noise. When the sample is not damaged by the radiation or by the physical process under investigation, it is possible to increase the incident beam flux by shot accumulation. Figure 9 presents a comparison between single-shot and multiple-shot acquisition of the grid test object. The measured 5-shot diffraction pattern has  $2.9 \times 10^8$  photons and the single-shot acquisition has  $5.9 \times 10^7$  photons. Both holograms are recorded within a window size of  $1200 \times 1200$  non-binning pixels and the readout frequency is 1MHz. The single-shot acquisition has equivalent photon noise and readout noise contributions in its reconstruction, while the 5-shot reconstruction is mainly influenced by the photon noise. Table 1 compares the 1-shot and 5-shot best reconstructions extracted from Fig. 9. The  $SNR_r$  is increased from 2.95 to 4.5. The effect is particularly sensitive at high frequencies in the holograms which contributes to a better spatial resolution and image contrast. However, the disadvantage of the accumulation is the eventual blur of the diffraction pattern due to the instable beam position, and radiation damage for certain samples.

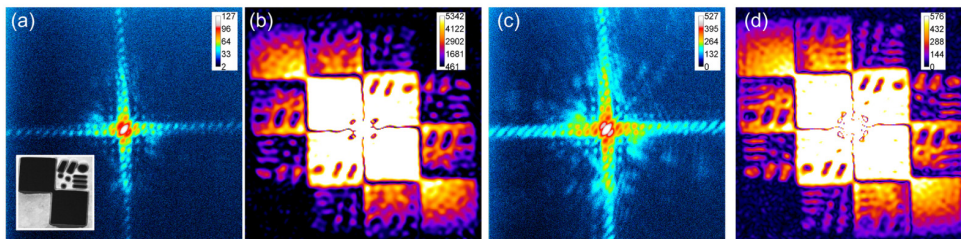


Fig. 9. Diffraction patterns (a,c) and best reconstructions (b,d) for respectively single-shot (a) and 5-shot (c) detections. The SEM image of the grid test object is shown as an inset, the size of the geometric pattern is  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ .

**Table 1. Analysis of the best reconstructions with 1-shot and 5-shot, respectively.**

	Filter diameter	$SNR_r$	Theoretical resolution	Reconstruction contrast
1 shot	600 pixels	2.95	75 nm	0.61
5 shots	800 pixels	4.51	56 nm	0.75

## 7. Conclusion

In summary, we have presented different strategies to increase the resolution and signal to noise in holography with extended reference when the signal is comparable to the detector

readout noise. The basic principle of HERALDO makes it robust to photon noise, the latter coming essentially from the large signal diffracted by the extended reference. The application of the differential operator compensates for the influence of the reference, including its noise. When the signal is low, i.e., in the single shot regime, various sources of noise, especially the readout noise, will affect the image reconstruction. Indeed, the differential operator in HERALDO acts as a high-pass filter amplifying significantly the noise at high frequency. This increases the proportion of wrong information in the reconstruction. Our finding is that the readout noise is the main obstacle in low signal regime. Strategies can be applied to reduce this noise. On the detection side, hardware binning and readout frequency tuning improve the signal-to-noise ratio of the diffraction pattern. Additionally, a posteriori image processing, like low pass filtering to reduce the readout noise contribution, increases the SNR of the reconstructed images.

It effectively compensates the amplification of the readout noise by the multiplicative filter introduced by the reconstruction procedure. We conclude that the reconstruction quality can be improved by the optimization of the detection stage and a carefully chosen low-pass filter diameter. The comparison between FTH, one-dimensional and two-dimensional HERALDO shows that the slit reference is the best holographic configuration for our harmonic beam. At the low flux and low photon energy used here, the noise amplification by the second order polynomial multiplicative step decreases more the spatial resolution than the lateral size of a slit.

Accumulation over multiple shots in a long acquisition time can also improve the diffracted signal, the image reconstruction quality and resolution. The signal is then photon noise limited. This imposes to work with high beam stability (in terms of pointing, intensity and phase spatial distribution, coherence properties, wavefront...) as it otherwise might reduce the visibility of the diffraction details. In addition, accumulation is not compatible with experiments that result in sample destruction if there is no possibility to provide multiple identical copies. Nevertheless, upcoming high repetition rate XUV sources are likely to meet the needed stability criteria in the near future and could contribute towards compact lensless X-ray imaging approaches.

### **Acknowledgments**

We acknowledge discussions with Manuel Guizar-Sicairos. We acknowledge support from the Saclay SLIC laser team. Membranes were processed thanks to the SEM/FIB facility of the CSNSM (Centre de Sciences Nucléaire et de Sciences de la Matière) Univ. Paris-Sud/CNRS/In2P3. We acknowledge financial support from the European Union through the EU-LASERLAB (SLIC 001682) and the VOXEL FET (665207), from the French ministry of research through the 2013 ANR grant "NanoImagine" (ANR-13-NANO-0005) and the joint ANR-DFG 2014 grant KO 3798/4-1 "IPEX", and from the C'NANO research program through the NanosciPiX grant, from the Swedish Research Council (Vetenskapsrådet), grant number 637-2013-439/D0043901 and the Swedish Foundation for International Cooperation in Research and Higher Education (STINT).

# 3D lensless stereo imaging using dual high harmonic beams

R. Cassin<sup>1</sup>, J. Duarte<sup>1</sup>, J. Huijts<sup>1</sup>, B. Iwan<sup>1</sup>, M. Kovacev<sup>2</sup>, M. Fajardo<sup>3</sup>, W. Boutu<sup>1</sup> and H. Merdji<sup>1</sup>

<sup>1</sup>LIDYL, CEA, CNRS, Université Paris-Saclay, CEA Saclay 91191 Gif-sur-Yvette, France.

<sup>2</sup>Leibniz Universität Hannover, Institut für Quantenoptik, Hannover, Germany

<sup>3</sup>Instituto de Plasmas e Fusão Nuclear, IST Lisboa, Portugal

**At a nanometre scale, the ability to gain insights into the 3D properties of artificial or biological systems is often critical. However, 3D structure is difficult to retrieve as most techniques provide only two-dimensional projections along the imaging axis. Nowadays, intense ultrashort XUV and X-ray pulses allow realizing nanometre scale studies<sup>1-5</sup> and ultrafast time resolved 2D movies<sup>6</sup>. However, this reality faces serious limitations in the extension to 3D. Here we demonstrate a new lensless imaging technique that enables a three-dimensional reconstruction from a single acquisition, by focusing two XUV coherent sub-beams on a nanoscale sample. The two diffraction patterns are recorded simultaneously on a single CCD camera and, after phase retrieval and image reconstruction, a quantitative 3D representation of the sample is achieved with about a  $100 \times 100 \times 100 \text{ nm}^3$  voxel size. The proposed method can be designed for any coherent X-ray beamline and we foresee applications using intense XFEL for single-shot 3D structural imaging of high-impact systems, ranging from biological samples to ultrafast physical processes.**

In nature, most objects possess complex three dimensional dynamical structures. The large development of ultrafast coherent X-ray sources allows 2D imaging transient processes on nanometer-femtosecond scale using lensless imaging techniques widely developed on small and large scale facilities<sup>1-4</sup>. Several techniques have been developed to achieve 3D imaging. The most widely used is tomography, in which the sample is rotated with respect to the illumination source, allowing for a full set of 2D projections that are recombined to form a 3D image<sup>7,8</sup>. However, such achievement requires at least several tens of angles, spanning almost 180 degrees. The overall dose is, therefore, considerably high, effectively damaging biological samples and reducing the spatial resolution<sup>9</sup>. It also limits time-resolved imaging to slow processes. To allow imaging extended objects, ptychotomography has been proposed<sup>10,11</sup>. While leading to impressive 3D resolutions, this technique is even more demanding, increasing the total acquisition time and the received dose<sup>12</sup>. Imaging before destruction of single



particles, as proposed on X-ray FEL, overcomes the radiation dose problem<sup>13</sup>. However, this technique requires a huge number of identical samples and generates an extremely large amount of data that need to be sorted, classified and combined to provide a full 3D set of consistent data<sup>14</sup>. There is an intense work on decreasing the number of orientations, an extreme solution being stereo-microscopy<sup>15</sup>. The main drawback about this technique is that the 3D effect is only physiological; therefore, it is not possible to extract any quantitative depth information. Moreover, the angle between the two views is small, limiting the gain in structural information. Several experiments have taken place at synchrotron beamlines using stereo imaging but none have achieved a 3D reconstruction stemming from a single shot pair of images<sup>16–18</sup>. In 2008, Schmidt *et al.*<sup>19</sup> proposed a theoretical study of a method dividing an X-ray FEL beam into two sub-beams using a crystal. In 2014, Gallagher-Jones *et al.*<sup>20</sup> probed the 3D structure of an RNAi microsp sponge by combining CDI reconstructions from single shot diffraction patterns from an X-ray FEL and from X-ray diffraction from synchrotron. However, this method requires several acquisitions to record multiple angles. Techniques to retrieve the 3D structure from a single diffraction pattern have also been proposed<sup>15, 25</sup>, but they work under limited circumstances and heavily rely on sample a priori knowledge<sup>21–23, 24</sup>. To date, no unique 3D reconstruction was shown using single-shot FEL data. Here, we report a new method based on quantitative disparity map reconstructions to perform single shot stereo lensless imaging. Instead of constructing a stereo anaglyph from the two different 2D projections, our approach uses the recombination of the two views in a 3D matrix. A quantitative depth information can be then retrieved by computing the disparity map. The experimental demonstration is performed using a soft X-ray optical setup to separate an HH beam into two coherent sub-beams illuminating a sample with a controllable angle Fig. (1). This is the first realization of a technique that enables 3D reconstructions with a single acquisition, reaching nanometre axial and transverse resolutions, on a femtosecond timescale without a priori knowledge of the sample. Among the main applications of this technique one can find the 3D study of dose-sensitive biological materials and ultrafast dynamical solid-state or plasma processes.

The new setup is presented in Fig. (1). Details on the HH beamline can be found in the Methods section. To generate the two sub-beams, we insert a grazing incidence prism between the off-axis parabola and the sample. Two silicon mirrors are adjusted such that the two beam foci overlap on the sample, with a controllable angle. Moreover, the setup enables a fine tuning of the time delay between the two pulses, and can alternatively be used to perform femtosecond time resolved X-ray-pump/X-ray-probe experiments. The two beams are diffracted by the sample and the far field patterns are recorded simultaneously on a single X-ray CCD camera. A typical set of stereo diffraction patterns set at an angle of 19° is shown in Fig. (2). They are slightly different which reflects the different observation angles. The overlap between the two diffraction patterns does not affect the data and the reconstruction. Indeed, in our case, the maximal useful diffraction angle is set by the signal-to-noise ratio to a smaller value. The number of useful diffracted photons on each diffraction pattern is roughly equivalent (few 10<sup>7</sup> photons per shot). Each diffraction pattern is isolated and inverted independently using a HIO “difference map” algorithm<sup>25</sup>. Figs. 3(a) and (b) show the amplitude reconstructions of, respectively, the bottom and top diffraction patterns, corresponding to the top and bottom views of the sample, as the average of several independent runs of the phase retrieval algorithm. The spatial resolution of each view is measured to be 90 nm,

which is sufficient to observe the smallest details of our sample. Differences between the two views, such as the position of the opaque cross inside the gap, can be seen. Indeed, no gap is visible between the lid and the hole at the bottom left and top right parts of Fig. 3(a).

The amplitude reconstructions allow gaining qualitative 2D structural and spatial information from two observation angles in one acquisition. However, it is possible to go further and gather some quantitative depth information from those images. Indeed, from the pair of reconstructed views of the sample one can compute the disparity map. Disparity refers to the distance between two corresponding points in the two images of a stereo pair. By matching every pixel from one image to the other, one can calculate the distance between them to produce an image where each pixel represents the disparity value for that pixel to the corresponding image. The disparity map can, then, be converted into depth information by a simple equation given the geometry of our setup:

$$z(P, \theta) = \frac{d(P)}{\tan\theta_1 + \tan\theta_2} \cdot (1)$$

In equation (1),  $z$  is the relative depth value of the point  $P$  of the object,  $d(P)$  is  $P$ 's disparity value and  $\theta_1, \theta_2$  are the angles between the plane perpendicular to the CCD and each stereo beam, respectively. From eq. (1) one can notice that the resolution on the depth axis increases with the angle between the two illuminating beams. However, there is an upper limit for this angle which depends on the samples structure, defined by a minimal presence of identical features in both views, mandatory in order to be able to calculate the disparity values. Figures 4(a), (d) and (b), (e) show the results of simulations. (a) and (b) present the disparity maps, while (d) and (e) show snapshots of the 3D reconstructions. On the disparity map of Fig. 4(a), which corresponds to a pure amplitude sample, some information is missing due to the lack of common details visible in both views. This brings on evident artefacts in the reconstruction (Fig. 4(d)), where the lid is linked to the membrane. In Fig. 4(b) and (e), on the other hand, the simulation was realized with a phase sample. Having two stereo views with information on the phase shifts unveils the existence of superimposed planes, which makes possible the retrieval of disparity values on structures which were before hidden behind the membrane. This allows a 3D rendering with fewer artefacts and more details on the structure of the sample. Figs. 4(c) and (f) show the experimental results from the image reconstructions of Figs. 3(a) and (b). While the cross shape of the hole in the membrane is clearly visible, the reduced signal quality makes the reconstruction of the 3D lid shape more difficult. Note that the cross presents the same non-real connections with the membrane as in the simulation of the pure amplitude sample. Our geometry leads to a voxel size of  $96 \times 96 \times 146 \text{ nm}^3$ . However, due to the reduced quality of the reconstruction, the actual depth resolution cannot be estimated.

In conclusion, we have demonstrated a method that enables quantitative 3D reconstructions of nanometer scale features of an object, in a single acquisition, using two coherent XUV sub-beams split by a versatile setup. The

angle between the two beams can easily be changed by tilting and moving the plane mirrors, allowing adapting the geometry to the sample under study. A larger stereo angle arrangement with a double CCD detector would allow increasing the numerical aperture of the whole system and thus the 3D spatial resolution. An additional advantage of this setup is the possibility to control the temporal overlap between the two beams, at a sub-femtosecond level, enabling for instance XUV pump – XUV probe experiments. Moreover, the splitting device can be adapted to shorter wavelength radiations using crystals, thus enabling 3D imaging of fragile biological material by drastically reducing the dose. Obtaining accurate and realistic disparity maps requires that the two stereo angles lead to a good overlap between the same details of the object. This can be achieved either by reducing the angles between the two views or by multiplexing not only two but several stereo views, easily achievable on FELs.

Due to the limited photon flux, this proof-of-technique was performed using long integration times and pure opaque amplitude objects. Nevertheless, this is not an intrinsic limitation, we demonstrate numerically that single shot phase object imaging is possible. Using higher photon flux, this will enable 3D imaging of dose sensitive biological samples. Thus, we expect this work will find applications in CDI, XFEL science, materials science, nanoscience and structural biology.

## Methods

**Experimental setup.** The experiment was performed at the SLIC laser centre in CEA Saclay. The high order harmonic beam setup is described in detail elsewhere <sup>4</sup>. Briefly, we generate the harmonic beam using an amplified Ti:Sa laser system, which delivers 30 mJ, 60 fs pulses, using a loose focusing geometry with a focal length lens of 5.65 m. The XUV beam propagates collinearly with the driving IR laser, which is attenuated using IR antireflective silica plates in grazing incidence. After optimization, we reach  $4 \cdot 10^9$  photons/pulse for harmonic 33 in neon with a spectral bandwidth  $\lambda/\Delta\lambda = 150$  and 20 fs pulse duration. A 22.5° off-axis-parabola of  $f = 20$  cm focal length focuses the harmonic beam to a  $5 \times 7 \mu\text{m}^2$  focal spot (FWHM) and selects harmonic 33 ( $\lambda = 24$  nm), thanks to a multilayer coating deposited on its surface. The sample is positioned at the parabola's focus, and the CCD detector ( $2048 \times 2048$  pixels, pixel size  $p = 13.5 \mu\text{m}$ ) is located  $z = 26$  mm away. Using the sharp edge of the prism, the HH beam is split into two half-beams. Each one is reflected back towards the sample by a pure silicon plate. The prism and silicon plates setup (Fig. 1) is inserted after the parabola in order to increase the angle between the two sub-beams, otherwise limited by the parabola aperture. The focus of each stereo spot then enlarged (compared to the direct focusing) to  $10 \times 7 \mu\text{m}^2$ . Note that the whole setup could be placed before the focusing optics, provided that the angle between the two focused beams is large enough. The angle between the incident and reflected beams on the off-axis parabola restricts the overall free space to insert the device, which was therefore installed vertically. The positions and tilts of the two plates are remotely controlled by vacuum compatible motors, offering the possibility to vary the angle between the two beams. The XUV transmission of the apparatus was estimated to about 75% at a 24 nm wavelength.

**Sample preparation.** The sample (Fig. 3) is a  $6.9 \times 6.1 \mu\text{m}^2$  cross, drilled on a membrane - 75 nm of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  with a 150 nm Au layer and 4 nm of Cr for adhesion -, using a focused ion beam. We first patterned the outer edges of the cross. Electrostatic forces prevented the lid from falling and “attached” it permanently to the membrane at two opposite contact points.

**Data acquisition and reconstruction.** In order to compensate for the limited photon flux and to increase the dynamics of the detector, we use high dynamic range techniques. Therefore, diffraction patterns were recorded with integration times of 30 and 140 seconds and recombined. We use a Gaussian filter ( $\sigma=2$ ) on the edge of the large-integration time region of interest to stitch it smoothly to the low-range diffraction pattern. Then, we crop any part where there is an overlap between the two diffraction patterns, isolate and reconstruct them using a HIO “difference map” algorithm. We launch 45 independent runs of the algorithm and select the reconstructions that minimize the error criteria. In our case the algorithm converges after roughly a hundred iterations. An image registration algorithm<sup>26</sup> is then used to superpose the best reconstructions and average them.

**3D reconstruction.** The stereo technique is based on pixel matching. To avoid pixel matching errors stemming from algorithm-related artefacts or some experimental conditions such as the non-uniform beam profile and partial coherence, the 2D images resultant from the CDI reconstruction are first converted into binary maps. The pre-processing is made as follows. First, the images are resized by a factor 4, with a *bicubic* interpolation in the intermediate pixels<sup>27</sup>. A Gaussian low pass filter is then applied to both images to reduce the effect of the noise ( $\sigma = 1.9$ ). After filtering, the images are turned binary by defining suited binary thresholds (threshold values in a 0-to-1 scale: 0.40 and 0.25, in left and right images, respectively). Finally, to avoid errors in the binary conversion, the isolated regions constituted by less than 400 aggregated pixels, with no correspondence in the pair image, are removed.

Before retrieving the depth information, a rectification step is necessary<sup>28</sup>. This step aims to correct the tilt of the CCD with respect to the baseline considered, allowing, at the same time, for an accurate identification of the centres of the stereo images. Note that this last issue arises from the uncertainties of the CDI algorithm, which reconstructs the sample in different positions from run to run. Rectifying a pair of stereo images requires a set of point correspondences between the two views, which is often accomplished by combining feature detection and feature matching algorithms. For an extremely symmetric binary object, however, feature-matching algorithms retrieve ambiguous results, hence a manual choice of matching points is applied in our case. In the images of Fig. 3 (c) and (d), thirteen edge points are manually selected. Using all the selected points, the fundamental matrix between both views is computed, employing the Normalized Eight-Point Algorithm. The images are then re-projected, in order to make all the matching points lay in the same horizontal lines<sup>28</sup>.

After proper rectification, disparity calculations are applied. The disparity maps are calculated employing a simple block matching routine. The images are divided into blocks of  $3 \times 3$  pixels and, for each block of a picture, a scan is made over blocks of the same size in the pair picture. The scan is allowed 65 pixels to the left (negative disparity) and the same amount to the right (positive disparity) of the block central pixel position. A simple sum of absolute differences (SAD), added to a less weighted pixel proximity term, is employed as a cost function, to

select the best match from the set of candidate blocks<sup>29</sup>. Note that the disparity values are only retrieved over the edges of our 3D structure since it is ambiguous to find matching blocks in the uniform black/white regions. Using this method, two disparity maps are generated, representing the disparity of the left image with respect to the right one (left map) and vice versa (right map, Fig. 4 (a), (b) and (c)).

The 3D information on our sample is extracted from the disparity maps by employing equation (1), deduced from our camera geometry. For matching the information of the two disparities, a coordinate correction is required. Hence, the  $x_1$  and  $x_2$  coordinates of the left and right disparity maps, respectively, are converted to the object coordinate  $x$ . This conversion is obtained from the relations  $x(x_1, z, \theta_1) = x_1 - z \tan \theta_1$  (on the left map) and  $x(x_2, z, \theta_2) = x_2 - z \tan \theta_2$  (right map).

After retrieving all the coordinates of the points in the 3D space, the stereo consistency of the two disparity maps is evaluated. In this step, the 3D points extracted from each disparity map whose coordinates don't have a match for the second map are discarded.

From the remaining points a point cloud is created and the outlier points are removed. A point is considered an outlier if the average distance to its  $k$ -nearest neighbours is above a specified threshold  $t$ . For both experimental and simulation data, the  $k$  value is defined as 80 points while  $t$  is 0.1, the latter specifying the number of standard deviations away from the estimated mean distance.

At this moment, the 3D shape of the sample is already visible, with the edged structures completely reconstructed. Next we apply a process in which the information achieved from the 3D reconstruction and the direct stereo views are crossed to achieve the final 3D representation of the sample.

By fitting a 3D plane in the cross-shape cut of the membrane, a 3D plane surface is computed and a square frame with three points of length is added to the extremities of the point cloud. A 3D scattered interpolation is, then, realized over the resultant point cloud to infer the intermediate values. Crossing the information on the white regions of our stereo views (object transmission function equal to one), an extra point cloud is computed, composed by stacks of planar points, which we know to correspond to the empty volume of our sample. Excluding from the interpolated 3D mesh the neighbours (0,2 micrometres precision) of the empty region cloud, we reach a final 3D reconstruction of the sample (Fig. 4 (f)).

**Stereo simulation of an amplitude sample.** To simulate the stereo pair, a 3D object is drawn in AUTOCAD, inspired by the experimental sample. Two stereo views are captured by a rotation of the sample, with a total separation angle of 12°.

The process of reconstructing the 3D from the two simulated stereo views follows the same lines as for the experimental data, differing only in the process of removing the outlier points. Due to the higher quality of the stereo views, it is immediately possible to identify the existence of two planes in the disparity-resultant point cloud, each holding a respective cross shape. The removal of the outlier points is, therefore, achieved directly from the fitting of two planes in the point cloud data Fig. 4 (a,d).

**Simulation of a phase sample.** For this part, the stereo views are achieved similarly to the simulation with an amplitude sample. To simulate the different phase shifts, distinct absorption values are attributed to the central cross and to the membrane, resulting in stereo views composed by different grey tones.

Besides the two disparity maps obtained from the direct rectified views, two more are calculated. These intend to target specifically the edge areas, allowing for pixel matches in regions which show superposition of different structures in different views - note that as the views are acquired in the transmission regime, one same feature can be imaged in a completely different colour tone in two views. For the purpose, a directional gradient along the *x*-axis – direction of disparities - is applied to the rectified stereo views and two new disparity maps are extracted from the resultant images.

After discarding the inconsistent points between the right and left disparity maps for both cases, the resultant point clouds are merged. Note that, as well, the 3D will be obtained over the edged structures of the sample, which are the only areas allowing non-ambiguous depth values.

The next step consists in crossing the information of the 3D point cloud and the direct phase images. Due to the reduced number of views and the existence of superimposed structures, it is necessary to identify isolated sample components and address each component individually. For this step, image segmentation tools and gradient calculations can be used to automatize the process. After identifying the structures, one should fit surfaces in each structure, according with its phase variations and use these surfaces to detect the outlier points. If necessary, some surface points can be added in the active point cloud to help with the 3D interpolation. Note that if the 3D interpolation is made directly for the full point cloud, one can have wrong connections between structures, due to the lack of information in the internal regions.

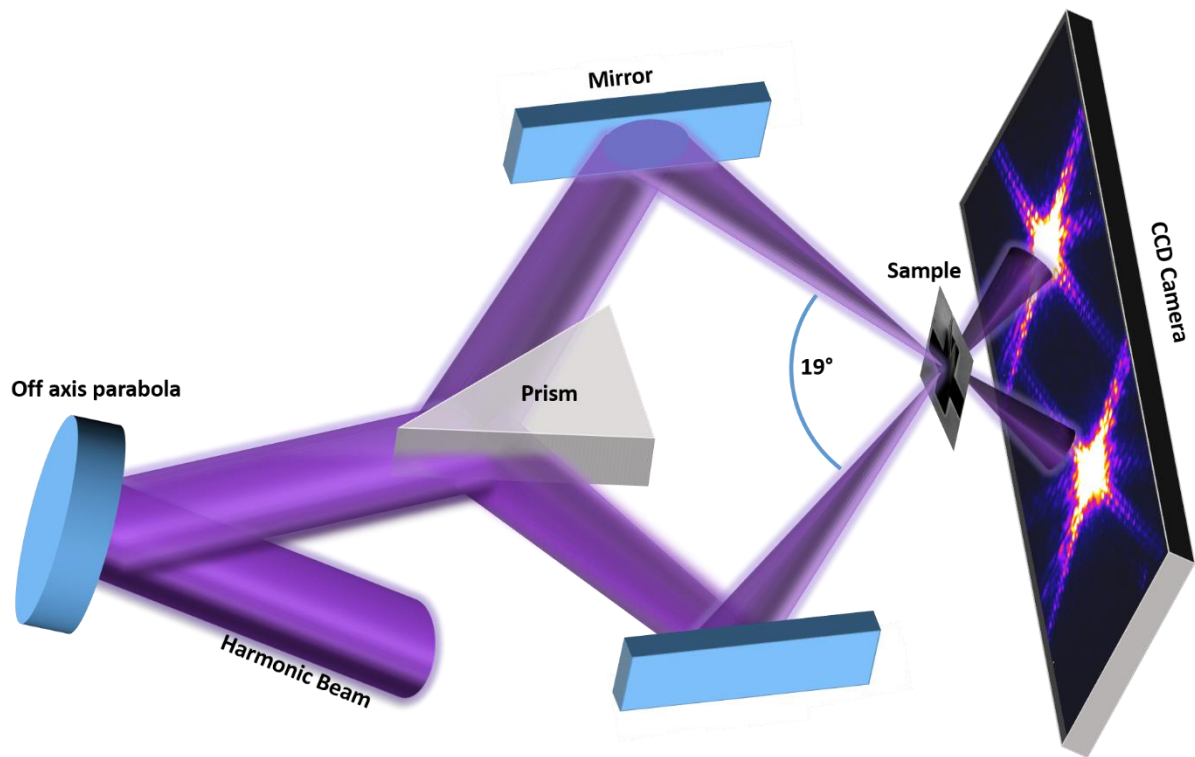
In the specific case of the simulated sample, since the phase is flat, two planes are fitted to the achieved point cloud. Two new point clouds are then generated constituted by the inlier points of each fitted plane. Follows the 3D interpolation and removal of the empty volumes. These steps follow the same lines of the experimental and amplitude simulation cases, except that they are made for each plane/component individually.

- 1 Miao J, Charalambous P, Kirz J, Sayre D. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens. *Nature* 1999; **400**: 342.
- 2 Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, Asano Y, Azumi N, Bizen T *et al.* A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-angstrom region. *Nat Photonics* 2012; **6**: 540–544.
- 3 Sandberg RL, Song C, Wachulak PW, Raymondson DA, Paul A, Amirbekian B *et al.* High numerical aperture tabletop soft x-ray diffraction microscopy with 70-nm resolution. *Proc Natl Acad Sci* 2008; **105**: 24–27.
- 4 Ravasio A, Gauthier D, Maia FRNC, Billon M, Caumes J-P, Garzella D *et al.* Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser-Harmonics Source. *Phys Rev Lett* 2009; **103**: 028104.

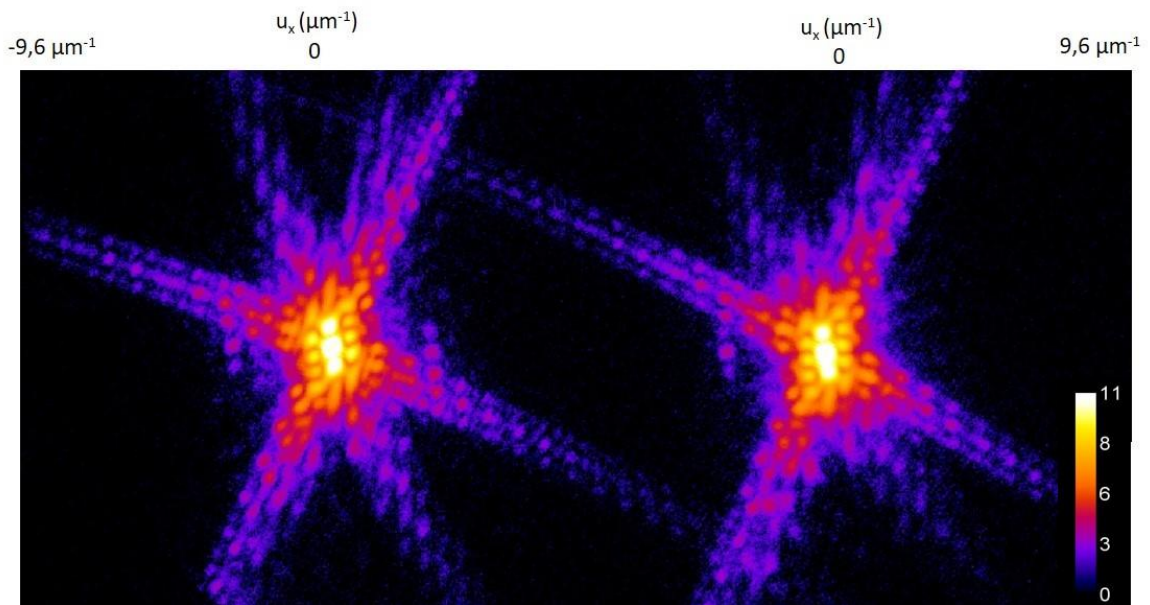
- 5 Zürich M, Rothhardt J, Hädrich S, Demmler S, Krebs M, Limpert J *et al.* Real-time and Sub-wavelength Ultrafast Coherent Diffraction Imaging in the Extreme Ultraviolet. *Sci Rep* 2014; **4**: srep07356.
- 6 Vodungbo B, Gautier J, Lambert G, Sardinha AB, Lozano M, Sebban S *et al.* Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network. *Nat Commun* 2012; **3**: 999.
- 7 Nishino Y, Takahashi Y, Imamoto N, Ishikawa T, Maeshima K. Three-Dimensional Visualization of a Human Chromosome Using Coherent X-Ray Diffraction. *Phys Rev Lett* 2009; **102**: 018101.
- 8 Takahashi Y, Zettsu N, Nishino Y, Tsutsumi R, Matsubara E, Ishikawa T *et al.* Three-Dimensional Electron Density Mapping of Shape-Controlled Nanoparticle by Focused Hard X-ray Diffraction Microscopy. *Nano Lett* 2010; **10**: 1922–1926.
- 9 Howells MR, Beetz T, Chapman HN, Cui C, Holton J, Jacobsen C *et al.* An assessment of the resolution limitation due to radiation-damage in x-ray diffraction microscopy. *J Electron Spectrosc Relat Phenom* 2009; **170**: 4–12.
- 10 Thibault P, Dierolf M, Menzel A, Bunk O, David C, Pfeiffer F. High-Resolution Scanning X-ray Diffraction Microscopy. *Science* 2008; **321**: 379–382.
- 11 Dierolf M, Menzel A, Thibault P, Schneider P, Kewish CM, Wepf R *et al.* Ptychographic X-ray computed tomography at the nanoscale. *Nature* 2010; **467**: 436.
- 12 Holler M, Raabe J, Diaz A, Guizar-Sicairos M, Quitmann C, Menzel A *et al.* An instrument for 3D x-ray nano-imaging. *Rev Sci Instrum* 2012; **83**: 073703.
- 13 Chapman HN, Fromme P, Barty A, White TA, Kirian RA, Aquila A *et al.* Femtosecond X-ray protein nanocrystallography. *Nature* 2011; **470**: 73–77.
- 14 Ekeberg T, Svenda M, Abergel C, Maia FRNC, Seltzer V, Claverie J-M *et al.* Three-Dimensional Reconstruction of the Giant Mimivirus Particle with an X-Ray Free-Electron Laser. *Phys Rev Lett* 2015; **114**: 098102.
- 15 Andruleit H, Geisen M, Stäger S. Stereo-microscopy of coccolithophores-modern applications for imaging and morphological analysis. *J Nannoplankton Res* 2006; **28**: 1–16.
- 16 Hoshino M, Uesugi K, Pearson J, Sonobe T, Shirai M, Yagi N. Development of an X-ray real-time stereo imaging technique using synchrotron radiation. *J Synchrotron Radiat* 2011; **18**: 569–574.
- 17 Gleber S-C, Thieme J, Chao W, Fischer P. Stereo soft X-ray microscopy and elemental mapping of haematite and clay suspensions. *J Microsc* 2009; **235**: 199–208.

- 18 Miao J, Ishikawa T, Johnson B, Anderson EH, Lai B, Hodgson KO. High Resolution 3D X-Ray Diffraction Microscopy. *Phys Rev Lett* 2002; **89**: 088303.
- 19 Schmidt KE, Spence JCH, Weierstall U, Kirian R, Wang X, Starodub D *et al.* Tomographic femtosecond X-ray diffractive imaging. *Phys Rev Lett* 2008; **101**: 115507.
- 20 Gallagher-Jones M, Bessho Y, Kim S, Park J, Kim S, Nam D *et al.* Macromolecular structures probed by combining single-shot free-electron laser diffraction with synchrotron coherent X-ray imaging. *Nat Commun* 2014; **5**: 3798.
- 21 Wei H. Fundamental limits of 'ptychography' due to dimensional deficiency. *Nature* 2011; **480**: E1–E1.
- 22 Wang G, Yu H, Cong W, Katsevich A. Non-uniqueness and instability of 'ptychography'. *Nature* 2011; **480**: E2.
- 23 Chen C-C, Jiang H, Rong L, Salha S, Xu R, Mason TG *et al.* Three-dimensional imaging of a phase object from a single sample orientation using an optical laser. *Phys Rev B* 2011; **84**: 224104.
- 24 Xu R, Jiang H, Song C, Rodriguez JA, Huang Z, Chen C-C *et al.* Single-shot three-dimensional structure determination of nanocrystals with femtosecond X-ray free-electron laser pulses. 2014; **5**: 4061.
- 25 Elser V. Phase retrieval by iterated projections. *JOSA A* 2003; **20**: 40–55.
- 26 Guizar-Sicairos M, Thurman ST, Fienup JR. Efficient subpixel image registration algorithms. *Opt Lett* 2008; **33**: 156–158.
- 27 Keys R. Cubic convolution interpolation for digital image processing. *IEEE Trans Acoust Speech Signal Process* 1981; **29**: 1153–1160.
- 28 Papadimitriou DV, Dennis TJ. Epipolar line estimation and rectification for stereo image pairs. *IEEE Trans Image Process* 1996; **5**: 672–676.
- 29 Kanbara M, Okuma T, Takemura H, Yokoya N. A stereoscopic video see-through augmented reality system based on real-time vision-based registration. In: *Virtual Reality, 2000. Proceedings. IEEE*. IEEE, 2000, pp 255–262.

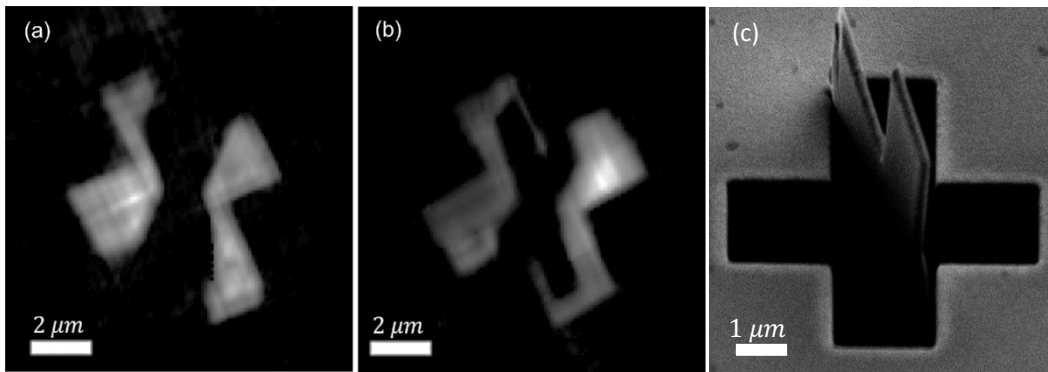




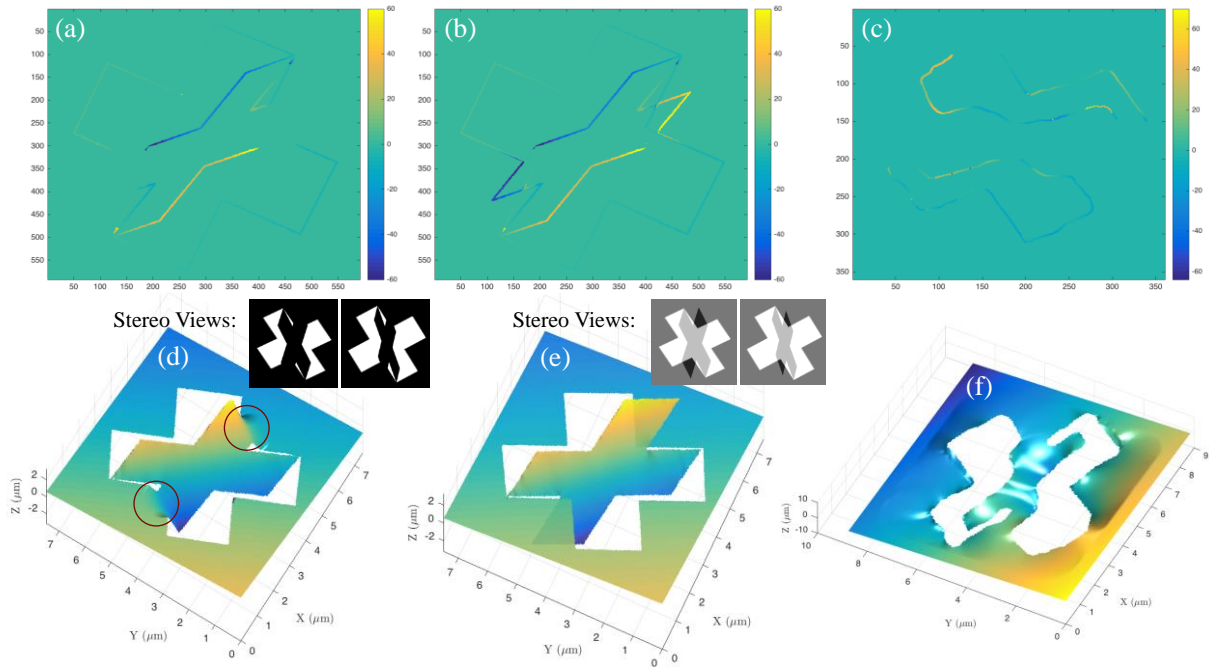
**Figure 1** | Experimental setup for 3D stereo imaging. A multilayer coated off axis parabola selects harmonic 33 from the laser ( $\lambda=24$  nm) and focuses the beam on the sample. A grazing incident prism inserted after the focusing optic splits the beam in two. Controllable silicon plates are used to reflect each sub-beam onto the sample. A single CCD camera is used to simultaneously record the two diffraction patterns.



**Figure 2 | Dual diffraction patterns,** recorded simultaneously on a single XUV CCD (the CCD image is rotated by  $90^\circ$ ), shown on a logarithmic scale. The left (right) diffraction pattern corresponds to the beam coming on the sample from the top (bottom). The diffraction pattern extends well with a slight overlap at high frequency that can be numerically corrected. This effect could be circumvented by increasing the stereo angle and using an arrangement with two adjacent CCD cameras or a large area PN-CCD detector. Furthermore, the overlap between the two diffraction patterns is in the low signal part of the patterns, therefore not limiting the maximal useful diffraction angle.



**Figure 3 | 2D amplitude reconstructions of the sample from the two stereo views.** (a) and (b) show the reconstructions corresponding to the top and bottom views of the sample. They are obtained as the coherent averages of, respectively, 45 best reconstructions from independent runs of the CDI algorithm. Each view reaches a spatial resolution of 90 nm which allows to observe details of our nanoscale sample. (c) presents the SEM (scanning electron microscopy) image of the sample observed at a 45° angle.



**Figure 4 | Disparity maps and 3D reconstructions of the sample.** (a),(b),(c): Disparity maps obtained from the correspondence between the right and left views, in this order - bottom and top for the experimental case. The colour scale is defined in pixels. (d),(e),(f): 3D reconstructions of the sample. While (a) and (d) correspond to a numerical simulation performed with an amplitude 3D sample in the experimental geometry, (b) and (e) show the same results assuming a phase sample - different refractive index materials for the cross and the membrane with a cross-shaped cut. (c) and (f) present the experimental disparity map and perspective reconstruction from the images shown in Fig. 3(c) and (d). Note that the color scale represents the depth value  $z$ , for better visualization.

**Titre :** Imagerie nanométrique ultra-rapide par diffraction cohérente de rayonnement XUV produit par la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

**Résumé :** L'objectif de ce mémoire est de développer de nouvelles méthodes d'imagerie sans lentille en simple tir 2D et 3D avec des sources harmoniques XUV. Un intérêt particulier est porté aux techniques d'imageries permettant l'imagerie des objets biologiques et de phase. Dans un premier temps, on introduit la théorie de l'imagerie dans lentille et on détaille les méthodes utilisées au cours de cette thèse pour reconstruire le champ diffracté par l'objet que l'on souhaite imager. Les techniques d'imageries sont séparées en deux catégories : itératifs et holographiques. On discute des conditions expérimentales nécessaires à la reconstruction de l'image de l'objet et on compare les avantages respectifs des deux types de méthodes. Puis, on détaille les aspects expérimentaux du faisceau XUV obtenu par HHG et on couvre brièvement la théorie associée à ce processus. La section suivante traite des paramètres et des techniques de traitement des données influant sur la qualité de l'image reconstruite en imagerie sans lentille. On montre comment améliorer les reconstructions HERALDO dans un régime de faible flux de photons. On présente ensuite les résultats d'une technique de caractérisation complète de la cohérence spatiale d'un faisceau XUV en simple tir. Cette dernière est un paramètre critique de l'imagerie sans lentille. A l'aide d'un tableau non redondant de références ponctuelles, on mesure la cohérence spatiale pour chaque distance entre les références, sans aucune mesure du profil spatial du faisceau. On montre que la distribution de la cohérence est gaussienne et que son diamètre dépend des conditions de génération du faisceau harmonique. On étudie aussi quantitativement comment l'accumulation de plusieurs tirs de diffraction diminue la cohérence apparente du faisceau. Une expérience d'imagerie d'objets de phase avec une source harmonique pouvant être appliquée à des objets biologiques est ensuite présentée. A notre connaissance c'est la première reconstruction par méthode CDI d'objets de phase avec une source harmonique. La suite du manuscrit présente les résultats de deux expériences visant à réaliser de l'imagerie 3D à l'échelle nanométrique avec une source harmonique. Tout d'abord, on présente une technique d'imagerie 3D simple tir. C'est la première expérience permettant une reconstruction 3D à partir d'une seule acquisition, avec une résolution spatiale nanométrique et une résolution temporelle femtoseconde, sans utiliser de connaissances a priori sur l'objet étudié. Cette technique possède un vaste spectre d'application, particulièrement pour l'étude structurale d'échantillons biologiques sensibles aux dégâts d'irradiation. De plus, cette technique peut être facilement applicable à des FELs et des synchrotrons pour obtenir de meilleures résolutions. La deuxième expérience d'imagerie 3D est une preuve de concept validant la faisabilité de la cryptotomographie avec une source harmonique. Pour reconstruire le volume 3D de l'échantillon, la cryptotomographie utilise des figures de diffraction qui sont acquises pour des orientations de l'échantillon inconnues. Le régime de faible flux dans lequel on se place nous permet de simuler les paramètres d'une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau. On conclut que, le niveau du signal de diffraction est suffisant pour pouvoir identifier l'orientation de l'objet à partir des figures de diffraction enregistrées, dans des conditions expérimentales optimisées. Ainsi, avec suffisamment de figures de diffraction enregistrées et assez d'orientations de l'objet, on peut reconstruire le volume 3D de l'objet. Ces résultats impliquent qu'une expérience de cryptotomographie d'objets biologiques avec une source harmonique fonctionnant dans la fenêtre de l'eau serait réalisable.

**Title :** Ultrafast lensless imaging using coherent diffraction of XUV produced by high harmonic generation.

**Abstract :** The aim of this dissertation is to develop new lensless single shot imaging technique in 2D and 3D with XUV harmonic sources which can be applied to study biological objects and phase objects. Firstly, we introduce the theory underlying lensless imaging techniques and we describe the methods used during this thesis to reconstruct the light field diffracted by the studied object. The imaging techniques are split in two categories : iterative and holographic. The iterative methods reconstruct the phase of the diffracted wave front using constraints in the Fourier space and the real space. With the holographic techniques, the phase is encoded directly in the interference fringes between the reference and the object within the diffraction pattern. We discuss the experimental parameters required to achieve an image reconstruction and we compare the respective advantages of the two types of method. Then, we describe the experimental parameters of the XUV beam produced by high harmonic generation (HHG) and we briefly explain the theory of the HHG. The next section discusses the parameters the quality of the reconstructed image. We show how to improve the resolution and the signal to noise ratio using the HERALDO technique in the low flux regime. We then show the result of a new technique for the single shot characterization of the spatial coherence of XUV beams. Indeed, the spatial coherence is a critical parameter for coherent diffractive imaging techniques. Using a NRA of reference holes, we measure the spatial coherence for each distance between each pair of holes, without the knowledge of the intensity distribution on the sample. We show that the spatial coherence has a gaussian distribution and that its diameter varies according to the generation parameters of the harmonic beam. We also study quantitatively the effect of multi-shots accumulation of the diffraction pattern on the apparent coherence of the beam. We also show the result of phase object imaging using coherent diffractive imaging with a harmonic source. To our knowledge, this is the first time such result has been achieved. The rest of the dissertation present new lensless imaging 3D techniques using harmonic sources. The first of the last two experiments shown is a lensless single shot stereo 3D technique. It is the first one allowing a 3D reconstruction from a single acquisition, with a nanometer spatial resolution and a femtosecond temporal resolution, without using *a priori* knowledge of the sample studied. This method has a vast spectrum of application and is particularly interesting for the structural study of biological sample sensitive to radiation damage and for the study of non-reversible dynamical phenomena in 3D. Furthermore, this can easily be implemented in FELs and synchrotrons to reach even better spatial resolution. The second 3D experiment shown in this thesis is a proof of concept of cryptotomography using a high harmonic source in a low flux regime. To reconstruct the 3D volume of the sample, cryptotomography uses diffraction pattern acquired for unknown sample orientations and therefore non-classified. The low flux regime used here simulate the flux of a harmonic source generated in the water window. We conclude from this experiment that, with the proper experimental conditions, the diffraction signal is sufficient to allow the classification by orientation of the diffraction patterns. With enough diffraction pattern and angles of the sample recorded, we can achieve a 3D reconstruction of the sample. This result implies that the cryptotomography of biological objects using a water window harmonic source is possible.