



Detecteurs d'images x grand champ : applications a la microscopie x de contact et a la microanalyse d'absorption avec le rayonnement synchrotron.

Emmanuel Bigler

► To cite this version:

Emmanuel Bigler. Detecteurs d'images x grand champ : applications a la microscopie x de contact et a la microanalyse d'absorption avec le rayonnement synchrotron.. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1986. Français. NNT : . pastel-00713898

HAL Id: pastel-00713898

<https://pastel.hal.science/pastel-00713898>

Submitted on 3 Jul 2012

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.

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

T H E S E

présentée

Pour obtenir

LeTITRE..... de DOCTEUR EN SCIENCES
de l'Université de Paris XI - ORSAY
Spécialité : PHYSIQUE (Arrêté du 5.7.1984)
PAR

Emmanuel BIGLER

SUJET : DETECTEURS D'IMAGES X GRAND CHAMP : APPLICATIONS A LA MICROSCOPIE X
DE CONTACT ET A LA MICROANALYSE D'ABSORPTION AVEC LE RAYONNEMENT
SYNCHROTRON

soutenue le10 juin 1986..... devant la Commission d'examen

MM.S. LOWENTHAL..... Président

.....J.J. GAGNEFAIN.....

.....S. HUARD..... Rapporteur

.....Y. PETROFF..... Rapporteur

.....C. PIAGET.....

.....F. POLACK.....

LARGE FIELD X-RAY IMAGES DETECTORS :
APPLICATIONS TO X-RAY CONTACT MICROSCOPY AND ABSORPTION MICRO-ANALYSIS
WITH SYNCHROTRON RADIATION

Abstract

This thesis presents an application of synchrotron radiation (ORSAY/DCI storage ring) to X-ray contact microscopy and X-ray absorption chemical micro-analysis near an absorption edge.

In a first part, high resolution photographic plates are used as images detectors. Two microradiographs of the sample are recorded at two different X-ray wavelengths chosen on each side of an absorption edge of the analysed element. The images are digitalised with a microdensitometer. Subsequent computer processing gives analytical charts of this element showing 5 to 10 μm spatial resolution and 2-3 cm^2 field.

The second part presents an X-ray image detector based on guided scintillation. The detector is designed to improve the limited performances of photographic detection for high flux quantitative X-ray image detection over keV. X-ray to visible image conversion is performed in an array of optical fibers with a scintillating liquid core. A spatial resolution close to the pitch of the fiber array (10 μm) is experimentally obtained. Applications of the detector to X-ray microscopy, X-ray micro-analysis and medical imaging with synchrotron radiation are described.

Key-words

X Rays, Synchrotron Radiation
Microradiography, X-ray absorption (edge), Digital image processing,
X-ray imaging (Converters), Scintillating optical fibers.

"... ne penses-tu pas qu'en nommant ce qu'ils verraient, ils croiraient nommer des objets réels ? ...

... ces individus n'imagineraient pas qu'il pût y avoir d'autre réalité authentique que les ombres des objets ..."

Platon, La République, Livre VII

Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur le Professeur LOWENTHAL qui a orienté et dirigé l'ensemble de mes recherches au sein de son équipe de l'Institut d'Optique. Les conseils qu'il m'a donnés tout au long de ce travail m'ont toujours été précieux.

Je suis très reconnaissant à Monsieur J.-J. GAGNEPAIN, Directeur du L.P.M.O., d'avoir bien voulu participer à ce Jury de thèse, et je le remercie de l'accueil chaleureux qui m'a été réservé dans son laboratoire pour mes nouvelles fonctions.

Je remercie Monsieur S. HUARD, Maître de Conférences à Orsay, d'avoir bien voulu examiner ce mémoire avec l'oeil critique du spécialiste de l'optique.

Je remercie également Monsieur Y. PETROFF, Directeur du L.U.R.E., de l'intérêt qu'il a témoigné à ce travail d'imagerie avec le rayonnement synchrotron, et lui suis très reconnaissant d'avoir accepté d'être rapporteur de cette thèse.

J'exprime tous mes remerciements à Monsieur C. PIAGET, Chef de la Division Détection et Photonique du L.E.P. d'avoir bien voulu juger ce travail. Je désire à cette occasion le remercier pour la collaboration fructueuse qui s'est installée entre notre équipe et ses services : Monsieur DUCHENOIS et ses collaborateurs ont en effet accepté avec beaucoup de gentillesse de s'intéresser à nos expériences. ~~Leur~~ leur savoir-faire en matière d'attaque chimique des galettes de fibres de verre nous a été précieux.

Trouver une formule de remerciements pour notre collègue F. POLACK n'est pas chose aisée : c'est peu dire que de lui exprimer toute notre gratitude. C'est en effet dans les échanges de tous les instants que s'est d'abord faite avec lui notre initiation à la recherche ; c'est dans la confrontation permanente avec le foisonnement de ses idées qu'ont ensuite mûri les différents thèmes de notre recherche dont ce mémoire est l'aboutissement.

Je n'oublie pas bien entendu le dynamisme, la gentillesse et la compétence de Madame C. HISLEUR qui a eu la tâche longue et délicate de dactylographier ce manuscrit.

Merci enfin au personnel de l'Institut d'Optique, du LURE et du LPMO qui n'ont pas ménagé leur aide depuis les premières expériences jusqu'à la rédaction finale de cette thèse.

S O M M A I R E

pages

INTRODUCTION GENERALE

1

PARTIE A

MICROSCOPIE DE CONTACT ET MICROANALYSE D'ABSORPTION X AU VOISINAGE D'UN SEUIL AVEC LE RAYONNEMENT SYNCHROTRON

INTRODUCTION	3
CHAPITRE I - MICROSCOPIE X, MICROSCOPIE DE CONTACT	7
1.1 - Les différents systèmes de microscopie X et leur comparaison	8
1.1.1 - Microscopie par projection cône	8
a) Principe	8
b) Résolution	9
c) Compromis flux/résolution	11
1.1.2 - Microscopie à l'aide d'une optique pour rayons X	12
1.1.3 - Microscopie X à balayage	12
1.1.4 - Comparaison des différentes méthodes	14
a) Comparaison entre : agrandissement par optique X et microscopie X à balayage	14
b) Comparaison entre : microscopie X de contact et microscopie X à balayage	15
1.2 - Problèmes de résolution en microscopie de contact	17
1.2.1 - Cas d'un détecteur idéal	17
a) Limites ultimes de résolution	17
b) Contraste et épaisseur minimale de l'objet	19
1.2.2 - Détecteurs d'images X photochimiques à résolution spatiale élevée	23
a) Photorésines	23
b) Plaques et films photographiques	25

CHAPITRE 2 - MICROANALYSE D'ABSORPTION X A GRAND CHAMP PAR DETECTION PHOTOGRAPHIQUE QUANTITATIVE	31
2.1 - Principes de la microanalyse d'absorption X au voisinage d'un seuil	32
2.1.1 - Détection d'un élément chimique	32
2.1.2 - Limites de détection	35
2.1.3 - Comparaison avec	40
a) Fluorescence X	40
b) Microsonde électronique	41
2.2 - Applications à la microanalyse à grand champ par détection photographique du rayonnement synchrotron	43
2.2.1 - Principes de la méthode	43
a) La source	43
b) Montage expérimental	44
c) Exploitation quantitative en microanalyse d'absorption	47
2.2.2 - Exemples de résultats	50
2.2.3 - Discussion	52
a) Analyse de Mn, Fe, Ni dans des nodules polymétalliques	52
b) Comparaison des résultats avec d'autres méthodes	53
c) Sensibilité de la méthode photographique	55
CONCLUSION DE LA PARTIE A	58

PARTIE B
ETUDE EXPERIMENTALE D'UN DETECTEUR D'IMAGES X
A GRAND CHAMP PAR SCINTILLATION GUIDEE

INTRODUCTION à la PARTIE B	61
CHAPITRE I - LES DIFFERENTS DETECTEURS D'IMAGES X	
Introduction : Définitions et propriétés générales	63
1.1 - Détecteurs à image latente	69
1.1.1 - Film photographique	69
1.1.2 - Résines photosensibles	70
1.2 - Détecteurs à émission de particules secondaires	70
1.2.1 - Conversion $X \rightarrow$ électrons dans une photocathode	71
a) Efficacité quantique de détection	73
b) Résolution spatiale	74
1.2.2 - Détecteur X à galette de microcanaux	76
a) Efficacité quantique de détection	77
b) Résolution spatiale	77
c) Taux de comptage	78
1.2.3 - Chambre proportionnelle multifils	79
a) Résolution spatiale	79
b) Taux de comptage	80
1.2.4 - Mosaïque de détecteurs semiconducteurs	81
a) Efficacité quantique de détection	81
b) Résolution spatiale	81
c) Compatibilité avec les flux du rayonnement synchrotron	82
1.2.5 - Ecran luminescent, scintillateurs	82
a) Efficacité quantique de détection	83
b) Résolution spatiale	84
c) Compatibilité avec les hauts flux	88
1.3 - Discussion et conclusion du chapitre 1	89

CHAPITRE II - CONVERSION X → VISIBLE PAR SCINTILLATION GUIDÉE

Introduction	91
2.1 - Revue des dispositifs à écrans compartimentés pour rayons X ou γ	92
2.1.1 - Procédés "mécaniques"	92
2.1.2 - Ecrans compartimentés en iodure de césium	92
2.1.3 - Fibres optiques scintillantes	93
2.2 - Les galettes de fibres optiques et leur utilisation dans les intensificateurs d'images X	95
2.2.1 - Principes	95
2.2.2 - Utilisation dans les intensificateurs d'images X	97
a) Rendement photométrique	98
b) Résolution spatiale	99
2.3 - Détecteur à guidage diélectrique de la lumière de fluorescence : notre approche	100
2.3.1 - Modélisation	100
2.3.2 - Efficacité de collection par guidage diélectrique	101
a) Rayons méridiens	101
b) Rayons non méridiens	103
c) Discussion	104
d) Remarque sur les formules de l'efficacité de collection	105
2.3.3 - Comparaison entre guidage diélectrique et guidage métallique	107
2.3.4 - Efficacité de détection et rendement lumineux global d'une fibre scintillante à guidage diélectrique	109
a) Efficacité de conversion	109
b) Comparaison avec un écran classique	110
c) Conclusions	114
2.4 - Limitations de la résolution spatiale dans un écran à fibres scintillantes	114
2.4.1 - Pertes de résolution dues à l'étendue géométrique du faisceau incident	114
a) Effet de pénombre	114
b) Alignement des fibres par rapport au faisceau	115
c) Influence de l'absorption X dans les gaines	117

CHAPITRE 1 MICROSCOPIE X MICROSCOPIE DE CONTACT
--

INTRODUCTION

Dans cette partie, nous nous attacherons d'abord à présenter (paragraphe 1.1) les différentes méthodes de microscopie X : ce terme devant être pris au sens d'imagerie X à haute résolution spatiale (mieux que quelques dizaines de microns). Rappelons ici l'ordre de grandeur des résolutions qu'on peut obtenir par les différentes autres méthodes de microscopie :

microscopie optique	:	0,3 μm
microscopie acoustique	:	de l'ordre du micron
microscopie électronique par transmission	:	de l'ordre de l'Angström
microscopie électronique à balayage	:	de l'ordre de 10 Å

La microscopie X se situe, en résolution, entre la microscopie électronique et la microscopie optique puisqu'il est possible d'obtenir des images présentant des détails de l'ordre de 50 à 100 Å.

Nous examinerons tout d'abord la méthode la plus simple : la microscopie par projection et ses limitations, puis nous discuterons brièvement des autres méthodes de microscopie X.

Ensuite (§ A.1.2), nous détaillerons plus particulièrement une forme limite de la microscopie par projection : la microscopie de contact. Cette dernière méthode permet d'obtenir à la fois les meilleures résolutions et les plus grands champs en utilisant un détecteur photochimique (résine photosensible, plaque photographique) dont les caractéristiques seront étudiées.

1.1 - LES DIFFERENTS SYSTEMES DE MICROSCOPIE X ET LEUR COMPARAISON

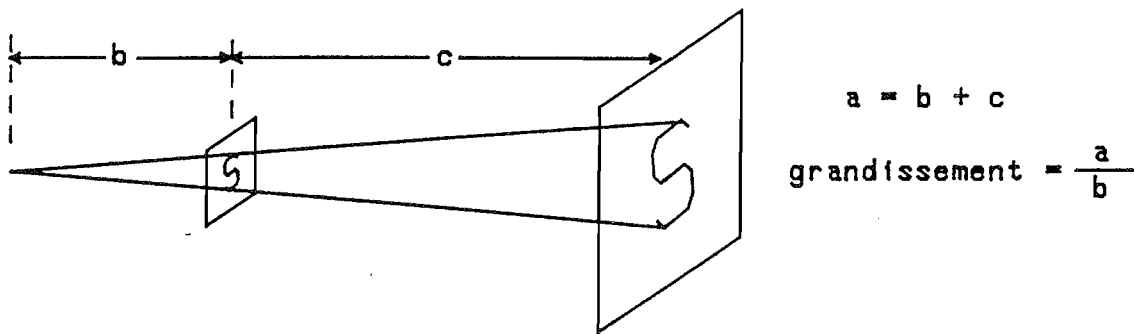
Nous rappelons dans ce paragraphe les différentes techniques de microscopie.

On peut distinguer plusieurs classes de méthodes : par projection, par contact, avec optique focalisante, à balayage. La microscopie de contact, qui est plus particulièrement la méthode que nous avons employée, sera étudiée au paragraphe suivant.

1.1.1 - Microscopie par projection cônica

a) Principe

L'objet est placé dans un faisceau X divergent et on recueille une image agrandie de l'objet par projection cônica (Fig. 1)



$b \ll c$: grandissement $\gg 1$
microscopie par projection

$b \gg c$: grandissement ≈ 1
microscopie de contact

Figure 1 : Imagerie X par projection

Le grandissement est égal à a/b , on place donc en général l'objet le plus près possible de la source.

Lorsque, par contre, on choisit de travailler avec $c \ll b$, on est dans la situation de la microscopie de contact examinée en détail au § A.1.2.

b) Résolution

La résolution est limitée par deux effets intervenant simultanément :

- i) effets de pénombre géométrique
- ii) effets de diffraction de Fresnel.

Pour déterminer la limite de résolution, il suffit de s'intéresser à l'image d'un bord net ; on peut en déduire ensuite simplement le pouvoir séparateur intervenant lorsqu'on forme l'image de 2 objets proches ; celui-ci est toujours de l'ordre de grandeur de la largeur de la zone de passage ombre-lumière dans l'image d'un bord d'écran [5].

Par suite de la largeur finie d de la source S , un bord d'écran donne sur le récepteur, lorsque la diffraction est négligeable, une zone de pénombre de largeur ϵ_1 géom. (Fig. 2).

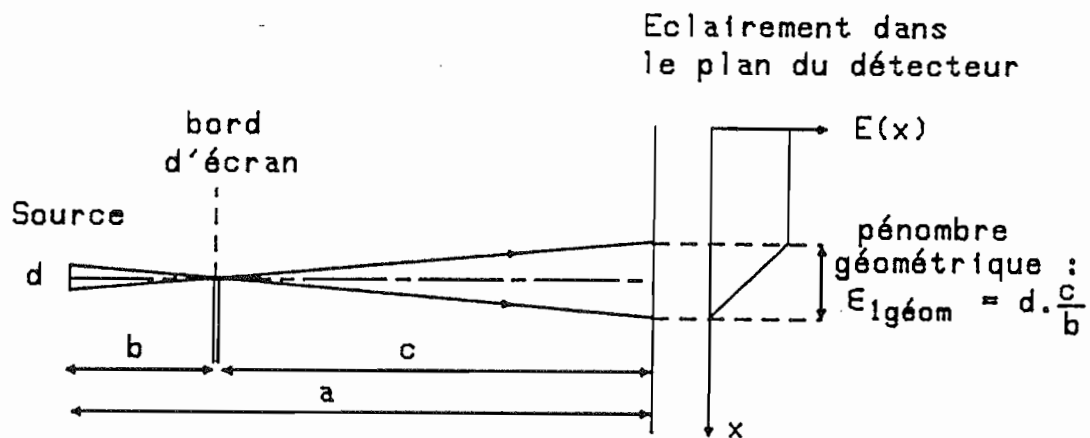


Figure 2 : Microscopie par projection. Effet de pénombre géométrique

$$\epsilon_1 \text{ géom} = d \frac{c}{b} \quad (1)$$

Ramenée à l'objet, cette dimension donne une limite de résolution "géométrique" ϵ_o géom :

$$\epsilon_o \text{ géom} = d \frac{c}{a} \quad (2)$$

Dans le cas de la projection, l'objet étant proche de la source, on a $c \approx a$, d'où :

$$\epsilon_o \text{ géom} \approx d$$

Par suite de la diffraction de Fresnel, l'image d'un bord d'écran présente l'aspect classique de la figure 3 lorsque la source est supposée ponctuelle.

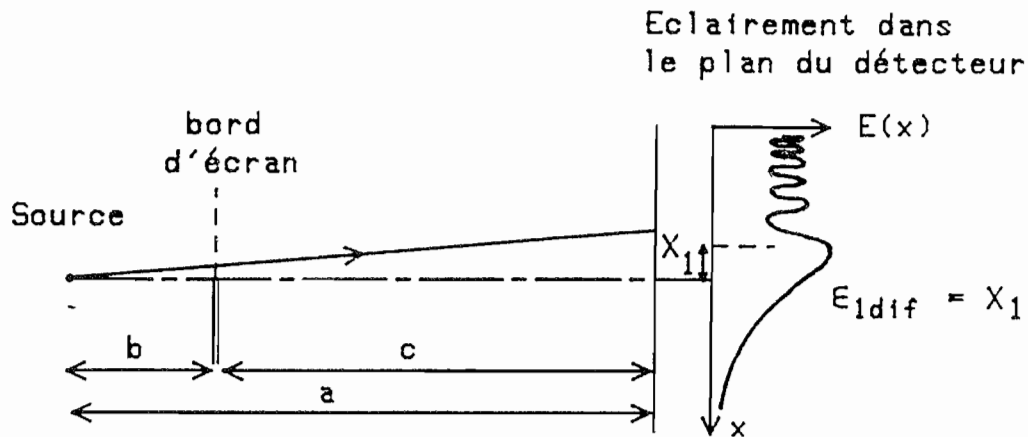


Figure 3 : Microscopie par projection. Effet de diffraction

La valeur x_1 du 1er maximum relatif de la figure de diffraction donne une bonne estimation de la limite de résolution $\epsilon_{1 \text{ dif}}$ due à la diffraction seule.

Sur le récepteur, on a :

$$\epsilon_{1 \text{ dif}} = \sqrt{\frac{ac\lambda}{b}} \quad (3)$$

où λ désigne la longueur d'onde du rayonnement utilisé, supposé monochromatique.

Ramené à l'objet, ceci donne une limite de résolution $\epsilon_{o \text{ dif}}$:

$$\epsilon_{o \text{ dif}} = \sqrt{\frac{bc\lambda}{a}} \quad (4)$$

Dans le cas de la microscopie par projection, on a $b \ll a$ d'où $c \approx a$ et donc finalement :

$$\epsilon_{o \text{ dif}} = \sqrt{b\lambda}$$

Quelques ordres de grandeur

Il est possible d'obtenir une dimension de source de $0,1 \mu\text{m}$ par focalisation d'un pinceau d'électrons sur une cible [6]. On a donc $\varepsilon_0 \text{ géom} = 1\,000 \text{ \AA}$.

Pour que la diffraction ne limite pas, il faudra choisir :

$$b \leq 10 \mu\text{m} \quad \text{à} \quad \lambda = 10 \text{ \AA}$$

$$b \leq 100 \mu\text{m} \quad \text{à} \quad \lambda = 1 \text{ \AA}$$

c) Compromis flux/résolution

Pour tout système d'imagerie, la simple donnée de la résolution qu'on peut obtenir n'est pas suffisante. Il faut, de plus, que chaque cellule de résolution reçoive un nombre de photons suffisant.

En effet, par suite des fluctuations statistiques (processus Poissonien), le rapport signal sur bruit est de l'ordre de $\sqrt{N}$, où N est le nombre de photons reçus par la cellule élémentaire pendant le temps de l'expérience. On voit en particulier que, **toutes choses égales par ailleurs**, si on cherche à analyser une image avec une limite linéaire de résolution k fois plus petite, la surface de la cellule élémentaire est divisée par k^2 ainsi que le nombre de photons reçus. Par suite, le rapport S/B est divisé par k .

Or, dans bien des systèmes, les dimensions de la cellule de résolution ultime sont liées à la géométrie du montage et à la dimension de la source. Chercher à améliorer la résolution en agissant sur ces facteurs ne peut pas se faire sans modifier les caractéristiques photométriques du montage. En particulier il faut tenir compte de la loi de conservation de l'étendue géométrique des faisceaux qui s'applique à la fois aux pinceaux d'électrons (à partir desquels on fabrique les sources X : générateur classique ou synchrotron) et aux faisceaux X eux-mêmes qu'on chercherait par exemple à "refocaliser" pour diminuer la surface de la source X.

Comme le produit (Surface)×(angle solide) reste constant dans un faisceau, on dégrade en fait souvent certains paramètres en cherchant à en optimiser d'autres. Le compromis flux-résolution est particulièrement limitatif dans la microscopie X par projection qui a, en fait, été abandonnée progressivement au cours des années 60 au profit de la microscopie électronique.

1.1.2 - Microscopie à l'aide d'une optique pour rayons X

Il est possible de réaliser un agrandissement de l'image X à l'aide de systèmes optiques fonctionnant de façon analogue aux optiques du visible (formules de conjugaison, grandissement, photométrie,...). On trouvera dans le tableau 1 de la page suivante un résumé des méthodes ayant donné lieu à des réalisations, en particulier avec les sources synchrotron.

1.1.3 - Microscopie X à balayage

Les premiers travaux sur ce sujet utilisant le rayonnement synchrotron sont ceux de Horowitz et Howell [11] en 1972. Depuis, plusieurs autres microscopes X à balayage sont en construction ou en fonctionnement dans les différents centres de rayonnement synchrotron [12 - 17].

Le principe du microscope X à balayage est présenté sur la figure 4.

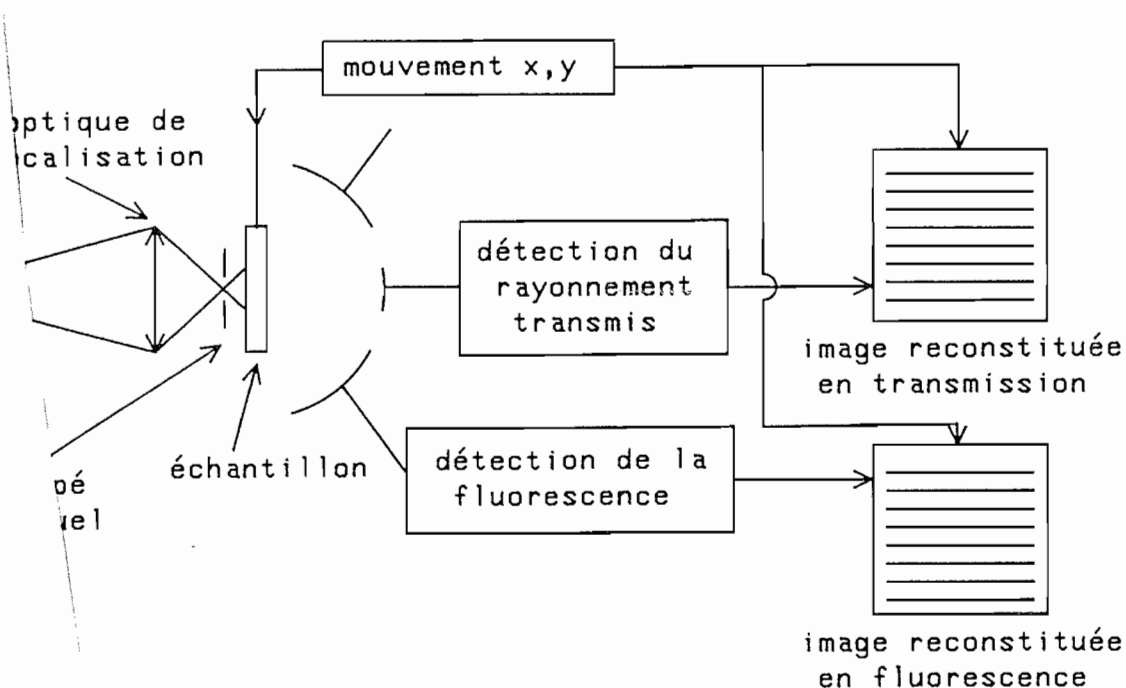


Figure 4 : Microscope X à balayage

Une source est focalisée sur l'échantillon à l'aide d'une optique X (miroirs, zones de Fresnel). Une translation de l'objet dans les deux directions permet de reconstituer une image point par point. Les avantages de la méthode sont les suivants :

SYSTEME	PRINCIPE PHYSIQUE	COMBINAISON OPTIQUE	RESOLUTION OBTENUE	COMMENTAIRE	REFERENCES
MIROIRS en INCIDENCE RASANTE	L'indice des rayons X est inférieur à 1 : possibilité de réflexion total rasante à une interface air/métal	Surfaces stigmatiques par réflexion : paraboloïdes, hyperboloïdes + diaphragme annulaire	de l'ordre du micron, limitée par les aberrations du système et les imperfections de réalisation	Usinage et centrage des surfaces extrêmement délicat. Faible ouverture. Utilisé pour les diagnostics X des plasmas Utilisable en spectre X large	WOLTER [7] 1952 SILK [10] 1980
MIROIRS MULTICOUCHES en INCIDENCE NORMALE	Multicouches réfléchissantes obtenues par dépôt alterné de couches haut et bas indice (rayons X mous)	Analogues aux systèmes à miroirs sphériques utilisés pour le visible par ex : optique de Schwarzschild	de l'ordre du micron pour $\lambda \approx 100 \text{ \AA}$	Technologie délicate : couches de quelques 10 Å Problème de diffusion par la rugosité des couches. Transmittance non uniforme pour les différents angles Utilisable en bande étroite (filtre interférenciel)	HAELBICH [8] 1980
"LENTILLES" à ZONE de FRESNEL	Diffraction par un réseau zoné, formé de couronnes alternativement transpa- rentes et absorbantes disposées selon la loi $r_n = r_1 \sqrt{n}$	Fonctionnement presque analogue à celui d'une lentille de focale $f = r_1^2 / \lambda$ microscope à 2 lentilles un condenseur, un objectif d'agrandissement	de l'ordre de 60 nm pour $\lambda = 40 \text{ \AA}$	La meilleure qualité d'image obtenue par agrandissement X direct Efficacité $\approx \lambda^2$ + problèmes de condenseur pour $\lambda < 10 \text{ \AA}$ Utilisable en bande étroite seulement (sinon : aberrations chromatiques)	RUDDOLPH et SCHMAHL [9] 1980

Tableau 1 : Microscopie utilisant une optique pour rayons X

. La dose reçue par l'échantillon peut être minimale parce que les détecteurs utilisés (compteurs proportionnels) ont une efficacité quantique* proche de 100 % (voir le paragraphe suivant A.1.1.4). Ce paramètre est important car une des applications les plus intéressantes de la microscopie en X mous est l'imagerie d'objets biologiques vivants, non colorés, ce qui est impossible en microscopie électronique.

. Il est possible de travailler au choix en absorption ou en fluorescence (équivalent aux images en fond noir de la microscopie optique).

. L'image est directement numérisée et peut être immédiatement disponible pour un traitement par ordinateur.

1.1.4 - Comparaison des différentes méthodes

Notre comparaison ne portera que sur les méthodes actuellement utilisées avec le rayonnement synchrotron dans la bande de longueurs d'onde de 1 à 1 000 Å. En particulier nous ne prendrons pas en compte la microscopie par projection agrandie qui est mal adaptée au faisceau quasi-parallèle du synchrotron.

a) Comparaison entre agrandissement par optique X et microscopie X à balayage

Les optiques à imagerie sont essentiellement utilisables dans le domaine des X mous.

Dans ce cas, la microscopie à balayage apparaît moins bonne en résolution (de 0,1 à 1 µm contre 50 nm environ avec les optiques à zones de Fresnel). Par contre, les systèmes à imagerie sont moins bons au point de vue du flux et de la dose reçue par l'échantillon, pour les raisons suivantes :

- i) Une même optique peut servir, soit à focaliser le faisceau sur l'objet (cas de la microscopie à balayage), soit à donner une image de l'objet (optique à imagerie). Dans le premier cas, il est possible d'utiliser des détecteurs

* Pour une étude précise de la notion d'efficacité quantique de détection, nous renvoyons à la partie B de ce mémoire, introduction au premier chapitre.

à gaz ou solides qui ont des efficacités proches de 100 % dans les meilleurs cas. Par contre, la même optique utilisée en imagerie nécessite un détecteur d'images tel que la plaque photo et, en général, un tel détecteur a une efficacité quantique plus faible* (de quelques pour mille en X durs jusqu'à 50 % en X mous pour la plaque photo).

ii) En ce qui concerne la dose intégrale absorbée par l'objet (problème important pour les objets biologiques), le microscope à balayage est théoriquement supérieur parce que tous les photons **ayant traversé l'objet** sont utiles. Bien entendu, l'optique d'éclairage a souvent un rendement faible, mais dans ce cas les photons perdus n'irradient pas l'objet**. Alors que la même optique, utilisée en imagerie par agrandissement conduit à une perte de photons **après traversée de l'objet** ; pour un même éclairement dans l'image, il faudra donc irradier plus l'objet.

Conclusion

Si le microscope à balayage pouvait atteindre mieux que 0,1 μm de résolution, il deviendrait un instrument très efficace d'étude dans le domaine des X mous et de la biologie. Cet objectif, qui semblait difficile à atteindre il y a quelques années, est maintenant beaucoup plus proche des possibilités expérimentales [17] malgré des difficultés technologiques considérables.

b) Comparaison entre microscopie de contact et microscopie X à balayage

La microscopie de contact est de loin supérieure à la microscopie à balayage au point de vue de la résolution.

Des résolutions de l'ordre de 50 Å ont été obtenues sur les résines par le procédé de contact. Il semble très difficile que d'autres méthodes de microscopie X puissent atteindre de telles résolutions avant longtemps.

* A l'exception des résines photosensibles qui ont une très bonne efficacité quantique, mais dont la réponse quasi-binaire permet difficilement une exploitation quantitative de l'image.

** En théorie du moins. En effet, lorsque le condenseur est une zone de Fresnel, une importante partie du rayonnement présent dans les ondes de diffraction "parasites" peut cependant irradier l'objet.

Pour la même raison qu'au § A.1.1.4a précédent, le microscope à balayage est meilleur que le microscope-contact du point de vue de la dose reçue par le specimen. Par contre, si on ne tient pas compte des effets d'irradiation de l'objet, l'avantage du microscope à balayage se réduit. En effet, d'un côté c'est le détecteur utilisé en microscopie de contact qui a, en général, une faible efficacité, alors que de l'autre c'est l'optique de focalisation du microscope à balayage qui a également un faible rendement, d'autant plus faible que la longueur d'onde λ est courte. Pour cette raison, il n'existe pas à notre connaissance de microscope à balayage fonctionnant à des longueurs d'onde inférieures à 2 Å. Alors que dans le domaine 1-2 Å, il est encore possible de faire de la microscopie de contact avec des plaques photographiques : on obtient des résolutions de l'ordre de quelques microns. Enfin l'avantage du microscope λ à balayage est de fournir "par construction", des images **numérisées** en "**temps réel**", alors que dans les détecteurs d'images haute résolution actuellement développés pour les X mous, cette possibilité n'est pas encore opérationnelle (Polack et Lowenthal à Orsay [18], Turner, Plummer et Porter à Oxford [19]).

Dans le domaine des rayons X plus durs ($\lambda \leq 5$ Å), les seuls détecteurs susceptibles de donner une image quantitative en "temps réel" sont les convertisseurs d'images* dont la résolution spatiale est au mieux de l'ordre de 10 à 20 μm . Dans ce domaine de longueurs d'onde, la plaque photographique reste encore un excellent détecteur d'images quantitatif (bien que fonctionnant en "temps différé").

Conclusion sur le paragraphe 1.1

A l'heure actuelle, aucun dispositif de microscopie X ne présente des caractéristiques le rendant universel ; de même qu'on a pu voir se développer depuis une vingtaine d'années un grand nombre de méthodes de microscopie, d'imagerie, de microanalyse, on peut penser de même que les prochaines années verront un développement parallèle des microscopes X : à imagerie directe, à balayage et par contact.

* Une analyse détaillée des détecteurs d'images X "temps réel" sera présentée dans la partie B, chapitre 1.

1.2 - PROBLEMES DE RESOLUTION EN MICROSCOPIE DE CONTACT

Dans ce paragraphe, nous nous consacrons à la microscopie de contact. A l'heure actuelle, c'est cette méthode qui donne les meilleures résolutions de tous les systèmes de microscopie X : la résolution est limitée par les facteurs intrinsèques au montage, qui sont les mêmes que pour la microscopie par projection, et les facteurs propres au détecteur.

De plus, comme nous le faisions remarquer au § A.1.1.1c, il faut prendre en compte le bruit de photons qui interdit "d'exploiter" une image à sa résolution maximale lorsque chaque cellule n'a reçu que quelques photons. Malgré les flux très intenses du synchrotron, cette limitation est loin d'être négligeable lorsque la cellule d'analyse atteint une dimension de 50 Å qui est la limite actuelle en microscopie X de contact sur résine, pour une longueur d'onde d'éclairage λ comprise entre 20 et 45 Å.

1.2.1 - Cas d'un détecteur idéal

a) Limites ultimes de résolution

On peut considérer le montage de microscopie de contact (Fig. 5) comme un cas limite de la microscopie par projection (Fig. 1).

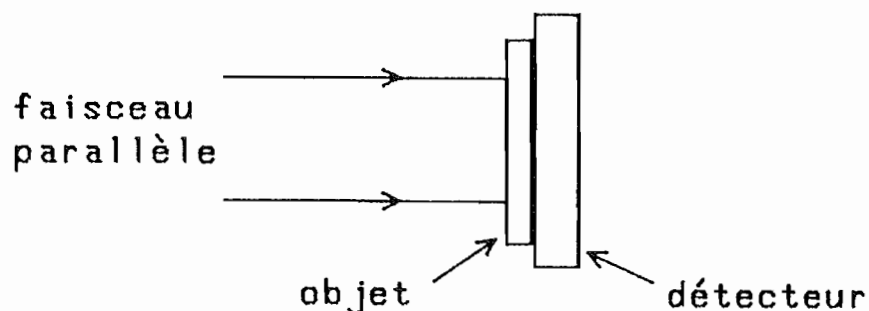
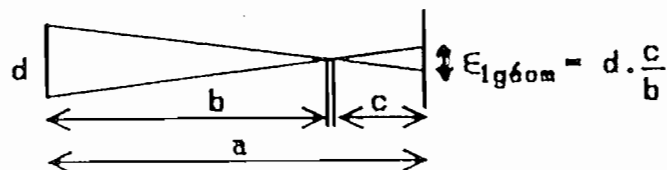


Figure 5 : Microscopie de contact

Reprenant les mêmes notations qu'au § A.1.1.1 (voir Fig. 2, 3 et 6) il suffit de faire $c \ll b$ dans les équations (1 à 4). Il vient donc : $\varepsilon_0 \approx \varepsilon_1$ puisque $b/a \approx 1$.

Effet de pénombre
géométrique



Effet de diffraction

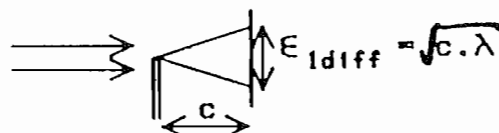


Figure 6 : Limite de résolution en microscopie de contact

Nous obtenons finalement les valeurs suivantes pour la résolution (notations fig. 6) :

limite géométrique de résolution :

$$\epsilon_1 \text{ géom} = d \frac{c}{b} \quad (5)$$

limite introduite par la diffraction :

$$\epsilon_1 \text{ dif} = \sqrt{\frac{ac\lambda}{b}} \approx \sqrt{c\lambda} \quad (6)$$

Exemples numériques

Donnons quelques valeurs numériques relatives au rayonnement synchrotron disponible à LURE.DCI.

L'enregistrement des microradiographies (voir § A.2.3) s'effectue à une distance $b \approx 24 \text{ m}$ de la source.

On peut évaluer la surface de la source comme étant au maximum égale* à $3 \times 3 \text{ mm}^2$, ce qui donne les limites de résolution suivantes avec les notations de la figure 6 :

$$\epsilon_1 \text{ géom} \approx 10^{-4} c$$

* valeurs probablement assez pessimistes. Dans les prochaines générations de sources synchrotron, la dimension de source sera très certainement plus petite que $0,1 \times 0,1 \text{ mm}^2$.

soit $\epsilon_1 \text{ géom } (\text{\AA}) = C (\mu\text{m})$

pour $\lambda = 1 \text{ \AA}$: $\epsilon_1 \text{ dif } (\text{\AA}) = 100 \sqrt{C(\mu\text{m})}$

Pour $c = 100 \mu\text{m}$ $\epsilon_1 \text{ géom} = 100 \text{ \AA}$
 $\epsilon_1 \text{ dif} = 0,1 \mu\text{m} = 1\,000 \text{ \AA}$

$c = 10 \mu\text{m}$ $\epsilon_1 \text{ géom} = 10 \text{ \AA}$
 $\epsilon_1 \text{ dif} = 300 \text{ \AA}$

$c = 1 \mu\text{m}$ $\epsilon_1 \text{ géom} = 1 \text{ \AA}$
 $\epsilon_1 \text{ dif} = 100 \text{ \AA}$

On voit qu'avec le rayonnement synchrotron à $1 \text{ \AA}$, c'est la diffraction de Fresnel qui limite, et a fortiori pour $\lambda > 1 \text{ \AA}$.

b) Contraste et épaisseur minimale de l'objet

Afin d'illustrer ici la discussion du § A.1.1.1c, nous nous proposons de montrer que la résolution spatiale calculée au paragraphe précédent ne peut pas être atteinte lorsque le nombre de photons formant l'image est insuffisant. La raison physique en est qu'un objet doit présenter un contraste minimum pour être détectable, ce qui lui impose d'avoir une épaisseur minimale ; d'où une limite de résolution due au défaut de contact imposé par l'épaisseur même de l'échantillon.

En effet, même si l'objet est rigoureusement en contact avec le détecteur (supposé infiniment mince), seul le plan de contact donne une image parfaitement nette ; les autres plans de l'objet se projetant avec une netteté d'autant moins bonne que leur distance au plan de contact est plus grande.

La situation est similaire dans un microscope optique où, lorsqu'on met au point sur la surface d'un objet transparent (vu en contraste de phase par exemple), seul le plan focalisé est net ; les autres plans donnent des ombres projetées d'autant plus floues que leur distance est grande par rapport au plan de focalisation.

Imaginons qu'on cherche à détecter un objet (une grille par exemple) présentant une résolution spatiale p (pas de la grille). Supposons que seul l'effet de diffraction de Fresnel intervienne et que cet objet soit à transmittance binaire : 1 dans les parties transparentes et T dans les parties absorbantes. D'après la loi d'absorption* dans le domaine λ , on peut écrire, en appelant e l'épaisseur de l'objet et μ le coefficient linéaire d'absorption :

$$T = \exp(-\mu e) \quad (7)$$

Soit N_0 le nombre de photons par cm^2 qui ont illuminé l'objet et supposons que l'objet soit peu absorbant, c'est-à-dire T très voisin de 1.

Pour que l'objet soit détectable, il faut que les **variations spatiales** du signal enregistré par le détecteur (supposé parfait) soient **supérieures** aux **fluctuations du signal** dues au bruit de photons.

Dans le cas d'un détecteur quantique réel caractérisé par une efficacité quantique de détection** $\eta < 1$, il suffit de remplacer dans ce qui suit le nombre de photons N_0 par un nombre effectif égal à $\eta \cdot N_0$. Si la cellule d'analyse a une dimension r et si on choisit comme "seuil de détectivité" un rapport signal de contraste/bruit de l'image égal à k , cette condition s'écrit :

$$k \cdot r \sqrt{N_0} \leq (1 - \exp(-\mu e)) r^2 N_0 \quad (8)$$

bruit
du signal moyen signal de contraste entre parties
absorbantes et transparentes

Supposant un objet de très faible contraste ($\mu e \ll 1$), il vient :

$$k \leq \mu e r \sqrt{N_0} \quad (9)$$

Mais d'autre part, afin que l'image présente effectivement une résolution exploitable meilleure que r , il faut que l'épaisseur e de l'objet soit inférieure à la limite imposée par la diffraction de Fresnel, soit :

$$e \leq r^2 / \lambda \quad (10)$$

* voir le § A.2.1

** une analyse détaillée de la notion d'efficacité quantique de détection sera présentée dans la partie B, Introduction.

Les valeurs (e, r) qui satisfont simultanément (9) et (10) sont représentées par la zone hachurée sur la figure 7.

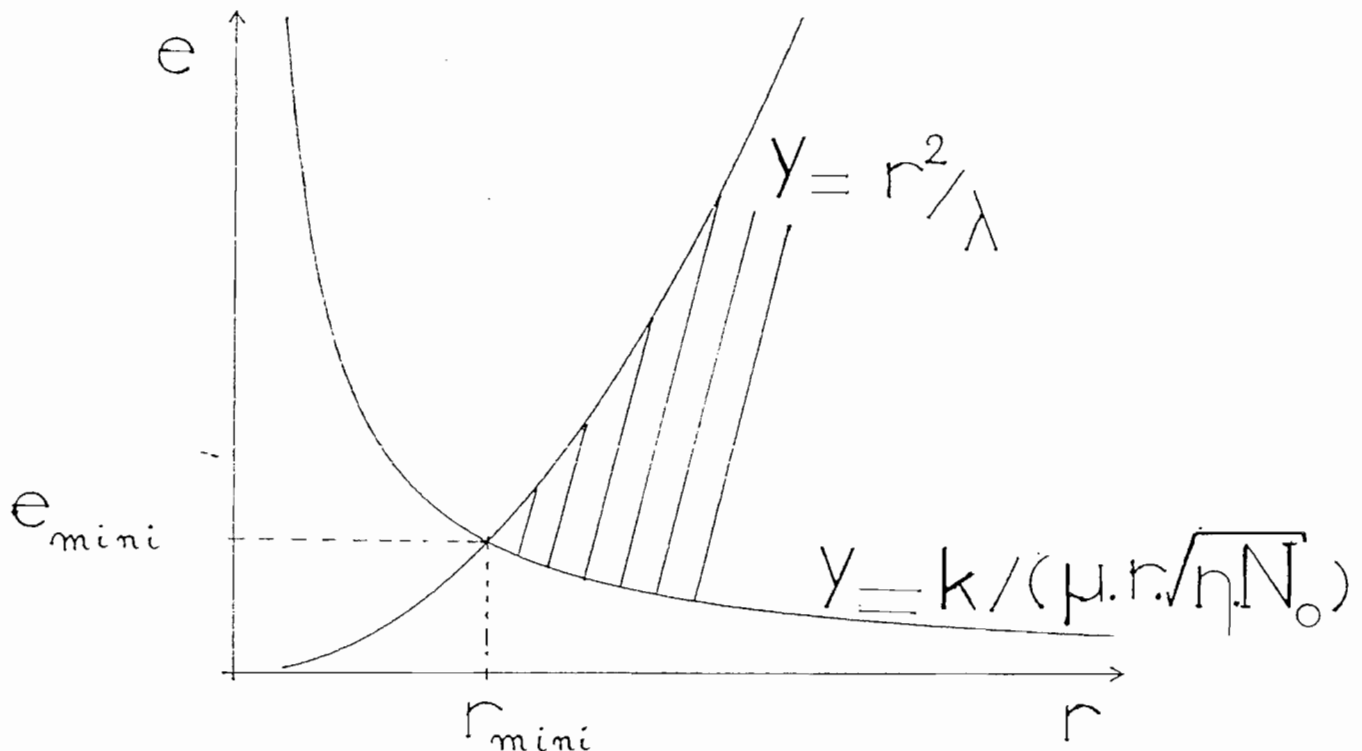


Figure 7 : Détermination de la résolution ultime r en microscopie X de contact compte tenu de la densité de photons comptés ηN_o et du coefficient d'absorption linéaire μ de l'objet

On constate l'existence d'un minimum de résolution qu'on ne peut pas dépasser, r_{mini} , qui vérifie l'égalité simultanément dans (9) et (10) d'où on tire :

$$r_{\text{mini}} = \left(\frac{k\lambda}{\mu} \right)^{1/3} (N_o)^{-1/6} \quad (11)$$

$$e_{\text{mini}} = \frac{r_{\text{mini}}^2}{\lambda} \quad (12)$$

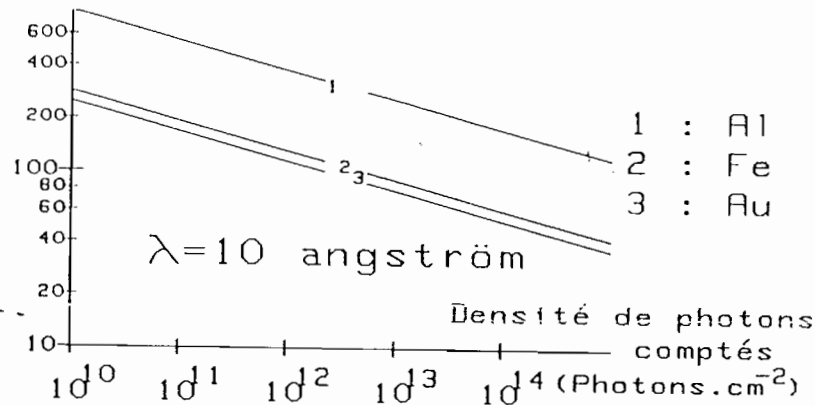
Exemple numérique

A la sortie de la ligne de lumière où nous avons travaillé, à 24 m de la source, on dispose environ de 10^{10} photons. $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ en rayonnement monochromatique, en utilisant un monochromateur à 2 cristaux plans parallèles dont l'acceptance et la bande passante sont très faibles (voir § A.2.2.1).

Avec une bande passante moins étroite, on atteint facilement 10^{13} photons/ $\text{cm}^2.\text{s}$ et jusqu'à 10^{16} ph/ $\text{cm}^2.\text{s}$ en faisceau blanc (voir annexe 1).

La figure 8 permet de voir les résolutions r_{mini} qu'on peut obtenir en fonction de ηN_0 pour différents matériaux (aluminium, fer, or) et pour $\lambda = 10 \text{ \AA}$. Le seuil de détectivité K est ici pris égal à 1.

RESOLUTION ULTIME (Angström)



RESOLUTION ULTIME (Angström)

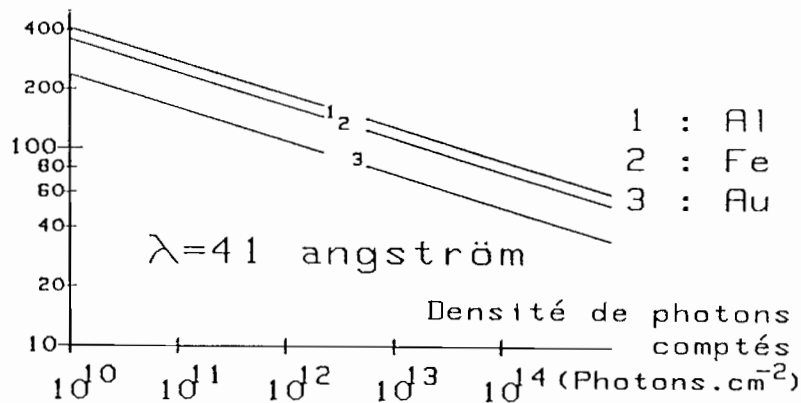


Figure 8 : Résolution ultime en microscopie X de contact en fonction de la densité de photons comptés ηN_0 et de la nature de l'objet absorbant (seuil de détectivité : $K = 1$)

Au vu de ces courbes, on s'aperçoit que la limitation en résolution imposée par l'éclairement disponible est loin d'être négligeable, surtout avec les éléments de n^0 atomique Z faible comme l'aluminium.

Par exemple : pour $N_0 = 10^{13} \text{ ph.cm}^{-2}$, $r_{\text{mini}} (\text{Al}) = 250 \text{ \AA}$
 $\lambda = 10 \text{ \AA}$ $r_{\text{mini}} (\text{Fe}) = 80 \text{ \AA}$
 $r_{\text{mini}} (\text{Au}) = 72 \text{ \AA}$

1.2.2 - Détecteur réel : photorésine, film photographique

a) Photorésine

L'emploi de la photorésine en imagerie X de contact a fait l'objet de nombreux travaux [20, 21].

Rappelons brièvement le principe de formation des images dans ce type de détecteur :

Après exposition de l'objet en contact avec la résine, cette dernière (un polymère organique) est plongée dans un solvant. Les parties de la résine ayant reçu des expositions différentes vont réagir différemment sous l'action du solvant-révéléur ; la vitesse de dissolution sera :

- . soit plus élevée pour les parties les plus exposées dans le cas d'une résine positive (polymérisation sous l'effet du rayonnement)
- . soit plus lente pour les parties les plus exposées : on a alors une résine négative (dépolymérisation sous l'effet du rayonnement).

La figure 9 permet de mieux comprendre le fonctionnement de ces deux types de résine.

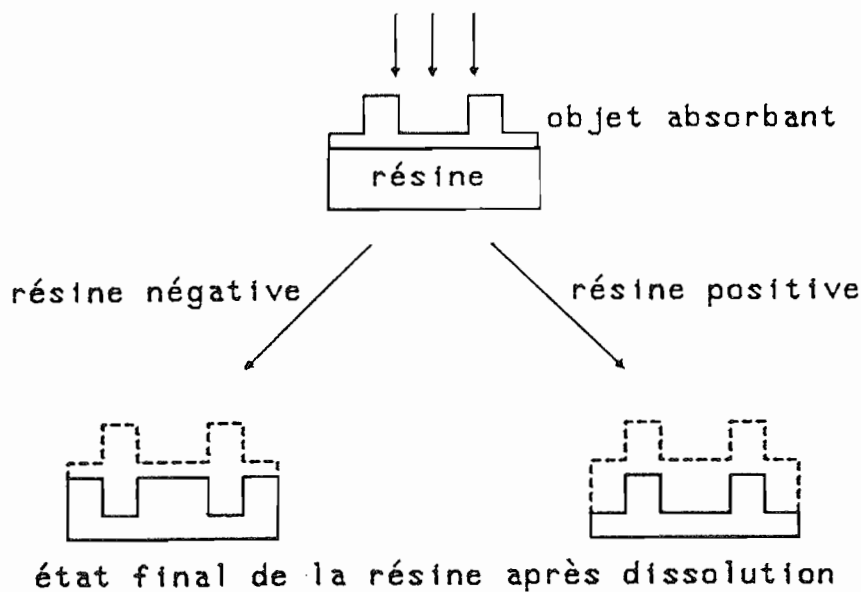


Figure 9 : Résines négative et positive

L'image est donc formée d'une succession de micro-reliefs qui sont difficilement observables au microscope optique ; la résine doit être observée au microscope électronique à balayage après métallisation de la surface.

La limite de résolution d'une résine photosensible est fixée par la diffusion latérale des photoélectrons primaires créés lors de l'absorption des photons X dans la résine. Ces photoélectrons primaires (d'énergie voisine de celle du photon) induisent à leur tour des photoélectrons secondaires (d'énergie faible : quelques eV) qui permettent de former l'image latente en interagissant avec les liaisons chimiques du polymère.

Or, le libre parcours moyen des photoélectrons primaires est d'autant plus élevé que le photon X incident a une énergie plus grande (c'est-à-dire une longueur d'onde plus courte).

La limite de résolution dans l'ensemble du processus d'imagerie X par contact sur résine dépend donc des trois effets suivants :

i) effet de pénombre géométrique (négligeable avec le rayonnement synchrotron).

ii) effet de diffraction de Fresnel dont la limite de résolution est donnée par (notations du § A.1.2.1) :

$$\epsilon_{\text{dif}} = \sqrt{\lambda c}$$

iii) le libre parcours moyen des photoélectrons primaires introduisant une limite ϵ_{elec} , fonction décroissante de λ . E. Spiller a proposé une méthode pour mesurer ce libre parcours moyen [21].

Lorsque l'effet de pénombre est négligeable, la conjonction de ces deux derniers facteurs variant en sens inverse en fonction de λ introduit une résolution minimale de l'ordre de 50 Å avec la résine PMMA*, en travaillant avec des rayons X de 50 Å de longueur d'onde. Détecter l'image avec une telle résolution nécessite une exposition minimale de l'ordre de 10^{14} photons/cm² avec, par exemple, un objet binaire en aluminium de l'ordre de 70 Å d'épaisseur (voir plus haut au § A.1.2.1b).

* Poly-métacrylate de méthyl

b) Plaques et films photographiques

* Limites intrinsèques de résolution

Il y a deux facteurs principaux qui déterminent la résolution d'une plaque photographique en général :

i) Comme dans le cas de la résine, le libre parcours moyen des photoélectrons primaires (Fig. 10)

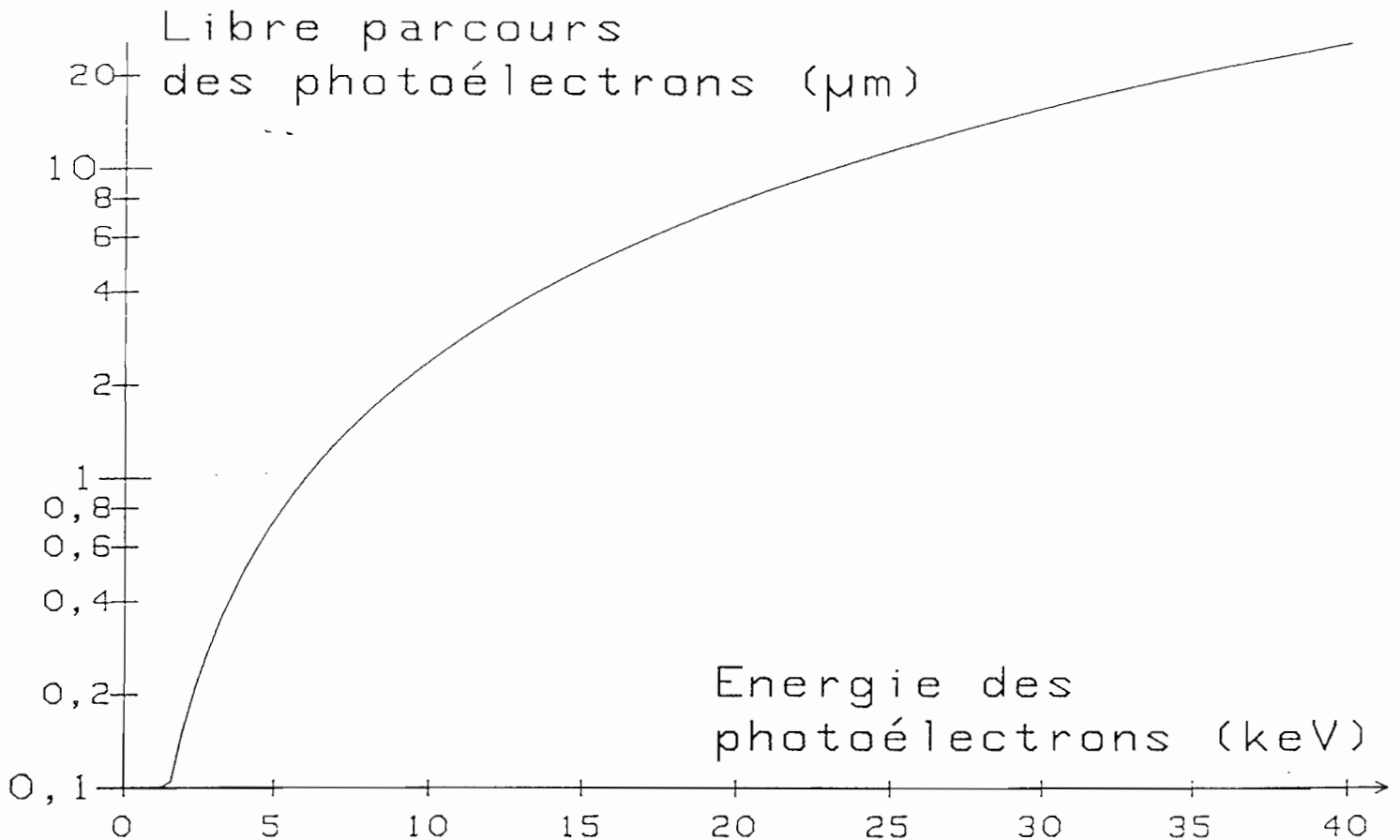


Figure 10 : Libre parcours moyen des photoélectrons dans la gélatine photographique, d'après A. Engström [22]

ii) La dimension moyenne des "grains" d'argent après développement.

Les films spécialement conçus pour les rayons X ont en général une résolution faible, soit parce que les grains d'argent sont de dimensions importantes, soit parce qu'on utilise un écran fluorescent afin d'augmenter la sensibilité de l'émulsion. Dans ce dernier cas, c'est la diffusion dans l'écran fluorescent qui limite la résolution à 100 μm environ (voir partie B de ce mémoire, § B1.2.5).

Pour la microradiographie, les plaques spectroscopiques Kodak 649 F ont été souvent utilisées [23], et ont permis d'obtenir des détails inférieurs au micron.

Pour notre part, nous avons utilisé les plaques Kodak haute résolution type 1A qui sont presque identiques aux plaques 649 F, avec cependant les différences suivantes : leur sensibilité spectrale dans le visible est différente (émulsion non chromatisée) ; l'épaisseur d'émulsion est de 6 μm avant traitement, 4 μm ensuite (contre 15 μm pour les plaques 649 F).

Pour ces plaques à très haute résolution ($\approx 0,2 \mu\text{m}$), on voit (Fig. 10) que c'est l'effet de libre parcours moyen des photoélectrons qui limite la résolution aux énergies λ supérieures à quelques keV. En particulier, dans les conditions expérimentales où nous avons travaillé (4 à 10 keV), ce libre parcours sera compris entre 0,5 μm (4 keV) et 2,5 μm (10 keV).

* Limitations dues à l'observation optique de la plaque

L'observation de la plaque au microscope ou au micro-densitomètre impose des limitations dues à deux facteurs :

- i) la diffraction de la lumière visible
- ii) des facteurs géométriques : ouverture du cône de lumière d'analyse et l'épaisseur de la gélatine (Fig. 11).

La limite de résolution r_{dif} due à la diffraction est donnée au sens du critère de Rayleigh par la célèbre formule des microscopistes :

$$r_{\text{dif}} = \frac{1,22 \lambda}{2n \sin \alpha'} = \frac{1,22 \lambda}{2 \sin \alpha} \quad (13)$$

où (voir figure 11) :

$\sin \alpha = n \sin \alpha' =$ ouverture numérique de l'objectif

n : indice de réfraction de la gélatine

α' : angle du faisceau dans la gélatine

λ : longueur d'onde optique.

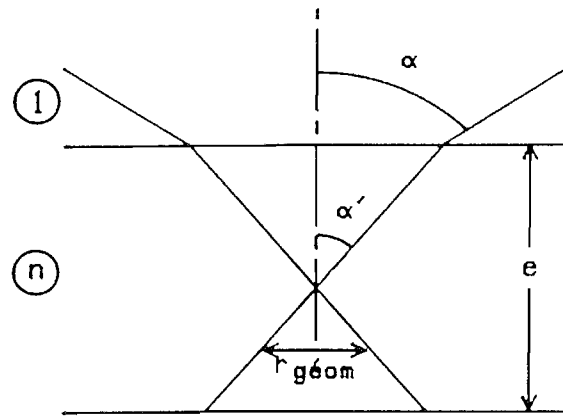


Figure 11 : Observation de la plaque au microscope

La formule (13) suppose un objet idéalement mince ; en réalité, il existe, indépendamment de l'effet de diffraction, une limite purement géométrique. Celle-ci est donnée par la valeur moyenne $r_{\text{géom}}$ de la largeur du cône d'analyse délimité par le demi-angle α' et l'épaisseur e de la plaque (Fig. 11) :

$$r_{\text{géom}} \approx \frac{e}{2} \operatorname{tg} \alpha' \quad (14)$$

Exemples numériques

Le tableau ci-dessous résume cette discussion pour $\lambda = 0,5 \mu\text{m}$, $n = 1,55$ (gélatine)

- . dans le cas d'un objectif à grande ouverture : $n \sin \alpha' = 1$ (immersion)
- . dans le cas d'un objectif moins ouvert : $n \sin \alpha' = 0,25$ utilisé sur le micro-densitomètre.

ouverture numérique	$e = 5 \mu\text{m}$	$e = 15 \mu\text{m}$
1	$r_{\text{dif}} = 0,3 \mu\text{m}$ $r_{\text{géom}} = 2,1 \mu\text{m}$	$r_{\text{dif}} = 0,3 \mu\text{m}$ $r_{\text{géom}} = 6,3 \mu\text{m}$
0,25	$r_{\text{dif}} = 1,2 \mu\text{m}$ $r_{\text{géom}} = 0,4 \mu\text{m}$	$r_{\text{dif}} = 1,2 \mu\text{m}$ $r_{\text{géom}} = 1,2 \mu\text{m}$

On peut voir qu'il est inutile d'utiliser des objectifs à grande ouverture numérique puisque toutes les plaques ont des épaisseurs de gélatine d'au moins 5 μm .

On voit d'autre part qu'il ne faut pas dépasser des épaisseurs de l'ordre de 15 μm (épaisseur optimale pour une ouverture de 0,25). En particulier, on pourrait penser utiliser pour la détection X les émulsions pour traces nucléaires : en effet, leur pouvoir d'arrêt du rayonnement (donc leur sensibilité) est bien meilleur que celui des plaques haute résolution prévues pour le visible. Mais, compte tenu de l'épaisseur importante des émulsions nucléaires (50 μm et plus), on perdrait alors la résolution spatiale à cause de l'effet d'épaisseur.

En fait, l'analyse quantitative des résultats au microdensitomètre (voir chapitre A.2) impose à l'heure actuelle une résolution minimale de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$. Dans ce cas, on pourrait utiliser des émulsions épaisses, jusqu'à 50 μm . Ce qui nous a fait opter, entre autres raisons, pour les plaques haute résolution, c'est leur facilité d'emploi et la très haute stabilité dimensionnelle de l'image (voir chapitre A.2) nécessaire aux traitements par superposition. Il semble très difficile d'obtenir une stabilité dimensionnelle comparable à celle des plaques haute résolution (de l'ordre du micron sur une surface de 1 cm^2) avec des émulsions de 50 μm d'épaisseur.

Conclusion sur le paragraphe 1.2

En imagerie X de contact, l'utilisation du rayonnement synchrotron permet de s'affranchir des effets de pénombre géométrique sur la résolution. Les limitations en résolution sont donc :

- . les effets de diffraction de Fresnel prépondérants aux grandes longueurs d'onde ($\lambda > 50 \text{ \AA}$),
- . les effets de libre parcours des photoélectrons dans le détecteur dans le domaine des longueurs d'onde inférieures à 5 $\text{\AA}$.

D'autre part, même avec le rayonnement synchrotron, on est limité en rapport signal sur bruit lorsqu'on veut exploiter quantitativement des images dont la résolution est meilleure que 100 $\text{\AA}$.

De telles résolutions n'ont été obtenues par le procédé de contact qu'avec des photorésines. Or il est très délicat d'obtenir des résultats quantitatifs à partir des images enregistrées sur résine et observées au microscope à balayage [24, 25].

Dans le cas d'objets à fort contraste utilisés pour la lithographie, les motifs obtenus ont des bords très raides qui sont particulièrement bien adaptés à la réalisation de masques pour circuits intégrés.

En revanche, dans le cas de la microscopie d'objets biologiques, les échantillons sont à faible contraste et le comportement de la résine est moins bien connu. On sait que le contraste de l'image reste élevé, la résine ayant une réponse quasi-binaire ; ce qui est mal adapté à l'enregistrement d'images à grande dynamique et faible bruit utilisées pour faire de la microanalyse d'absorption à grand champ (voir chapitre suivant).

Avec les détecteurs photochimiques, on est donc contraint de choisir entre la haute résolution avec les photorésines et l'obtention d'images quantitatives avec les plaques photographiques analysées au microdensitomètre.

Nous avons choisi la deuxième solution et les résultats que nous avons obtenus dont l'objet du chapitre suivant.

CHAPITRE 2

MICROANALYSE D'ABSORPTION X A GRAND CHAMP PAR DETECTION PHOTOGRAPHIQUE QUANTITATIVE

INTRODUCTION

Ayant vu la façon dont on peut réaliser des images à haute résolution spatiale avec les rayons X, nous nous proposons ici de montrer comment on peut exploiter quantitativement ces images en vue d'obtenir une carte de répartition des éléments chimiques présents dans l'échantillon.

Nous utiliserons pour cela l'association de la microradiographie de contact et de la spectroscopie par absorption X sélective au voisinage d'un seuil. Cette méthode, introduite pour la première fois par A. ENGSTROM en 1946 [26] avait connu de nombreux développements dans les années 1950 - 1960 [27] mais fut supplantée ensuite par la microsonde électronique à cause du manque de luminosité des sources X.

Dans une première partie, nous rappellerons les principes de cette méthode, puis nous présenterons brièvement, dans une deuxième partie, les résultats que nous avons obtenus avec le rayonnement synchrotron, par détection photographique et traitement numérique d'images [28].

2.1 - PRINCIPES DE LA MICROANALYSE D'ABSORPTION X AU VOISINAGE D'UN SEUIL

Rappelons d'abord le but de toute méthode de microanalyse chimique. Etant donné un échantillon -présentant en général une surface plane- on cherche à dresser, de préférence de façon non destructive, une carte de répartition des éléments chimiques, des molécules ou des liaisons, présents dans l'échantillon. Pour cela, on enregistre un "signal" caractéristique de la présence de l'espèce recherchée dans l'élément de résolution δS de la sonde. Les très nombreuses méthodes existantes diffèrent par la nature du faisceau-sonde et du signal détecté.

Dans notre cas, celui de la microanalyse par absorption X au voisinage d'un seuil, les espèces recherchées sont des éléments chimiques. Le faisceau sonde est un faisceau de rayons X et le signal enregistré est un signal d'absorption du faisceau incident. L'élément de résolution spatiale est donné soit par la dimension du pinceau X focalisé (cas d'un microscope X à balayage) soit, dans la méthode que nous avons employée, par la résolution du détecteur d'images.

Pour exposer les principes et les possibilités de la microanalyse d'absorption X au voisinage d'un seuil, nous raisonnerons sur un seul point de l'objet. Cette façon de procéder, très naturelle dans le cas de la méthode du balayage (enregistrement séquentiel), implique dans le cas du détecteur d'images (enregistrement simultané) l'homogénéité du détecteur et "l'indépendance" des éléments de résolution les uns par rapport aux autres. En pratique c'est le cas avec les "bonnes" plaques photographiques, lorsque le développement est mené avec soin.

2.1.1 - Détection d'un élément chimique

a) Transmittance d'un échantillon

Pour réaliser la localisation d'un élément chimique par absorption X, on utilise le fait que chaque élément, selon sa concentration dans l'échantillon, transmet le faisceau X différemment pour différentes longueurs d'onde.

Un élément E_i supposé pur, présent dans l'élément de surface δS avec la masse surfacique m_i , aura une transmittance $T_i(\lambda)$ en éclairage monochromatique :

$$T_i(\lambda) = \exp \left(- \left(\frac{\mu_i(\lambda)}{\rho_i} \right) \cdot m_i \right) \quad (15)$$

$\mu_i(\lambda)$ est le coefficient linéaire d'absorption, exprimé généralement en cm^{-1} , à la longueur d'onde λ .

ρ_i est la masse volumique de l'élément supposé pur.

Pour simplifier, nous introduirons l'épaisseur équivalente z_i :

$$z_i = m_i / \rho_i \quad (16)$$

On a :

$$T_i(\lambda) = \exp(-\mu_i(\lambda) \cdot z_i) \quad (17)$$

Dans le cas où on a plusieurs éléments présents, la transmittance de l'échantillon s'écrit, par factorisation :

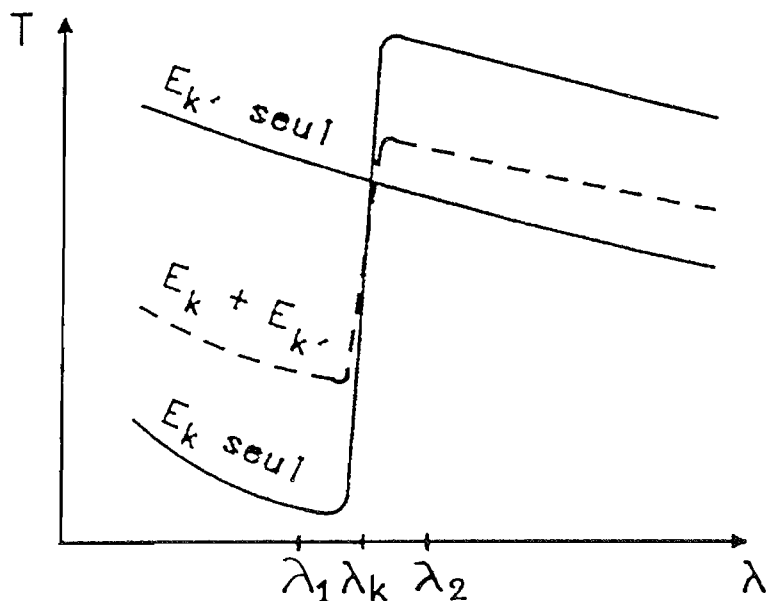
$$T(\lambda) = \prod_i \exp(-\mu_i(\lambda) \cdot z_i) \quad (18)$$

Le fait que l'on puisse écrire la transmittance de l'échantillon sous la forme (18) suppose que l'absorption ne dépend pas de la présence des liaisons chimiques mais seulement de la concentration des éléments. Ceci n'est qu'une approximation (voir § A.2.1.2).

b) Analyse d'un élément

Pour faire la microanalyse chimique de l'élément E_k , il faut remonter à la quantité m_k , c'est-à-dire à l'épaisseur équivalente z_k .

Pour cela, on utilise la présence des discontinuités d'absorption ou **seuils d'absorption** X à certaines longueurs d'ondes caractéristiques de l'élément k . La figure 12 montre comment évolue la transmittance $T(\lambda)$ dans le cas où on aurait seulement 2 éléments E_k et $E_{k'}$, au voisinage d'un seuil d'absorption de l'élément E_k .



λ_k = un seuil d'absorption de E_k

Figure 12 : Transmittance spectrale d'un échantillon suivant sa composition en E_k et $E_{k'}$

Choisissons 2 longueurs d'onde λ_1 et λ_2 très voisines et situées de part et d'autre d'un seuil d'absorption de E_k . Dans une première expérience, on mesure une transmittance $T(\lambda_1)$ puis on change légèrement λ pour mesurer $T(\lambda_2)$.

La probabilité pour qu'entre λ_1 et λ_2 on trouve un autre seuil d'absorption d'un autre élément chimique présent dans l'échantillon sera supposée négligeable, ce qui veut dire que :

- pour tous les éléments $E_i \neq E_k$ on a $\mu_i(\lambda_1) = \mu_i(\lambda_2)$
- seul l'élément E_k présente une discontinuité d'absorption, c'est-à-dire :

$$\mu_k(\lambda_1) \neq \mu_k(\lambda_2)$$

On peut trouver dans les tables de constantes physiques (par exemple [29]) la quantité $\mu_k(\lambda_1) - \mu_k(\lambda_2)$ qui sera notée $\Delta\mu_k$.

On a donc :

$$T(\lambda_1) = \prod_{i \neq k} \exp(-\mu_i(\lambda_1)z_i) \cdot \exp(-\mu_k(\lambda_1)z_k) \quad (19)$$

$$T(\lambda_2) = \prod_{i \neq k} \exp(-\mu_i(\lambda_2)z_i) \cdot \exp(-\mu_k(\lambda_2)z_k) \quad (20)$$

Comme $\mu_i(\lambda_1) = \mu_i(\lambda_2)$ pour $i \neq k$, on a finalement :

$$T(\lambda_2) / T(\lambda_1) = \exp(z_k \cdot \Delta\mu_k) \quad (21)$$

soit finalement :

$$z_k \Delta\mu_k = \text{Log}(T(\lambda_2)) - \text{Log}(T(\lambda_1)) \quad (22)$$

La mesure de z_k revient donc à mesurer le rapport de deux transmittances à deux longueurs d'onde voisines.

Supposons qu'on éclaire l'échantillon avec le même nombre N_0 de photons dans les deux cas, on va mesurer N_1 et N_2 photons.

L'épaisseur équivalente sera donc finalement : (en omettant l'indice k pour la suite) :

$$z = \frac{1}{\Delta\mu} (\text{Log}(N_2) - \text{Log}(N_1)) \quad (23)$$

2.1.2 - Limite théorique de détection d'un élément chimique

a) Critère de détection

De même que dans le calcul du § A.1.2.1b, nous supposerons ici utiliser un détecteur quantique parfait, sachant que pour tenir compte de l'imperfection d'un détecteur quantique réel il faut remplacer le nombre de photons reçus par un nombre effectif plus faible (efficacité quantique < 1).

Cherchons la plus petite épaisseur équivalente détectable : par différentiation de (23), on obtient au sens du calcul d'incertitude classique :

(N_1 et N_2 résultent de deux mesures indépendantes)

$$\delta_z = \frac{1}{\Delta\mu} \left(\frac{\delta N_2}{N_2} + \frac{\delta N_1}{N_1} \right) \quad (24)$$

Dans le cas d'une très faible concentration, on aura $N_1 \approx N_2 = N$. Or, $\delta N/N \approx 1/\sqrt{N}$, inverse du rapport signal sur bruit dans la cellule de résolution (statistique de Poisson).

Le critère de l'équation (24) revient à dire qu'une épaisseur δ_z mini est détectable dès qu'elle donne dans l'image traitée (obtenue en calculant $\text{Log}(N_2) - \text{Log}(N_1)$) un signal égal au bruit de l'image traitée, ce qui est un peut optimiste.

Introduisant un seuil de détectivité D (signal de différence $d(\text{Log}N) = dN/N$ minimum égal à D fois le rapport bruit/signal $1/\sqrt{N}$ de l'image initiale), l'épaisseur équivalente minimale détectable s'écrit finalement :

$$\delta_z \text{ mini} = \frac{2D}{\sqrt{N} \Delta\mu} \quad (25)$$

$$\delta_m \text{ mini} = \frac{2D}{\sqrt{N} \Delta(\mu/\rho)} \quad (26)$$

b) Exemples numériques

Pour simplifier, nous choisirons un seuil de détectivité $D = 1$.

Pour une surface d'analyse de $1 \mu\text{m}^2$, on peut avoir facilement 10^4 photons (avec des temps de pose de l'ordre de 100 à 1 000 s) avec le rayonnement synchrotron, ce qui donne pour $1 \mu\text{m}^2$: $\sqrt{N} = 100$.

Pour l'aluminium, on pourra avoir $\delta_z \text{ mini} = 200 \text{ \AA}$ au voisinage du seuil K de Al ($\Delta(\mu/\rho) = 4 \ 130 \text{ cm}^2.\text{g}^{-1}$ $\Delta\mu = 11 \ 140 \text{ cm}^{-1}$ à 1,56 KeV)

Pour le fer, on pourra avoir $\delta_z \text{ mini} = 800 \text{ \AA}$ au voisinage du seuil K de Fe ($\Delta(\mu/\rho) = 382 \text{ cm}^2.\text{g}^{-1}$ $\Delta\mu = 3 \ 000 \text{ cm}^{-1}$ à 7,11 KeV),

ce qui correspond, en masse par unité de surface :

Pour l'aluminium : $\delta_m \text{ mini} = 5 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2$

Pour le fer : $\delta_m \text{ mini} = 5 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^2$,

soit encore : dans chaque cellule de $1 \mu\text{m}^2$, on peut détecter par absorption sélective, au voisinage d'un seuil K :

$$5 \times 10^{-14} \text{ g de Al ou } 5 \times 10^{-13} \text{ g de Fe}$$

lorsque le rapport signal sur bruit de la cellule est 100 dans l'image initiale.

Pour fixer les idées, considérons un échantillon de nodule polymétallique tels que ceux que nous avons étudiés (voir § A.2.2.2). La masse volumique moyenne d'un nodule est environ 2 g/cm^3 par suite de la structure lacunaire des nodules. Localement, on a donc une densité plus élevée, de l'ordre de 4 g/cm^3 .

Un échantillon de $30 \text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur a donc une masse surfacique égale environ à 10^{-2} g/cm^2 dans les zones analysées. Dans ce cas, la proportion en masse de fer détectable par rapport à la masse totale est égale environ à 0,5 % pour une cellule d'analyse de $1 \text{ }\mu\text{m}^2$ et pour des temps de pose de l'ordre de 1 à 15 mn (le détecteur étant supposé être un compteur de photons parfait).

On voit donc là encore l'intérêt de disposer d'un flux important, ce qui permet de réaliser des enregistrements dans un temps de l'ordre de 10 mn.

Une source classique nécessitant un temps de pose plus de 10^3 fois plus élevé rend de tels enregistrements malaisés, ne serait-ce que pour des raisons de stabilité du montage à long terme. On voit également que la sensibilité ultime est liée à l'aptitude du détecteur à compter un grand nombre de photons, ce qui est une des limites importantes lorsque la détection s'effectue photographiquement (phénomène de saturation du noircissement). Ce problème sera évoqué plus précisément au chapitre suivant et surtout dans la partie B de ce mémoire où nous nous proposerons de surmonter les limites imposées par la plaque photographique.

c) Autres phénomènes physiques intervenant lors d'une spectroscopie d'absorption

Dans l'analyse des deux paragraphes précédents, nous n'avons pas tenu compte de phénomènes qui peuvent perturber la mesure, même dans le cas idéal d'un rayonnement incident monochromatique, et d'un détecteur parfait.

Présence du rayonnement X de fluorescence

Par suite de l'irradiation X incidente, chaque atome est susceptible de réémettre un rayonnement X de fluorescence. Si le détecteur est sélectif en longueur d'onde, on peut négliger cet effet puisque le rayonnement de fluorescence a lieu à une longueur d'onde plus grande que le rayonnement incident. Par contre, avec un détecteur non sélectif, comme la plaque photographique, cet effet produit un signal qui s'ajoute au signal d'absorption.

Il faut distinguer la fluorescence de la matrice et la fluorescence due à l'élément analysé. On peut supposer en première approximation que la fluorescence de matrice est uniforme sur le champ d'analyse et qu'elle est identique pour les deux longueurs d'onde de part et d'autre du seuil d'absorption.

Par contre, la fluorescence due à l'élément recherché n'existe pas dans l'image enregistrée du côté basse énergie du seuil d'absorption.

Elle intervient sur l'image enregistrée à l'énergie immédiatement supérieure à celle du seuil d'absorption, là où l'élément a un coefficient d'absorption plus élevé. Dans ce cas, tout se passe comme si le saut du coefficient d'absorption était inférieur au coefficient tabulé d'une quantité proportionnelle au rendement de fluorescence.

Il y a donc deux termes perturbateurs dûs à la fluorescence :

- . un fond continu dû à la fluorescence de matrice, indépendant du signal "vrai",
- . un signal additif sur l'une des deux images, proportionnel à la masse surfacique de l'élément analysé.

La conjonction de ces deux facteurs a tendance à diminuer le contraste entre les deux images enregistrées de part et d'autre du seuil, et donc à minorer les concentrations mesurées par rapport au signal "vrai".

Présence de réflexions de BRAGG

Si une portion d'échantillon est formée d'inclusions cristallines orientées dans différentes directions, il peut y avoir réflexion de Bragg sur certains cristaux de cette partie, conduisant sur le détecteur à un renforcement (ou un affaiblissement) du signal sans lien avec la loi d'absorption classique en $e^{-\mu z}$. A la limite, si l'échantillon est un monocristal, l'image obtenue constitue une topographie, permettant en particulier d'étudier les défauts de ce cristal.

Influence des liaisons chimiques

L'existence de liaisons chimiques tend à modifier l'allure des seuils d'absorption. Par suite de la structure fine de la raie d'absorption (EXAFS) et du déplacement du seuil dû aux liaisons chimiques, la forme de seuil donnée sur la figure 12 prend l'allure suivante (Fig. 13) :

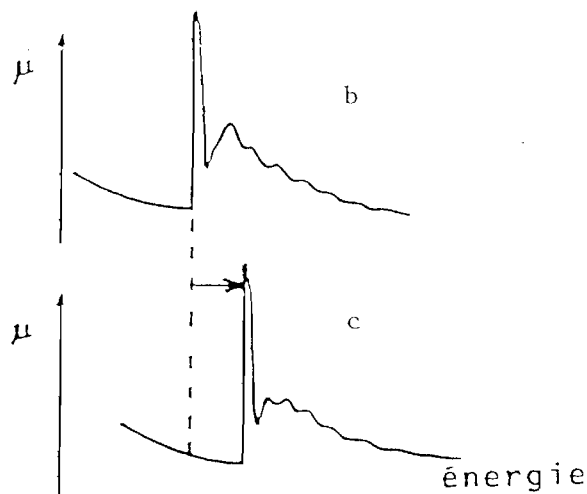
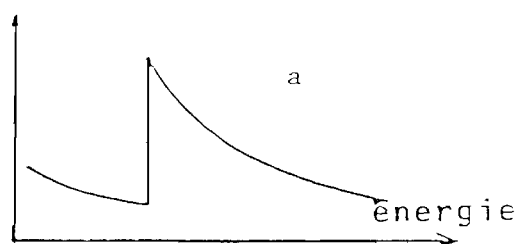


Fig. 13 (d'après [25])

- a) Allure d'un spectre d'absorption X au voisinage d'un seuil étudié à basse résolution en énergie
- b) Oscillations EXAFS observables sur les spectres à haute résolution
- c) Décalage du seuil dû aux liaisons chimiques dans l'échantillon

Dans la méthode par absorption différentielle, on se contente de deux points de cette courbe en supposant qu'ils correspondent à un spectre enregistré à basse résolution.

Dans notre cas, nous avons utilisé le seuil K des métaux de transition où les oscillations d'EXAFS sont peu nombreuses. Mais ce n'est pas toujours le cas (voir par exemple [17]) et il est nécessaire d'explorer l'ensemble du seuil, puis de faire choix de deux longueurs d'onde qui maximisent le contraste ; dans ce cas le coefficient d'absorption n'est pas celui qui est indiqué dans les tables traditionnelles, mais il peut être recalculé moyennant une calibration par échantillon-test.

En réalité, il serait tout à fait envisageable d'enregistrer un grand nombre d'éléments spectraux à haute résolution en λ pour chaque point de l'image. La concentration en éléments étant donnée par la "valeur moyenne" de la courbe de part et d'autre du seuil, et d'autres renseignements sur "l'environnement" de ces atomes étant, de plus, tirée de l'analyse fine du spectre d'EXAFS. Aujourd'hui, l'EXAFS a pris une extension considérable comme outil d'analyse avec le rayonnement synchrotron, mais les temps d'acquisition et le mode de détection rendent, encore pour l'instant, malaisée l'extension à une "cartographie" -EXAFS à grand champ et résolution spatiale. Peut-être l'avènement des nouvelles sources synchrotron encore plus "brillantes" permettra-t-il ces nouveaux développements.

2.1.3 - Comparaison avec d'autres méthodes

a) Comparaison absorption X / fluorescence X

Une autre méthode de microanalyse chimique utilisant les rayons X est la méthode par analyse du rayonnement de fluorescence (Figure 14).

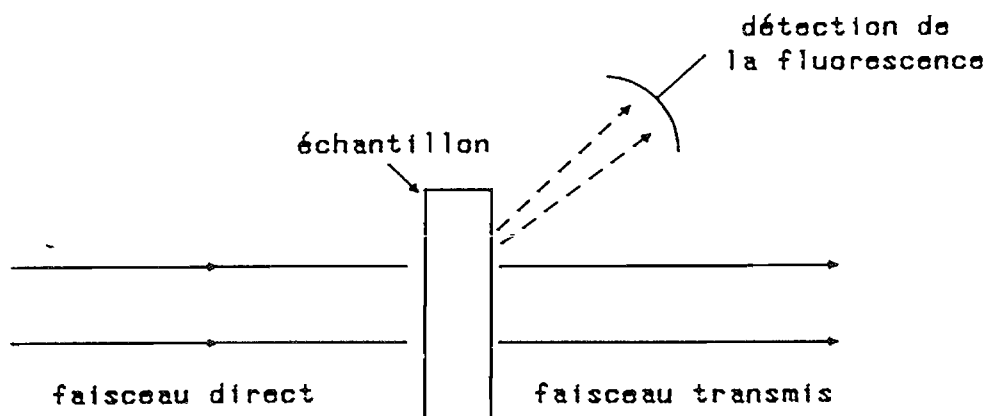


Figure 14 : Analyse par fluorescence avec le rayonnement synchrotron

Cette méthode est mieux adaptée que l'absorption à la détection d'éléments présents en faibles traces [30] mais la différence de sensibilité entre les deux méthodes n'est pas aussi grande que dans le domaine visible où la méthode par fluorescence permet théoriquement de détecter un seul atome par cm^3 .

De l'analyse de cette question faite par J. Kirz [31] il apparaît que :

- Pour le domaine qui nous intéresse, c'est-à-dire les éléments voisins des métaux de transition tels qu'on peut les étudier dans les nodules polymétalliques ($20 < Z < 40$), et pour des échantillons épais (épaisseur $> 10 \mu\text{m}$), on aurait intérêt à travailler en fluorescence plutôt qu'en absorption différentielle.
- Par contre pour les éléments légers, c'est la situation inverse qui se produit, c'est-à-dire qu'on a intérêt à travailler en absorption, surtout si on a une couche mince et si on peut travailler sur les seuils L, en X mous.

Cependant l'analyse par fluorescence n'est possible qu'avec un système de microscopie à balayage, car il faut pouvoir isoler le signal de fluorescence émis, du fond continu transmis, et explorer séquentiellement chaque élément image.

Or, c'est justement dans le domaine où la fluorescence serait la plus intéressante (X cristallographiques) qu'il est le plus difficile de réaliser un microscope X à balayage ; en effet, aux longueurs d'onde $\leq 2 \text{ \AA}$, les dispositifs focalisants pour X mous (zones de Fresnel, miroirs multicouches) ne "fonctionnent" plus, et il faut avoir recours à des miroirs en incidence rasante, ou à limiter le faisceau par un sténopé (d'où perte importante de flux). Signalons cependant que le premier microscope X à balayage (Horovitz et Howell, 1972 [11] a fonctionné, en fluorescence, à des longueurs d'onde de quelques $\text{\AA}$, mais que depuis, les expérimentateurs se sont plutôt tournés vers les X mous ($\lambda > 10 \text{ \AA}$).

Pour notre part, nous avons choisi la méthode d'imagerie par contact qui n'est pas sujette aux limitations des optiques X, qui a l'avantage d'offrir une excellente qualité d'image sur un très grand champ, mais qui ne peut fonctionner qu'en microranalyse d'absorption.

b) Comparaison absorption X / microsonde électronique

Cette comparaison est difficile, parce que la microsonde fournit une analyse de surface, et que les résultats sont exprimés en concentrations. L'absorption X fournit une analyse en volume ; ses résultats sont exprimés en masses par unité de surface.

De plus, l'information recueillie est présentée de manière différente. La microsonde fournit essentiellement des analyses ponctuelles. Lorsque des images sont obtenues, le rapport signal/bruit est en général mauvais par suite du faible temps d'analyse de chaque point. La microanalyse d'absorption X fournit par contre des images de l'objet de très bonne qualité, mais la sensibilité de cette méthode est souvent beaucoup plus faible que la sensibilité de la microsonde.

Prenons comme exemple la détection d'un élément tel que le fer. L.S. Birks [32] donne la valeur de 10^{-14} g pour la plus petite quantité détectable dans $10 \text{ }\mu\text{m}^3$ à l'aide de la microsonde électronique. Comme le pinceau d'électrons ne pénètre que sur quelques microns, la surface analysée qui correspond à ces $10 \text{ }\mu\text{m}^3$ est de l'ordre de $5 \text{ }\mu\text{m}^2$; ce qui fait par micron carré, une masse minimale de $2 \times 10^{-15} \text{ g}$.

Par absorption X sélective, on peut déduire de notre analyse du § A.2.1.2b) (toujours en prenant la détectivité $D = 1$) qu'il faudrait disposer de 6×10^8 photons par micron carré pour détecter ces 2×10^{-15} g de fer.

En disposant de 5×10^{10} photons.cm⁻².s⁻¹ (éclairage monochromatique de DCI non focalisé), il faudrait un temps de pose irréaliste de plus de 10^6 secondes pour arriver, par absorption X, à la sensibilité de la microsonde en analyse ponctuelle. On peut, certes, en microanalyse d'absorption, gagner en sensibilité en choisissant des longueurs d'onde plus grandes (seuil L des métaux de transition) et en concentrant le faisceau synchrotron sur un champ utile plus restreint (par des miroirs en incidence rasante). La sensibilité de l'analyse par absorption X reste inférieure, nous semble-t-il, pour les éléments de transition, à celle de la microsonde électronique, bien que le rapport des sensibilités tende à s'inverser pour les éléments légers.

L'intérêt actuel de la microanalyse d'absorption X est le grand champ. Dans le cas d'objets à structures complexes, il est intéressant de pouvoir relier sur un grand champ la concentration des éléments à la morphologie de l'échantillon en utilisant une méthode non destructive. De telles cartes analytiques peuvent être ainsi obtenues pour les éléments les plus abondants dans l'objet par l'association de la microradiographie et de l'absorption X sélective. La détection des éléments de faible concentration par une méthode non destructive doit par contre être réalisée à l'aide d'une autre méthode de microanalyse, telle que la microsonde électronique. Cette dernière méthode permet difficilement d'avoir une image d'ensemble sur un cm² de l'échantillon.

2.2 - APPLICATIONS A LA MICROANALYSE A GRAND CHAMP PAR DETECTION PHOTOGRAPHIQUE DU RAYONNEMENT SYNCHROTRON

2.2.1 - Principes de la méthode

a) La source

Nous avons travaillé sur la ligne de lumière centrale de l'anneau DCI au L.U.R.E. (Orsay). La figure 15 montre la géométrie du faisceau utilisé. Pour plus de clarté, cette figure ne montre pas le monochromateur, dont l'influence sur la géométrie du faisceau se traduit simplement par une translation (double réflexion sur les plans parallèles d'un cristal Si220) et une limitation par fentes.

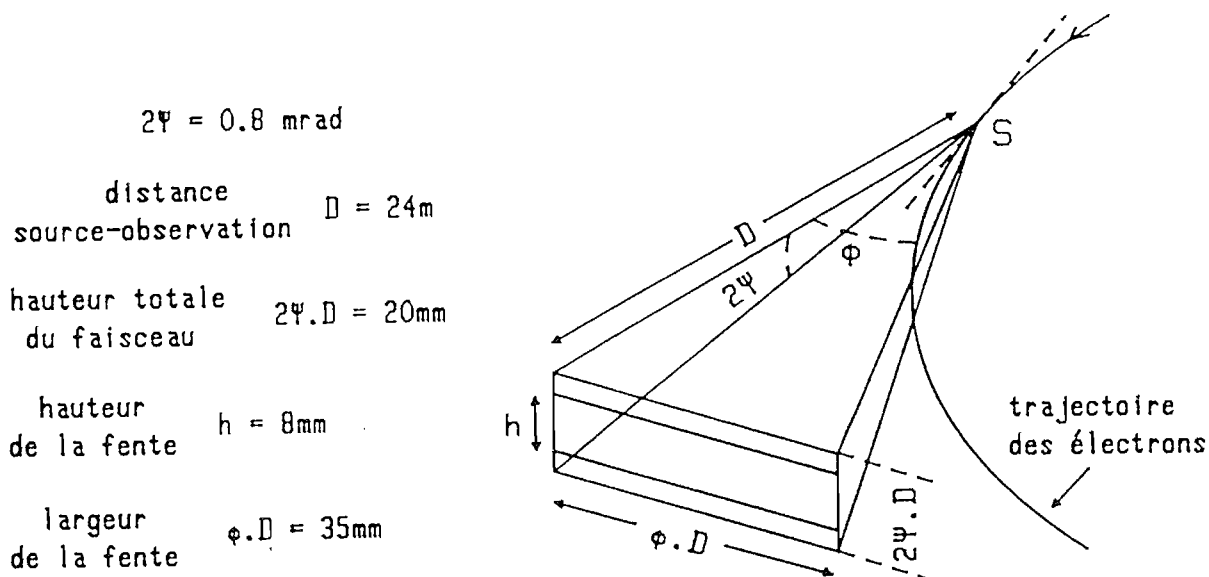


Figure 15 : Schéma du faisceau synchrotron utilisé au LURE - DCI

L'éclairement X monochromatique est disponible dans la bande 1 à 3 Å avec le monochromateur Si220 ; le nombre de photons disponibles est de l'ordre de 10^{10} à $10^{11} \text{ photons.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ pour une bande passante de 10^{-4} Å centrée sur 1,6 Å [33, 34, 96].

Pour une discussion précise de la comparaison entre tube X classique et rayonnement synchrotron, voir l'Annexe 1 en fin de ce mémoire.

b) Montage expérimental

La figure 16 présente le schéma du montage utilisé pour l'enregistrement des microradiographies de contact.

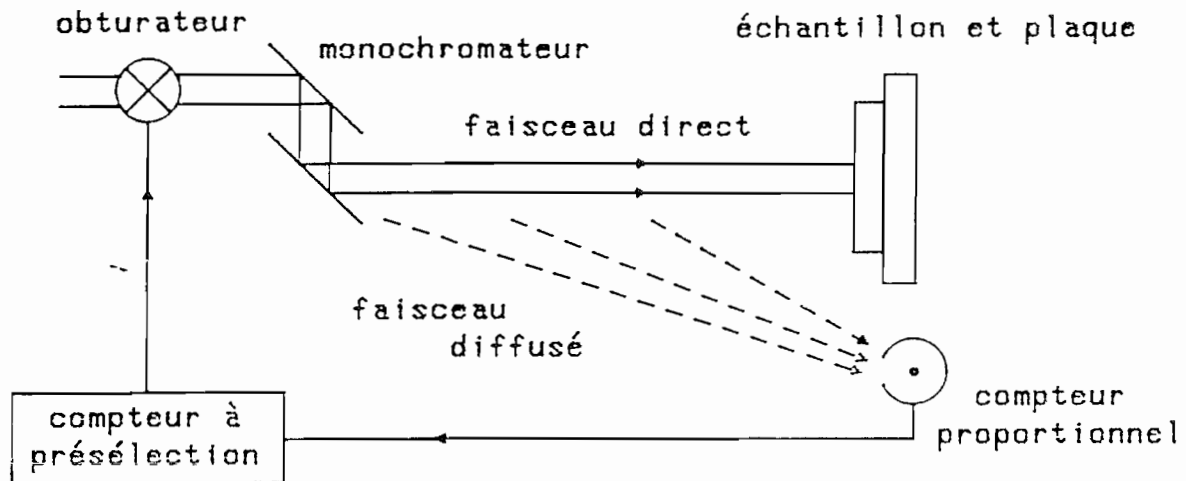


Figure 16 : Enregistrement d'une microradiographie

• Sortie de ligne de lumière

Nous n'avons représenté ici que l'extrémité de la ligne de lumière, qui est seule accessible aux utilisateurs. Le monochromateur est placé sous vide primaire pendant la pose. Compte tenu des longueurs d'onde X utilisées ici, on peut placer le montage de microradiographie dans l'air, à 10-20 cm de la fenêtre de sortie du monochromateur. Cette possibilité de travailler à l'air simplifie grandement le montage puisque le changement de plaque et d'échantillon ne nécessitent pas de mécanique sous vide ni de remise à l'air de l'extrémité de ligne (ce qui ne serait pas le cas en X mous, où tout le montage doit être sous vide).

• Echantillon et plaque

Les échantillons sont des lames géologiques de 10 à 50 μm d'épaisseur. Ces lames sont collées au baume sur une feuille de mylar (épaisseur : quelques microns) tendue sur un cadre en dural. Pendant la pose, ce porte-échantillon est tenu pressé contre la plaque qui est contenue dans un châssis spécial.

La face d'entrée du châssis est tendue d'une feuille de plastique opaque à la lumière, mais transparent aux rayons X (Fig. 17 et 18).

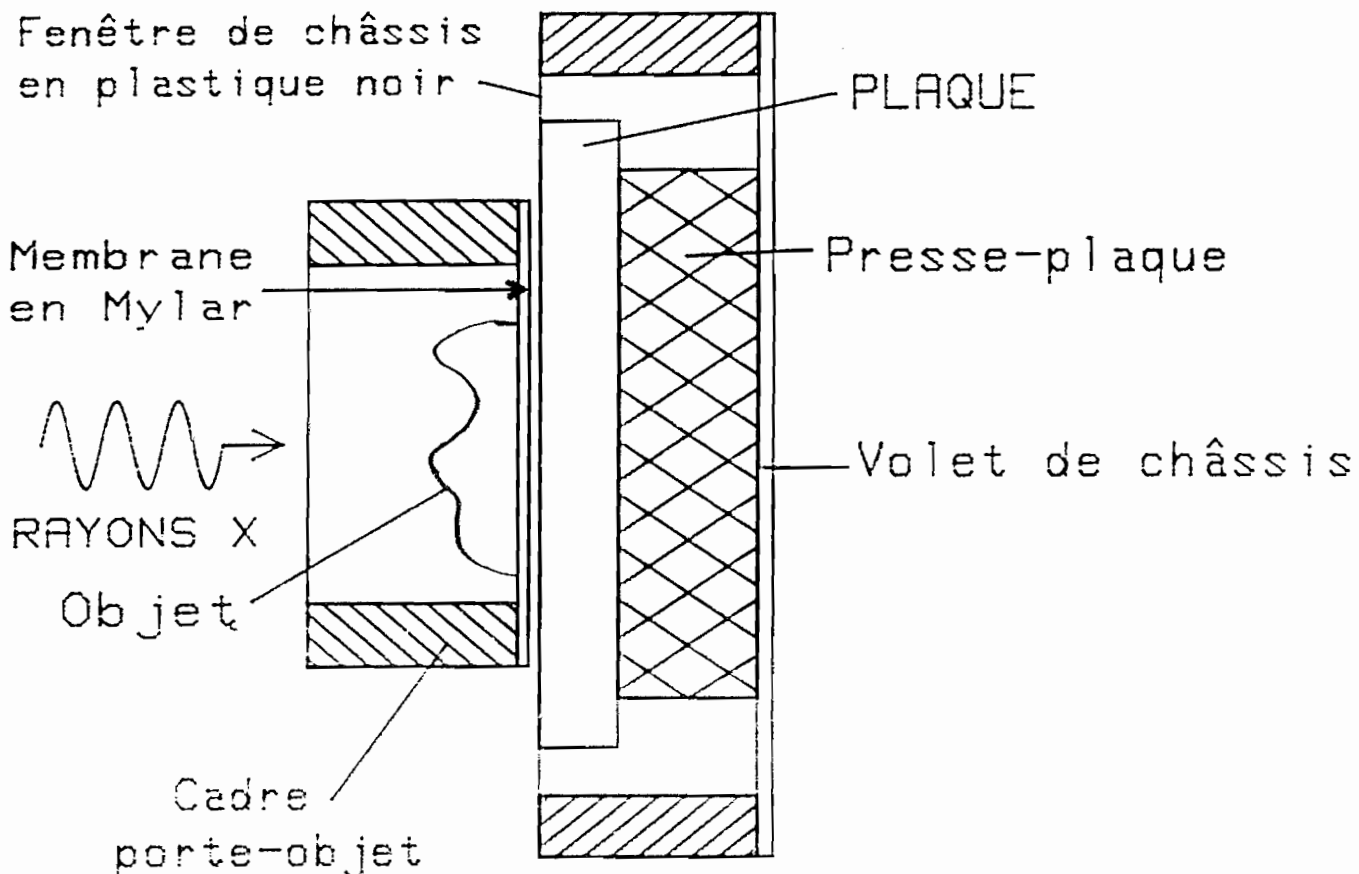


Figure 17 : Détail du montage de l'objet en position d'enregistrement

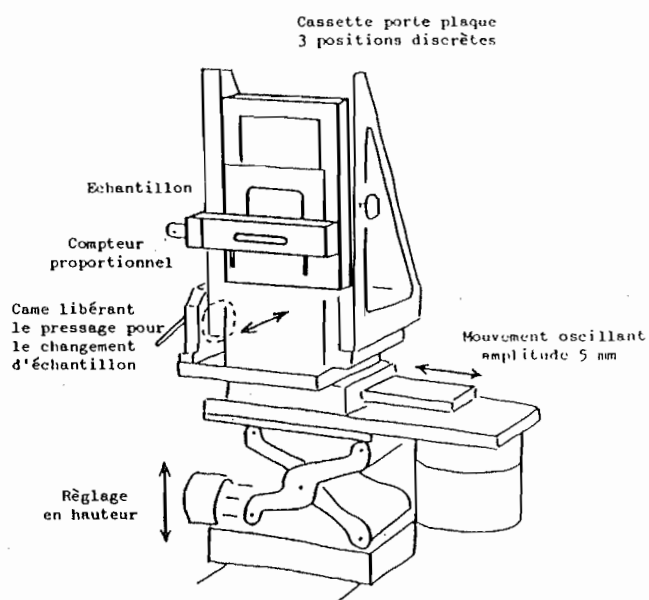
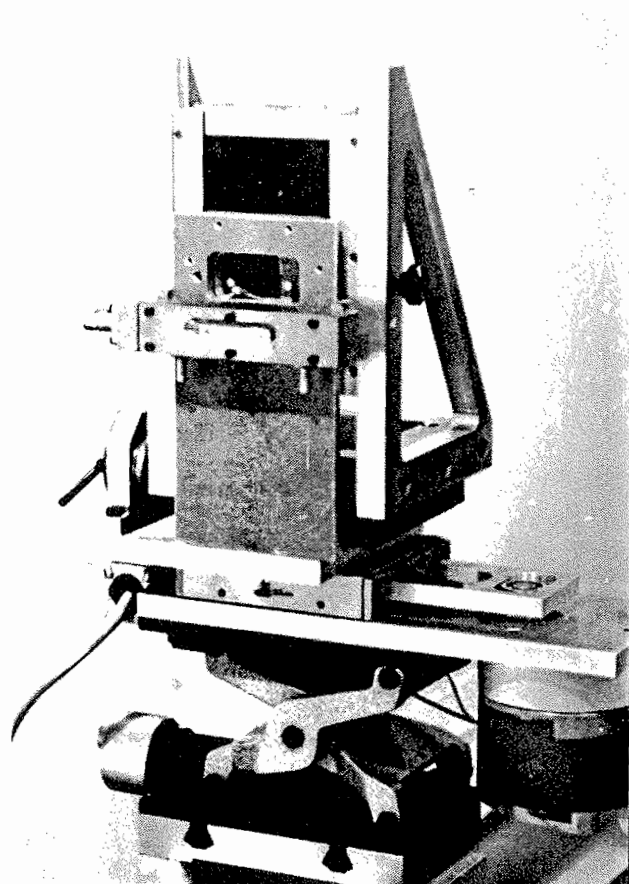


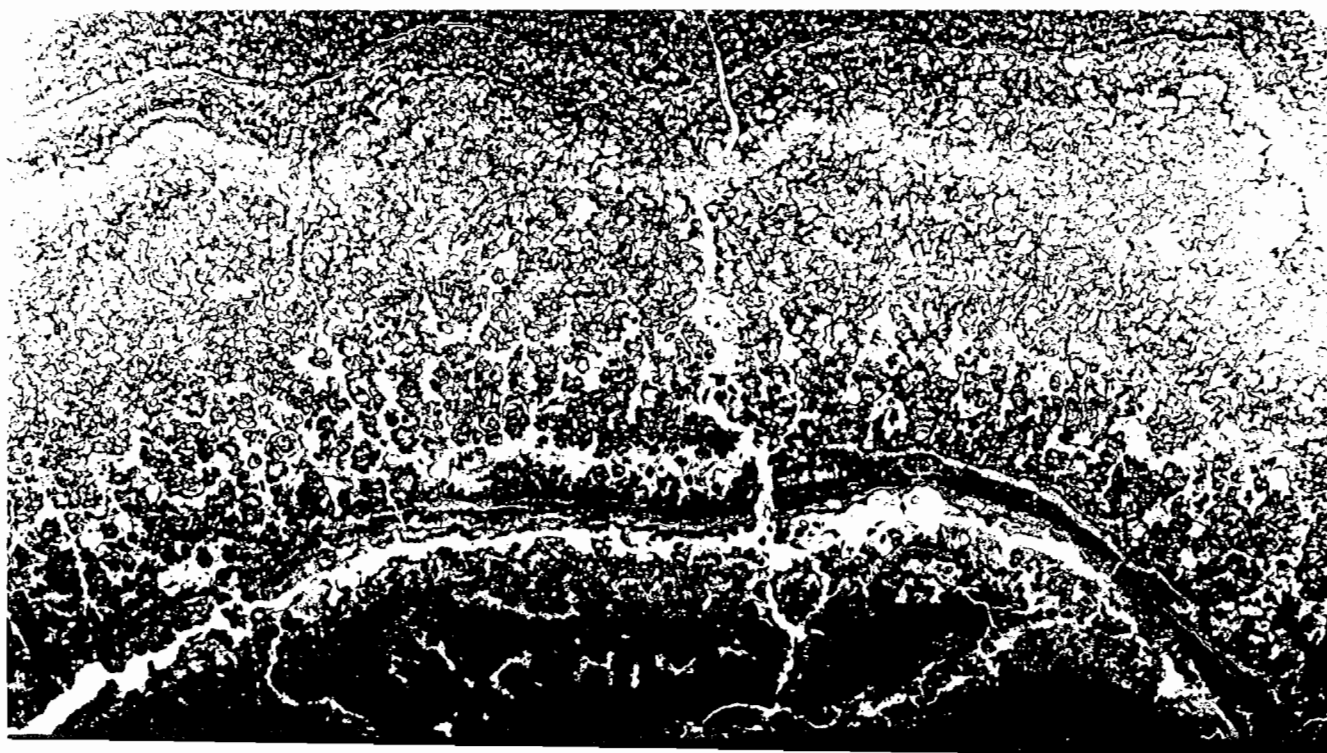
Figure 18 : Dispositif d'enregistrement des microradiographies

- Réglage de l'exposition

Afin de compenser la décroissance de l'intensité du faisceau synchrotron au cours de la séance, nous utilisons un posemètre basé sur la mesure du rayonnement diffusé dans l'air entre la sortie du monochromateur et l'échantillon. De cette façon, la lumination optimale déterminée au début de l'expérience est maintenue constante puisque la pose n'est arrêtée que lorsque le compteur a reçu un nombre fixé de photons diffusés, proportionnel au nombre de photons reçus par l'échantillon.

Le temps typique d'exposition avec les plaques Kodak haute résolution type 1A, est de l'ordre de 5 à 15 minutes en rayonnement monochromatique.

La figure 19 montre un exemple d'image ainsi obtenue par microradiographie d'un échantillon de nodule polymétallique.



— 1 mm

Figure 19 : Agrandissement photographique d'une microradiographie d'un échantillon de nodule polymétallique

c) Exploitation quantitative en microanalyse d'absorption

A l'aide du montage précédemment décrit, on enregistre sur une même plaque un coin de calibration et 2 images d'un même objet pour deux longueurs d'ondes choisies de part et d'autre d'un seuil d'absorption de l'élément recherché. Une zone d'intérêt étant choisie visuellement sur des agrandissements photographiques, on analyse au microdensitomètre* les deux plages exactement homologues prises sur chacune des deux images.

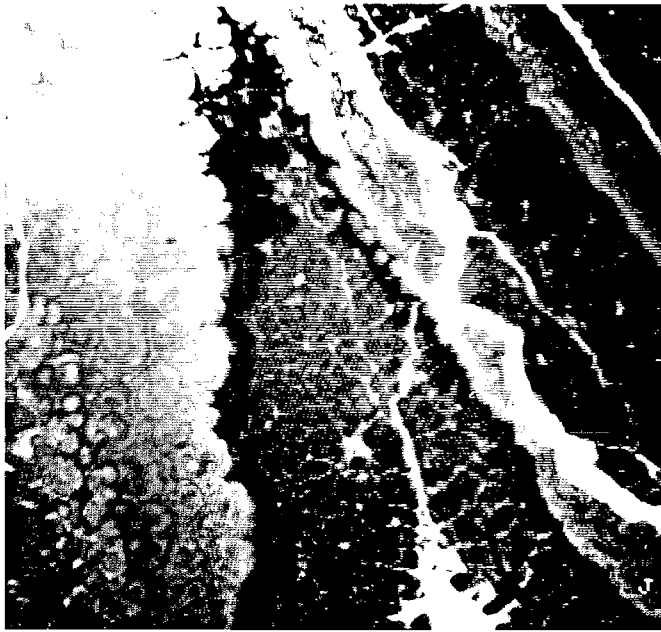
A ce stade, la difficulté est d'aligner exactement les deux zones homologues. Compte tenu du grand contraste des images obtenues, il est nécessaire de réaliser cet alignement à une fraction de pixel près (c'est-à-dire quelques microns pour une fente d'analyse de 10 à 20 μm). Cette superposition précise est possible à cause de la haute stabilité dimensionnelle des plaques. La procédure d'alignement consiste lors de l'enregistrement à observer sur la console de visualisation l'image obtenue par différence des deux images homologues. Celles-ci étant très voisines, tout écart en rotation ou en translation se manifeste dans l'image soustraite par des liserés surlignant les fronts raides de l'image.

L'optimisation de l'alignement résulte de la minimisation de ces "effets" de bord. (Pour plus de détails, nous renvoyons le lecteur à notre thèse de 3^e cycle [4]).

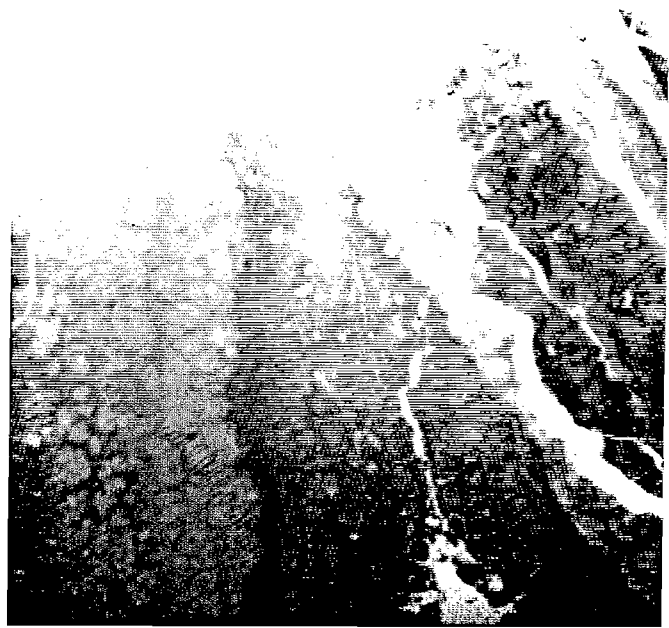
Lorsque l'alignement est réalisé, on dispose après numérisation de deux fichiers-images dont les données permettent par traitement informatique de constituer une carte des masses surfaciques de l'élément considéré. Cette carte est visualisée en niveau de gris avec la convention suivante : la présence de l'élément est traduite par une plage d'autant plus claire que sa masse surfacique est plus élevée.

Un exemple d'images numériques illustrant l'ensemble de ce traitement est présenté sur la figure 20 qui montre comment on obtient la répartition de manganèse dans un échantillon de nodule polymétallique.

* Travail effectué à l'aide du microdensitomètre et de ses périphériques au Centre de Dépouillement et de Synthèse des Images (Orsay)



a



b

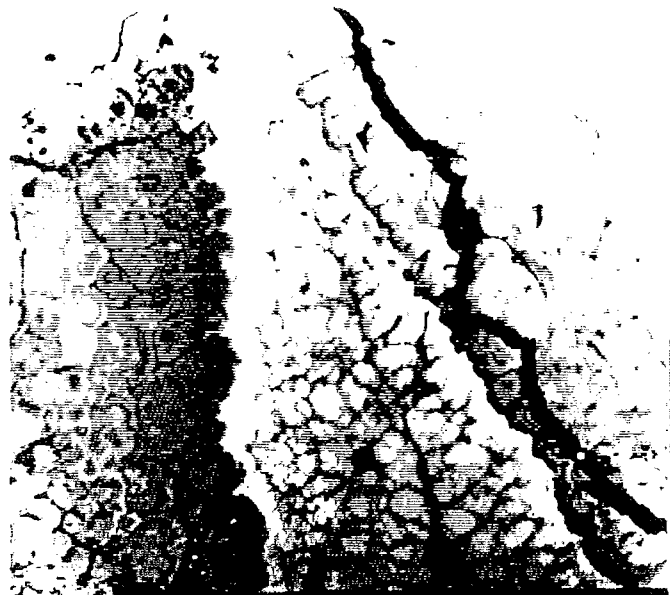
Figure 20 :

Exemple de traitement numérique
en microanalyse d'absorption au
voisinage d'un seuil :
localisation du manganèse

Résolution : 256×256 points
de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$

Champ : $5 \times 5 \text{ mm}^2$

- a) image numérique obtenue
d'après une portion de cliché
enregistré du côté du seuil K
de Mn où l'absorption est
maximale
- b) Image homologue correspondant
au minimum d'absorption de Mn
au seuil K
- c) Image traitée montrant (zones
claires) la localisation de Mn



c

L'ensemble du traitement numérique est résumé par l'organigramme ci-dessous (Fig. 21) :

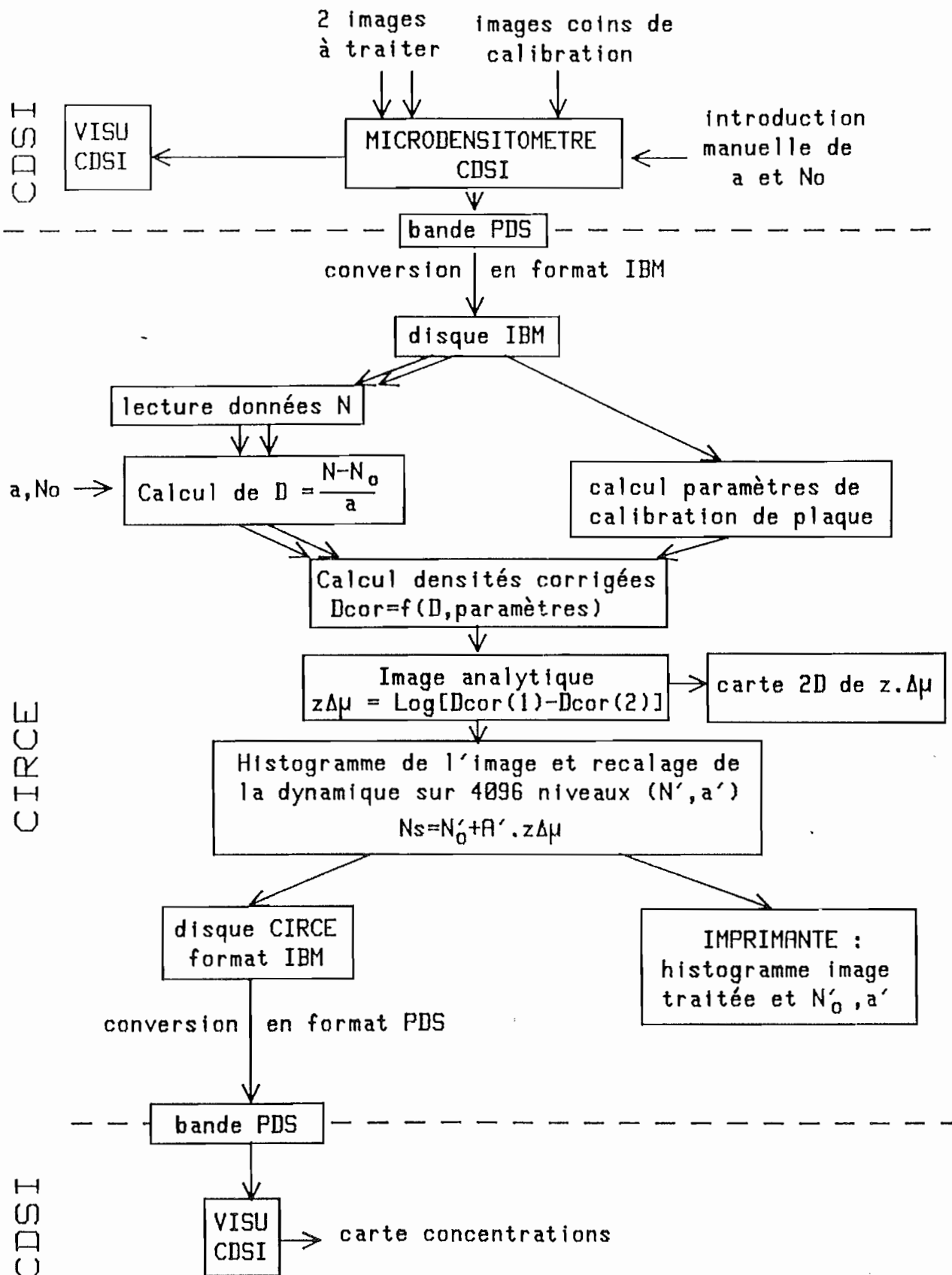
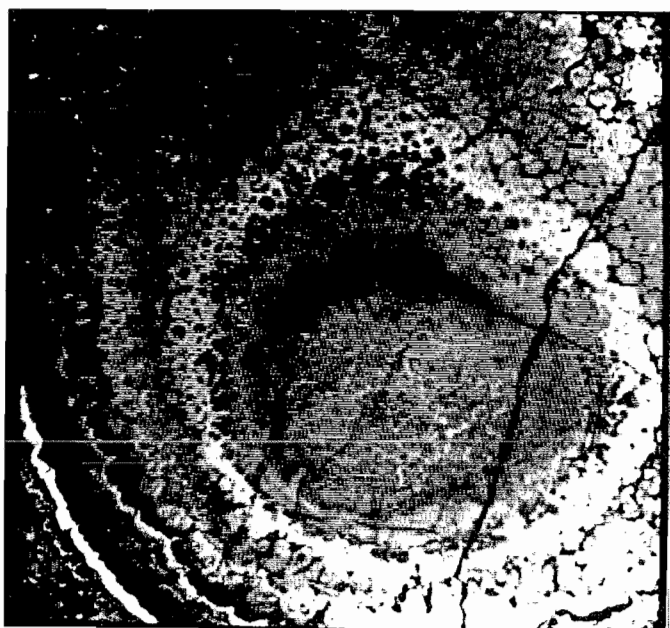


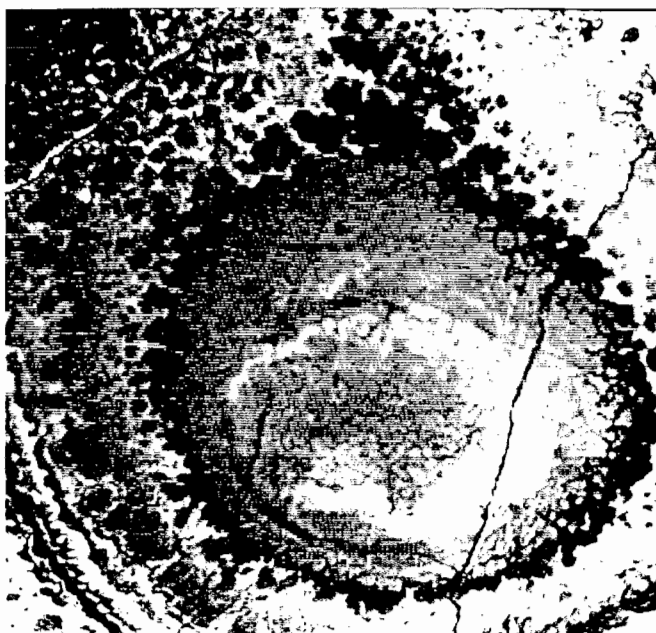
Figure 21 : Organigramme du traitement des clichés numérisés

2.2.2 - Exemples de résultats

En collaboration avec le Pr. Steinberg (Orsay), nous avons étudié la répartition du fer, nickel et manganèse dans des échantillons de nodules polymétalliques pour lesquels le manganèse est l'élément majeur [35]. Un exemple de carte de répartition pour ces trois éléments est donné sur la figure 22. La convention de représentation sur ces images est : blanc lorsque l'élément est présent, noir s'il est absent.



a:Mn



b:Fe

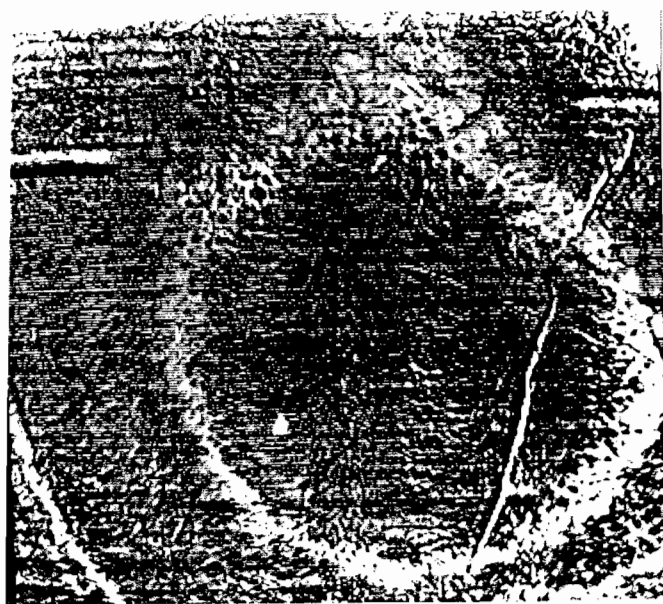
Figure. 22 : Exemple de cartes de répartition des métaux de transition dans une coupe de nodule polymétallique

Résolution : 256×256 points
de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$

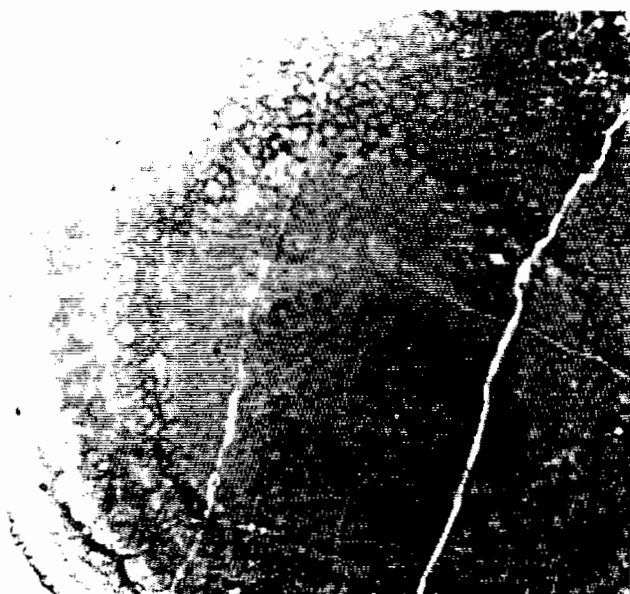
Champ couvert : $5 \times 5 \text{ mm}^2$

convention : le blanc représente la présence de l'élément recherché.

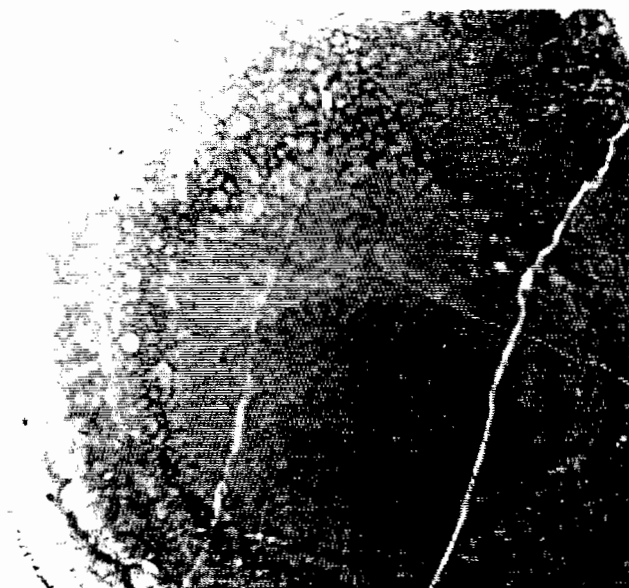
On notera la corrélation positive Mn/Ni et l'anti-corrélation Mn/Fe



c:Ni



a

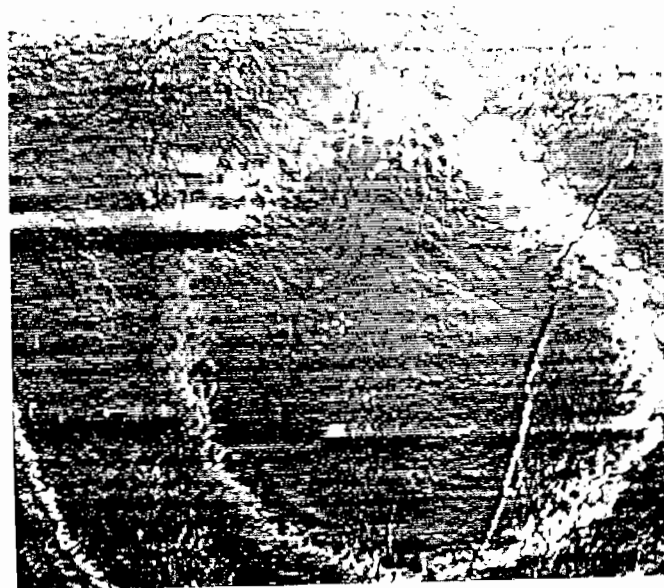


b

Figure 23 : Recherche du nickel
(teneur 3 à 4 %)

a et b : les deux clichés enregistrés de part et d'autre du seuil du nickel ne sont pas discernables à l'oeil.

c : image résultant du traitement $\text{Log}(N_2) - \text{Log}(N_1)$ à partir des clichés a) et b) avec recadrage de la dynamique. La zone circulaire de localisation du nickel n'aurait pas pu être mise en évidence sans traitement numérique.



c

Note : les traînées horizontales sont des artefacts produits par les défauts de réflectivité [4] des cristaux de monochromateur.

Une particularité très intéressante de ces images est qu'on met en évidence sur un grand champ ($5 \times 5 \text{ mm}^2$ ici) les corrélations spatiales entre les concentrations. On a une corrélation positive Mn/Ni et une corrélation négative Mn/Fe. De telles corrélations sont bien connues des géologues pour ce type de nodules, mais jusqu'à présent on ne connaissait que les corrélations déduites des analyses d'un très grand nombre d'échantillons, soit par dosage chimique après broyage, soit par étude locale à la microsonde électronique, avec un champ de quelques dizaines de microns.

Par ces méthodes, il aurait été très difficile de mettre en évidence la présence du nickel dans toute la zone circulaire apparaissant sur la figure 22.

D'autre part, il semble que la corrélation Mn/Ni ne soit pas systématique. En effet, d'autres régions à forte teneur en manganèse que nous avons analysées n'ont pas révélé la présence de Nickel, du moins dans la limite de la précision expérimentale.

Signalons que la répartition du nickel telle qu'on peut la voir sur la figure 22c ne peut pas apparaître par simple comparaison visuelle des clichés. On pourra en juger sur la figure 23 qui présente les 2 images enregistrées de part et d'autre du seuil du nickel et l'image analytique obtenue par soustraction numérique et recadrage de la dynamique.

2.2.3 - Discussion des résultats

a) Analyse de Mn, Fe, Ni dans les nodules polymétalliques : nos résultats

L'analyse par absorption X au voisinage d'un seuil donne directement un résultat en masses surfaciques de l'élément recherché. Ces résultats sont stockés sur bande magnétique à l'issue du traitement, sous la forme d'un réseau bidimensionnel correspondant aux images visualisées. Mais les résultats d'analyse s'expriment le plus souvent en concentrations. Dans un cas idéal, il suffirait de connaître l'ensemble des masses surfaciques des éléments présents dans l'échantillon pour connaître les concentrations ; or, nous n'avons analysé que quelques éléments.

On peut cependant remonter à une concentration c , que nous donnons dans le tableau ci-après, si on sait estimer la masse volumique et l'épaisseur locales de l'échantillon.

- La densité moyenne de ces nodules est estimée à : $\rho = 4 \text{ g.cm}^{-3}$ dans les zones minéralisées.
- L'épaisseur de l'échantillon est de l'ordre de : $e = 30 \text{ }\mu\text{m}$
On en déduit la concentration : $c = m/pe$.
Echantillon : celui de la figure 22.

Absorption X différentielle	Mn	Fe	Ni
Zone de prédominance Mn/Ni	28 %	< 1,5 %	2 à 3 %
Zone de prédominance de Fe	15 %	10 %	< 1 %

b) Comparaison avec les résultats donnés par d'autres méthodes d'analyse

• Dosage chimique

Il s'agit de l'analyse chimique d'un grand nombre de nodules du même type géologique que le nôtre, après broyage. Les concentrations obtenues sont les suivantes :

dosage chimique classique	Mn	Fe	Ni
valeur moyenne sur un ensemble de nodules du même type morphologique	22,5 %	8,6 %	1 %

Il apparaît que ces résultats sont systématiquement inférieurs à ceux qu'on obtient par analyse locale de nos échantillons, parce que la zone riche en métaux de transition que nous avons étudiée est située à l'extérieur du nodule (le cortex).

Par broyage, on prend également en compte le noyau du nodule qui n'a pas d'intérêt géochimique.

En outre, les échantillons du nodule que nous avons étudiés ont été choisis (parmi les nodules d'un type) pour leur teneur particulièrement élevée en manganèse (30 à 40 %).

- Fluorescence X au microscope électronique à balayage (analyse en énergie)

Notre échantillon a été analysé sur la même zone que la figure 22 au Laboratoire de Géochimie et Sédimentologie d'Orsay et les résultats sont les suivants :

MEB - fluorescence X	Mn	Fe	Ni
zone de prédominance Mn/Ni	35 %	1,7 %	3,4 %
zone de prédominance Fe	29 %	16 %	0,3 %

• Discussion

La comparaison de nos résultats avec ceux obtenus au microscope à balayage fait apparaître une sous-évaluation systématique des concentrations obtenues par la méthode d'absorption X différentielle.

Rappelons tout d'abord que dans toute autre méthode de microanalyse, il est nécessaire de faire intervenir de nombreux facteurs correctifs : en particulier dans le cas de la microsonde électronique, les corrections d'absorption et de fluorescence secondaire sont importantes. Une évaluation précise de ces facteurs correctifs nécessite à la fois d'affiner les modèles théoriques, de réaliser des échantillons de calibration et de tester l'appareillage sur un grand nombre d'expériences.

Dans notre cas, il existe un certain nombre de phénomènes perturbateurs qui tendent à faire sous-estimer systématiquement les concentrations calculées par suite de l'affaiblissement du contraste entre les deux images :

- présence d'harmoniques non filtrés ($\lambda/2$, $\lambda/3$) à la sortie du monochromateur (accordé sur λ). La plaque photographique étant un détecteur non sélectif en énergie, la contribution des harmoniques est enregistrée additivement et de façon identique sur chaque image ; ce qui tend à diminuer la différence entre les images lorsqu'on passe d'un côté à l'autre du seuil. Ce problème peut être résolu à l'aide de nouveaux monochromateurs à réjection d'harmoniques [36].

- présence du rayonnement de fluorescence

Comme nous l'avons souligné au § A.2.1.2c, la fluorescence de l'ensemble des éléments autres que celui analysé ajoute en moyenne un fond continu dont l'effet est additif, analogue à celui des harmoniques. La fluorescence de l'élément analysé donne une diminution apparente du saut d'absorption à travers le seuil, donc affaiblit l'image analytique de l'élément seul, mais ne peut pas faire apparaître de structure inexistante.

On peut remarquer que dans notre méthode les facteurs correctifs à appliquer sont assez faibles (1 à 2) alors que dans la microsonde électronique, par exemple, ceux-ci peuvent être d'un facteur 10 et plus dans certains cas.

c) Sensibilité de la méthode photographique

Les limites de détection d'un élément par notre méthode sont fixées par :

- . la précision des mesures photométriques (bruit et dérives de la chaîne de mesure),
- . les fluctuations de granularité de plaque.

D'après des tests effectués sur le microdensitomètre du CDSI [37] avec une fente de $10 \times 10 \mu\text{m}$, il apparaît que la meilleure précision relative des mesures en densité est de l'ordre de 0,5 % dans le domaine de 0,5 à 2D. C'est le domaine où nous nous plaçons dans la mesure du possible, car au-delà d'une densité de 2 à 2,5, le noircissement de la plaque photographique commence à saturer ; alors qu'en dessous de $D = 2$, la plaque a, en rayons X, une réponse très voisine d'une réponse linéaire (dans l'échelle : densité optique fonction de la lamination X), qu'il est facile de corriger à l'aide d'une courbe de calibration.

En ce qui concerne les fluctuations de granularité, les mesures que nous avons effectuées avec les plaques Kodak H.R. type 1A conduisent à une valeur quadratique moyenne de 1,3 % pour une densité de 1,2 et pour une fente de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ [38].

Pour des fentes d'analyse plus grandes, l'écart-type des fluctuations de granularité diminue comme la dimension linéaire de la cellule d'analyse (loi de Selwyn), ce qui conduit à attribuer aux plaques H.R., dans nos conditions expérimentales, une efficacité quantique équivalente de 0,2 % environ.

Pour une fente d'analyse de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ (cas des échantillons analysés sur les figures 20 et 21), c'est le bruit de la chaîne photométrique qui limite la précision des mesures de densité optique à 0,5 % environ.

Rappelons l'expression de la concentration minimale détectable, dérivée de la formule (24) :

$$C_{\text{mini}} = \frac{1}{m_0} \cdot \delta_{\text{m mini}} = \frac{1}{m_0} \cdot \frac{2D}{\Delta(\mu/\rho)} \frac{\delta N}{N} \quad (27)$$

où : m_0 = masse surfacique de l'échantillon (en g.cm^{-2})

D = seuil de détectivité = $\left(\frac{\text{signal}}{\text{bruit minimum}}\right)$

$\Delta(\mu/\rho)$ = saut du coefficient d'absorption (en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$)

$\delta N/N$ = précision relative sur le nombre de photons reçus par la plaque

→ limite ultime : bruit de photons $\delta N/N = 1/\sqrt{N}$

→ limite pratique : bruit de la chaîne photométrique

Pour les densités de l'ordre de 1, la réponse de la plaque en densité D est très proche de la proportionnalité du nombre N de photons reçus, donc :

$$\frac{\delta N}{N} \approx \frac{\delta D}{D} .$$

Exemple numérique : analyse du fer, au seuil K, dans les nodules

surface analysée : $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ (bruit de granularité négligé)

$m_0 = 10^{-2} \text{ g.cm}^{-2}$ (épaisseur ≈ 20 à $30 \mu\text{m}$, densité : 4)

$\Delta(\mu/\rho) \approx 400 \text{ cm}^2.\text{g}^{-1}$ pour le fer au seuil K

$\frac{\delta N}{N} \approx \frac{\delta D}{D} = 0,5 \%$ (chaîne photométrique du microdensitomètre)

→ $C_{\text{min}} = 0,25 \%$ pour un seuil de détectivité $D = 1$

ce qui conduit **en pratique** avec un seuil de détectivité raisonnable $D = 5$, à des concentrations limites de l'ordre de 1 % à 1,5 %.

Conclusion du chapitre A2

La détection photographique permet d'obtenir, sur un grand champ, d'excellentes images qui peuvent être exploitées quantitativement en microanalyse d'absorption différentielle. L'intérêt du grand champ est clair dans le cas d'objets à structures particulièrement complexes pour lesquels on désire relier "l'image chimique" à "l'image morphologique". En particulier la grande zone circulaire contenant du nickel (Fig. 22 et 23) aurait été très difficile à mettre en évidence par une méthode locale telle que la microsonde électronique.

En ce qui concerne les résultats quantitatifs, les valeurs numériques que nous avons obtenues peuvent être considérées comme satisfaisantes, compte tenu des phénomènes parasites à corriger ; néanmoins il apparaîtrait souhaitable d'améliorer la sensibilité de la méthode afin de pouvoir détecter des éléments dont la concentration est inférieure au pourcent.

La suite de ce mémoire va tenter de répondre à cette question.

CONCLUSION DE LA PARTIE A

Nous avons discuté dans cette première partie des possibilités théoriques de la microanalyse d'absorption X au voisinage d'un seuil, et nous avons présenté les résultats que nous avons obtenus par détection photographique quantitative du rayonnement synchrotron.

Résumons les résultats obtenus

- . La **résolution spatiale** est actuellement limitée à 5 μm par notre système d'analyse (plus petite fente du microdensitomètre).
- . Le **champ** n'est limité que par la surface du faisceau synchrotron, c'est-à-dire : 2,5 cm^2 .
Cependant, l'importance des fichiers à manipuler nous a conduits à restreindre dans cette étude le champ à des valeurs de l'ordre de 1 cm^2 .
- . La **limite de détection** peut être estimée à 1,5 % en concentration pour les échantillons que nous avons étudiés. Ceci correspond en masse surfacique à une limite de $2 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2$.

La question est donc : comment améliorer les caractéristiques de la méthode ? Est-ce possible de conserver la plaque photographique comme détecteur, en raffinant la procédure ?

- En ce qui concerne la résolution spatiale, nous avons vu que l'observation optique limitait à des valeurs de l'ordre du micron : il est donc très difficile d'améliorer sur ce point ; de plus, l'observation quantitative au microdensitomètre impose en pratique des dimensions de fentes de quelques microns.
- Mais la limitation la plus importante imposée par les plaques nous semble être le seuil de sensibilité.

En supposant négligeable le bruit de la chaîne photométrique (qu'il est possible de réduire en allongeant la constante de temps de la chaîne de mesure et en refroidissant l'électronique par exemple), la limite de sensibilité est imposée par les fluctuations de granularité de la plaque.

Celle-ci se comporte comme un compteur de ~~des~~ photons d'efficacité quantique équivalente faible (0,2 % pour les plaques haute résolution), ce qui conduit à des temps de pose de 5 à 15 minutes (Par comparaison, un film radiologique à faible résolution et haute sensibilité est saturé en quelques secondes dans les mêmes conditions). On pourrait penser que cet inconvénient est compensé par l'utilisation des sources synchrotron futures qui permettront de gagner un facteur 10 à 100 sur l'éclairement X disponible. En fait, au lieu de saturer la plaque en quelques minutes comme actuellement, il ne faudra peut-être plus que quelques secondes : **mais le nombre de photons reçus dans chaque élément d'image ne sera pas augmenté pour autant, et par là le rapport signal/bruit ne sera pas amélioré.**

De cet effet de plafonnement du rapport signal sur bruit, nous tirons la conclusion suivante :

En conservant l'idée du **détecteur d'images quantitatives à grand champ**, il faut remplacer la plaque photographique par un autre type de détecteur qui présenterait, idéalement, les caractéristiques suivantes :

- résolution spatiale meilleure que $1\ \mu\text{m}$
- ne saturant pas, c'est-à-dire permettant de compter autant de photons qu'il est nécessaire
- ayant une efficacité quantique meilleure que la plaque photographique
- utilisable dans une large gamme de longueurs d'onde X.

Bien entendu, toutes ces qualités ne pourront pas être réunies dans un seul détecteur ; il sera nécessaire de faire des choix. La partie B de ce mémoire se propose maintenant d'examiner comment les limites de la détection photographiques peuvent être dépassées et comment il est possible de satisfaire en partie aux exigences exposées ci-dessus.

P A R T I E B

-o0o-

ETUDE EXPERIMENTALE D'UN DETECTEUR D'IMAGES X

A GRAND CHAMP PAR SCINTILLATION GUIDEE

INTRODUCTION A LA PARTIE B

Nous venons de voir pourquoi il est nécessaire de remplacer la plaque photographique par un autre détecteur d'images afin d'améliorer les possibilités de la méthode de microanalyse par absorption différentielle au voisinage d'un seuil. Afin de pouvoir compter un nombre de photons aussi grand que possible, une solution -sinon la seule- consiste à remplacer la détection photochimique par une conversion des rayons X en particules d'énergie plus faibles, susceptibles d'être comptées en continu ; le but étant de conduire à la formation d'une image à grande dynamique susceptible d'être stockée dans une mémoire numérique.

C'est la solution retenue, dans le domaine de l'imagerie en X mous, à haute résolution ($< 0,1 \mu\text{m}$), par F. Polack et S. Lowenthal [18] ainsi que D.W. Turner, I.R. Plummer et H.Q. Porter [19] qui utilisent une conversion $X \rightarrow$ électrons par une photocathode.

Pour notre part, nous nous sommes intéressés au domaine des rayons X cristallographiques et au-delà (Energie $> 5 \text{ keV}$) où les détecteurs d'images existants ont des résolutions spatiales inférieures à celles de la plaque photographique (quelques microns).

Dans un **premier chapitre**, nous étudions les détecteurs d'images X actuellement existants, puis nous proposerons au **chapitre 2** un mode de détection utilisable avec le rayonnement synchrotron : la conversion $X \rightarrow$ visible par fluorescence guidée dans une matrice de microtubes remplis de scintillateur agissant comme des fibres optiques. Nous avons ainsi obtenu expérimentalement une résolution spatiale de l'ordre de $10 \mu\text{m}$.

Les avantages de ce mode de détection seront discutés au **chapitre 3**, ainsi que les possibilités d'application à la détection d'images en rayonnement synchrotron. En particulier, dans le cas de la microanalyse d'absorption au voisinage d'un seuil, nous étudierons les améliorations possibles par rapport à la détection photographique, c'est-à-dire meilleure sensibilité, meilleure efficacité quantique de détection et couplage du détecteur avec un dispositif d'acquisition d'images numériques.

CHAPITRE 1

LES DIFFERENTS DETECTEURS D'IMAGES X : CARACTERISTIQUES ET LIMITATIONS

INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous faisons une comparaison critique des caractéristiques des détecteurs d'images X actuellement utilisés, afin d'en souligner les qualités et les limitations en vue de l'application que nous proposons, c'est-à-dire la **micro-analyse chimique spatiale au voisinage des seuils d'absorption**.

Nous distinguerons tout d'abord deux types de détecteurs d'images X :

- les détecteurs photochimiques à image latente, fonctionnant en différé
- les détecteurs à émission de particules secondaires, susceptibles de fournir une image en temps réel.

C'est ce dernier type de détecteur qui est le mieux adapté à la **microscopie quantitative** avec le rayonnement synchrotron, comme nous l'avons expliqué en introduction.

Pour cela, nous étudierons plus particulièrement les points suivants :

- a) efficacité quantique de détection
- b) résolution spatiale
- c) compatibilité avec les hauts flux du type "synchrotron".

a - Efficacité quantique de détection

C'est le point important en vue des applications quantitatives, en particulier en vue de la microanalyse d'absorption. Pour cela, rappelons que dans le domaine des rayons X, c'est le bruit de photons qui est la limitation principale de la qualité des images.*

Considérons une cellule de résolution à l'entrée du détecteur qui reçoit pendant le temps Δt un nombre moyen de photons $N_0 \Delta t$. La statistique des photons étant poissonnienne, le rapport signal sur bruit s'écrit :

$$\left(\frac{S}{B}\right)_{\text{entrée}} = \sqrt{N_0 \Delta t}$$

A cette cellule de résolution correspond une cellule dans l'image finale pour laquelle le rapport signal sur bruit -pour le même temps Δt - est a priori plus faible.

L'efficacité quantique de détection (EQD) est définie par : [39]

$$EQD = \frac{(S/B)^2_{\text{sortie}}}{(S/B)^2_{\text{entrée}}} \quad (28)$$

Un détecteur schématique qui ne compte qu'une fraction η des photons transforme un processus poissonnien de densité N_0 en un autre de densité ηN_0 et de ce fait l'EQD d'un tel détecteur est égale à :

$$\frac{(\eta N_0 \Delta t)_{\text{sortie}}}{(\eta N_0 \Delta t)_{\text{entrée}}} = \eta \quad (29)$$

* A condition que les électroniques de détection soient à faible bruit, ce qui nécessite souvent un refroidissement (cas des détecteurs à semiconducteurs CCD par exemple).

• Cas d'un détecteur de particules secondaires

Dans le cas d'un détecteur qui convertit un photon X^* en une gerbe de particules secondaires d'énergie inférieure, on peut schématiser ainsi les propriétés statistiques de la détection (Fig. 24)

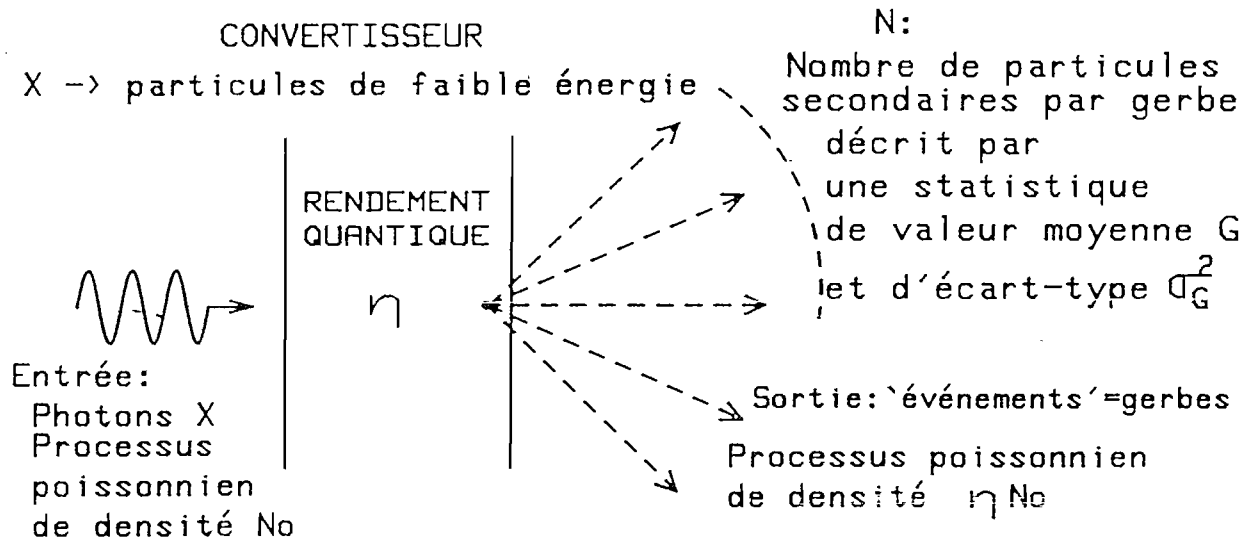


Figure 24 : Statistique du signal à la sortie d'un convertisseur d'images X

En général, le détecteur donne un signal qui résulte de la somme d'un grand nombre de gerbes de particules secondaires, intégrées sur un temps Δt .

L'ensemble du processus est alors équivalent à celui d'un photomultiplicateur qui n'aurait qu'un seul étage d'amplification de gain G , la cathode ayant un rendement quantique η . Un calcul classique [40] permet d'écrire la moyenne et la variance du nombre n de particules détectées pendant un temps Δt :

$$\bar{n} = \eta N_0 G \Delta t$$

$$\sigma_n^2 = \eta N_0 \Delta t (G^2 + \sigma_G^2)$$

ce qui conduit à l'expression suivant pour l'EQD :

$$EQD = \eta \frac{G^2}{G^2 + \sigma_G^2} \quad (30)$$

* Nous supposons le rayonnement X monochromatique, ce qui est le cas en microanalyse avec le rayonnement synchrotron, ou avec un tube X émettant sur une raie de fluorescence convenablement filtrée.

Dans le cas où on peut écrire $\sigma_G = \alpha G$ (Loi de Poisson $\alpha = 1$, Loi binômiale $\alpha = q < 1$), on obtient finalement :

$$EQD = \eta \cdot \frac{G}{G + \alpha} \quad (31)$$

En général, le facteur G est nettement supérieur à l'unité, parce qu'à un photon X de l'ordre de 100 à 10 000 eV correspondent des particules secondaires d'énergie de l'ordre de 10 eV.

On voit alors que l'EQD du détecteur est donnée par le facteur η comme dans l'expression simplifiée (29). Ceci sera vrai sous réserve que toutes les particules secondaires soient détectées.

Lorsque cette dernière condition n'est pas remplie, on peut modéliser simplement le comportement du détecteur en remplaçant dans l'expression (31) le facteur G par GT où T est le facteur de transmission des particules secondaires dans le reste du détecteur.

Dans le cas où $GT \ll 1$, supposant poissonniennes les fluctuations de GT , l'EQD s'écrit alors :

$$EQD \approx \eta GT \quad (32)$$

ce qui correspond simplement au cas où l'on détecte **au plus** une particule secondaire par photon incident.

Bien entendu, ce dernier modèle ne tient pas compte d'autres sources de bruit provenant d'étages d'amplification supplémentaires comme c'est le cas dans un intensificateur d'images.

b - Résolution spatiale

• Cas d'un détecteur linéaire, invariant par translation

Pour décrire rigoureusement le pouvoir résolvant d'un détecteur d'images, on donne sa courbe de fonction de transfert de modulation (FTM). Cette courbe, qui a en général l'allure de la figure 25 n'est définie a priori que pour un détecteur à réponse linéaire et invariante par translation.*

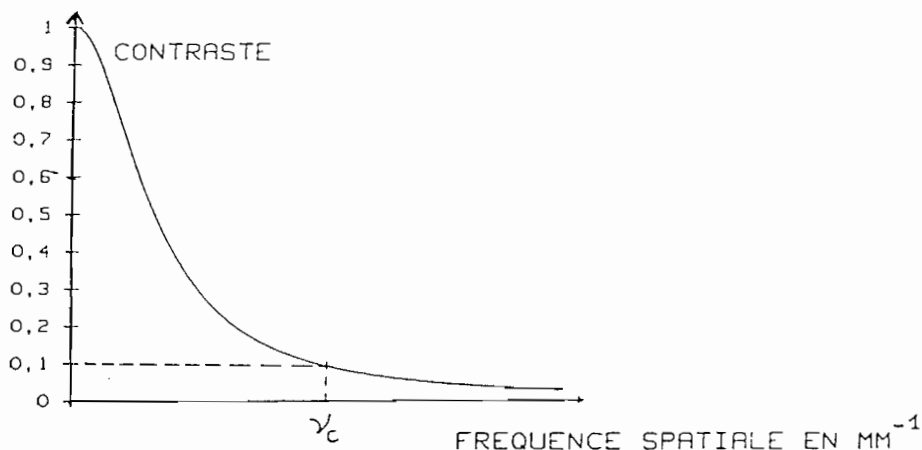


Figure 25 : Définition de la résolution spatiale d'un détecteur linéaire et invariant par translation par la fréquence de coupure ν_c de sa F.T.M. à 10 % de contraste

Si la mesure d'une FTM est une opération de routine dans le domaine de l'optique du visible, il y a des difficultés expérimentales importantes lorsqu'on veut mesurer cette courbe dans le cas d'imageurs X sensibles aux X durs et aux X mous. De plus, à supposer qu'on ait pu mesurer la courbe, ou la calculer théoriquement, il y a un certain arbitraire dans la définition de la résolution du détecteur, car il n'existe pas, en général, de fréquence spatiale de coupure nette ν_c .

Il est cependant raisonnable, pour fixer les idées, de choisir la coupure à 10 % de contraste environ. Ayant ainsi un bon ordre de grandeur pour ν_c , et comme il est plus "parlant" de définir la résolution en terme de période de coupure p_c :

$$p_c = \frac{1}{\nu_c}$$

* On peut étendre cette notion au cas d'un détecteur non linéaire en le définissant comme l'association d'un détecteur linéaire, invariant par translation, et d'une courbe de calibration non linéaire (cas des films photographiques)

- Cas d'un détecteur "mosaïque"

Dans le cas d'un détecteur tel que : galette de micro-canaux, galette de fibres conductrices d'images, mosaïque à semiconducteurs, on ne peut pas parler de F.T.M. Cependant, si le réseau détecteur a un pas a , il est légitime d'estimer la période de coupure à la valeur $p_c = 2a$, par référence au théorème d'échantillonnage. (Il faut au moins 2 "points de résolution" de dimension a pour "passer" une sinusoïde de pas p , donc : $p_c = 2a$).

c - Compatibilité avec les hauts flux

La plupart des détecteurs X utilisés avec des générateurs classiques sont prévus pour travailler avec des éclairagements qui ne dépassent pas 10^8 photons. $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Les détecteurs utilisés en astronomie sont prévus pour des éclairagements encore plus faibles. Avec le rayonnement synchrotron, les valeurs typiques sont 10^{10} à 10^{14} photons. $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$: il se pose alors fréquemment le problème de la saturation du détecteur. De plus, l'exposition prolongée à de fortes irradiations peut induire des phénomènes de vieillissement, voire de destruction, qui ne se posent pas aux faibles flux.

Ayant précisé l'objet de notre comparaison, nous passons maintenant à l'étude d'un certain nombre d'imageurs X actuellement utilisés, ou en projet. Dans cette étude, qui ne vise pas à être exhaustive, vu la rapidité avec laquelle le sujet évolue, nous ne traiterons pas des systèmes qui utilisent la réflexion ou la diffraction des rayons X pour former une image. Nous étudierons les détecteurs (généralement plans) utilisables en microscopie X de contact, plus particulièrement aux énergies supérieures à 1 keV ($\lambda < 10 \text{ \AA}$).

1.1 - DETECTEURS PHOTOCIMIQUES

Les plus utilisés en rayons X sont la plaque ou le film photographique (halogénures d'argent), et les résines photosensibles.

Il existe également d'autres effets photochimiques qui n'ont pas été utilisés en imagerie X haute résolution, surtout à cause de leur faible sensibilité.*

1.1.1 - Film photographique (halogénures d'argent)

Nous avons longuement étudié ce détecteur dans la partie A. Rappelons brièvement :

- . ses avantages :
 - sensible dans tout le spectre X
 - bonne résolution spatiale ($\approx 1 \mu\text{m}$)
 - possibilité d'image quantitative
- . ses inconvénients :
 - image en temps différé
 - dynamique limitée
 - exploitation numérique délicate
 - compromis efficacité quantité/résolution.

Précisons ces derniers points :

L'inconvénient majeur du film en tant que compteur de photons est le phénomène de saturation. Comme seul un nombre limité de photons peuvent être comptés, on ne peut pas améliorer le rapport signal sur bruit en augmentant le temps de pose.

En ce qui concerne l'efficacité quantique d'un film, elle peut être très bonne dans le domaine des X mous [41], mais elle devient faible au-delà de 5 keV, si **on désire conserver une haute résolution, meilleure que $10 \mu\text{m}$** . L'EQD tombe alors à des valeurs de moins de 1 %, selon l'épaisseur d'argent traversée. Par exemple, les plaques haute résolution que nous avons utilisées ont une efficacité quantique équivalente de l'ordre de 0,2 % à 7 keV, pour une épaisseur d'"émulsion" de $5 \mu\text{m}$.

Une bonne efficacité quantique au-delà de la dizaine de keV ne peut s'obtenir qu'en augmentant le pouvoir d'arrêt du film, c'est-à-dire l'épaisseur d'émulsion ; ou bien en associant le film à un écran "renforceur", c'est-à-dire un écran fluorescent ; ce qui se traduit -dans les écrans classiques- par une perte de résolution (voir § B1.2.5).

* On peut citer : la décoloration du papier radiosensible utilisé pour le repérage du faisceau synchrotron, et le brunissement des verres aux fortes irradiations.

1.1.2 - Résines photosensibles

Ces détecteurs sont très utilisés dans le domaine des rayons X mous (voir § A.1.2.2) ; ils ont permis, par la méthode de contact, d'obtenir les meilleures résolutions en imagerie X.

Pour le but que nous recherchons, les résines sont mal adaptées. En effet,

- . l'exploitation quantitative est très délicate et le nombre de "niveaux de gris" discernables est faible,
- . l'efficacité quantique est très faible au-delà de quelques keV.

De ce fait, les résines photosensibles n'ont pas, à notre connaissance, été utilisées comme détecteurs dans le domaine des X cristallographiques (1 à 10 keV) et a fortiori aux énergies plus élevées.

Pour conclure sur les détecteurs à image latente, on peut dire que leur inconvénient principal, en vue des applications quantitatives, c'est leur dynamique limitée qui interdit d'améliorer la qualité de l'image par un temps de pose prolongé (c'est-à-dire de compter plus de photons). On ne peut donc pas profiter pleinement des avantages du haut flux X du rayonnement synchrotron. C'est donc parmi les détecteurs "temps réel" qu'il faut chercher un détecteur adapté à notre problème.

1.2 - DETECTEURS A EMISSION DE PARTICULES SECONDAIRES

La détection des images en rayons X repose, dans la plupart des cas, sur une conversion en particules "secondaires" d'énergie plus faible que celle des photons X incidents : photons visibles, photoélectrons secondaires, paires électron-trou (dans le cas d'un semiconducteur).

Dans le cas d'une plaque photographique par exemple, l'image latente est effectivement formée par des photoélectrons secondaires, mais les charges ainsi formées restent piégées dans l'émulsion (la gélatine intervenant d'ailleurs pour beaucoup dans la sensibilité d'un film). Le fonctionnement "temps réel" d'un imageur X doit donc passer par l'émission continue des particules secondaires, comme l'indique le tableau ci-après (Tableau 2).

Type de détecteur	Particules secondaires
Photocathode	Photo-électrons secondaires
Galette de microcanaux	Photo-électrons secondaires
Chambre proportionnelle multi-fils	Photo-électrons + ionisation d'un gaz
Mosaïque de détecteurs semiconducteurs (CCD)	Electrons secondaires + création de paires électrons-trous dans un semi-conducteur
Ecran fluorescent	Photons U.V. ou visibles

Tableau 2 : Convertisseurs d'images pour rayons X

1.2.1 - Conversion X → électrons dans une photocathode

L'application de ce type de détecteur à la microscopie de contact X a été proposée pour la première fois par Huang et Möllenstedt [42]. Des images présentant une résolution de l'ordre de 0,1 μm ont alors été obtenues dès 1957, mais là encore les développements des microscopes électroniques et le manque de sources X intenses ont freiné le développement de cette méthode.

Rappelons le principe de fonctionnement d'une photocathode en rayons X (Fig. 26). L'absorption du photon X dans la photocathode s'accompagne de l'émission d'un photoélectron primaire, d'énergie voisine de celle du photon incident (effet photoélectrique, effet Auger, effet Compton dans le cas des énergies élevées).

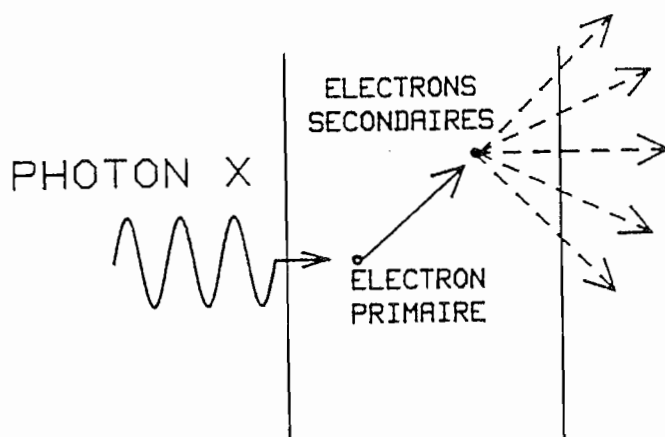


Figure 26 : Conversion X → électrons dans une photocathode

Ce photoélectron primaire induit à son tour des photoélectrons secondaires dont l'énergie est très faible (de l'ordre de quelques eV) [43]. Le spectre d'énergie des électrons dans une photocathode utilisée en transmission prend l'allure suivante (Fig. 27)

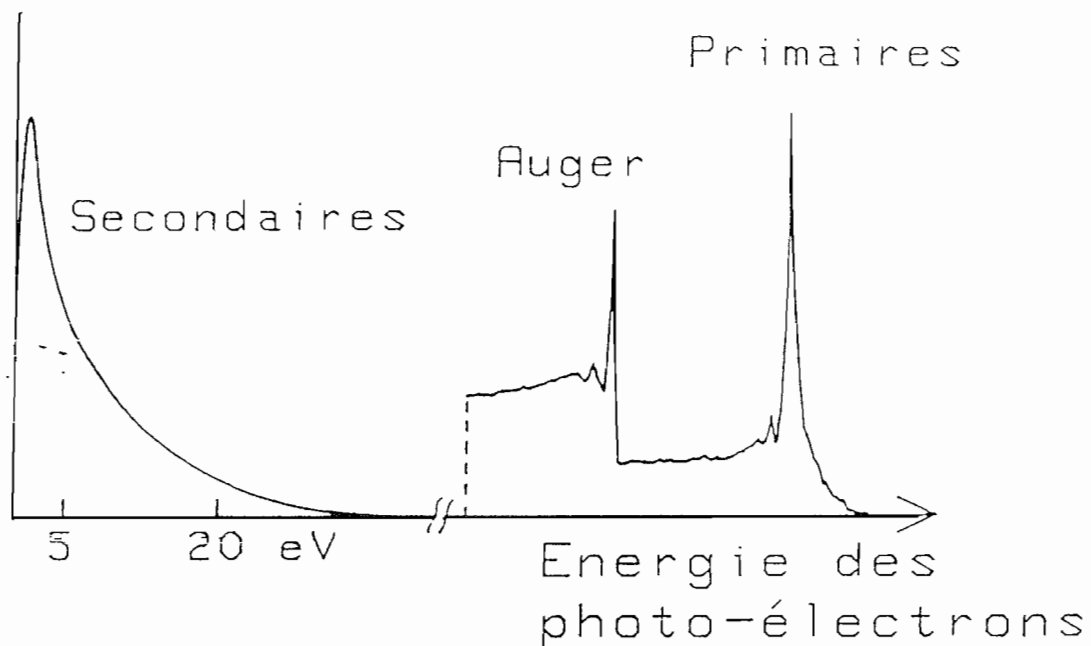


Figure 27 : Spectre d'énergie des photoélectrons issus de la conversion des rayons X dans une photocathode. Les électrons Auger et primaires ont une énergie voisine de celle du photon X, alors que les électrons secondaires ont une énergie beaucoup plus faible, quasi-indépendante de celle du photon X incident

Ce sont les électrons secondaires qui permettent la formation d'une image électronique d'intensité proportionnelle à celle de l'image X incidente.

Parmi les imageurs X fonctionnant sur ce principe, on peut citer les travaux suivants :

- . Dans le domaine des X mous, F. Polack et S. Lowenthal [44] ont proposé d'utiliser avec le rayonnement synchrotron un imageur photoélectronique constitué d'une photocathode en or très mince (100 Å) suivie d'une optique électrostatique à immersion. L'image est finalement agrandie par une optique magnétique.
- . Dans le domaine d'énergie plus élevée (1 à 50 keV), J.E. Bateman et R.J. Apsimon [45] utilisent une photocathode "épaisse" en CSI (300 µm) associée à un intensificateur d'images à galette de microcanaux (voir § B.1.2.2).

Examinons les caractéristiques d'un détecteur X à photocathode.

a) Efficacité quantique de détection

Pour des photons X, il n'est pas facile d'attribuer expérimentalement une efficacité quantique de détection intrinsèque à une photocathode.

En effet, pour faire cette mesure, il faut procéder à la fois à un comptage des photons X et à une détection individuelle des gerbes d'électrons secondaires.

Ceci nécessite une instrumentation soignée et difficile à calibrer, surtout lorsqu'on fait appel à un étage d'amplification supplémentaire (galette de microcanaux, par exemple). De plus, le nombre d'électrons secondaires émis par photon incident dépend de paramètres tels que l'épaisseur et l'état de surface de la photocathode ; dans le cas des matériaux isolants, le champ électrique collecteur peut avoir une influence considérable sur le rendement de conversion comme le montrent Bateman et al pour les photocathodes épaisses en CsI [45].

Afin d'estimer l'efficacité quantique d'une photocathode, nous nous référerons au modèle présenté dans l'introduction de ce chapitre (Fig. 24, équations (30) à (32)).

Définissons le rendement de conversion en électrons secondaires ηG , s'exprimant comme le produit du rendement de photoémission η par le gain G . Nous avons vu que, dès que G est supérieur à quelques unités :

$$EQD \approx \eta$$

Ceci suppose que tous les électrons secondaires qui **quittent** la photocathode sont recueillis à la sortie du détecteur, ce qui revient à attribuer un taux T de transmission de 100 % aux étages de sortie.*

* Dans le microscope de F. Polack et S. Lowenthal, ce taux de transmission T est en réalité faible (de l'ordre du pour cent) et l'E.Q.D. se mettra sous la forme : ηGT

- . Dans le cas de photocathodes en or, le facteur G a pu être mesuré par Eliseenko et al [46] qui ont montré qu'il était de l'ordre de 5 pour les photons d'énergie voisine du keV. Ces mesures, jointes à celles de Henke et al permettent d'estimer l'E.Q.D. à des valeurs de l'ordre de 10 % pour des photocathodes dont l'épaisseur est de l'ordre de 100 Å, utilisées entre 0,1 et 1 keV.
- . Dans le cas des photocathodes en CsI utilisées par Bateman et al en X plus durs, le nombre maximal de photoélectrons produits -et donc le facteur G- est très élevé parce que l'énergie du photon primaire est beaucoup plus importante qu'en X mous. Là encore, l'E.Q.D. sera donnée par le facteur η qu'on peut encore écrire, suivant Bateman et al :

$$\eta = \{1 - \exp(-(\frac{\mu}{\rho}) \rho e)\} (1 - p_0) \quad (33)$$

(μ/ρ) = coefficient d'absorption du matériau (en cm^2/g)

ρ = masse volumique (en g/cm^3)

e = épaisseur de la photocathode

p_0 = probabilité pour qu'aucun photoélectron secondaire ne soit créé lors de l'absorption d'un photon X.

L'efficacité quantique de détection sera donc gouvernée par le pouvoir d'arrêt de la couche (terme exponentiel dans (33)), ce qui conduit, à 10 keV, à des efficacités proches de 100 % pour une épaisseur de CsI de 200 à 500 μm ; mais ce rendement chute rapidement en suivant les variations du coefficient $(1 - \exp\{-\mu e\})$ lorsque l'énergie du photon X augmente [45].

De cette discussion, on pourrait conclure à la supériorité des cathodes en CsI ; mais le gain en efficacité quantique s'effectue au détriment de la résolution spatiale, comme nous l'examinons ci-après.

b) Résolution spatiale

En effet, s'il ne fait aucun doute qu'une couche épaisse est susceptible d'avoir une efficacité quantique élevée même en X durs, la résolution spatiale du détecteur, qui est liée au libre parcours de photoélectrons dans la photocathode, sera d'autant moins bonne que la couche est plus épaisse.

Pour les photocathodes en or de 100 Å utilisées par F. Polack, on peut estimer la limite ultime de résolution à quelques centaines d'Angströms. Pour ce qui est des photocathodes épaisses en CsI soumises à un champ collecteur élevé, on peut faire intervenir plusieurs phénomènes physiques limitant la résolution par des effets de diffusion latérale :

- . diffusion des rayons X incidents
- . libre parcours moyen des photoélectrons primaires
- . diffusion des photoélectrons secondaires sous l'effet du champ de collection.

Bateman et al donnent une limite de résolution de l'ordre de 25 à 50 μm (20 - 10 paires/mm), mais il est difficile de s'affranchir expérimentalement de la limite de résolution imposée par une détection par galette de micro-canaux utilisée en focalisation de proximité (voir paragraphe suivant B.1.2.2).

Il est néanmoins remarquable que la résolution obtenue expérimentalement (entre 50 et 100 μm) soit nettement meilleure que ce qu'on pourrait estimer grossièrement d'après l'épaisseur de la couche (200 à 500 μm).

Conclusion sur les photocathodes

Domaine des X mous

La possibilité d'obtenir des images à haute résolution (mieux que 1 μm) semble acquise compte tenu des travaux sur ce sujet [43, 44].

Domaine des X durs (énergie > 5 keV)

Il nous semble actuellement difficile d'atteindre des résolutions meilleures que 50 μm tout en conservant une bonne efficacité quantique.

Néanmoins, un des avantages de la photocathode est le couplage direct des rayons X avec un imageur électronique. Cette solution pourrait constituer une possibilité intéressante pour notre application, s'il est prouvé que des résolutions de l'ordre de 10 à 20 μm peuvent être obtenues ; ceci nous semble assez peu probable en utilisant des couches aussi épaisses que 200 à 500 μm .

1.2.2 - Détecteur X à galette de microcanaux

La galette de microcanaux (G.M.C) combine en un même dispositif le principe de la photocathode et du multiplicateur tubulaire d'électrons (Fig. 28).

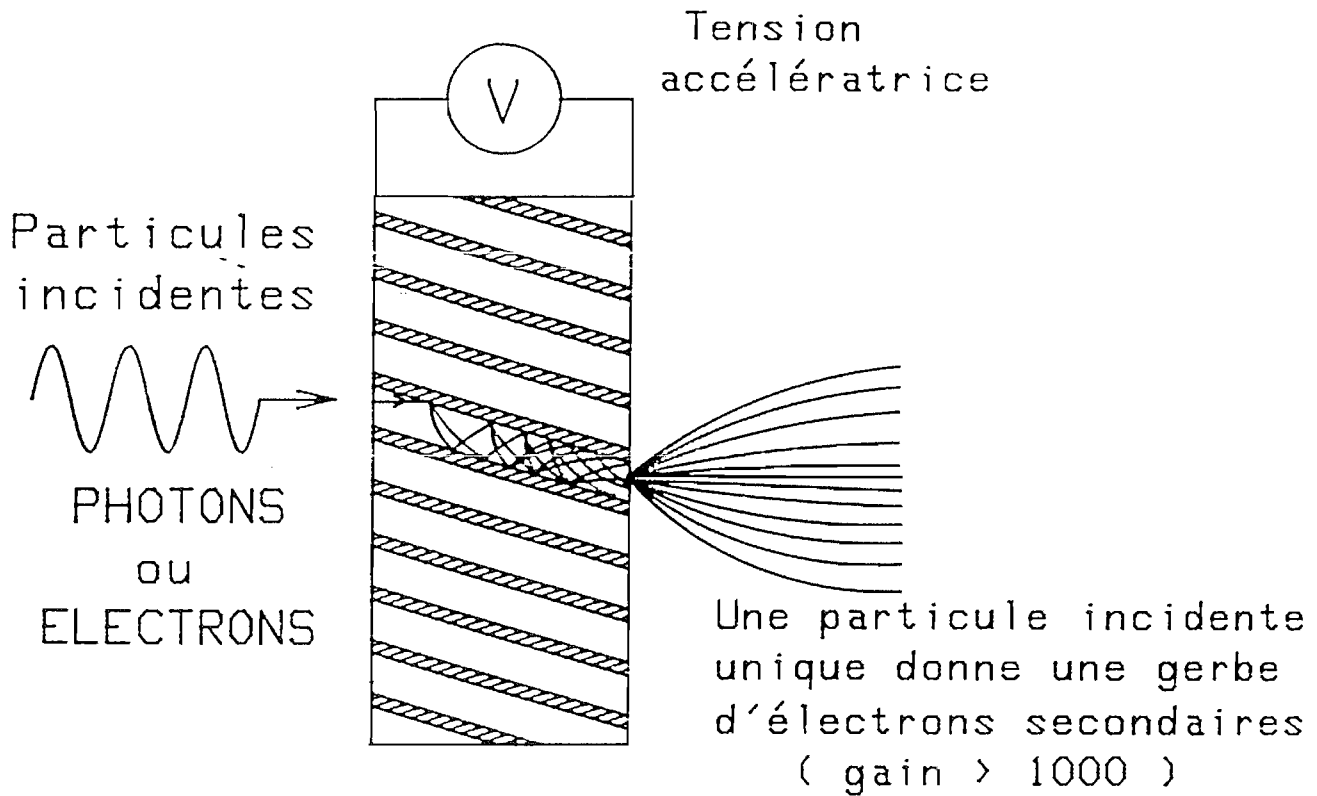


Figure 28 : Principe des galettes de micro-canaux

Très utilisées dans les intensificateurs d'images où elles suivent une photocathode, les G.M.C. peuvent servir directement de détecteurs d'images X [47]. Elles présentent le grand avantage de donner un facteur d'amplification de l'ordre de 10^3 à 10^4 , ce qui permet d'exploiter quantitativement des images de très faible luminosité.

Cependant, dans le cas qui nous concerne, l'utilisation des G.M.C. en éclairage X direct se heurte à plusieurs difficultés :

- . faible efficacité quantique au-delà de 5 keV
- . faible résolution spatiale (utilisation avec focalisation de proximité)
- . faible taux de comptage (utilisation avec détecteur à localisation multi-fils)

a) Efficacité quantique de détection

La conversion X-électrons dans une G.M.C., si elle conduit à de bons rendements quantiques en X mous, devient de moins en moins efficace lorsque l'énergie du photon X s'élève. En particulier, elle tombe en-dessous du pourcent au-delà de 5 keV [48], ce qui ne permet pas d'envisager des applications quantitatives sans associer la G.M.C. à un autre convertisseur X → électrons de meilleure efficacité quantique.

b) Résolution spatiale

La résolution spatiale d'une G.M.C. est limitée de façon ultime par le pas du réseau de microtubes. Sont disponibles actuellement des G.M.C. de pas 12,5 μm ; c'est l'ordre de grandeur que nous recherchons, mais pour atteindre cette résolution spatiale, il faudrait pouvoir détecter l'image électronique directement à la sortie de la galette.

Or, actuellement, le moyen le plus courant pour cette détection, c'est la focalisation de proximité (Fig. 29).

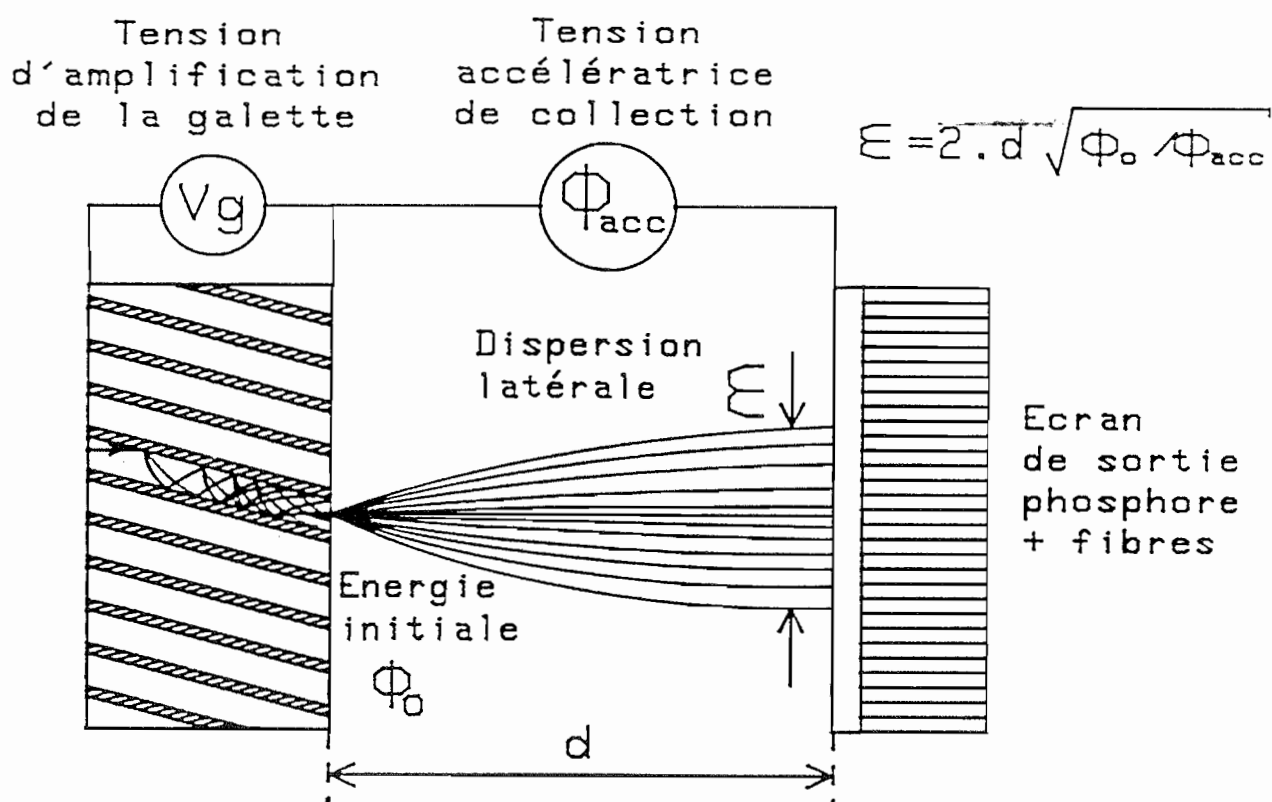


Figure 29 : Limite de résolution dans un intensificateur d'images à galette de microcanaux lorsque l'image est détectée par focalisation de proximité

A la sortie de la G.M.C., les électrons sont réaccélérés par une tension continue de l'ordre de quelques kV. Les électrons suivent alors des trajectoires paraboliques ; c'est finalement la dispersion du paquet d'électrons à l'arrivée sur l'écran de sortie qui limite la résolution spatiale du dispositif.*

En supposant que les électrons secondaires sont émis dans toutes les directions, avec une énergie transverse moyenne ϕ_0 (en électrons-volts), la dispersion latérale ϵ sur l'écran luminescent s'écrit : [49]

$$\epsilon = 2d \sqrt{\frac{\phi_a}{\phi_{acc}}} \quad (34)$$

où : $d \equiv$ distance galette/écran
 $\phi_{acc} \equiv$ tension accélératrice.

Les valeurs typiques sont : [50]

$$\begin{aligned} d &= 0,5 \text{ mm} \\ \phi_{acc} &= 3 \text{ kV} \end{aligned}$$

D'autre part, ϕ_0 est de l'ordre de 5 eV, ce qui donne :

$$\epsilon \approx 25 \text{ } \mu\text{m}.$$

c) Taux de comptage

Afin d'améliorer la résolution spatiale, on peut également détecter les paquets d'électrons à l'aide d'une grille de fils permettant une localisation du centroïde des charges recueillies [51]. Ce système ne peut fonctionner qu'en mode "comptage d'impulsions", chaque paquet d'électrons devant être détecté et traité séquentiellement.

* Il faut également tenir compte de la répulsion mutuelle des électrons (effet de charge d'espace) qui devient importante aux densités de charges élevées obtenues à la sortie de chaque canal multiplicateur d'électrons.

Un tel détecteur est très bien adapté à la détection, en direct, de rayons X mous à faible taux de comptage (en Astronomie par exemple). Le taux de comptage est limité à des valeurs de l'ordre de 10^5 impulsions par seconde pour l'ensemble du détecteur, ce qui est de plusieurs ordres de grandeur inférieur à ce que peut délivrer un faisceau synchrotron, même monochromatique (de l'ordre de 10^{12} ph.cm⁻².s⁻¹, voir annexe 1). On voit donc que ce taux de comptage très élevé ne permet pas d'envisager l'utilisation d'un détecteur à G.M.C. **directement** dans un faisceau synchrotron.

Conclusion sur les galettes de microcanaux

Les G.M.C. sont très bien adaptées à la détection d'images X très faibles aux énergies inférieures à 1 keV. Utilisées directement, elles ne peuvent pas convenir à notre application, essentiellement à cause du phénomène de saturation aux taux de comptages imposés par le rayonnement synchrotron. Bien entendu, elles conservent leur intérêt dans un intensificateur d'images, en association avec un écran scintillateur et une photocathode.

1.2.3 - Chambre proportionnelle multifils

Ce type de détecteur, issu de la physique des hautes énergies, est en fait un compteur proportionnel multifils dans lequel on dispose un détecteur de charges à localisation. Utilisé en diffraction X avec le rayonnement synchrotron [52], il offre les avantages suivants :

- . bonne efficacité quantique de détection
- . possibilité de discrimination en énergie des photons incidents
- . couplage direct avec un système d'acquisition numérique d'images.

Cependant, ce détecteur ne nous semble pas adapté, dans sa forme actuelle, à la microscopie de contact, pour les raisons suivantes :

a) Résolution spatiale

Elle est actuellement limitée à une valeur de 0,1 mm environ, ce qui est insuffisant en microscopie. Il semble difficile de descendre en-dessous de la centaine de microns, par suite du libre parcours moyen élevé des photoélec-

trons dans un gaz (milieu dilué). Une solution consiste à utiliser le gaz sous très forte pression [53], ce qui a pour effet d'améliorer le pouvoir d'arrêt et de diminuer le libre parcours des photoélectrons.

b) Taux de comptage

Bien qu'utilisé avec le rayonnement synchrotron pour la cristallographie, on ne détecte jamais dans ce genre d'expériences le faisceau directement transmis, mais seulement des faisceaux diffractés, répartis sur l'ensemble de la surface du détecteur. Pour les dispositifs utilisés (au L.U.R.E. par exemple), les chiffres suivants sont typiques :

taux de comptage = 10^5 à 10^6 coups.s⁻¹ sur toute la surface
surface utilisée : jusqu'à quelques dm².

Comme dans toute détection mettant en jeu une amplification intrinsèque, il n'est guère possible d'augmenter l'éclairement détectable (en coups.cm⁻².s⁻¹) sans aboutir à une saturation. Pour fixer les idées, on peut se représenter le détecteur comme la juxtaposition de cellules de résolution qui se comportent comme autant de compteurs proportionnels ayant le même temps mort.

Lorsque le rayonnement est réparti aléatoirement sur toute la surface et que le détecteur fonctionne sans être saturé, l'intervalle de temps moyen qui sépare deux ionisations successives dans une même cellule de résolution du détecteur peut être très supérieur au temps mort. Dans ce cas, c'est l'électronique d'acquisition qui limite le taux de comptage. Il n'en sera plus de même si, pour un même taux de comptage global, le rayonnement est concentré sur quelques cellules de résolution seulement : on sera alors limité par le temps mort (temps de "récupération" du phénomène d'ionisation-avalanche), même si l'électronique peut "suivre".

Ce phénomène rend par exemple extrêmement délicate la calibration d'échelons absorbants dans le faisceau synchrotron à l'aide d'un détecteur de type compteur proportionnel à flux gazeux.

Conclusion : Pour les raisons de résolution et de taux de comptage, ce type de détecteur n'est pas utilisable dans notre application.

1.2.4 - Mosaïque de détecteurs semiconducteurs

Ces détecteurs sont souvent désignés par le sigle anglo-saxon "CCD" (pour "charge-coupled device")* et sont habituellement utilisés dans le domaine du visible sous forme de barrette uniligne ou de mosaïque bi-dimensionnelle.

On peut cependant les utiliser **directement** en rayons X [54] avec les caractéristiques suivantes : [55]

a) Efficacité quantique

Elle est bonne jusqu'à des énergies de l'ordre du keV [55, 56] mais chute rapidement au-delà pour cause de pouvoir d'arrêt insuffisant. Dans le domaine des X mous, l'absorption du rayonnement dans la couche de silice protégeant habituellement les éléments photosensibles nécessite une préparation spéciale du composant qui le rend particulièrement coûteux et fragile ; mais les résultats obtenus sont très bons (cas d'une barrette uniligne, ce traitement n'ayant pas à notre connaissance été proposé pour les mosaïques 2-D).

Afin d'améliorer l'efficacité de détection à des énergies de l'ordre du keV, il a été proposé (dans le cas des barrettes unilignes) de coupler le détecteur à un écran fluorescent par l'intermédiaire de fibres optiques [57].

L'amélioration notable de l'efficacité quantique a pour contrepartie une perte de résolution due à la diffusion de la lumière dans l'écran fluorescent déposé à l'entrée de la plaquette de fibres [57].

b) Résolution spatiale

Elle est limitée par le pas du réseau de photodétecteurs, soit environ de 15 μm (pour les barrettes 1-D) à 20 μm (pour les 2-D), mais, compte tenu de la forte demande (caméras vidéo, ...) on peut espérer une amélioration de résolution de ces dispositifs dans les années à venir**. Les performances actuelles ne sont donc plus beaucoup éloignées de l'objectif (5 à 10 μm) que nous nous sommes fixés dans l'introduction.

* Certains dispositifs fonctionnellement analogues aux CCD utilisent en fait un autre mode de lecture que le registre à transfert de charges.

** L'état de l'art est actuellement voisin de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ en CCD bi-dimensionnel

c) Compatibilité avec les flux du rayonnement synchrotron

Il est nécessaire de distinguer :

- . la tenue au rayonnement des éléments photosensibles
- . les dommages éventuels causés aux transistors de commutation ou aux registres à transfert de charges qui sont implantés juste à côté des éléments photosensibles.

Des essais réalisés au LURE [58] semblent montrer qu'une photodiode au silicium (prévue pour le visible) peut fonctionner comme détecteur X à haut flux sans dégradation notable.

De ce fait, l'utilisation de barrettes 1-D semble possible à condition que l'électronique de lecture soit correctement protégée. Ce qui est possible (à l'aide d'une fente bien placée) pour une barrette 1-D ne l'est plus pour une mosaïque 2-D, où une exposition prolongée laisse des traces irréversibles sur le détecteur [59], et il est difficile dans ce cas de discriminer l'action du rayonnement sur les photodiodes et sur l'électronique de détection voisine.

Conclusion : Dans l'état actuel de la technique, les détecteurs à semiconducteurs permettent l'imagerie uniligne avec une bonne résolution dans le domaine des X mous. L'utilisation en X de plus haute énergie implique l'interposition d'un écran fluorescent dont nous allons étudier les caractéristiques ci-après.

1.2.5 - Ecran luminescent, scintillateurs

La conversion $X \rightarrow$ visible dans un écran scintillateur est l'une des plus anciennes méthodes de visualisation d'images X. Elle est extrêmement utilisée dans le domaine X de 10 à 100 keV, en radiologie médicale et en contrôle non destructif. Par exemple, la radiographie des bagages dans les aéroports s'effectue par conversion dans un écran scintillateur associé à un intensificateur d'images.

Les matériaux utilisés pour une conversion X-visible sont les suivants :

- . une poudre scintillatrice (écran luminescent, écran "renforçateur" pour films X ultra-sensibles)
- . un plastique ou un cristal scintillateur (en particulier dans le domaine des hautes énergies)
- . un gaz scintillateur [60].

Il existe également des liquides scintillateurs, mais ils n'ont pas été beaucoup utilisés en imagerie X à haute résolution spatiale. Nous exposerons au chapitre 2 une application des scintillateurs liquides à la détection d'images X.

a) Efficacité quantique de détection

Elle est excellente lorsque la longueur d'interaction entre le rayonnement et le scintillateur est suffisamment grande.*

Pour le cas des poudres scintillatrices utilisées dans les écrans de radiographie médicale, nous pouvons faire référence aux travaux de R.K. Swank [62] ainsi que C.E. Dick et J.W. Motz [61].

Dans ces écrans, le facteur de conversion η (éq. (30)) atteint respectivement 100 % à 50 % dans la gamme 10 à 50 keV. Ce facteur est essentiellement gouverné par l'absorption des rayons X dans la couche, suivant une relation analogue à l'équation (33).

La réduction de l'E.Q.D. due aux fluctuations du nombre de photons de fluorescence (facteur $\frac{G^2}{G^2 + \sigma_G^2}$ dans l'éq. (30)) varie peu dans l'intervalle 10 - 30 keV [61] et correspond à un facteur multiplicatif de 0,7 à 0,9.

Finalement, là encore, l'absorption incomplète du rayonnement dans la couche conduit à une chute de l'E.Q.D. aux énergies élevées, qui ne peut être compensée qu'en augmentant l'épaisseur de la couche scintillatrice. En contrepartie, la résolution spatiale de l'écran diminue comme nous allons le voir maintenant.

* Un calcul plus détaillé de l'efficacité de détection sera présenté au § B.2.3.4

b) Résolution spatiale

De même que pour une photocathode, il faut d'abord faire intervenir la diffusion (élastique, fluorescence) des rayons X et le libre parcours moyen des photoélectrons primaires dans le scintillateur. Aux énergies X qui nous intéressent (essentiellement moins de 50 keV), ces deux effets sont négligeables devant la diffusion latérale de la lumière visible de fluorescence (qui doit être très peu réabsorbée si l'on veut que l'écran ait un bon rendement global).

Cas d'un écran diffusant

Dans le cas d'un écran à poudre luminescente -qui est optiquement très diffusant- cet effet de diffusion est particulièrement important : la résolution spatiale est limitée à des valeurs de l'ordre de l'épaisseur de l'écran [63, 64]. Elle peut s'améliorer (au détriment du rendement lumineux) lorsque l'absorption de la lumière de fluorescence dans la couche n'est plus négligeable.

Si on réduit l'épaisseur de l'écran pour diminuer la diffusion de la lumière, on diminue également le pouvoir d'arrêt du détecteur. L'efficacité quantique de détection devient donc faible. En utilisant des écrans formés d'une monocouche de poudre scintillatrice, W. Hartmann et ses collaborateurs [65] ont pu ainsi obtenir une résolution spatiale de l'ordre de 10 μm .

L'efficacité quantique de détection dans une telle couche de 5 à 10 μm d'épaisseur peut être de l'ordre de 10 % à 5 keV, mais chute rapidement au-delà de 10 keV.

Cas d'un écran transparent

Si les effets de diffusion de la lumière dans une poudre sont indépendants du mode de détection de l'image visible, il n'en sera pas de même dans le cas d'une couche transparente (plastique scintillateur, couche monocristalline). Il faut alors distinguer le cas où l'image est détectée en contact direct avec l'écran du cas où cette image est reprise par un objectif d'ouverture numérique donnée.

Pour préciser ce point, étudions la qualité de l'image détectable dans l'expérience suivante (Fig. 30a) :

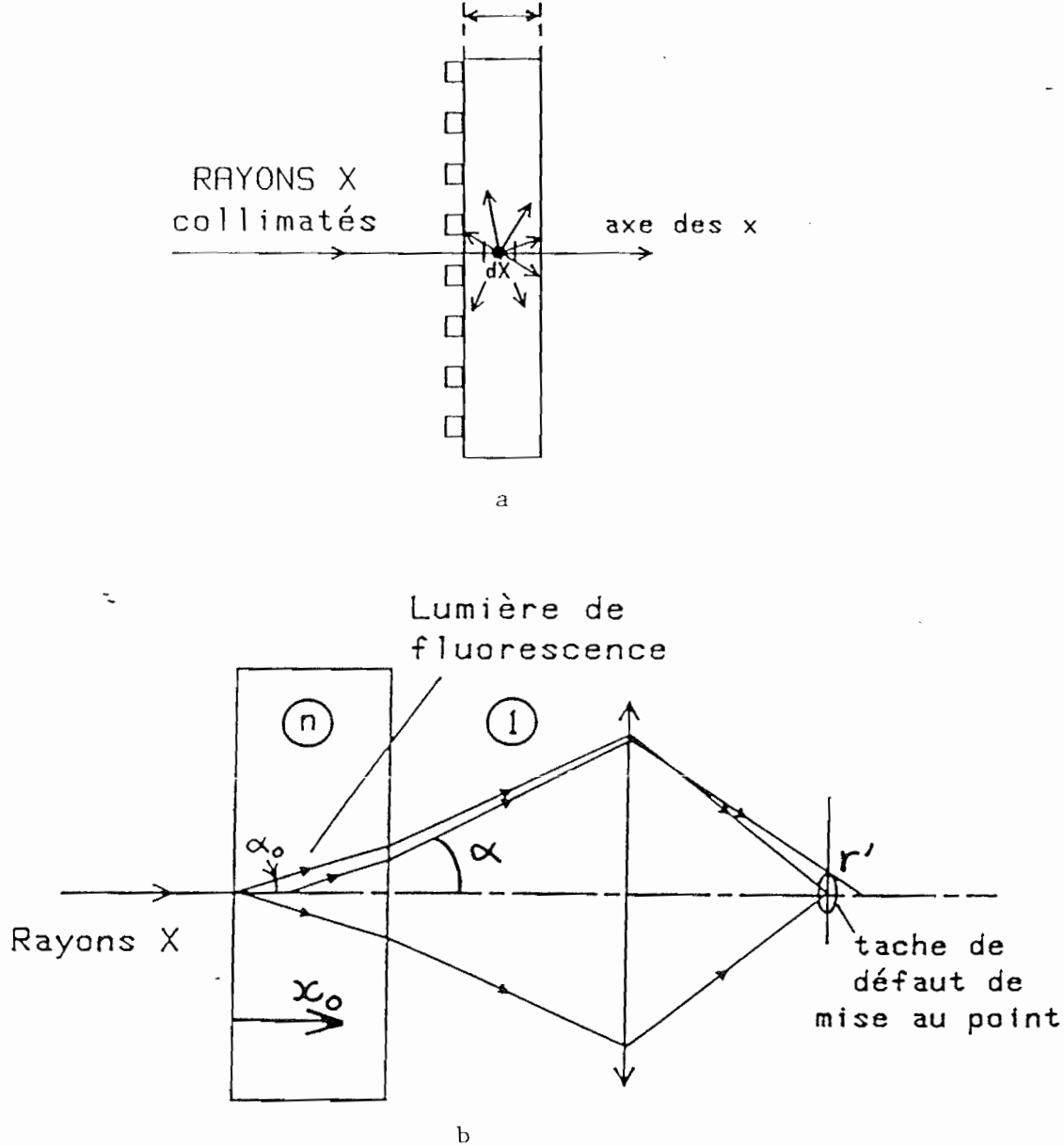


Figure 30 : Imagerie X de contact contre une lame scintillatrice transparente homogène avec observation par une optique ; influence de l'épaisseur de la lame sur la résolution

Un objet (grille par exemple) est placé contre la face d'entrée d'une lame de plastique scintillateur, d'épaisseur E . Un faisceau de R.X supposé parfaitement collimatés* éclaire l'objet ; dans le plastique, on peut observer la trace des R.X incidents, chaque portion dx de faisceau se comportant comme une source de lumière de fluorescence $I(x)dx$, émise dans toutes les directions.

* Si les R.X ne sont pas collimatés, il s'ajoute un effet de pénombre géométrique qui dégrade la résolution.

Si l'image est détectée sur la face de sortie (par un film ou une photocathode), cette image sera brouillée car chaque point de la face de sortie peut recevoir de la lumière provenant de tous les points de l'objet (la lumière de fluorescence se propageant dans toutes les directions).

Dans le cas où le détecteur est en contact, le calcul montre [63] que la fréquence de coupure ν_c (à 10 % de contraste) est comprise entre $1/E$ et $2/E$ pour un facteur de transmission de la lumière de fluorescence variant de 100 % à 30 %, ce qui correspond à des résolutions $r = 1/2\nu_c$ de $E/2$ et $E/4$, respectivement.

Par contre, que se passe-t-il si la face d'entrée de la lame -en contact avec l'objet- est imagée sur un film par l'intermédiaire d'une optique (de microscope par exemple : Fig. 30b) ?

Dans ce cas, l'effet de brouillage de l'image intervient de façon moins directe. En effet, si la mise au point est faite sur la face d'entrée, à l'image nette de l'objet se superposent des images défocalisées produites par les "plans lumineux" induits dans le milieu scintillant par la projection de l'objet parallèlement au faisceau X (Fig. 30b). La tache image ainsi obtenue dépend de la distance parcourue par le faisceau X dans le scintillateur, de l'épaisseur de la lame et de l'ouverture numérique du système optique.

Pour poursuivre le raisonnement, il convient de détailler le processus de conversion $X \rightarrow$ visible. En effet, cette conversion passe souvent par un étage intermédiaire de conversion $X \rightarrow UV$ puis $UV \rightarrow$ visible.

Dans ce cas, même si les rayons X sont collimatés, le "volume fluorescent" pourra être très élargi par la diffusion latérale du rayonnement UV intermédiaire, et l'image sera brouillée quel que soit le mode d'observation choisi.

Supposons cependant que cet effet soit négligeable et étudions l'effet seul dû à la superposition des différentes images défocalisées de l'objet dans le plan du détecteur.

Le calcul (voir annexe 2) montre que le rayon r' de la tache dans l'espace image peut s'écrire, moyennant quelques approximations raisonnables :

$$r' = \left(\frac{x_0}{n}\right) G \cdot \alpha \quad (35)$$

avec α = demi-angle d'acceptance de l'objectif dans l'espace objet.

x_0 = dimension caractéristique de l'ordre de la longueur d'absorption dans le matériau

n = son indice

G : le grandissement.

Le rayon de la tache de brouillage, ramené dans l'espace objet, s'écrit :

$$r = \left(\frac{x_0}{n}\right) \alpha \quad (36)$$

résultat dont on peut retrouver l'ordre de grandeur en remarquant que α/n n'est autre que l'angle α_0 dans le scintillateur (Fig. 30b), x_0 étant l'épaisseur "effective" de la lame, $\frac{\alpha}{n} x_0$ est le rayon de la tache produite sur la face de sortie par le cône de rayons émis sous l'angle maximal α_0 .

Cette valeur r ne dépend ni du grandissement, ni de la focale de l'objectif utilisé.

Avec des valeurs courantes : $\alpha \approx 0,2$ pour un objectif de microscope (utilisé à $G \approx 10$), $n = 1,6$, on trouve :

$$r \approx 0,1 x_0$$

Bien que le brouillage soit, dans ce cas, certainement d'un ordre de grandeur inférieur à celui de la détection par contact direct, on ne peut espérer, avec un scintillateur plastique, atteindre des résolutions de l'ordre de $10 \mu\text{m}$ pour des rayons X d'énergie supérieure au keV dont la longueur d'interaction est de l'ordre du mm dans ces matériaux.

De plus, cette étude purement "géométrique" ne tient pas compte d'éventuelles réflexions multiples de la lumière dans le scintillateur, ni de la diffusion de la lumière UV ou visible dans la couche luminescente.

Enfin, la lumière recueillie ne correspond qu'à une fraction $T \ll 1$ de la lumière émise : le facteur de réduction de l'E.Q.D. devient $\frac{T^2 G^2}{T^2 G^2 + TG}$ (cas poissonnien : voir le § B.2.3.4).

Nous verrons cependant au chapitre 2 le rôle important que joue la limitation par l'ouverture numérique dans l'amélioration de la résolution spatiale d'un dispositif à scintillation.

c) Compatibilité avec les hauts flux

Les poudres scintillatrices sont tout à fait compatibles avec les hauts flux du rayonnement synchrotron. En particulier, on peut citer l'exemple des détecteurs utilisés en topographie X [64] qui sont formés d'un écran scintillateur associé à une caméra à bas niveau de lumière.

Les plastiques scintillateurs sont également utilisables, mais on peut craindre à long terme une dégradation de ces matériaux polymères sous l'effet du rayonnement. Nous avons pour notre part utilisé sans dommage notable des plastiques scintillateurs dans un faisceau synchrotron, à la sortie d'un monochromateur.

Une étude serait nécessaire en faisceau synchrotron "blanc", sachant que les futures sources seront de plusieurs ordres de grandeurs plus "brillantes" que les sources synchrotron actuelles.

1.3 - DISCUSSION ET CONCLUSION DU PREMIER CHAPITRE

Nous pouvons résumer la comparaison par le tableau suivant (Tableau 3) :

DETECTEURS X A EMISSION DE PARTICULES SECONDAIRES

	RESOLUTION SPATIALE	EFFICACITE QUANTIQUE DE DETECTION	ACQUI- SITION NUMERIQUE	COMPATIBILITE AVEC LE RAYONNEMENT SYNCHROTRON
PHOTOCATHODE	de 100 nm (X mous) à 50 μ m (X durs)	de 50 % à 10 % suivant épaisseur	PAS DIRECTEMENT	OUI
GALETTE DE MICROCANAUX	10 μ m Comptage d'impulsions +détecton de centroïde	FAIBLE < 1 % au-delà de 5 keV	PAS DIRECTEMENT	NON
CHAMBRE PROPORTIONNELLE MULTIFILS	100 μ m	> 50%	OUI	PAS DANS LE FAISCEAU DIRECT
BARRETTE DE DETECTEURS CCD	20 μ m en direct 100 μ m avec phosphore	> 50% à 5 keV mais faible au-delà de 10 keV	OUI	OUI mais tenue aux radiations
ECRAN FLUORESCENT	50 μ m	> 50%	PAS DIRECTEMENT	OUI

Tableau 3 : Comparaison des détecteurs d'images X "Temps réel"

De cette comparaison, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

La plupart des systèmes présentent une bonne efficacité dans le domaine des X mous, mais certains ne sont pas utilisables avec des hauts flux, ni au-delà de 5 keV.

En effet :

a) les systèmes qui présentent une amplification intrinsèque (chambre proportionnelle, galette de microcanaux) sont difficilement utilisables directement avec les hauts flux du rayonnement synchrotron à cause du phénomène de saturation.

b) Les détecteurs à semiconducteurs ne sont utilisables pratiquement que sous la forme unidimensionnelle, à cause des dommages causés par le rayonnement aux détecteurs à mosaïque bi-dimensionnelle. Or, il est très intéressant d'avoir, même sous forme non quantitative, une image de l'échantillon en cours d'observation, comme nous l'avons souligné en introduction.

c) L'efficacité quantique de détection devient faible au-delà de 5 keV, sauf si on utilise une conversion $X \rightarrow \text{électrons}$ ou $X \rightarrow \text{visible}$ dans une couche épaisse, ce qui conduit à un compromis efficacité quantique / résolution spatiale qui semble difficile à améliorer dans les systèmes utilisés actuellement.

Les systèmes lumineux adaptés à notre problème nous semblent être les écrans luminescents ; ces systèmes ont d'ailleurs donné lieu à des développements très importants. Les propriétés des scintillateurs sont bien mieux connues que celles des photocathodes en rayons X, qui pourraient constituer également une solution intéressante.

La question est donc : dans le domaine X de 5 à 20 keV, est-il possible de trouver un écran luminescent qui permette d'atteindre des résolutions spatiales de 5 à 10 μm ($v_c = 50$ à 100 paires/mm) tout en conservant une efficacité quantique suffisante pour des applications quantitatives ?

CHAPITRE 2

CONVERSION $X \rightarrow$ VISIBLE PAR SCINTILLATION GUIDÉE

INTRODUCTION

Dans cette partie, nous nous proposons de répondre à la question posée à la fin du précédent chapitre, et nous décrivons un moyen d'y parvenir au moyen d'une conversion $X \rightarrow$ visible dans une couche scintillatrice à haute résolution spatiale.

Nous avons vu que c'était la diffusion latérale de la lumière de fluorescence qui limite la résolution dans les écrans épais. Afin de limiter cette diffusion latérale, on peut imaginer de compartimenter l'écran en cellules indépendantes, de manière que la lumière de fluorescence reste (en moyenne) confinée dans la direction du rayonnement X incident. De ce fait, la résolution spatiale est alors déterminée par la dimension des cellules, indépendamment de l'épaisseur de l'écran qui peut rester assez importante pour assurer un bon pouvoir d'arrêt.

Un certain nombre de dispositifs basés sur cette idée ont été brevetés, aucun n'étant véritablement satisfaisant. Après les avoir étudiés dans une première partie, nous présentons dans une deuxième partie la solution que nous proposons [66]. Elle est basée sur le guidage diélectrique de la lumière de fluorescence dans une matrice de microtubes qui agissent comme des fibres optiques scintillantes. Après avoir présenté les propriétés générales d'un tel écran, nous présentons les résultats expérimentaux que nous avons obtenus en utilisant un scintillateur liquide retenu par capillarité dans un réseau de microtubes.

Nous discutons enfin ces résultats en indiquant la façon dont on pourrait les améliorer.

2.1 - REVUE DES DISPOSITIFS A ECRANS COMPARTIMENTES POUR RAYONS X ET γ

2.1.1 - Procédés "mécaniques"

L'idée de compartimenter un écran fluorescent a été proposée par N. MacLeod dès 1956 [67]. Dans un tel écran, il n'est pas question de guidage diélectrique mais de séparation des cellules scintillatrices par des cloisons opaques. Les modes de réalisations proposés sont, soit un découpage et recollage d'empilements de lames scintillatrices séparées par des cloisons opaques, soit la fabrication et le remplissage d'un "nid d'abeilles" obtenu par collage de cloisons ondulées.

Il semble extrêmement difficile d'obtenir par ces procédés "mécaniques" des dimensions de cellules de l'ordre de 10 μm , mais le principe des cloisons ondulées semble intéressant pour la détection d'images en rayons γ à faible résolution. En effet, comme le propose un brevet de la même époque [68], le nid d'abeilles peut être réalisé en enroulant en spirale une tôle ondulée mince. De plus, les canaux ainsi réalisés peuvent être rendus convergents, de façon que les rayons γ -issus d'une source quasi-ponctuelle- traversent tous les canaux suivant leur axe (nous reviendrons au § B.2.4 sur ce problème). Ce même brevet cite la possibilité de guidage diélectrique mais ne revendique aucun procédé pour le réaliser.

2.1.2 - Ecrans compartimentés en iodure de césium

Plus intéressants semblent être les écrans en iodure de césium dans lesquels les éléments scintillateurs sont obtenus par des craquelures [69] ou par croissance cristalline sous forme d'aiguilles [70,71].

Si le procédé de fabrication des écrans craquelés ne semblent pas permettre d'atteindre des résolutions meilleures que 100 μm environ, les écrans à aiguilles de CSI semblent très prometteurs, puisque la dimension typique de chacune des aiguilles est 5 à 15 μm . Dans un tel écran, la lumière de fluorescence est guidée par réflexion totale à l'intérieur de cristaux allongés agissant comme des fibres optiques.

Les résultats présentés [70,71], s'ils apportent une amélioration importante par rapport aux écrans classiques, présentent une fréquence de coupure (à 10 % de contraste) qui est de l'ordre de 10 paires/mm (50 μ m de résolution). Cette valeur, nettement plus élevée que la dimension des aiguilles, semble indiquer

- soit un guidage imparfait de la lumière dans les aiguilles de scintillateur avec "fuite" de lumière d'un élément à l'autre (phénomène de diaphotie)
- soit d'autres effets, dus en particulier à l'utilisation d'un tube X classique, à une énergie élevée (60 keV) : effets de pénombre, non parallélisme du faisceau X et des cristaux, diffusion de photoélectrons d'une aiguille à l'autre.

Il serait extrêmement intéressant cependant de mesurer la fonction de transfert de modulation d'un écran à structure analogue, optimisé pour des X moins durs (5 à 20 keV) en réduisant l'épaisseur en conséquence.

2.1.3 - Fibres optiques scintillantes

Très récemment ont été développés des détecteurs à fibres optiques scintillantes pour la physique des particules. Ces détecteurs ne sont pas à proprement parler des écrans scintillateurs puisqu'ils servent à détecter les traces (sous forme de photons lumineux) laissées par le passage de particules de haute énergie. Cependant, les technologies employées sont susceptibles d'être transposées au domaine des rayons X.

H. Blumenfeld et col. [72] utilisent un détecteur formé de la juxtaposition d'un grand nombre de fibres plastiques scintillantes (diamètre : 1 mm) agglomérées par un métal à bas point de fusion. Les particules de haute énergie (1 à 100 GeV) dont les trajectoires sont parallèles à l'axe des fibres, interagissent principalement avec le métal inter-fibres. Les gerbes de particules secondaires créées sont détectées par fluorescence dans le plastique scintillateur qui sert à guider la lumière jusqu'à la sortie du détecteur.

R. Ruchti et col. [73] utilisent une galette de fibres optiques en verre scintillateur, analogue à une plaque de fibres classiques (voir § B.2.2.1), qui fonctionne de la façon suivante (Fig. 31) :

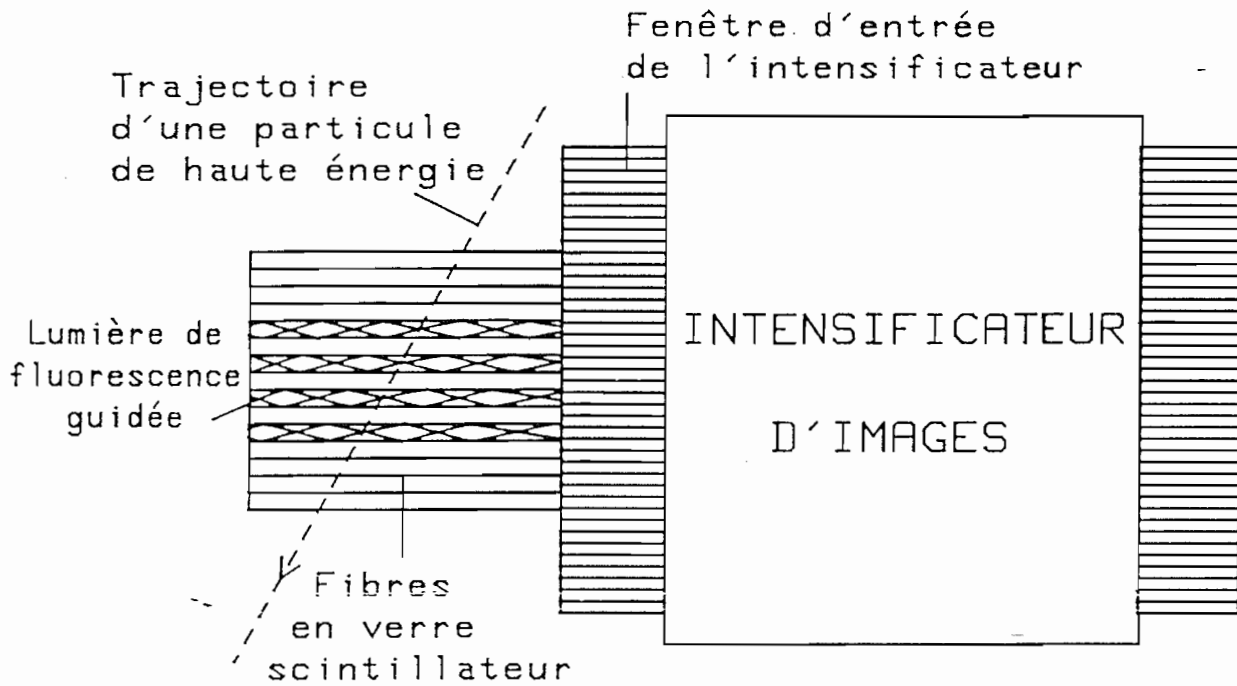


Figure 31 : Détection de traces de particules à l'aide d'une galette de fibres conductrices d'images en verre scintillateur d'après R. Ruchti et col. [73]

Une particule de haute énergie qui traverse obliquement et de part en part la galette scintillante laisse une trace sous forme de gerbes de particules secondaires. Celles-ci sont détectées par fluorescence : le guidage de cette lumière par les fibres permet, sous certaines conditions que nous étudierons au paragraphe suivant, de conserver la localisation des sources de scintillation. On peut ainsi reconstituer la trajectoire de la particule à l'aide d'un intensificateur d'images classique. R. Ruchti et col. utilisent des galettes de verre scintillateur au pas de 10 à 25 μm , ce qui conduit à une résolution spatiale excellente pour un détecteur de particules de haute énergie.

Très récemment également [74], C. Fisher du CERN a proposé un mode de détection analogue, l'objectif étant d'utiliser des fibres de 10 à 20 μm de diamètre, mais le dispositif projeté n'est pas encore réalisé.

C'est cette dernière approche par fibres scintillantes qui nous semble la plus intéressante pour la détection de rayons X à haute résolution spatiale.

Dans notre cas, la collimation du faisceau incident parallèlement aux fibres jouera un grand rôle et les photons X seront complètement absorbés dans le détecteur vu leur énergie beaucoup plus faible.

Avant de passer à l'étude des galettes de fibres scintillantes, nous rappellerons les propriétés générales des plaques de fibres conductrices d'images et leurs applications aux intensificateurs d'images X.

2.2 - QUELQUES PROPRIETES DES GALETES DE FIBRES OPTIQUES ET LEUR UTILISATION DANS LES INTENSIFICATEURS D'IMAGES X

2.2.1 - Principes

Une galette de fibres optiques (Fig. 32a) est un réseau ordonné de fibres conductrices de lumière. Ces fibres sont caractérisées optiquement par l'indice de coeur n_c et l'indice de gaine n_g^* (Fig. 32b).

QUELQUES PROPRIETES DES DANS LES INTENSIFICATEURS

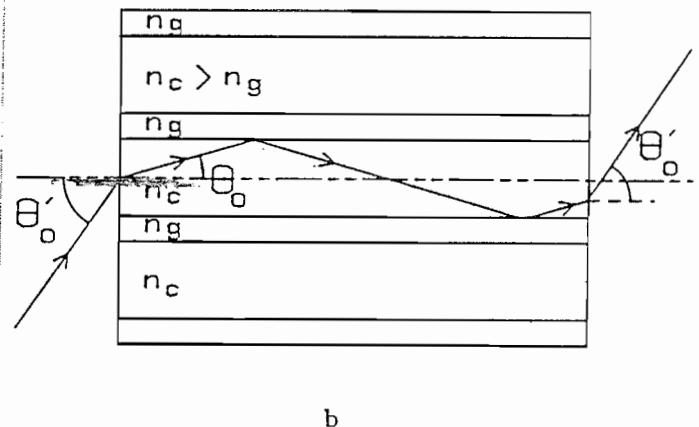
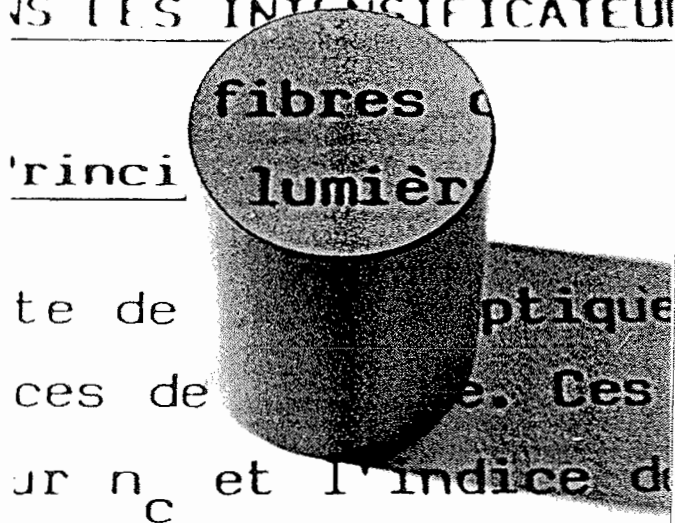


Figure 32 : Principe des galettes de fibres optiques conductrices d'images
a : Transmission d'une image par une galette de fibres à haute résolution ($5\mu\text{m}$)
b : Principe du guidage diélectrique dans une galette de fibres en verre

* A notre connaissance, seules existent des matrices de fibres à saut d'indice mais on peut imaginer des réseaux de fibres à gradient d'indice pour lesquelles l'analyse serait plus complexe.

Le guidage de la lumière provient de la réflexion totale à l'interface coeur/gaine, ce qui suppose la condition fondamentale du guidage :

$$\theta_o < \arcsin \left\{ \left(1 - \frac{n_c^2}{n_G^2}\right)^{1/2} \right\} \quad (37)$$

Cette analyse suppose un modèle de propagation "géométrique" par tracé des rayons dans la fibre qui n'est qu'une approximation d'autant meilleure que le nombre de modes guidés est élevé [75,76]. Le cas d'une matrice de fibres étant beaucoup plus complexe que celui de la fibre unique (par suite du couplage éventuel entre fibres adjacentes), nous utiliserons, pour avoir un ordre de grandeur, l'expression du nombre N de modes guidés dans une fibre circulaire [77] :

Pour $N \gg 1$,

$$N = \frac{\pi^2}{2} \left(\frac{d \cdot o.n}{\lambda} \right)^2 \quad (38)$$

où d = diamètre du coeur

$$o.n = \text{ouverture numérique} = \sin \theta'_o = n_c \sin \theta_o = (n_c^2 - n_G^2)^{1/2} \quad (39)$$

λ = longueur d'onde du rayonnement se propageant dans la fibre.

Dans le cas des galettes en verre, le nombre N est élevé, en effet :

$$\lambda \approx 0,5 \mu\text{m} \quad o.n > 0,7 \quad d > 5 \mu\text{m} \rightarrow N \gg 240$$

Certaines fibres sont caractérisées par une ouverture numérique égale à 1, ce qui signifie (Fig. 32) que tout rayon, même rasant ($\theta'_o = 90^\circ$), est réfracté puis réfléchi totalement à l'interface coeur/gaine.

La condition pour que l'ouverture numérique soit égale à 1 est que (éq. 39)

$$n_c^2 = n_G^2 + 1 \quad (40)$$

Cette condition est techniquement réalisable avec des verres. On peut même arriver à ce que :

$$n_c^2 > n_G^2 + 1 \quad (41)$$

ce qui n'améliore pas l'acceptance de la fibre si la source lumineuse est à l'extérieur, dans l'air. En revanche, si la source lumineuse est **à l'intérieur de la fibre** comme dans le cas d'une fibre fluorescente, on peut tirer parti sous certaines conditions, de l'amélioration de l'acceptance qui résulte de l'équation (41) comme nous le verrons au § B.2.3.2.

2.2.2 - Utilisation dans les intensificateurs d'images X

La figure 33 présente le schéma du premier étage* d'un intensificateur d'images X couplé par fibres optiques [64,78]. Les fibres sont utilisées pour réaliser les fonctions suivantes :

- . couplage de l'image visible provenant de la scintillation avec la photocathode de l'intensificateur.
- . compensation de la courbure de champ introduite par l'optique électronique de l'intensificateur à l'entrée et à la sortie.
- . couplage de sortie entre l'image électronique et l'extérieur via une couche cathodoluminescente.

Les plaques de fibres sont également utilisées dans les intensificateurs d'images à galettes de micro-canaux ; dans ce cas, il n'y a plus de courbure de champ puisqu'on utilise en général une focalisation de proximité.

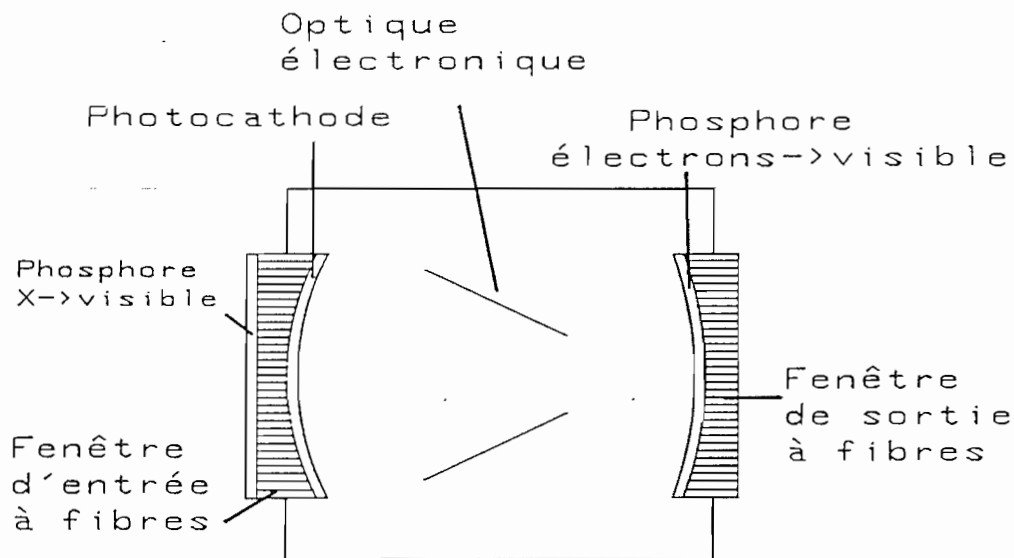


Figure 33 : Intensificateur d'images X couplé par fibres optiques

* L'image disponible en sortie du premier étage peut être à nouveau amplifiée par un 2e étage analogue.

a) Rendement photométrique

A l'entrée, le scintillateur (poudre) est simplement déposé sur la face d'entrée. Le couplage photométrique est excellent car :

- . l'ouverture numérique des fibres (≈ 1) est supérieure à ce que donnerait une optique classique.
- . l'indice de coeur élevé ($\approx 1,8$) permet de réduire les pertes à la réflexion entre le scintillateur ($n \approx 2,5$ pour le ZnS) et le détecteur d'images qui suit. En effet, à l'interface entre un milieu d'indice $n_1 = 2,5$ et un deuxième milieu d'indice n_2 , les pertes par réflexion et l'angle limite de réflexion totale ont les valeurs suivantes (Tableau 4) :

	angle limite	angle solide, en % du demi-espace	Pertes "Fresnel" à la réflexion*
air : $n_2 = 1$	23 °	8 %	18 %
verre : $n_2 = 1,8$	46 °	30 %	3 %

Tableau 4 : Angle limite de réflexion totale dans une lame scintillatrice
Influence sur l'efficacité de collection lumineuse

En prenant un indice n_2 élevé, on voit qu'on gagne à la fois sur l'acceptance et sur le facteur de transmission ; la quantité de lumière de fluorescence (émise vers l'avant) récupérable passe de 6,5 % (scintillateur/air) à 29 % (scintillateur/verre).

Cette estimation simple ne tient pas compte d'éventuelles réflexions multiples dans la couche ; elle suppose un scintillateur transparent, homogène et ne prétend pas décrire le comportement d'une poudre scintillatrice formée de grains irréguliers agglomérés par un liant.

En particulier, si les grains ont une dimension de l'ordre de 1 micron et moins, ils diffusent la lumière de façon isotrope dans le liant qui a, en général, un indice plus faible que le scintillateur. C'est en fait l'indice du

* Ces valeurs dépendent peu de l'angle d'incidence au voisinage de la normale.

liant qui compte pour le couplage, mais les conclusions resteront qualitativement les mêmes : le dépôt du scintillateur directement sur la plaque de fibres permet de minimiser les pertes de lumière à la sortie de l'écran fluorescent.

En contrepartie, la surface "active" d'une galette de fibres ne représente que 70 à 80 % environ de la surface totale (car il faut ménager un espace minimum entre chaque fibre pour assurer le guidage).

b) Résolution spatiale

Dans les intensificateurs d'images pour rayons X, c'est souvent la couche scintillatrice qui limite la résolution spatiale*, à cause du compromis efficacité quantique/résolution que nous avons discuté au § B.1.2.5. La résolution typique de l'ordre de 20 à 30 μm n'est pas dégradée par la galette de fibres qui suit (résolution de l'ordre du pas, soit 5 à 10 μm) : on peut même ajouter que la limitation de la diffusion de la lumière par l'ouverture angulaire finie (cf. § B.2.4.2) n'existe pas pour les galettes de fibres (ouverture numérique de l'ordre de 1).

Conclusion

Pour les raisons que nous venons d'évoquer, la plaque de fibres assure un excellent couplage, mais ne permet pas d'améliorer le compromis efficacité quantique/résolution.

Il vient donc assez naturellement l'idée d'**inclure le scintillateur dans la fibre** elle-même au lieu de déposer le scintillateur à l'entrée et de réaliser ainsi un **écran compartimenté, à guidage diélectrique**.

* Dans le cas des écrans à haute résolution non couplés par fibres, il faut adapter l'écran au détecteur d'images par un grandissement optique approprié afin de conserver la résolution [65].

2.3 - DETECTEUR A GUIDAGE DIELECTRIQUE DE LA LUMIERE DE FLUORESCENCE :

NOTRE APPROCHE

2.3.1. - Modélisation

Compte tenu de la difficulté considérable à traiter le problème par les méthodes électromagnétiques (mêmes approchées), nous supposons que le nombre de modes guidés dans chaque fibre est très supérieur à 1. Nous étudierons la propagation géométrique (rayons) suivant le schéma suivant (Fig. 34) :

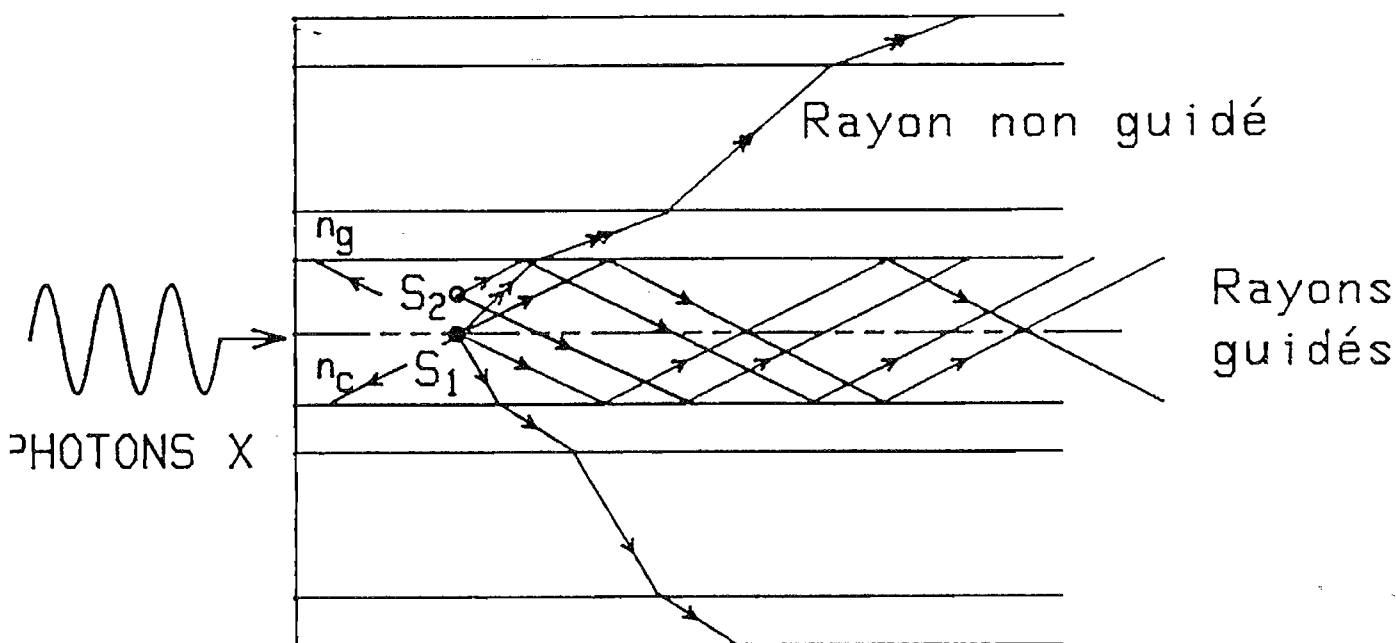


Figure 34 : Modèle de propagation géométrique de la lumière de fluorescence dans une galette de fibres optiques scintillantes

Les rayons X, supposés parallèles à l'axe des fibres, sont absorbés le long de leur parcours et convertis en lumière de fluorescence. La conversion $X \rightarrow$ visible passe par une succession de processus : $X \rightarrow$ électrons $\rightarrow$ photons UV $\rightarrow$ visible qui peut être très rapide (quelques ns).

La lumière de fluorescence est émise de façon isotrope. Une fraction seulement, émise sous un angle inférieur à l'angle critique θ_0 (Fig. 32) est collectée par réflexion totale, dont une moitié vers l'avant. Le reste de la lumière est : soit guidé vers l'arrière (éventuellement récupérable, voir plus

bas), soit non guidé. Même dans le cas d'une fibre d'ouverture numérique égale à 1 (dans l'air), la fraction de la lumière de fluorescence guidée vers l'avant est faible, comme nous le montrons maintenant.

2.3.2 - Efficacité de collection : guidage diélectrique

a) Rayons méridiens

Supposons que la fibre diélectrique soit à section circulaire. Dans ce cas, un point sur l'axe tel que S_1 n'émet que des rayons méridiens. Sur toute la lumière émise vers l'avant par S_1 , n'est guidée que la fraction émise dans l'angle solide $\Omega_{\text{guidé}}$:

$$\Omega_{\text{guidé}} = 2\pi (1 - \cos \theta_0) \quad (42)$$

Dans tout ce qui va suivre, nous désignerons par $f_{2\pi}$ la fraction de lumière **guidée vers l'avant**, rapportée à la **totalité de lumière émise vers l'avant**. (2π stéradians). De même nous désignerons par $f_{4\pi}$ la fraction de la lumière **guidée vers l'avant**, rapportée à la **totalité de la lumière émise dans toutes les directions**. (4π stéradians). On a en particulier :

$$f_{2\pi} = 2 \cdot f_{4\pi}.$$

De plus, la fraction de la lumière **guidée vers l'avant et l'arrière**, rapportée à la **totalité de la lumière émise dans toutes les directions** est égale à $2 \cdot f_{4\pi}$ soit $f_{2\pi}$.

La fraction $f_{2\pi}$ guidée vers l'avant ($100\% = 2\pi$ stéradian) s'écrit donc, compte tenu de (37) et (42) :

$$f_{2\pi} = 1 - \frac{n_G}{n_c} \quad (43)$$

Avec $n_c = 1,80$ et $n_G = 1,50$, on obtient une fibre d'ouverture numérique 1 dans l'air. L'angle de réflexion totale θ_0 (Fig. 32) est, dans ce cas, égal à $33,5^\circ$. La proportion $f_{2\pi}$ est égale à 17% . Par rapport à toute la lumière émise, y compris vers l'arrière, il faut diviser par 2 ce qui donne une proportion $f_{4\pi}$ de l'ordre de 8% .

Poursuivons le raisonnement : la formule (41) n'oblige absolument pas à se restreindre à une fibre d'ouverture numérique égale à 1 dans l'air. On pourrait imaginer une galette de fibres d'indice de gaine $n_G = 1,46$ (verre de silice) avec des coeurs scintillateurs formés de matériaux d'indices supérieurs à 2.

Même avec $n_C = 2$ et $n_G = 1,45$, la fraction de lumière guidée vers l'avant $f_{2\pi}$ n'atteint que 28 % ($f_{4\pi} = 14$ %) pour une angle $\theta_0 = 43,5^\circ$.

Indépendamment du problème technologique lié à l'existence de tels matériaux et à la réalisation d'une matrice de fibres, il faut tenir compte de la difficulté à extraire ensuite cette lumière guidée. En effet (Fig. 35) il faut tenir compte de la réfraction à la sortie du détecteur :

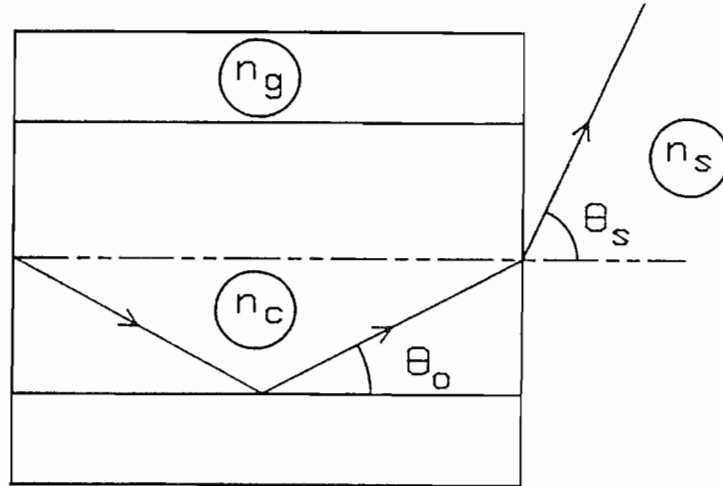


Figure 35 : Conditions sur les indices pour pouvoir extraire la lumière de fluorescence guidée

La condition pour que le rayon puisse sortir est que :

$$\sin \theta_s = \frac{n_c}{n_s} \sin \theta_0 = \frac{n_c^2 - n_G^2}{n_s} < 1 \quad (44)$$

avec $n_C = 2$ et $n_s = 1,45$, il faut $n_s > 1,38$.

Même si cette condition est réalisée, il semble difficile de récupérer toute la lumière, même si le détecteur est placé en contact avec la face de sortie. Par exemple, dans le cas d'une photocathode métallique, il faut s'attendre à une réflexion des rayons les plus rasants ($\theta_s \approx 90^\circ$) et donc à des pertes de lumière.

D'autre part, si l'image est agrandie par un objectif, il sera très difficile de tirer parti de cette ouverture numérique supérieure à 1, à moins d'avoir recours à des techniques optiques spéciales telles que :

- . objectifs à immersion (dont l'ouverture va jusqu'à 1,1). Ces objectifs, utilisés en biologie aux grossissements élevés, ont un champ extrêmement faible.
- . utilisation des dioptries sphériques aux points de Weierstrass. Cette méthode permettrait d'obtenir de grandes ouvertures en supposant que la face de sortie du détecteur est usinée suivant une sphère, l'image étant reprise par une combinaison de dioptries sphériques adaptés.

b) Rayons non méridiens

L'analyse que nous venons de faire en termes de rayons méridiens peut sembler non réaliste, puisqu'en fait presque tous les rayons émis par les points-source hors d'axe sont non méridiens. Nous examinons cette question maintenant.

L'évaluation de la lumière guidée issue d'un point tel que S_2 (Fig. 34) est plus délicate. La figure 36 indique l'allure des trajectoires polygonales de ces rayons, en projection sur un plan orthogonal à l'axe. Pour poursuivre la discussion, nous nous référerons au cas d'une fibre circulaire à gaine infinie.

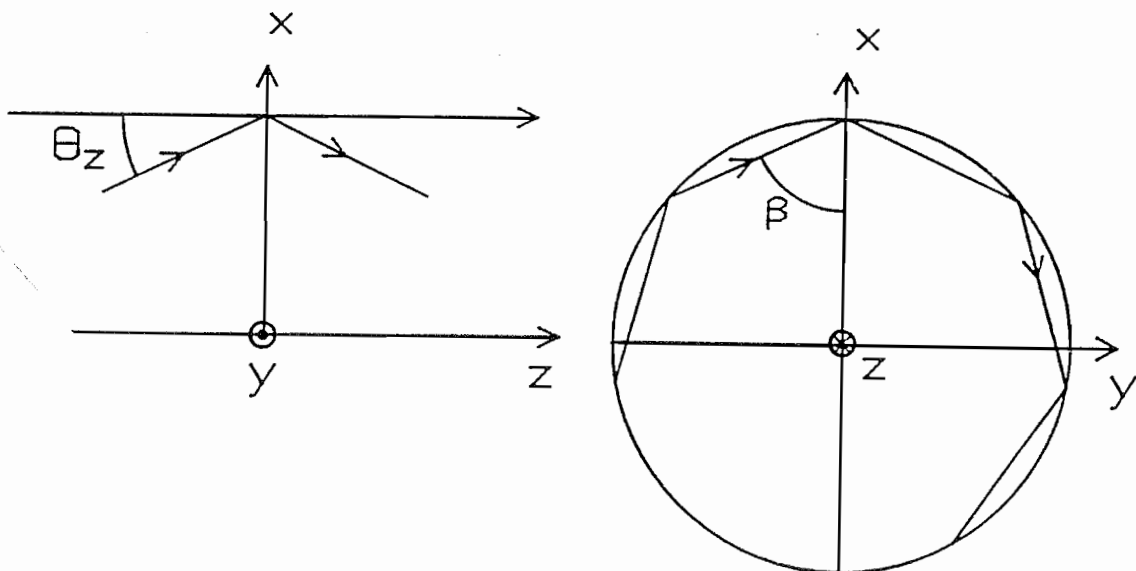


Figure 36 : Propagation hélicoïdale des rayons non méridiens dans une fibre circulaire à saut d'indice

L'analyse des modes d'une telle fibre [79,80] montre que :

- tous les rayons (méridiens ou non) qui (en projection sur le plan xz) font **avec l'axe z** un angle θ_z inférieur à l'angle de réflexion totale θ_0 , correspondent à des modes guidés dont l'énergie reste confinée dans le coeur de la fibre.

- parmi les rayons définis par un angle $\theta_z > \theta_0$, il faut distinguer 2 cas suivant la valeur de l'angle α du rayon mesuré par rapport à la normale $\vec{x}$. Cet angle α est défini en fonction des angles θ_z et β de la figure 36 par :

$$\cos \alpha = \sin \beta \sin \theta_z.$$

Les rayons pour lesquels α est inférieur à l'angle limite de réflexion totale au sens de l'optique géométrique $\alpha_0 = \pi/2 - \theta_0$, correspondent à des modes à fortes fuites, c'est-à-dire des rayons réfractés.

Les rayons "hélicoïdaux" qui vérifient $\theta_z > \theta_0$, et qui sont cependant suffisamment rasants dans le plan xy pour satisfaire la condition $\alpha > \frac{\pi}{2} - \theta$ ($\sin \alpha > \frac{n_c}{n_0}$), devraient être réfléchis totalement au sens de l'optique géométrique.

Or, par suite de la courbure de l'interface, ces rayons correspondent à des modes à faibles fuites, qui rayonnent de l'énergie en proportion cependant nettement moindre que les modes "réfractés" à fortes fuites.

c) Discussion

On voit que si l'on ne tient compte que des modes guidés, les rayons à prendre en considération sont ceux qui font **avec l'axe de propagation** un angle inférieur à l'angle critique θ_0 . De ce fait, **même pour un point hors d'axe tel que S_2** , le cône de rayons collectés est le même que dans l'analyse restreinte aux rayons méridiens.

Dans le cas d'une fibre suffisamment longue pour que ne subsistent que les modes guidés, l'analyse rigoureuse [75] confirme la validité de ce modèle des rayons méridiens.

Dans notre cas, on peut s'interroger sur la validité de cette approximation, en particulier sur le fait de ne pas tenir compte de l'énergie transportée par les rayons à faibles fuites sur des distances de propagation de l'ordre du mm.

Ce qui revient à dire que la fraction de lumière effectivement collectée est peut-être supérieure à celle donnée par l'expression simple (42).

Pour connaître de manière précise la contribution des rayons à faible fuite, il faudrait connaître leur coefficient d'atténuation sur des longueurs de l'ordre du mm. Cette étude a été faite dans le cas des fibres utilisées pour les télécommunications [81], mais il nous semble difficile de transposer cette étude à notre cas. En effet, la géométrie d'une galette de fibres ne correspond absolument pas à celle de la fibre unique à gaine infinie. Les fibres sont séparées par des graines beaucoup plus minces ($\approx 1 \mu\text{m}$) que le diamètre du coeur (5 à 10 μm).

De ce fait, il semble presque certain qu'une partie importante de l'énergie transportée par les rayons hélicoïdaux d'angle $\theta_z > \theta_0$ va passer d'une fibre à l'autre et contribuer à la lumière parasite au même titre que les rayons réfractés des modes à forte fuite (voir ci-dessous § B.2.3.5).

d) Remarque sur les formules de l'efficacité de collection (42) et (43)

Il peut apparaître comme très surprenant de trouver une fraction de la lumière guidée vers l'avant égale à :

$$f_{2\pi} = 1 - \frac{n_G}{n_c} = 1 - \cos \theta_0 \quad (41')$$

alors que l'on s'attendrait plutôt à trouver une valeur proportionnelle au carré de l'ouverture numérique de la fibre :

$$(O.n)^2 = n_c^2 \left(1 - \frac{n_G^2}{n_c^2}\right) = n_c^2 \sin^2 \theta_0 \quad (39')$$

qui est directement reliée au nombre de modes guidés (38).

L'expression (39') représente en fait la fraction de lumière émise par une source plane, **extérieure** à la fibre, placée à l'entrée. Cette source est supposée de **luminance uniforme** L indépendante de l'angle d'émission. La fraction f_{eL} de la lumière guidée s'écrit :

$$f_{eL} = \frac{\int_0^{\theta'_0} L \cdot 2\pi \sin \theta \, d\theta \cdot S \cos \theta}{\int_0^{\pi/2} L \cdot 2\pi \sin \theta \, d\theta \cdot S \cos \theta} = \sin^2 \theta'_0 = n_c^2 \sin^2 \theta_0 \quad (45)$$

Dans le cas où cette même source de luminance constante, supposée plane, infiniment mince est placée dans la fibre et à l'entrée, cette fraction f_{iL} s'écrit :

$$f_{iL} = \frac{\int_0^{\theta_0} L \cdot 2\pi \sin\theta \, d\theta \cdot S \cos\theta}{\int_0^{\pi/2} L \cdot 2\pi \sin\theta \, d\theta \cdot S \cos\theta} = \sin^2\theta_0 \quad (46)$$

Dans notre cas, les sources sont dans la fibre et sont des sources volumiques à intensité constante. De telles sources émettent (en proportion du total émis) moins d'énergie "vers l'avant" qu'une source plane obéissant à la loi de Lambert ($L(\theta) = \text{cste} = L$). Ceci est conforme à la comparaison des expressions de $f_{2\pi}$ (41') et f_{iL} (46) (Fig. 37).

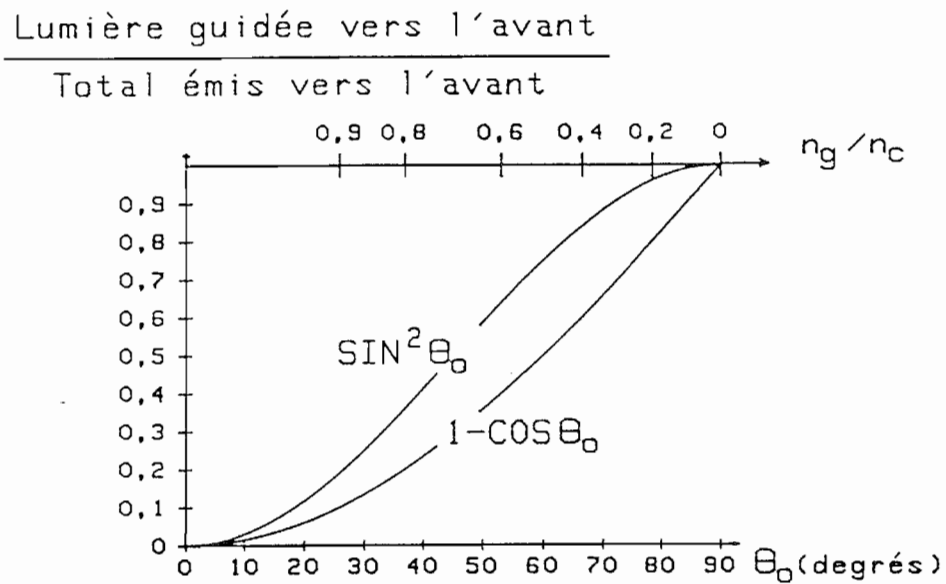


Figure 37 : Efficacité de collection d'une fibre à saut d'indice dans le modèle des rayons méridiens

n_g : indice de gaine, n_c : indice de cœur

θ_0 : angle limite à l'interface cœur/gaine

$\sin^2\theta_0$: cas d'une source lambertienne interne à la fibre

$1 - \cos\theta_0$: cas d'une source volumique de fluorescence isotrope interne à la fibre

2.3.3 - Comparaison entre guidage diélectrique et guidage métallique

De la discussion qui précède, on pourrait conclure à la faible efficacité de collection du guidage diélectrique. En particulier, on peut penser remplacer le guidage par réflexion totale par un guidage métallique, qui semble a priori être meilleur puisque toute l'énergie reste confinée à l'intérieur d'un guide métallique.

En réalité, il faut tenir compte de l'absorption inévitable lors de réflexions métalliques. Les pertes ainsi créées sont si importantes qu'on a depuis longtemps renoncé aux fibres à gaine métallique pour les télécommunications, mais qu'en est-il pour la propagation sur des longueurs très courtes, de l'ordre du mm ?

Pour fixer l'ordre de grandeur, considérons à nouveau un modèle de propagation géométrique dans une fibre métallique, en se limitant aux rayons méridiens (Fig. 38).

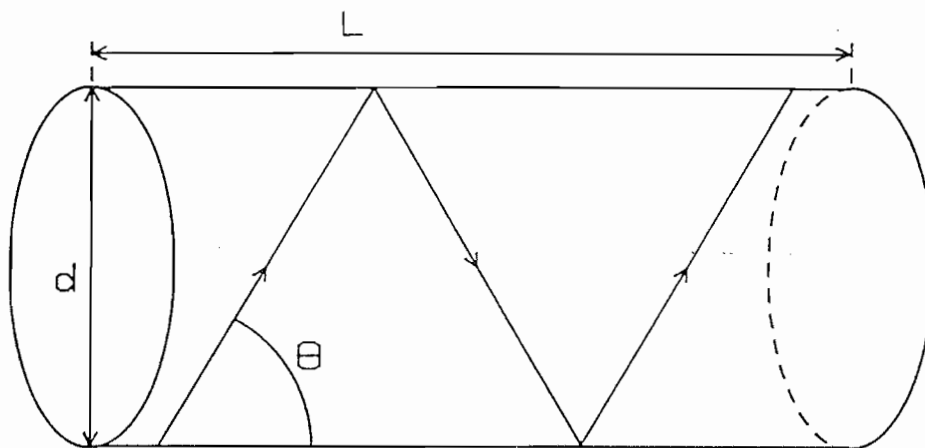


Figure 38 : Estimation du nombre de réflexions que subit un rayon méridien cheminant à l'angle θ dans une fibre à guidage métallique.

Supposons que chaque réflexion soit caractérisée par un coefficient de réflexion R ($< 92\%$ pour Al , $< 96\%$ pour Ag). Le nombre de réflexions subies par un rayon incliné de l'angle θ est de l'ordre de :

$$N = \frac{L}{d} \operatorname{tg} \theta \quad (47)$$

Dans le cas d'une fibre où $L/d = 100$ (ex : $d = 10\ \mu\text{m}$, $L = 1\ \text{mm}$), le nombre de réflexions devient très grand pour les rayons les plus inclinés qui de ce fait seront également très atténués.

Le calcul fait avec une fibre de pouvoir d'arrêt égal à 86 % (voir annexe 5) montre que, même dans le cas où on néglige les pertes inévitables dues aux imperfections de surface, le rendement global (tenant compte de l'atténuation du flux X dans la fibre) peut difficilement dépasser 10 %. Ceci correspond, en guidage diélectrique, à un angle de collection de 25° (voir Fig. 39).

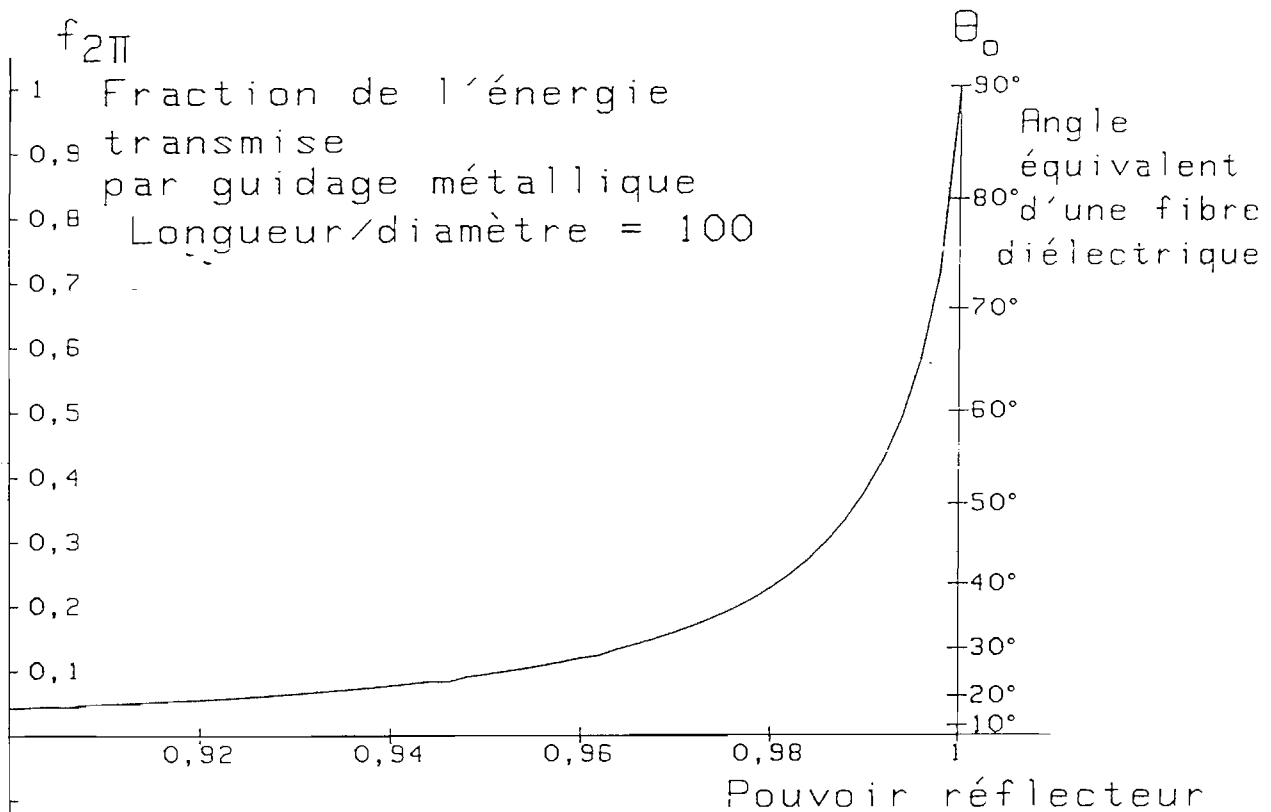


Figure 39 : Efficacité de collection/transmission d'une fibre scintillante à guidage métallique, en fonction du pouvoir réflecteur de la métallisation

Paramètres choisis pour le calcul :

longueur/diamètre = 100

longueur = $2 \cdot \mu^{-1}$ (où μ = coefficient d'atténuation des rayons X dans le coeur)

ce qui correspond à un pouvoir d'arrêt de 86 %

La difficulté principale dans le guidage métallique est certainement d'ordre technologique, c'est-à-dire d'assurer la métallisation interne de microtubes d'un diamètre de l'ordre de 5 à 10 μm en conservant un pouvoir réflecteur supérieur à 90 %. Pour les plaques de fibres classiques, il semble que cette voie ait été abandonnée au profit des fibres en verre.

2.3.4 - Efficacité de détection et rendement lumineux global d'une fibre scintillante à guidage diélectrique

a) Efficacité de conversion

La fibre scintillante est supposée être éclairée par un faisceau de rayons X parallèles à son axe. Le nombre de photons visibles collectés dans chaque fibre (correspondant à la lumière guidée) peut s'écrire :

$$N = N_o \eta G f_{4\pi} \quad (48)$$

où $N_o \equiv$ nombre de photons X incidents sur la section de fibre

$\eta \equiv$ rendement quantique qu'on peut exprimer de façon analogue à (33)

$G \equiv$ nombre de photons visibles émis par photon X détecté

$f_{4\pi} \equiv$ fraction de la lumière de fluorescence guidée vers l'avant, par rapport à la totalité de la lumière émise dans tout l'espace.

$$f_{4\pi} = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{n_g}{n_c} \right) \quad (49)$$

Afin d'améliorer le rendement de collection d'un facteur 2 environ, on peut ajouter à l'entrée de l'écran une couche réfléchissante extrêmement mince qui agisse comme un miroir pour le visible, tout en laissant passer les rayons X (Fig. 40).

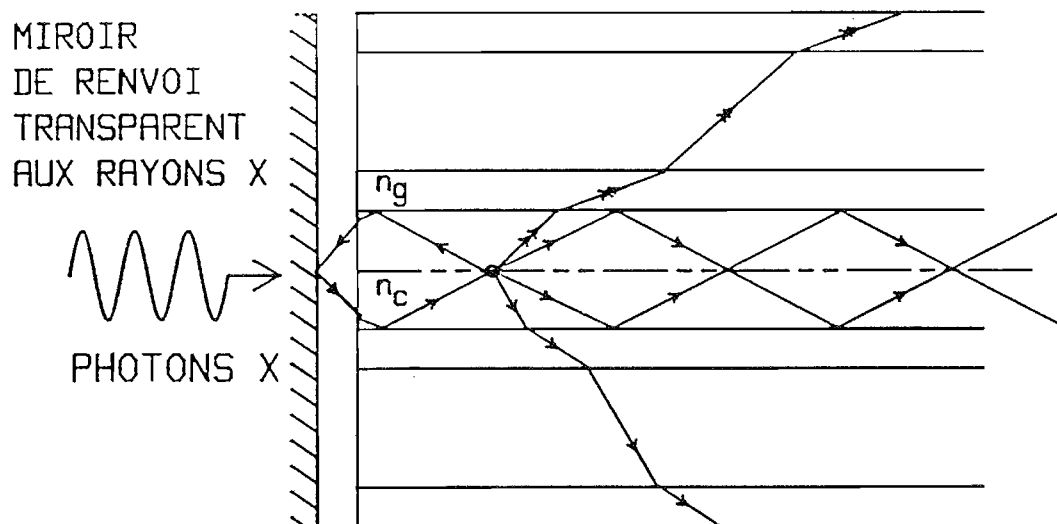


Figure 40 : Amélioration de l'efficacité de collection d'un écran à fibres scintillantes à l'aide d'un miroir transparent aux rayons X permettant de renvoyer vers l'avant la lumière de fluorescence guidée se propageant vers l'arrière.

Ceci revient à remplacer $f_{4\pi}$ par $2 \times f_{4\pi} = f_{2\pi}$ dans (48). Ce dispositif a été utilisé dans nos expériences (voir § B.2.5).

Pour l'instant, nous ne tenons pas compte de la lumière non guidée (qui pourtant forme la partie la plus importante !), ce problème apparemment paradoxal étant examiné au paragraphe suivant (§ B.2.4.2).

b) Comparaison avec un écran classique

Quelle est la différence entre l'écran fluorescent à fibres scintillantes et l'écran classique déposé à l'extérieur d'une plaque de fibres, à résolution spatiale identique ?

Dans l'écran classique, le facteur η est faible (quelques %) mais l'efficacité de collection est très bonne ; à part l'absorption de la lumière dans le "phosphore", tout ce qui est émis vers l'avant est collecté par les fibres.

Dans l'écran à fibres scintillantes, le facteur de collection $f_{4\pi}$ est de l'ordre de quelques %, alors que l'efficacité de conversion η peut atteindre 100 % si la longueur d'interaction est suffisante.

On peut donc se demander où est l'intérêt de l'écran à fibres scintillantes, puisque (qualitativement) il produira le même rendement lumineux ?

Le gain se situe dans l'efficacité quantique de détection.

Supposons qu'on veuille fabriquer un écran classique conduisant à une résolution de l'ordre de 10 μm . Il faut donc utiliser une couche de l'ordre de 10 μm d'épaisseur qui aura un rendement quantique donné d'après l'expression (33) :

$$\eta = \left\{ 1 - \exp \left(- \frac{\mu}{\rho} \rho e \right) \right\} (1 - p_0) \quad (33)$$

où : η_c = efficacité quantique de l'écran classique

μ = coefficient linéaire d'absorption du matériau (cm^{-1})

e_c = épaisseur de l'écran classique

p_0 = probabilité pour qu'aucun photon visible ne soit engendré par un photon X incident

G = nombre de photons visibles émis en moyenne par photon X.

En supposant de plus $\mu e \ll 1$, on a :

$$\eta_c \approx \mu e_c (1 - p_o) \quad (50)$$

ce qui conduit à une expression de l'E.Q.D., suivant (31) et (50), supposant $G \gg 1$ et la statistique d'émission des photons visibles poissonnienne :

$$E.Q.D_c = \eta_c \cdot \frac{G}{G+1} \approx \eta_c \approx \mu e_c (1 - p_o) \quad (51)$$

Comparons avec un écran à fibres, pour lequel le pouvoir d'arrêt $1 - e^{-\mu e}$ est voisin de 100 %, mais dans lequel le taux de collection $f_{4\pi}$ est de l'ordre de quelques pourcent. Sous ces hypothèses, suivant (31) et (33) il vient avec des notations analogues (f pour "fibres") :

$$\eta_f = (1 - p_o) \quad (33')$$

$$E.Q.D_f = \frac{Gf_{4\pi}}{Gf_{4\pi} + 1} \cdot \eta_f \quad (52)$$

ce qui conduit à une valeur $EQD_{\text{fibre}}/EQD_{\text{classique}}$ égale à :

$$\frac{EQD_f}{EQD_c} = \frac{Gf_{4\pi}}{Gf_{4\pi} + 1} \cdot \frac{1}{\mu e_c} \quad (53)$$

Exemple numérique :

Pour fixer les ordres de grandeur, considérons, à 20 keV, le cas d'un écran en tungstate de calcium (CaWO_4) pour lequel des données ont été publiées [61, 62].

Les termes de notre comparaison sont donc les suivants :

(énergie des photons : 20 keV)

* Caractéristiques de l'écran classique en CaWO_4 :

coefficient d'absorption linéaire :

$$\mu = 256 \text{ cm}^{-1} \text{ (taux de remplissage = 100 \%)}$$

$$\mu_{\text{efficace}} \approx 128 \text{ cm}^{-1} \text{ (remplissage = 50 \%)}$$

$$\text{pouvoir d'arrêt pour une épaisseur } e_c = 10 \text{ } \mu\text{m} : 12 \%$$

$$\text{résolution spatiale : environ } 10 \text{ } \mu\text{m}$$

nombre de photons visibles par photon X incident :

$$\text{émis vers l'avant : } G/2 = 200 \text{ [61]}$$

$$\text{émis dans tout l'espace : } G = 400$$

$$\text{facteur de bruit : } \frac{G/2}{G/2 + 1} \approx 100 \%$$

(100 % de collection dans le demi-espace)

* Caractéristiques d'un écran à fibres utilisant le même matériau sur une grande longueur, pour une même résolution spatiale de 10 μm :

$$\text{taux de collection (par exemple) : } f_{4\pi} = 2 \%$$

$$\text{soit un angle de collection de : } 16^\circ$$

$$\text{exemple d'indices d'une fibre ayant le même angle de collection : } n_{\text{Gaine}} = 1,50$$

$$n_{\text{coeur}} = 1,56$$

$$\text{nombre de photons recueillis par photon X incident (avec miroir à l'entrée) : } 8$$

$$\text{facteur de bruit : } \frac{G f_{4\pi}}{G f_{4\pi} + 1} = 88 \%$$

$$\text{épaisseur d'interaction pour 99 \% de pouvoir d'arrêt : } e_c = 360 \text{ } \mu\text{m}$$

(remplissage = 50 %)

Rapport des efficacités de détection :

$$\frac{\text{EQD}_{\text{fibre}}}{\text{EQD}_{\text{classique}}} = \frac{0,88}{0,12} = 7,3$$

La figure 41) indique l'allure de l'évolution du rapport $\frac{EQD_{\text{fibre}}}{EQD_{\text{classique}}}$ en fonction de l'énergie du photon X incident en supposant les lois d'évolution suivantes :

$$G = 20 \times E \text{ (keV)}$$

(nombre de photons de fluorescence proportionnel à l'énergie du photon X, valant 400 à 20 keV)

$$\mu \text{ (cm}^{-1}\text{)} = 5,7 \times 10^5 \times E^{-2,8} \text{ (keV)}$$

(évolution moyenne des coefficients d'absorption sans tenir compte des seuils, valant 130 à 20 keV)

Le pouvoir d'arrêt de l'écran à fibres est pris égal à 99 % et son taux de collection $f_{4\pi}$ est pris égal à 2 % et 8 %.

Le pouvoir d'arrêt de l'écran classique est pris égal à $1 - e^{-\mu e_c}$ sans approximation, avec $e_c = 10 \mu\text{m}$ et $5 \mu\text{m}$.

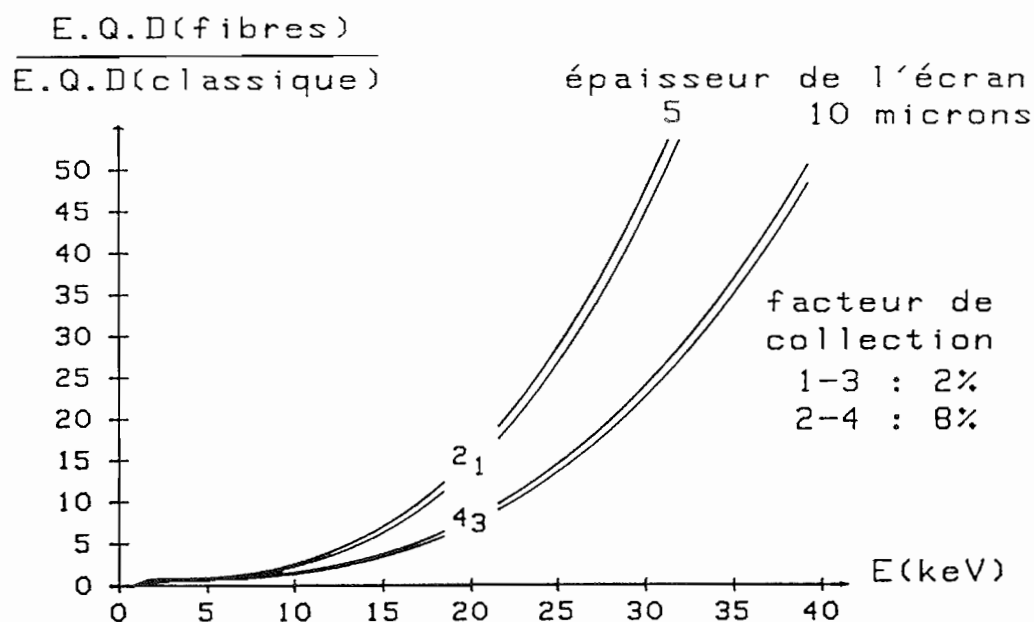


Figure 41 : Gain en efficacité quantique de détection (E.Q.D.) en fonction de l'énergie pour un écran à fibres par rapport à un écran classique fait du même matériau scintillateur et pour une même résolution spatiale.

Données pour le CaWO_4

c) Conclusions

De cette étude, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

1) Pourvu qu'il y ait au moins quelques photons visibles détectés par photon X incident, le faible taux de collection de l'écran à fibres scintillantes influe peu sur l'EQD.

2) Le gain en EQD des fibres scintillantes est notable surtout à partir de 10 keV et a fortiori aux énergies plus élevées sous réserve que le pouvoir d'arrêt soit suffisant. Cette condition est de plus en plus difficile à réaliser en X durs, comme nous l'étudions au paragraphe suivant.

2.4 - LIMITATIONS DE LA RESOLUTION SPATIALE DANS UN ECRAN A FIBRES SCINTILLANTES

Dans tout ce qui vient d'être dit, nous avons supposé que la seule limitation de la résolution spatiale provenait du pas du réseau de fibres. En fait d'autres causes interviennent, qui sont :

- . la non-collimation du faisceau X incident
- . le défaut de parallélisme entre les fibres et le faisceau supposé collimaté
- . les fuites de lumière d'une fibre à l'autre.

2.4.1 - Pertes dues à l'étendue géométrique du faisceau X incident

a) Effet de pénombre

(par défaut de contact, et à cause de l'épaisseur de l'objet)

Rappelons tout d'abord que si l'objet n'est pas en contact avec le détecteur et si la source n'est pas ponctuelle, l'image projetée est brouillée par effet de pénombre* (Fig. 42).

* l'effet de diffraction est négligeable aux énergies > 5 keV ($\lambda < 2$ Å).

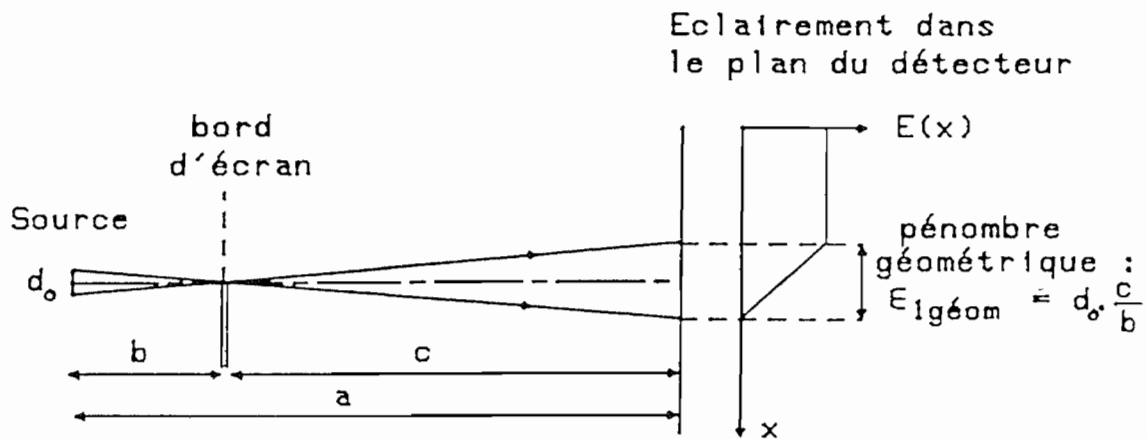


Figure 42 : Effet de pénombre limitant la résolution des images

Exemple numérique

Supposons une source X classique de dimension $d_0 = 2 \text{ mm}$, placée à une distance $a = b = 20 \text{ cm}$ du détecteur. Si l'on veut obtenir une résolution ϵ_{1geom} , le défaut de contact $c \ll a$ est donné par :

$$c = \frac{b \cdot \epsilon_{1geom}}{d_0} \quad (54)$$

ce qui nous donne : $c \approx 100 \epsilon_{1geom}$ si $b/d_0 = 100$.

Cette condition n'est donc pas très restrictive ($c \approx 500 \text{ } \mu\text{m}$ pour une résolution de $5 \text{ } \mu\text{m}$) avec un tube classique, et a fortiori encore moins avec le rayonnement synchrotron pour lequel $b/d \approx 10^4$.

b) Alignement des fibres par rapport au faisceau

Même si l'objet est assez mince et si le défaut de contact est assez faible pour que l'effet de pénombre soit négligeable, il reste une cause supplémentaire de brouillage intrinsèque au détecteur, si les fibres ne sont pas alignées avec les rayons X du faisceau incident.

Considérons tout d'abord le cas où la source est placée à distance finie : le faisceau de rayon X est alors divergent, et les photons X sont susceptibles de passer d'un canal à l'autre (Fig. 43).

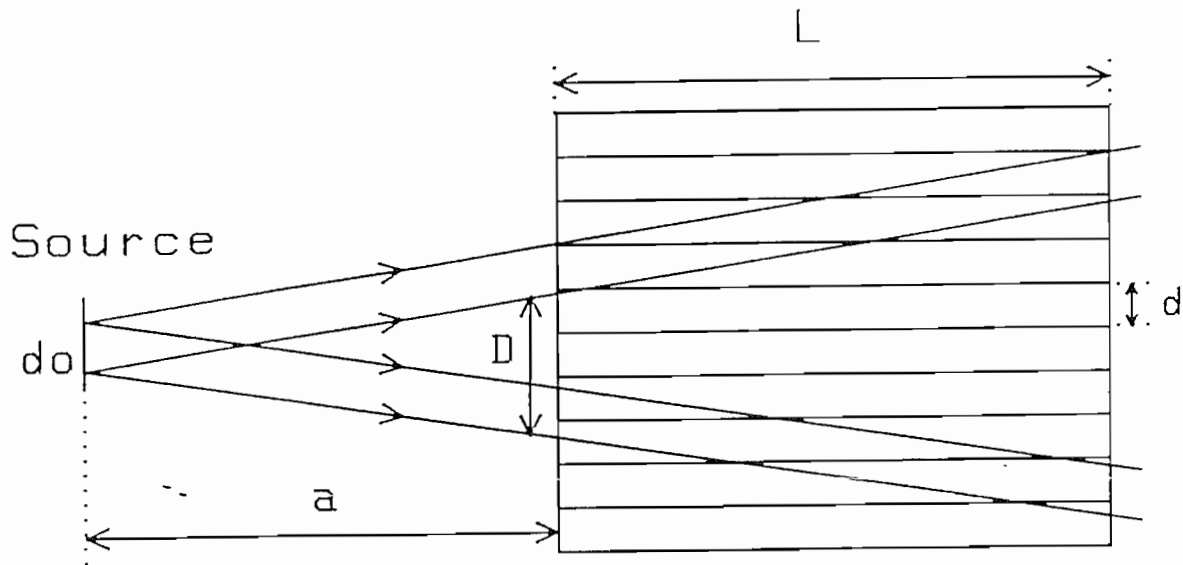


Figure 43 : Influence de l'étendue géométrique du faisceau X sur la résolution spatiale et le champ d'image nette d'un détecteur à fibres scintillantes parallèles

Supposons d'abord que les parois inter-fibres soient totalement transparentes aux rayons X.

Dans ce cas, on peut considérer que l'image restera nette tant que l'inclinaison des rayons reste inférieure au rapport d/L caractéristique de la plaque de fibres ; ceci conduit à une limite du champ observable $D_{\max}$:

$$D_{\max} \approx a \frac{d}{L} \quad (55)$$

Ex : $a = 200 \text{ mm}$, $d/L = 1/100 \rightarrow D_{\max} = 2 \text{ mm}$.

Cette analyse tombe en défaut si la dimension angulaire de la source d_0/a vue du détecteur devient supérieure à l'ouverture des fibres d/L , ce qui, pour les mêmes valeurs, limite la dimension d_0 de la source à 2 mm environ.

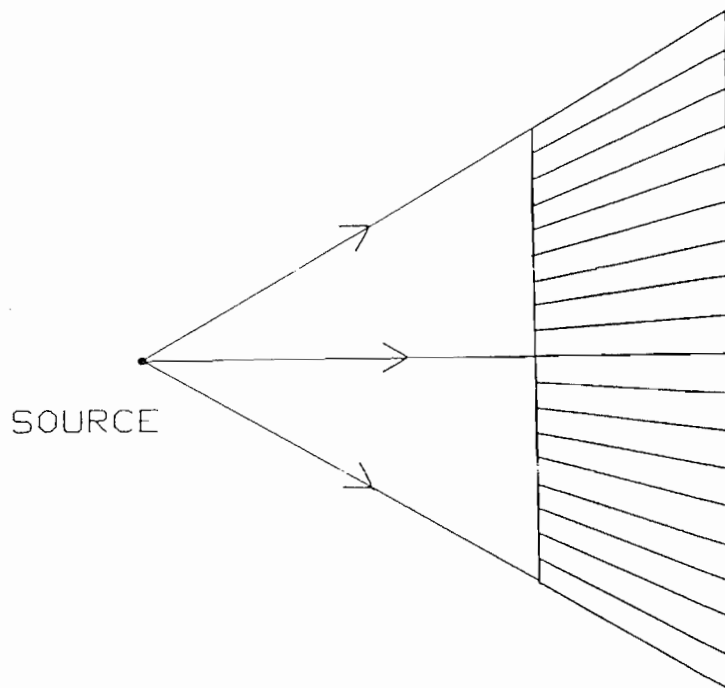
Ces conditions sont satisfaites avec le rayonnement synchrotron où $a \approx 10 \text{ m}$ et $d_0 \approx 1 \text{ mm}$ puisque, toujours avec $d/L = 1/100$:

$$D_{\max} \approx 10 \text{ cm} \text{ et } \frac{d_0}{a} = 10^{-4} \ll 10^{-2} = \frac{d}{L}$$

Par contre, ces restrictions de l'étendue du faisceau X sont importantes avec un tube X classique. Pour cela, il serait nécessaire d'utiliser une galette de fibres côniques adaptée à la distance de travail (Fig. 44). Dans ce cas, le champ n'est plus limité.

Figure 44 :

Utilisation de fibres côniques pour étendre le champ d'image nette en éclairage X divergent



Conclusion

- . Pour une plaque de fibres d'ouverture d/L , il y a limitation du champ sauf si la convergence des fibres est adaptée.
- . Avec le rayonnement synchrotron, la collimation du faisceau est suffisante pour n'entraîner aucune perte de résolution avec des fibres parallèles. Le détecteur devra cependant être aligné avec une précision angulaire de l'ordre de l'ouverture d/L des fibres, c'est-à-dire environ $1/2$ degré, ce qui est tout à fait réalisable en pratique.

c) Influence de l'absorption X dans les gaines

En réalité, on peut compter sur un certain effet de collimation par absorption des rayons trop inclinés dans les gaines d'épaisseur g (Fig. 45).

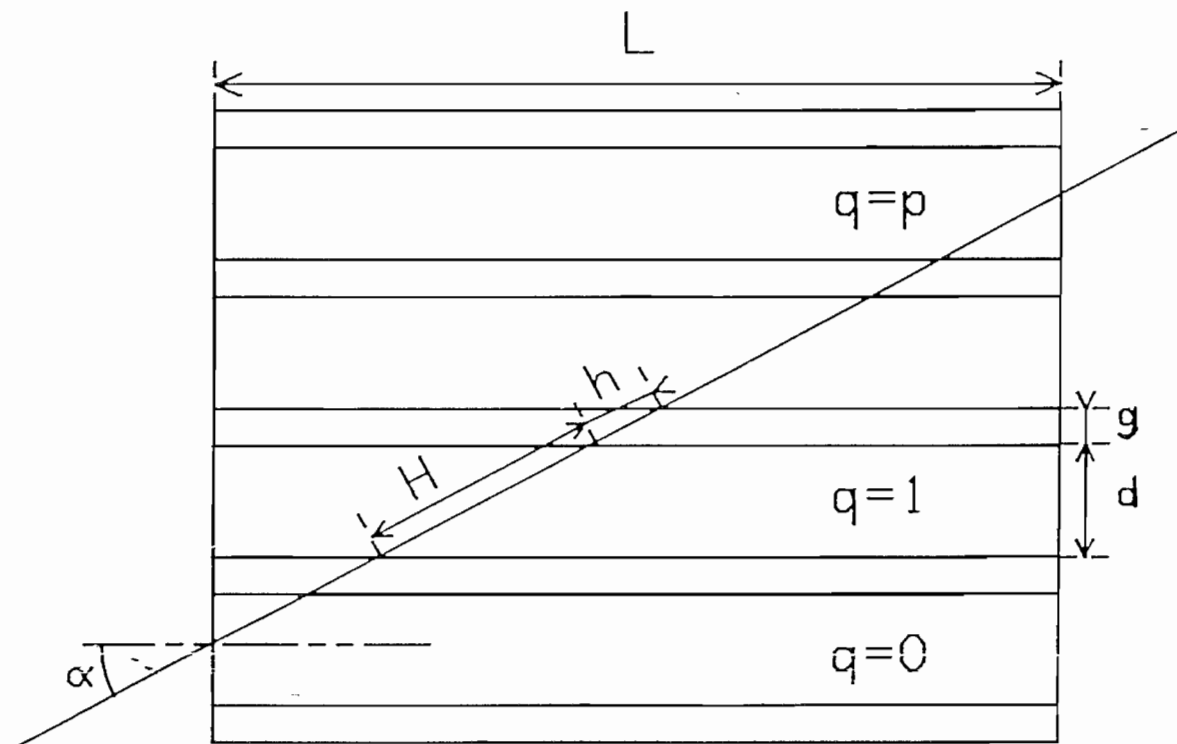


Figure 45 : Propagation d'un rayonnement X non parallèle aux fibres scintillantes : influence de l'absorption des X dans les coeurs et les gaines des fibres sur la distribution de lumière de fluorescence dans les fibres adjacentes à la fibre d'entrée.

L'efficacité de collimation et la distribution de lumière dans la q.ième fibre à partir de la fibre d'entrée ($q = 0$) va dépendre de l'inclinaison α du faisceau de rayons (supposés parallèles). Supposons pour simplifier que l'angle α soit tel que le nombre p de fibres traversées (en biais) soit un entier :

$$p = \frac{L\alpha}{(d+g)} \quad (56)$$

Dans ce cas le nombre de gaines traversées est égal au nombre de fibres traversées soit p .

La distance h parcourue dans la gaine s'écrit donc :

$$h = \frac{g}{\alpha} = \frac{gL}{p(d+g)} \quad (57)$$

De la même façon, la distance H parcourue dans le coeur de chaque fibre sous l'inclinaison α s'écrit :

$$H = \frac{d}{\alpha} = \frac{Ld}{p(d+g)} \quad (58)$$

De ce fait, l'effet de collimation va dépendre des coefficients d'absorption linéaires μ_c et μ_g du coeur et de la gaine respectivement, ainsi que du rapport des dimensions g/d (voir Fig. 45).

2 cas sont à distinguer :

$$a) h \mu_g > H \mu_c \quad g \mu_g > d \mu_c$$

Dans ce cas, la collimation par les gaines est bonne.

$$b) g \mu_g < d \mu_c$$

Dans ce cas, seule l'absorption X dans les fibres elles-mêmes limitera l'extension latérale du rayonnement incliné.

Le cas a) correspond plutôt à celui d'une gaine métallique remplie d'un scintillateur liquide ou plastique.

Le cas b) correspond au cas où le scintillateur, de pouvoir d'arrêt élevé (cas des poudres utilisées dans les écrans classiques) est gainé d'un matériau faiblement absorbant tel qu'un plastique ou un verre peu dense.

Précisons ce dernier point pour les fibres en verre. La gaine devant avoir l'indice le plus faible possible, on est tenté de choisir un verre de silice ($n \approx 1,46$). Dans ce cas le pouvoir d'arrêt des gaines sera faible en rayons X (longueur d'absorption de 200 μm à 8 keV, 1,9 mm à 20 keV).

On serait donc tenté d'utiliser pour les gaines un verre au plomb, mais ceci se traduit par une augmentation de l'indice de réfraction ($n = 1,7$ à $1,8$) incompatible avec un bon guidage. Un bon compromis pourrait être un verre tel que le verre au baryum S-990-11 Sovirel dont les caractéristiques sont résumées ici :

indice de réfraction : $n_D = 1,507$

densité : $d = 2,59$

composition :

SiO_2	67,2 %
BaO	12,2 %
K_2O	7,2 %
Na_2O	6,8 %
Al_2O_3	4,75 %
+ LiO_2, F	1,6 %

longueurs d'absorption calculées : $\mu^{-1} = 52,6 \mu m$ à 8 keV

$\mu^{-1} = 690 \mu m$ à 20 keV

La figure (46) permet d'illustrer cette discussion. On suppose que le détecteur est formé d'un verre de gaines identique au verre S-990-11 ; on supposera les fibres formées d'un (hypothétique) matériau scintillateur dont la longueur d'absorption μ_c^{-1} est de l'ordre de 200 μm à 8 keV. Choissant la longueur d'interaction L égale à $2\mu_c^{-1}$, la répartition de lumière dans les différents canaux ne dépend plus que des rapports d/g et μ_g/μ_c .

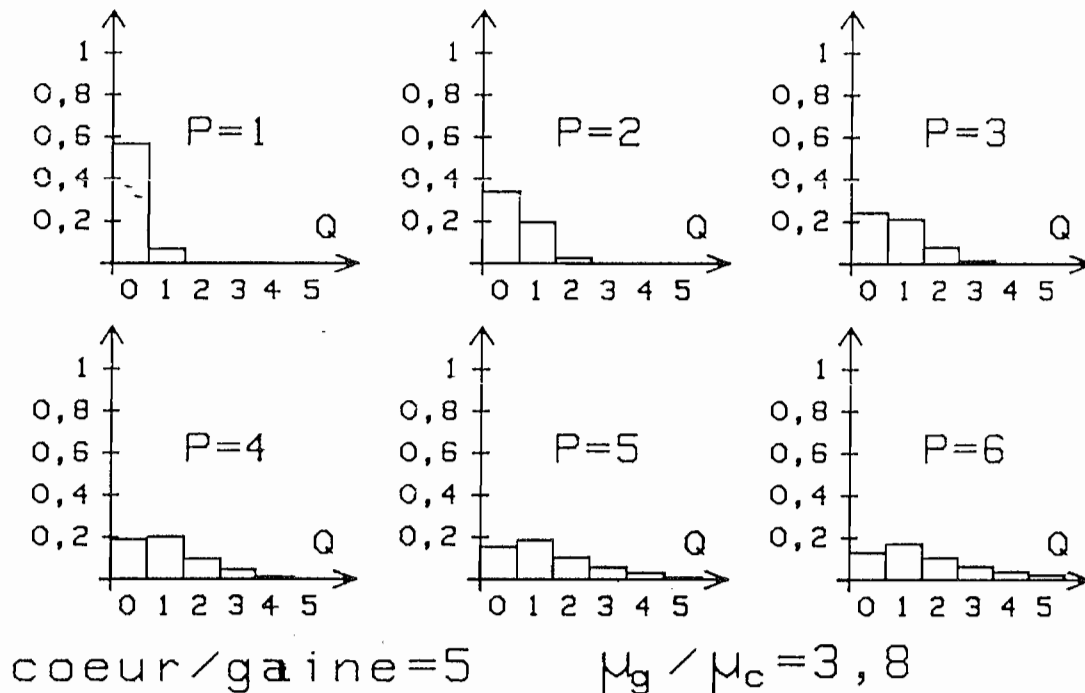


Figure 46 : Effet de l'inclinaison du rayonnement incident

Répartition de lumière dans les canaux adjacents - (indice Q)

Suivant les calculs de l'annexe 3, pour différentes valeurs de l'inclinaison du faisceau incident - (indice P)

Longueur d'interaction : $L = 2\mu_c^{-1}$

86 % du rayonnement absorbé en incidence normale.

On peut déduire de ces résultats les conclusions suivantes (en supposant la longueur d'interaction suffisante) :

- Pour qu'il y ait un effet collimateur important, le rapport des coefficients d'absorption μ_g/μ_c doit être nettement supérieur au rapport des dimensions d/g .

- Lorsque $\mu_g/\mu_c \approx d/g$ (cas de la figure 46), on voit que le contraste va chuter rapidement dès que "l'indice d'inclinaison" $P = \frac{L\alpha}{\alpha + g}$ dépasse quelques unités. On atteint même une situation ($P > 4$) où la majeure partie de la

lumière de fluorescence se retrouve dans les canaux adjacents au canal d'entrée. On voit donc tout l'intérêt d'utiliser une source très collimatée et d'aligner le détecteur en conséquence.

. Le calcul montre également que, si on suppose les coefficients d'absorption régis par une loi du type :

$$\mu = \mu_0 E^{-\alpha} \quad (59)$$

dans laquelle α est un exposant "universel" qui dépend peu du matériau, alors les résultats de la figure 46 deviennent indépendants de l'énergie des photons X tant qu'on maintient la condition $L = 2\mu_c^{-1}$. **Cette condition est fondamentale pour maintenir l'avantage en EQD de l'écran à fibres** (discussion du B.2.3.4b).

Si l'énergie augmente, l'épaisseur L du détecteur doit augmenter comme E^α ($\alpha \approx 2,8$)* ; simultanément, l'ouverture des fibres d/L diminue si on désire conserver la résolution spatiale constante. On voit ainsi que si la source est "classique", la diminution de l'ouverture d/L va se traduire par une baisse importante du flux disponible pour former l'image X.

Inversement, si l'on désire garder du flux et conserver d/L constant, on réintroduit alors un compromis résolution (d) / pouvoir d'arrêt (L) qui reste cependant meilleur que celui d'un écran "massif".

2.4.2 - Pertes de résolution par diaphotie entre les fibres

Nous avons vu au paragraphe B.2.3.2 que la fraction de la lumière émise vers l'avant qui est effectivement guidée ne dépasse jamais 20 à 30 %. Ceci veut dire que la majeure partie de la lumière se propage d'une fibre à l'autre.

On pourrait donc se dire que la fibre à guidage diélectrique ne guide en fait pas, et que l'image détectée à la sortie sera presque autant brouillée que dans un écran massif !

* Valeur moyenne que nous avons estimée d'après les données expérimentales des tables [29]

En effet (Fig. 47), si l'image est détectée en contact directement à la sortie de la galette, et si l'absorption de la lumière non guidée à la traversée des gaines est négligeable, l'effet de brouillage semble très voisin de celui d'un matériau massif.

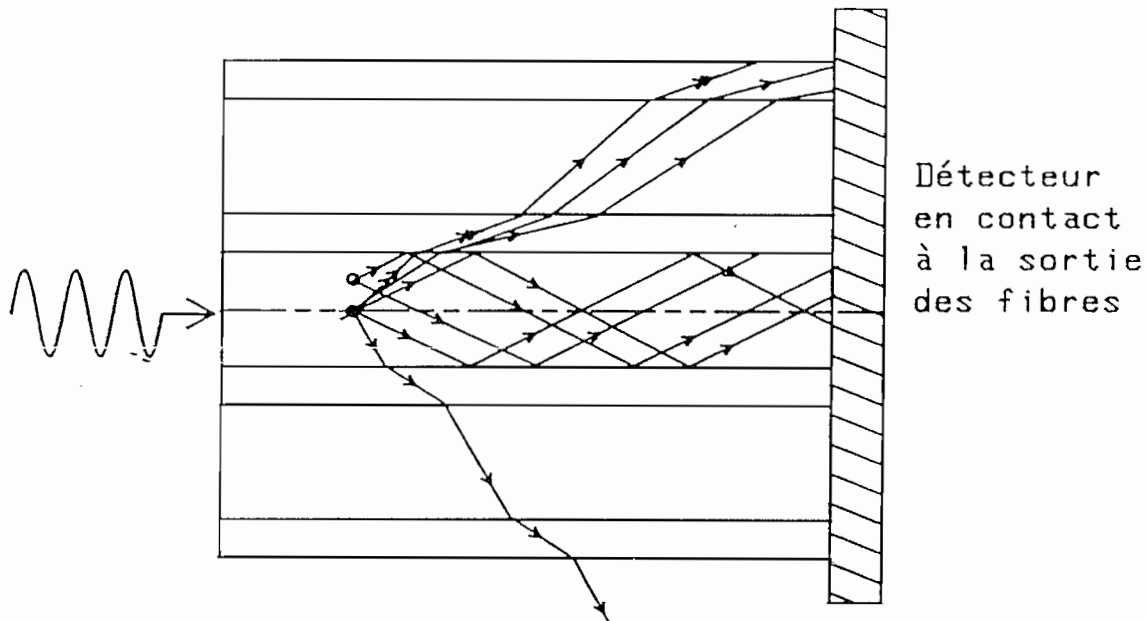


Figure 47 : L'image formée par la lumière guidée peut être brouillée par la lumière non guidée, lorsque la détection d'image s'effectue en contact à la sortie des fibres

Réduction de la diaphotie

En réalité (heureusement pour notre discussion !) il existe au moins deux moyens de s'affranchir de la lumière non guidée qui donnent de très bons résultats :

- . une façon directe consiste à insérer des fibres absorbantes entre les gaines
- . une façon indirecte consiste à **ne pas observer** l'image directement en contact mais de l'observer à travers une optique d'ouverture numérique adaptée.

a) fibres absorbantes

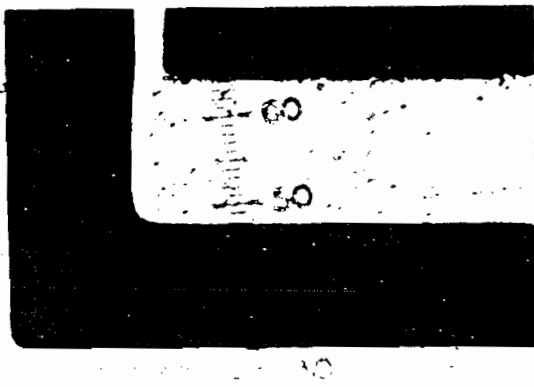
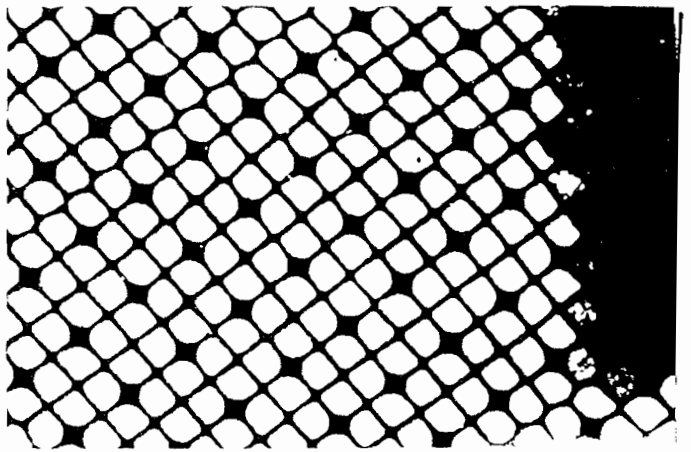
Ce procédé est couramment utilisé dans la fabrication des plaques de fibres optiques. Il consiste à insérer des fibres noires régulièrement disposées entre les gaines (Fig. 48) afin de "bloquer" la propagation de la lumière non guidée. Dans le cas des fibres scintillantes, on peut citer les travaux de R. Ruchti et col. [73] qui montrent de façon significative la réduction de l'effet de halo par adjonction de fibres noires interstitielles (appelées e.m.a. = extra-mural absorbent en anglais).

Figure 48 :

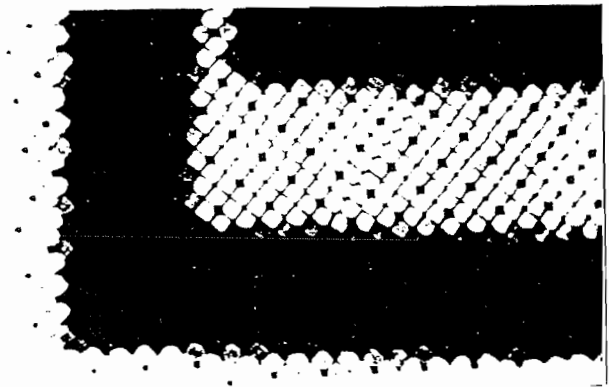
Agrandissement au microscope de la face de sortie d'une galette de fibres conductrices d'images incorporant des fibres noires interstitielles.

(ici : 1 pour 4 fibres optiques)

L'échelle est donnée par le pas du réseau de fibres : ici 10 μm .



a

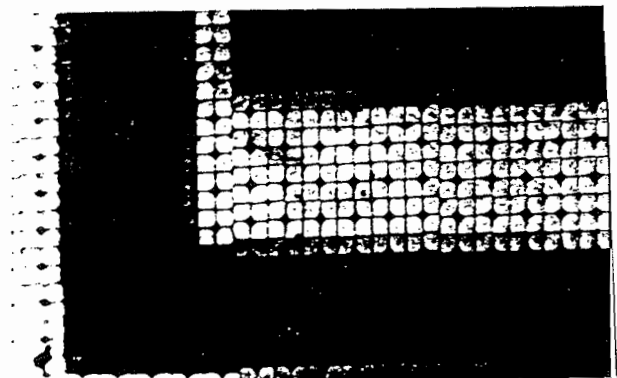


b

Figure 49 :

Transmission de l'image d'un masque pour micro-circuits (a) par une galette de fibres amincie à 0,5 mm d'épaisseur, pour 2 orientations différentes du réseau de fibres (b et c)

Echelle donnée par le pas du réseau de fibres soit 10 μm .



c

Mais s'il est clair que les fibres noires absorbent efficacement la lumière parasite pour une longueur de fibres de plusieurs millimètres et plus, on peut légitimement se poser la question de leur action dans une galette amincie à 0,5 mm environ.

Il est ici difficile de transposer le calcul d'absorption dans les gaines que nous avons fait pour les rayons X. En effet, les fibres ayant un diamètre de l'ordre de la longueur d'onde lumineuse, un modèle d'absorption de rayons nous semble peu réaliste. Pour cela nous pensons que l'excellent contraste obtenu, en lumière visible, sur la figure 49 est une indication expérimentale de l'efficacité d'absorption par les fibres noires, même sur un parcours inférieur au millimètre ; néanmoins, on objectera que les images ayant été prises au microscope (objectif 160X/0,17), intervient la réjection de la lumière non guidée par l'ouverture limitée de l'objectif, ce dont nous discutons maintenant.

b) Sélection de la lumière guidée par l'ouverture limitée de l'optique d'observation

modèle géométrique (rayons réfractés)

La lumière non guidée est celle qui est émise avec un angle θ_z^* supérieur à l'angle limite $\theta_o = \cos^{-1} \left\{ \frac{n_g}{n_c} \right\}$ (voir Fig. 50).

Si on suppose que cette lumière ne subit que la réfraction (pas de diffusion aux interfaces), elle se propage en conservant cet angle $\theta_z > \theta_o$ (Fig. 50).

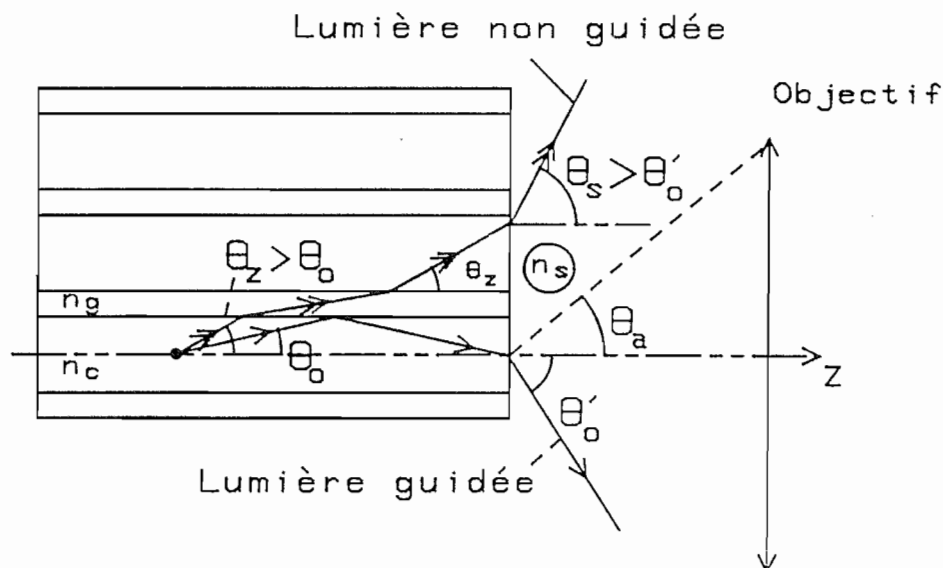


Figure 50 : Préservation de la résolution spatiale par sélection angulaire de la lumière guidée, à l'aide d'une optique d'ouverture numérique adaptée

* Cet angle est mesuré par rapport à l'axe de la fibre (voir l'analyse du § B.2.3.2)

De ce fait, cette lumière sort sous un angle θ_s défini par :

$$n_c \sin \theta_z = n_s \sin \theta_s \quad (60)$$

Or, si la face de sortie du détecteur est imagée à travers un objectif d'ouverture numérique $n_s \sin \theta_a$, cette lumière ne sera pas collectée si :

$$n_s \sin \theta_s > n_s \sin \theta_a \quad (61)$$

La collection sera donc optimale si tous les rayons guidés sont collectés et seulement eux, soit :

$$n_s \sin \theta_a = n_s \sin \theta'_o = n_c \sin \theta_o \quad (62)$$

c'est-à-dire, suivant (39) :

$$n_s \sin \theta_a = (n_c^2 - n_G^2)^{1/2} \quad (63)$$

Notons que ce raisonnement reste vrai à la fois pour les rayons réfractés et pour les rayons hélicoïdaux à faibles fuites, car les uns et les autres sont émis dans une direction d'angle $\theta_z > \theta_o$.

De ce fait, les rayons à faibles fuites, même si une partie importante de l'énergie qu'ils transportent reste confinée dans leur "fibre d'origine", seront réfractés à la sortie* sous un angle $\theta_s > \theta'_o$.

Une question plus délicate est de savoir si les rayons hélicoïdaux à faible fuite ($\theta_z > \theta_o$) peuvent être couplés (par ondes évanescentes) en rayons guidés ($\theta_z < \theta_o$) dans les fibres adjacentes. Pour l'instant, nous n'avons pas de réponse quantitative à cette question. Expérimentalement, il serait très difficile de le savoir car d'autres sources de "fuites" de lumière peuvent être envisagées (voir ci-dessous : § B.2.4.2c).

* Nous supposons ici que les rayons sortent à une interface coeur/milieu de sortie. On peut envisager le cas très improbable de rayons sortant à une interface gaine/milieu extérieur. Vu les dimensions ($\sim 1 \mu\text{m}$) des gaines, un modèle de rayons est tout à fait insuffisant, compte tenu de la diffraction par une si faible ouverture.

On voit donc que lorsque l'image est détectée par une optique (d'ouverture numérique nécessairement limitée) l'efficacité de collection peut être calculée en ne tenant compte que des rayons émis à un angle $\theta_z < \theta_0$, pourvu que l'ouverture numérique de l'objectif soit exactement adaptée. Ceci conduit aux formules du paragraphe B.2.3.1 (40) et (41).

Dans la pratique, en utilisant des objectifs de microscope travaillant "à sec" ($n_s = 1$) on ne peut pas dépasser des ouvertures de l'ordre de 0,4 si on veut conserver un champ suffisant (~ 1 mm). Pour avoir des champs plus importants, il faut avoir recours à des objectifs spéciaux pour photoréduction dont l'ouverture photométrique est de l'ordre de $f/1$ au maximum, ce qui correspond, en agrandissement, à une ouverture objet $n \sin \theta \approx 0,5$ maximum. Pour des ouvertures inférieures à 0,5, l'angle limite "utile" θ_0 devient faible comme l'indique le tableau ci-dessous (Tableau 5) :

ouverture numérique $n_s \sin \theta_s$	exemple de fibre adaptée pour $n_G = 1,500$	$\theta_0 = \sin^{-1}(1 - n_G^2/n_c^2)^{1/2}$	$f_{2\pi} = 1 - n_G/n_c$
0,18	$n_c = 1,511$	6,8 °	1,4 %
0,35	$n_c = 1,540$	13 °	5,2 %
0,5	$n_c = 1,581$	18 °	10 %

Tableau 5 : Adaptation de l'ouverture numérique de l'objectif à celle des fibres pour un optimum entre la collection de la lumière guidée et la réjection de la lumière non guidée

On voit que la sélection angulaire par l'ouverture de l'optique d'agrandissement permet de travailler avec des fibres à faible différence d'indices en conservant la résolution spatiale, comme nous le montrons expérimentalement au paragraphe B.2.5. En contrepartie, le taux de collection tombe à quelques pourcents, mais nous avons vu au paragraphe B.2.3.4 que même dans ce cas, l'écran à fibres scintillantes pouvait conserver, à résolution spatiale égale, son avantage en efficacité quantique de détection.

c) Pertes non géométriques

L'analyse faite précédemment (a et b) repose sur des modèles de rayons réfléchis et réfractés. On peut légitimement se demander ce qu'il advient lorsque :

- . la diffusion intervient à la réflexion et la réfraction de la lumière aux interfaces coeur/gaine
- . la dimension des canaux devient de l'ordre du micron : la lumière, **même guidée**, peut alors être couplée par ondes évanescentes dans les canaux voisins.

La question de la diffusion n'est peut être pas la plus gênante dans le cas de galettes en verre fabriquées par étirage, pour lesquelles on sait que les états de surface sont très bons. Tout au plus peut-on dire que la diffusion a tendance à redistribuer de manière isotrope la lumière, ce qui peut favoriser le re-couplage de lumière non guidée ($\theta_z > \theta_0$) dans les canaux adjacents.

La contribution de la lumière diffusée est sans doute plus importante dans une fibre obtenue par attaque chimique comme c'est le cas dans nos expériences (§ B.2.5) à cause de l'effet de rugosité des surface entraînée par l'action des acides. Ces effets sont difficilement mesurables.

Plus importantes nous semblent être les limitations imposées par le couplage inter-fibres pour des faibles dimensions des motifs. En effet, c'est le pas de la matrice de fibres qui détermine la résolution spatiale qu'on peut obtenir (dans le modèle géométrique que nous venons d'exposer).

En réalité, on sait que lorsque deux guides diélectriques sont distants de quelques longueurs d'onde, il se produit un couplage entraînant le passage de l'énergie alternativement d'un guide à l'autre. Le cas du système multi-guides est beaucoup plus complexe ; mais il est certain (en se basant sur le modèle du couplage entre guides plans [82]) qu'il est impossible d'empêcher l'excitation simultanée de plusieurs fibres adjacentes lorsque la dimension des gaines est de l'ordre du micron pour une dimension de coeur de 2 à 3 microns.

Les limites de résolution spatiale d'un système à fibres scintillantes nous semblent donc être à la fois pour des raisons théoriques et pratiques de l'ordre de 3 à 5 μm , et il sera sans doute très difficile d'améliorer notablement la résolution en-dessous de 5 microns.

Conclusion sur les paragraphes B.2.3 et B.2.4

Dans cette partie, nous nous sommes efforcés de montrer l'intérêt de la détection X par galette de fibres scintillantes et nous pensons avoir montré l'intérêt de ce dispositif par rapport à l'écran classique.

- A résolution spatiale égale, l'efficacité quantique de détection est nettement meilleure, surtout au-delà de 10 keV.
- La résolution spatiale peut atteindre celle du pas du réseau de fibres à condition que le faisceau X soit suffisamment collimaté et que les fuites de lumière de fluorescence ne dégradent pas la résolution (grâce à des fibres absorbantes intersticielles, ou par une optique d'observation adaptée).
- La résolution spatiale ultime est de l'ordre de 3 à 5 microns.

La question qui se pose maintenant est celle de la réalisation expérimentale. Dans le paragraphe suivant (B.2.5), nous présentons les résultats expérimentaux que nous avons obtenus en utilisant une galette de fibres à coeur liquide obtenue par imprégnation d'une matrice de microtubes par un scintillateur liquide.

2.5 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Introduction

La difficulté principale réside dans la réalisation de la matrice de fibres scintillantes. La solution qui nous a semblé la plus intéressante vu sa simplicité est le remplissage (par capillarité) d'une matrice de microtubes avec un liquide scintillateur.

Dans deux séries d'expériences, nous avons utilisé :

- 1) une galette de microcanaux (non terminée) utilisée comme matrice de multicapillaires.
- 2) une plaquette de fibres optiques en verre, creusée par attaque chimique.

Nous examinons d'abord les problèmes de choix du substrat et du scintillateur. Ensuite, nous présentons le montage expérimental et les résultats obtenus. Enfin nous discutons des améliorations possibles de l'expérience.

2.5.1 - Comment choisir le réseau de microtubes ?

Les réseaux de microtubes débouchants sont disponibles sur le marché :

- comme galettes de multi-capillaires pour la filtration de liquide ou la collimation de jets moléculaires,
- comme galettes de micro-canaux utilisées comme intensificateurs d'électrons

Ces réseaux sont fabriqués soit par "compactage" et étirage de tubes, soit par attaque chimique de galettes de fibres de verre à coeur soluble.

Pour plus de détails, nous renvoyons à [83] pour les méthodes utilisées dans la fabrication des galettes multiplicatrices d'électrons.

En pratique, les méthodes de fabrication par étirage de fibres à coeur de verre permettent d'obtenir à la fois la meilleure régularité dans les réseaux obtenus, et le meilleur état de surface des microtubes.

a) Paramètres importants

Les deux points les plus importants pour notre application sont :

- . l'indice du verre du réseau de microtubes qui doit être le plus bas possible car il constituera l'ensemble des gaines,
- . le pas du réseau qui doit être le plus petit possible. On peut trouver des réseaux de pas 10 microns.

b) Choix pour nos premières expériences : galettes de micro-canaux

Dans une première application, nous avons utilisé une ébauche de galette de microcanaux* de pas 20 μm (diamètre des tubes : 17,5 μm) à réseau hexagonal. Le verre qui la constitue n'est absolument pas optimisé pour ses propriétés

* c'est-à-dire juste le réseau de microtubes n'ayant pas subi le traitement final qui le transforme en multiplicateur d'électrons. Cette galette nous a été aimablement fournie par la Société R.T.C. que nous tenons à remercier ici.

optiques ; son indice n'est pas connu. Cependant nous avons pu l'estimer à $1,57 \pm 0,01$ environ (voir § B.2.5.2) et utiliser cet échantillon dans une première expérience. Il existe également des matrices de multicapillaires de pas $10\text{ }\mu\text{m}$ et d'indice 1,53 que nous n'avons pas utilisées.

L'inconvénient de ces systèmes est que, n'étant pas prévus pour l'imagerie à fibres, ils ne comprennent pas les fibres noires interstitielles dont nous avons montré tout l'intérêt au paragraphe précédent.

c) Choix pour la deuxième série d'expériences : fibres conductrices d'images

C'est pour cela que nous avons cherché une autre solution : l'attaque chimique d'une galette de fibres optiques afin de "déboucher" les fibres en enlevant le coeur, de façon analogue au procédé le plus courant de fabrication des galettes de microcanaux le plus utilisé. Il se trouve que certaines galettes de fibres optiques se prêtent à cette technique, compte tenu de la différence de solubilité dans les acides entre le verre de coeur et le verre de gaine [99]. Nous avons ainsi pu utiliser* une matrice de microtubes de pas $10\text{ }\mu\text{m}$, obtenue en creusant une plaquette de fibres optiques.

L'intérêt de travailler à partir de galettes de fibres optiques réside dans :

- . la possibilité d'avoir des ~~galettes~~ au pas aussi fin que $5\text{ }\mu\text{m}$. Malheureusement, en-dessous de $10\text{ }\mu\text{m}$, il est très difficile de "déboucher" ces fibres sur des profondeurs de l'ordre de $100\text{ }\mu\text{m}$ et plus.
- . la possibilité d'avoir des fibres noires interstitielles. Ce qui pose le problème de leur préservation lors de l'attaque chimique. Heureusement, le diamètre de ces fibres noires étant de l'ordre de $1\text{ }\mu\text{m}$, l'expérience montre que, pour des raisons de cinétique physico-chimique, elles sont attaquées beaucoup plus lentement que les coeurs de 5 à $10\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre.
- . l'optimisation du verre de gaines pour les applications optiques.

* La préparation de ces galettes par attaque chimique a été réalisée au L.E.P. de Limeil-Brévannes par M. Duchenois et son équipe, spécialistes des procédés de fabrication des galettes de microcanaux à coeur soluble. Nous les remercions vivement de leur aimable collaboration pour cette partie de technologie de fabrication.

Pour les plaques de fibres que nous avons utilisées (American Optical), C. Gamble et al [84] indiquent les valeurs suivantes :

indice de gaine : 1,48

indice de coeur : 1,81.

On notera en particulier la faible valeur de l'indice de gaine, ce qui permet une importante latitude dans le choix du matériau de remplissage après attaque chimique. En effet (voir paragraphe suivant), la plupart des liquides ont un indice inférieur à 1,5 ce qui restreint considérablement les possibilités lorsque l'indice de gaine est de l'ordre de 1,55 à 1,6.

Nous terminerons en donnant quelques indications sur la préparation des échantillons à partir de galettes de fibres optiques.

On est amené à utiliser des réseaux de microtubes relativement minces (moins de 1 mm d'épaisseur) compte tenu des conditions expérimentales (voir § B.2.5.2 et B.2.5.3). Lorsque le réseau de microtubes est "terminé" (c'est-à-dire "débouché", il est extrêmement cassant. Il est donc exclu, en pratique, d'avoir à amincir par rodage une plaquette déjà débouchée. Il faut donc découper et roder le substrat avant l'attaque chimique. On utilise pour cela les méthodes classiques* du tronçonnage à la scie à fil suivi du polissage comme pour un verre traditionnel. On obtient ainsi un état de surface ainsi qu'une planéité et un parallélisme des faces excellents.

2.5.2 - Choix du scintillateur

Le choix du scintillateur liquide doit tenir compte de la contrainte supplémentaire introduite par l'effet de guidage diélectrique. Nous avons vu comment le rendement de collection était d'autant plus élevé que la différence d'indice entre le coeur (scintillant) et la gaine est grande. Or l'indice de gaine est celui d'un verre, qui est comme nous l'avons vu compris entre 1,48 et 1,57 selon les substrats. Or ces valeurs sont incompatibles avec la plupart des valeurs d'indices des liquides courants qui sont plus faibles. De plus, le liquide doit être scintillateur. Ceci nous amène à rappeler les propriétés de ces liquides.

* La préparation des plaquettes de fibres est réalisé aux ateliers du verre de l'Institut d'Optique.

a) Scintillateurs liquides usuels

Les liquides scintillateurs sont formés, en général :

- d'un solvant : Toluène, Xylène pour les plus courants
Dioxanne pour ceux qui doivent être miscibles à l'eau.
- d'un scintillateur primaire :

Il s'agit d'un corps organique dont la molécule présente une bande d'absorption et une bande de fluorescence dans l'U.V. L'association* solvant/scintillateur primaire permet de convertir l'énergie des particules incidentes (photons X ou γ , électrons) en photons U.V. qui sont émis à une longueur d'onde qui dépend de la bande de fluorescence de la molécule "scintillante". En général le maximum d'émission se situe entre 300 et 380 nm (proche U.V.) ce qui est difficilement exploitable car ces longueurs d'onde sont absorbées dans les verres d'optique courants, et elles ne correspondent pas au maximum d'efficacité des photomultiplicateurs courants ou a fortiori des détecteurs au silicium.

- scintillateur secondaire :

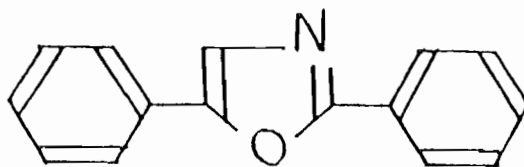
C'est une molécule organique dont la bande d'absorption correspond (approximativement) à la bande d'émission du scintillateur primaire ; la réémission ayant lieu dans le bleu. Le scintillateur secondaire est présent en concentration plus faible que le scintillateur primaire ; son rôle est de translater la portion de spectre de fluorescence de l'U.V. au visible.

On voit ainsi que les mécanismes de transfert entre l'énergie de la particule incidente et les photons visibles finalement détectés sont particulièrement complexes ; néanmoins un certain nombre de combinaisons solvants/scintillateurs sont très classiques, connues pour leur efficacité. Citons en particulier les produits que nous avons utilisés :

* Le solvant joue un rôle important des les transferts énergétiques mis en jeu par la scintillation.

scintillateur primaire

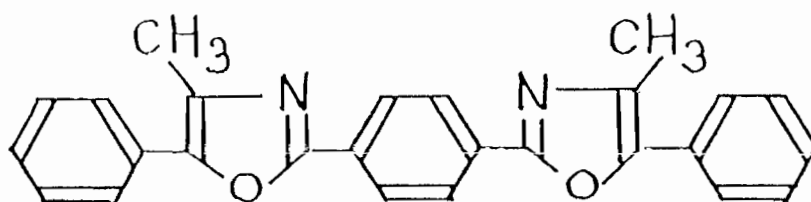
le 2.5 - diphényloxazole
connu sous le nom de PPO



PPO

scintillateur secondaire

le 1,4-di-[2-(4-méthyl-5-phényloxazolyl)]benzène
connu sous le nom de diméthyl-PoPoP



Diméthyl-PoPoP

Les proportions standard de scintillateur sont les suivantes :

PPO : 4 à 6 g par litre de solvant (toluène ou xylène)

diméthyl-PoPoP : 0,1 à 0,5 g par litre.

b) Adaptation d'indice de réfraction

Un scintillateur réalisé à base de toluène ou de xylène a un indice de réfraction très voisin de celui du solvant, c'est-à-dire de l'ordre de 1,50*, ce qui est insuffisant pour assurer un guidage diélectrique avec la plupart des verres ; en particulier dans la première expérience que nous avons réalisée à l'aide d'une galette de microcanaux, le verre de gaine a un indice de l'ordre de 1,57.

Il vient donc assez naturellement à l'esprit de remplacer le toluène par un autre liquide organique d'indice élevé. Un des liquides les plus employés en optique est le 1-bromonaphtalène dont l'indice de réfraction est le suivant [85] (Tableau 6) :

* Pour le toluène, on a les valeurs suivantes : 1,515 à 0,434 μm ; 1,507 à 0,486 μm ; 1,4955 à 0,589 μm [85].

(μm) λ	0,397	0,434	0,486	0,589	0,656
n	1,7289	1,7041	1,6819	1,6582	1,6495

Tableau 6 : Indice de réfraction du 1-bromonaphtalène d'après [85]

En utilisant un mélange de Toluène et de Bromonaphtalène, il est possible d'ajuster de façon continue l'indice de réfraction du mélange entre 1,50 et 1,70. A titre indicatif*, voici quelques valeurs d'indice des mélanges que nous avons relevées (Tableau 7) :

(proportions en volumes)

Toluène	4	3	3	1	1
Bromonaphtalène	1	1	2	1	2
Indice ($\lambda \approx 0,5\mu$)	1,53	1,54	1,57	1,585	1,61

Tableau 7 : Indice de réfraction d'un mélange toluène-bromonaphtalène

A l'aide de ces mélanges, nous avons pu tester l'effet de guidage lumineux dans la galette de microcanaux. Il suffit d'utiliser la méthode classique de "l'immersion" qui consiste à observer au microscope, en transmission, la face de sortie de la galette imprégnée par des liquides d'indices croissants. Lorsque l'indice de coeur liquide est insuffisant, le guidage s'effectue par les gaines qui apparaissent claires, alors que les fibres, elles, restent sombres. Inversement, lorsque l'indice de coeur devient suffisant, la lumière est guidée par les fibres et celles-ci deviennent claires, entourées par des gaines sombres.

*Ces valeurs sont certainement entachées d'erreurs car l'indice du mélange varie au cours de la mesure, suite à l'évaporation du Toluène qui est beaucoup plus volatil que le Bromonaphtalène.

Cette méthode permet d'estimer l'indice de gaine en vérifiant s'il y a guidage diélectrique, ce qui est le but recherché. Il est de toutes façons quasi-impossible de mesurer l'indice du verre de gaine sur le réseau lui-même à cause de sa structure en nid d'abeilles beaucoup trop fine pour le réfractomètre d'Abbe classique ; la lumière est essentiellement diffractée par le réseau et il est impossible de mesurer un angle limite de réflexion totale comme sur un matériau massif.

c) Influence du liquide d'indice sur le rendement de fluorescence

Indépendamment du rendement de collection (qui est d'autant meilleur que l'indice de coeur de la fibre scintillante est plus élevé), l'adjonction de bromonaphtalène au scintillateur se traduit par une baisse importante (facteur 5 à 10) du rendement total de fluorescence, c'est-à-dire le nombre total de photons visibles réémis par photon X incident. Cet effet que nous avons constaté expérimentalement sur des échantillons-témoins peut s'expliquer par la moins bonne transmission du rayonnement U.V. par le bromonaphtalène.

La figure 51 permet de comparer les spectres d'absorption dans l'U.V. du Toluène et du Bromonaphtalène. On constate en particulier que ce dernier corps cesse de transmettre l'U.V. en-dessous de 350 nm, alors que le Toluène reste transparent jusqu'à 285 nm.

La figure 52 montre d'autre part les spectres d'absorption et de fluorescence des molécules de scintillateur que nous avons utilisées.

L'absorption de l'UV par le bromonaphtalène contribue partiellement à la baisse de rendement de fluorescence que nous avons constatée (un facteur 5 à 10) mais ne permet pas de l'expliquer totalement. Il faut faire intervenir d'autres effets "d'empoisonnement" du scintillateur dus à l'adjonction d'un liquide de fort indice ; on sait le rôle joué par les impuretés en général dans la chute des rendements de fluorescence, par exemple l'influence néfaste de l'oxygène de l'air. (Introduction de possibilités de recombinaison non radiative)

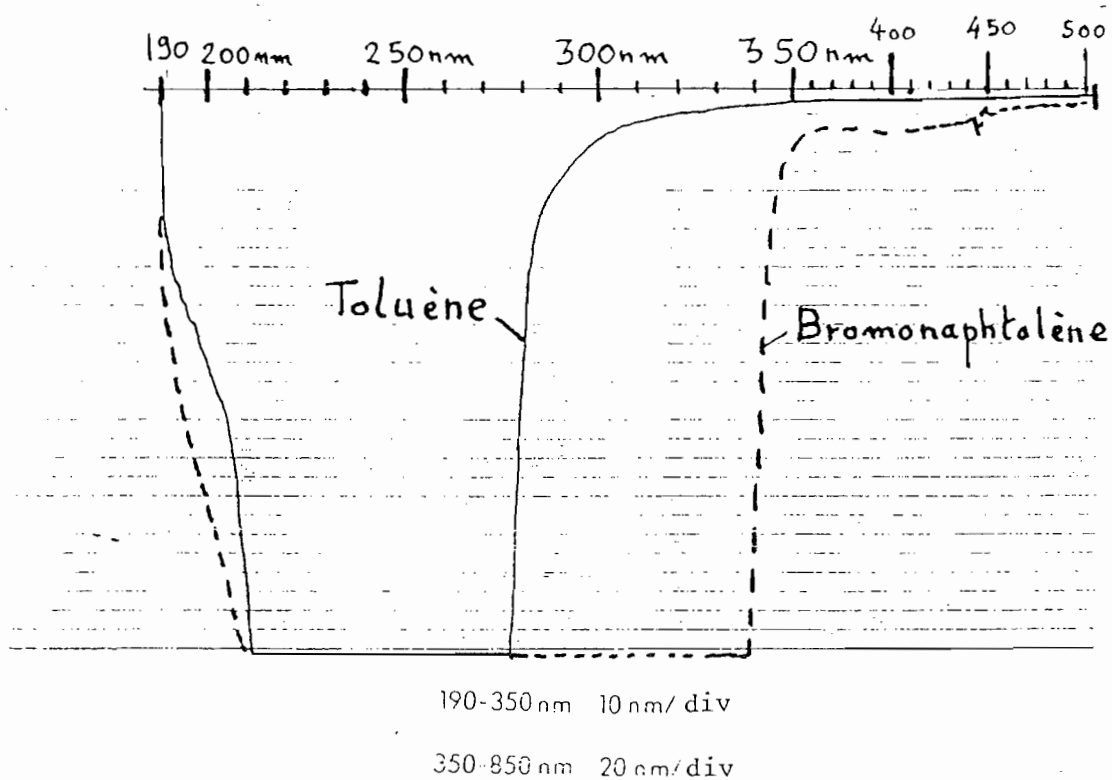


Figure 51 : Spectres d'absorption U.V. du Toluène et du Bromonaphtalène

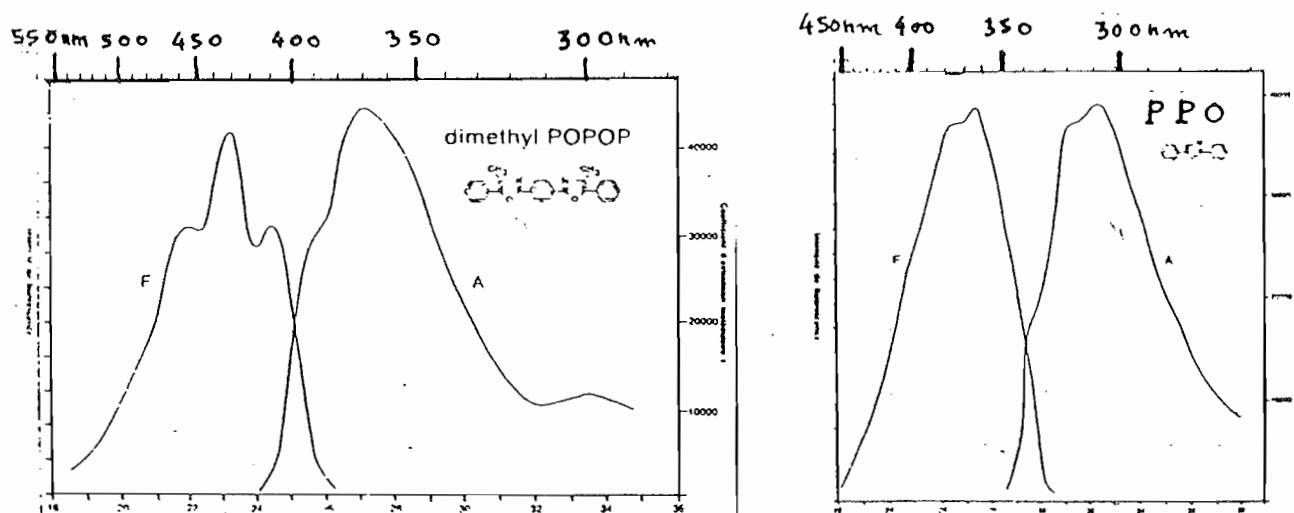


Figure 52 : Spectres d'absorption et de fluorescence des scintillateurs PPO et diméthyl-PoPoP dans l'U.V.

d) Conclusion sur le choix du scintillateur

On voit donc que ce choix résulte nécessairement d'un compromis, et qu'il est souhaitable de partir d'un verre de gaine d'indice le plus bas possible pour ne pas avoir à modifier les caractéristiques du scintillateur. En effet, il nous semble qu'il y a peu d'espoir de trouver un solvant (ou une combinaison de solvants) qui soit à la fois transparent dans l'U.V et de fort indice de réfraction. La méthode (ancienne) des réfractions molaires nous montre [86] que pour augmenter l'indice de réfraction d'un liquide organique de façon notable, il faut que des atomes d'halogènes (Cl, Br, I) soient substitués aux atomes H.

Or les modèles de réponse optique des matériaux (électrons élastiquement liés) nous suggèrent que la dispersion et l'absorption ne peuvent pas être dissociées (cas particulier des relations de Kramers-Krönig).

Autrement dit, si un liquide organique a un indice élevé dans le visible, à cause de la présence d'halogènes, il sera également très absorbant dans l'U.V. Ces deux phénomènes jouent en sens inverse (collection/absorption) pour l'évaluation du rendement lumineux global d'une fibre scintillante à coeur liquide.

Il existe cependant un avantage des solvants halogénés par rapport aux molécules non substituées : l'amélioration du pouvoir d'arrêt des rayons X, par suite de l'introduction d'atomes (Br, I) de ~~numéro atomique~~ Z nettement plus élevé que les constituants principaux (C, H, O, N) de la chimie organique. Cette question sera ré-examinée aux paragraphes suivants.

2.5.3 - Montage expérimental

Nous décrivons ici les expériences que nous avons réalisées :

- à l'aide d'une galette de microcanaux
- à l'aide d'une plaquette de fibres gravée chimiquement.

Le schéma 53 et la photo 54 présentent l'ensemble du montage qui comprend :

- . un générateur de rayons X (raie CrK_α , $\lambda = 2,29 \text{ \AA}$, $U = 20 \text{ kV}$, $I = 20 \text{ mA}$)
- . l'objet (grille au pas de $80 \mu\text{m}$) en contact avec le détecteur.

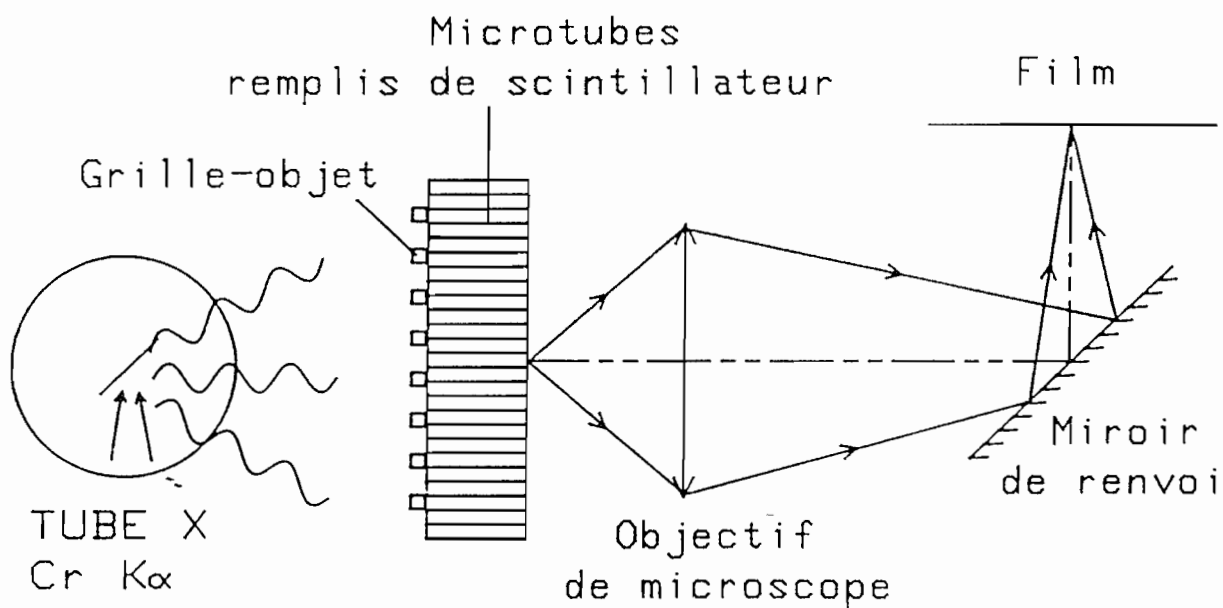


Figure 53 : Schéma du dispositif expérimental de formation et détection d'images à l'aide d'une galette de fibres scintillantes à coeur liquide

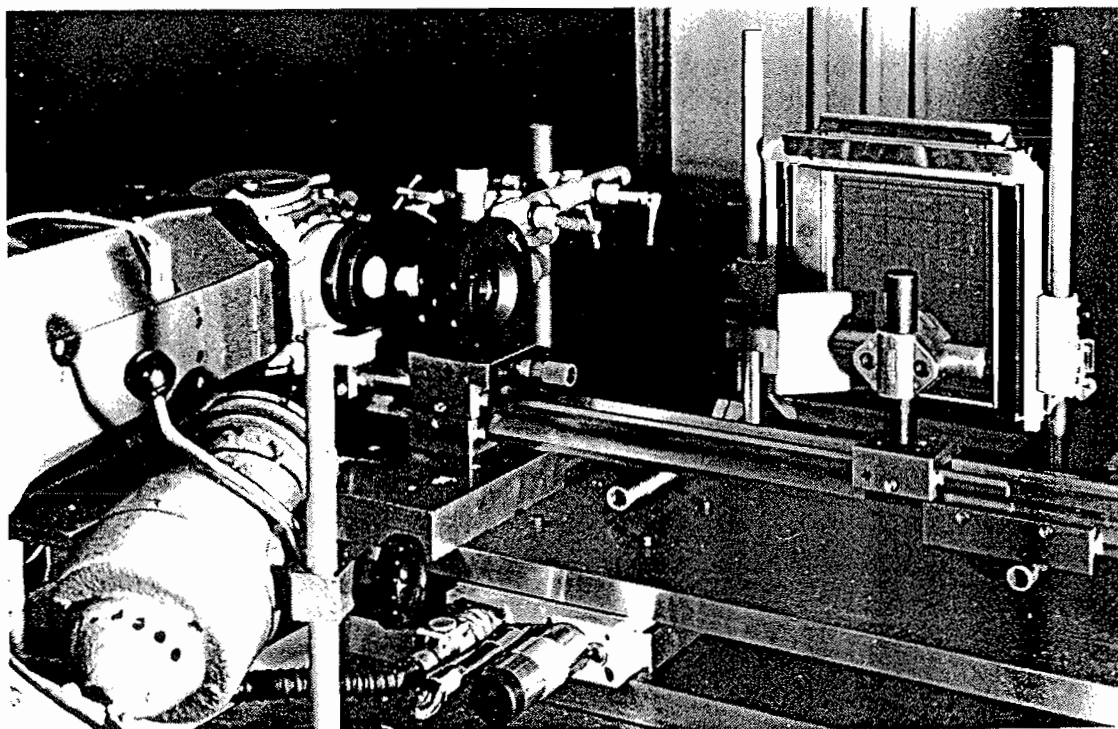


Figure 54 : Montage expérimental.

De gauche à droite : tube à rayons X, porte objet/galette scintillante, objectif de microscope, miroir à 45 °, dépoli/porte-châssis de chambre photographique.

- . Un objectif de microscope formant l'image de la face de sortie du détecteur. Nous avons utilisé des objectifs métallographiques : 10X/0,18 et 20X/0,35.
- . Un miroir de renvoi à 45 ° pour protéger le film contre une éventuelle exposition directe aux rayons X.
- . Le film pour l'enregistrement de l'image agrandie 5 à 25 fois.

Donnons quelques détails sur le montage et le réglage de l'ensemble.

a) Montage de l'objet et imprégnation du détecteur

Le porte-objet est un anneau sur lequel est tendue une membrane de mylar aluminisé de quelques microns d'épaisseur. L'objet est ensuite collé sur cette membrane qui sert également de miroir de renvoi pour la lumière de fluorescence (cf. § 8.2.3.4a). L'ensemble est ensuite déposé sur la matrice de microtubes qui est remplie par capillarité (Fig. 55 et 56).

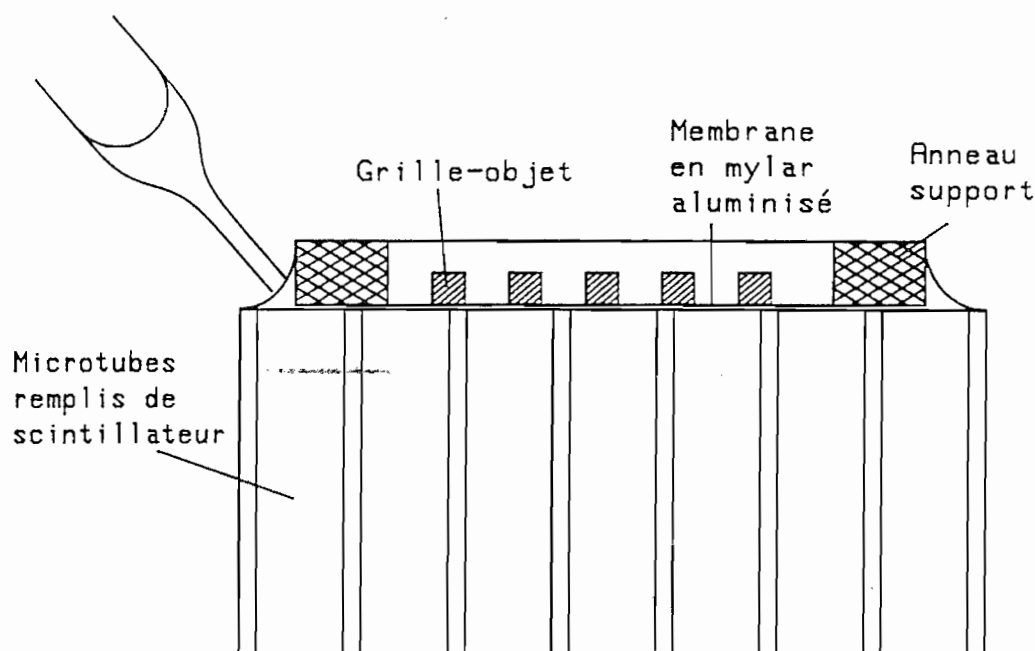


Figure 55 : Principe du montage de l'objet : maintien par capillarité contre la galette de microtubes remplis de scintillateur

Lorsque les canaux sont débouchants sur la face de sortie, le remplissage par capillarité ne pose aucune difficulté, le réseau de microtubes se comportant exactement comme un "buvard". Le porte-objet est alors maintenu par les forces de mouillage uniquement, aucun mode de fixation supplémentaire n'est nécessaire. Dans ce cas, nous avons également ajouté sur la face de sortie une lamelle couvre-objet de microscope (épaisseur : 0,17 mm) afin de minimiser l'évaporation du solvant.

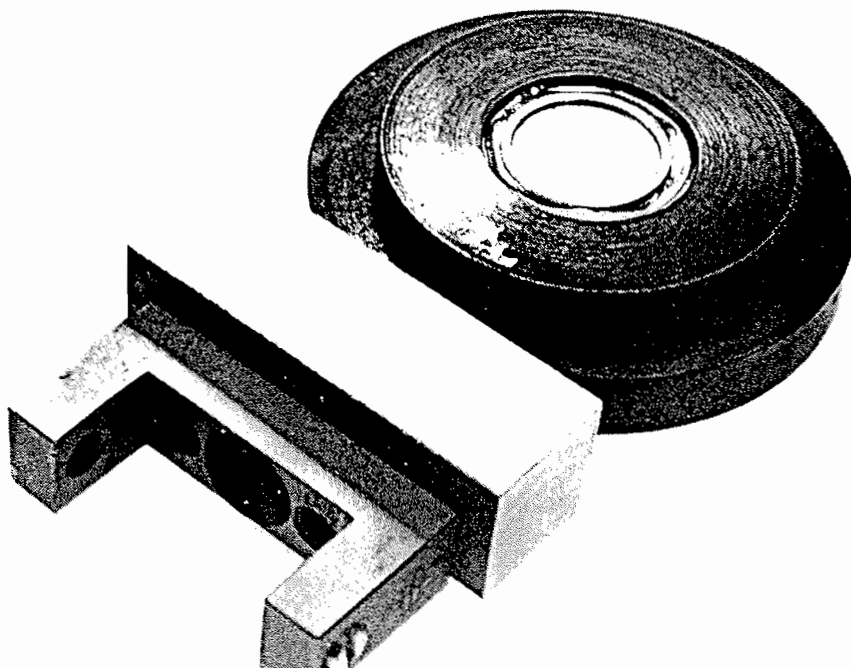


Figure 56 : Barillet porte-galette scintillante avec l'objet en contact sur son cadre en mylar aluminisé

Lorsque les canaux ne sont pas débouchants, nous avons utilisé une pré-imprégnation de la galette par la solution scintillatrice sous vide grossier. Le porte-objet est ensuite maintenu par capillarité comme précédemment. Dans un cas comme dans l'autre, le nettoyage s'effectue sans difficulté majeure dans un bain d'éther.

b) Réglages optiques ; exposition

L'objet et le détecteur en contact sont montés sur un barillet placé le plus près possible du tube X afin de perdre le minimum de flux disponible. On ne peut pas descendre en-dessous d'une certaine valeur à la fois pour des raisons d'encombrement, et parce qu'il faut respecter la condition de collimation évoquée au paragraphe B.2.4.1. Dans notre cas, le rapport longueur/diamètre des canaux du détecteur était de l'ordre de 70 maximum ; le tube X ayant un foyer-source de l'ordre de $0,4 \times 0,8 \text{ mm}^2$, la distance minimale de travail est donc de l'ordre de 5 cm : c'est celle que nous avons adoptée.

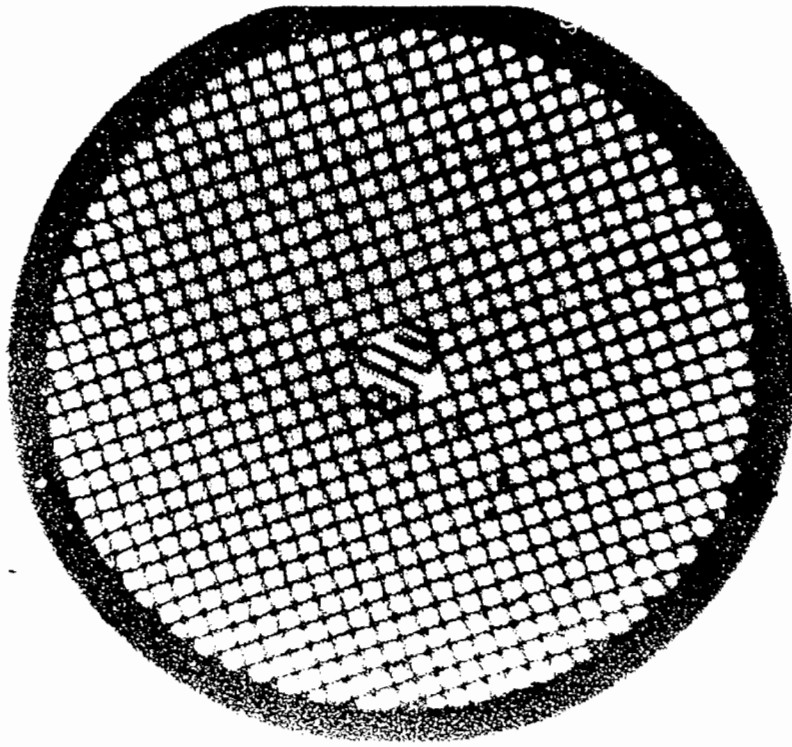


Figure 57a : Image d'une grille ($\emptyset$: 3 mm) de pas 80 μm à l'aide d'un réseau de microtubes scintillateurs au pas de 20 μm . La perte de résolution en bord de champ provient de la limitation par le cercle d'image nette de l'objectif de microscope utilisé (10X/0,18) pour la détection de l'image.

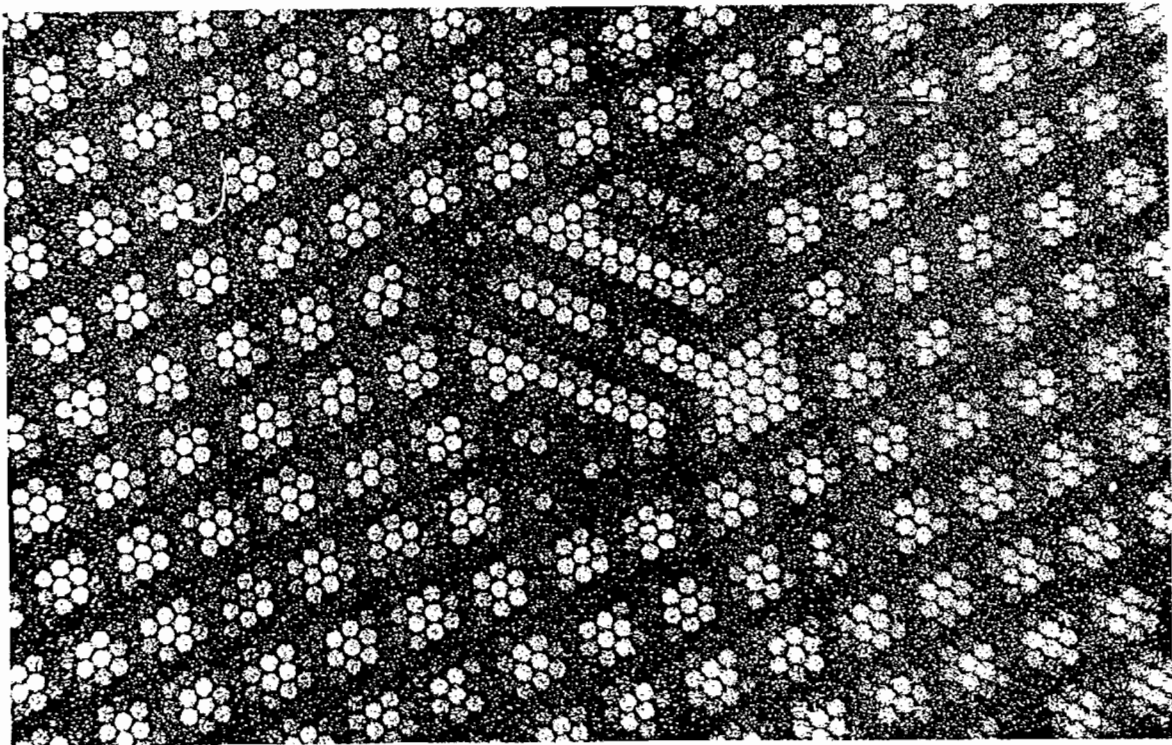


Figure 57b : Agrandissement de la vue précédente permettant d'estimer la résolution du dispositif. Diamètre des tubes : 17,5 μm

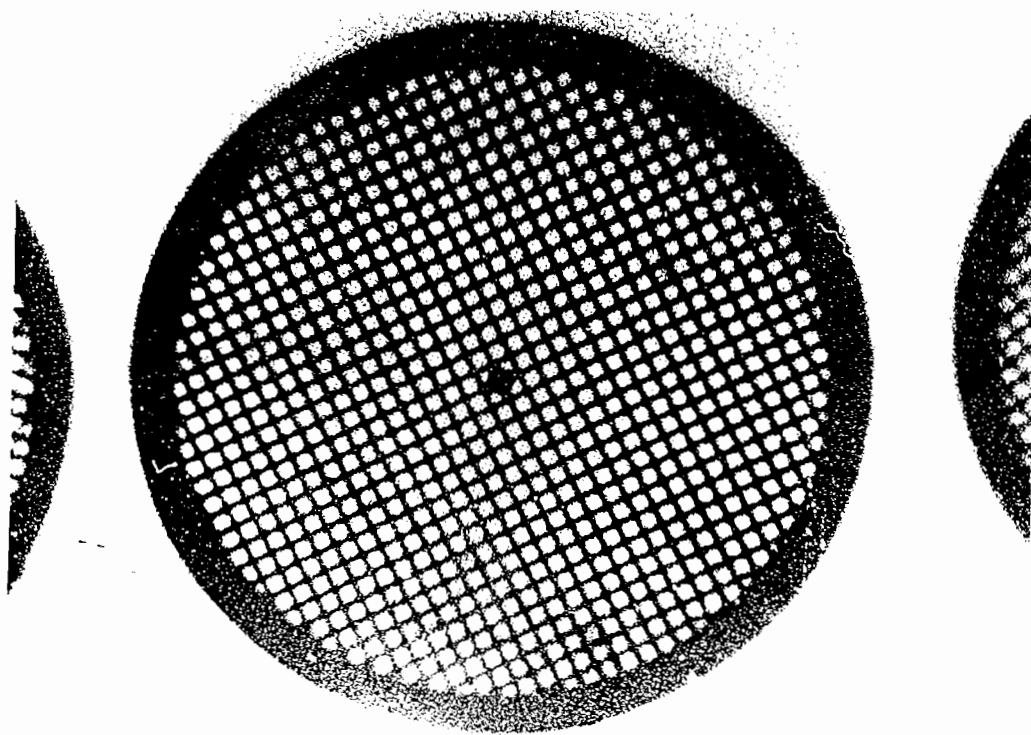


Figure 58a : Image d'une grille ($\emptyset$: 3 mm) de pas 80 μm à l'aide d'un réseau de microtubes scintillateurs au pas de 10 μm obtenue par attaque chimique d'une plaquette de fibre optiques conductrices d'images. Là encore, la résolution n'est limitée en bord de champ que par l'objectif de microscope (20X/0,35)

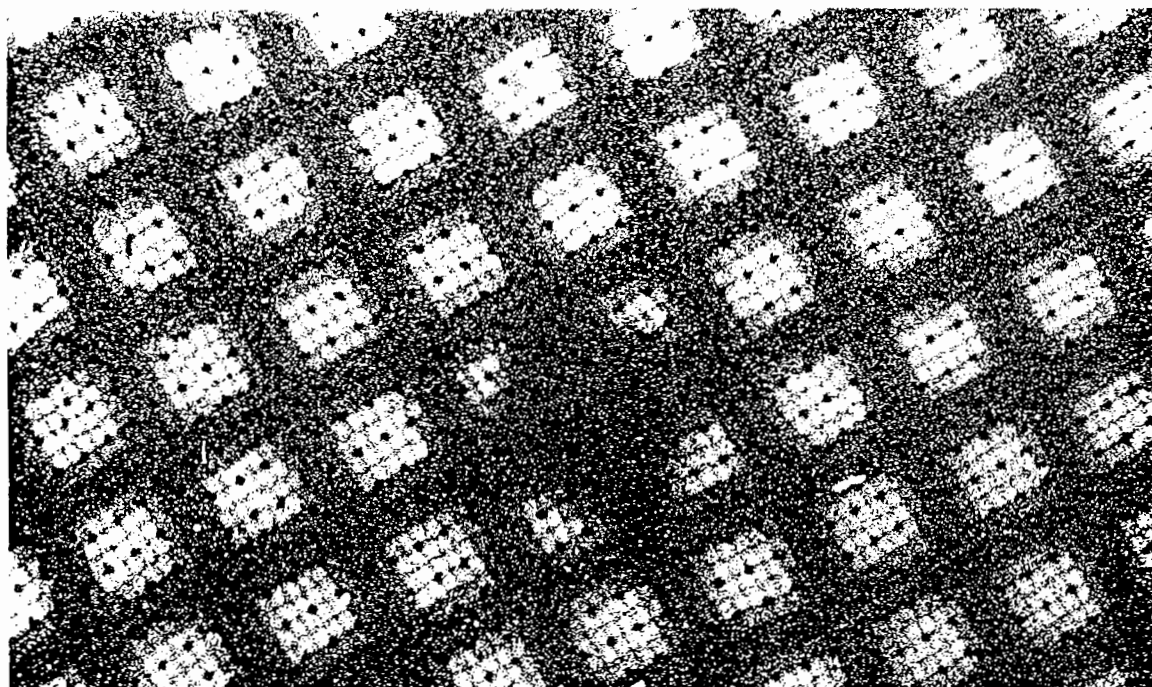


Figure 58b : Détail de la vue précédente permettant d'estimer la résolution qui est de l'ordre de la dimension d'une fibre, soit 10 μm

Compte tenu de l'incertitude sur les indices, l'ouverture $\sin \theta'_0$ du système (mesurée dans l'air) est comprise entre 0,08 et 0,30, la valeur moyenne étant de l'ordre de 0,2. L'adaptation avec l'objectif d'ouverture 0,18 est donc très approximativement réalisée, ce qui est important ici vu que la galette de microcanaux ne contient pas de fibres noires intersticielles.

b) Plaquette de fibres optiques au pas de 10 μm creusée par attaque chimique

La figure 58a et b) présente l'image obtenue avec un objet analogue (grille au pas de 80 μm) dans les conditions suivantes :

- . objectif : 20X/0,35
- . grandissement : 25
- . temps de pose : 1 H ; film 400 ASA.

Commentaires

Dans cette expérience, la résolution est également de l'ordre de 1 canal : soit 10 μm . La différence par rapport au cas précédent est la présence des fibres noires intersticielles qui tendent à limiter la diffusion de la lumière d'une fibre à l'autre. Néanmoins, malgré l'utilisation d'un objectif d'ouverture numérique plus élevée (0,35), la grande différence d'indice entre le verre de gaine (1,48) et le coeur scintillateur (1,585) conduit à une limitation par l'optique d'imagerie.

En effet, pour $n_c = 1,585$ et $n_g = 1,48$, on a $a^* \sin \theta'_0 = 0,57 > 0,35$.

c) Efficacité quantique de détection

La mesure directe de l'E.Q.D. de l'ensemble du détecteur est délicate car elle requiert des mesures en comptage de photons X et visible. Nous nous proposons ici de fournir une estimation approchée de l'E.Q.D. dans l'expérience b) en tenant compte des paramètres accessibles directement ou par des tables qui sont :

- les caractéristiques d'émission du tube [87,88,89]
- la géométrie du système optique : grandissements, ouvertures numériques
- la sensibilité du film et le temps de pose [90].

* La présence d'extrémités de fibres non débouchées d'indice élevé ($n_c^i = 1,81$) ne modifie pas cette analyse puisque lors de la réfraction la quantité $n_c \sin \theta_0$ est conservée.

Les données ainsi obtenues sont résumées dans le tableau 8 suivant (détails à l'annexe 4) :

η désigne le rendement de conversion $X \rightarrow$ visible

G désigne le nombre moyen de photons visibles émis dans tout l'espace par photon X incident

T désigne le facteur de transmission du système imposé par l'angle de collection maximal du système fibres/optique d'observation.

	Eclairement disponible :	$1,4 \times 10^8 \text{ photons.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$
	Flux reçu par cellule de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$:	$140 \text{ photons.s}^{-1}$
Rayons X	Epaisseur permettant, à $2,29 \text{ \AA}$, d'absorber 90 % du rayonnement dans un mélange de 50 % de Toluène et 50 % de Bromonaphtalène :	$275 \mu\text{m}$
	Epaisseur du dispositif : (creusé sur une face)	environ $300 \mu\text{m}$
Visible	Nombre maximal de photons visibles ($\lambda = 0,4 \mu$) créés par un photon X d'après la conservation de l'énergie ($\lambda = 2,29 \text{ \AA}$) :	$G_{\text{max}} = 1\,750$
	Nombre de photons visibles ($\lambda = 0,4 \mu$) recueillis sur le film, par photon X incident :	$\eta GT = 5$
	Efficacité de collection maximale :	
	$T_{\text{max}} =$	de 1 % (ouverture : 0,12, pas de miroir de renvoi) à 6 % (ouverture : 0,35, + miroir de renvoi)

Tableau 8 :

Paramètres expérimentaux pour l'estimation de l'E.Q.D. du détecteur

Connaissant le produit $(\eta GT)_{\text{expérimental}}$ dans nos conditions de travail, nous nous proposons d'estimer le rendement de conversion η et l'E.Q.D. de l'ensemble du détecteur compte tenu des valeurs possibles pour le facteur de transmission expérimental T , ce dernier étant compris entre 1 % et 6 %.

Puisque nous savons voir annexe 4) que $(\eta GT)_{\text{expérimental}} = 5$, que $G \leq G_{\text{max}}$ = 1 750 et que $T \leq T_{\text{max}} = 6 \%$, on en déduit une borne inférieure pour l'estimation de l'efficacité de conversion η :

$$\eta \geq \frac{(\eta GT)_{\text{expérimental}}}{G_{\text{max}} T_{\text{max}}} \quad (64)$$

D'autre part, comme on sait que l'efficacité η est par définition ≤ 1 , il est nécessaire que :

$$GT \geq (\eta GT)_{\text{expérimental}} = 5 \quad (65)$$

ce qui signifie qu'il y a **plus que quelques photons visibles** détectés par photon X incident.

D'après notre étude faite en introduction au chapitre B1, on sait que dans ce cas l'efficacité quantique (EQD) de l'ensemble du processus conversion/collection est très voisine de l'efficacité de conversion η . D'où finalement, d'après (64), en remplaçant par les valeurs numériques expérimentales :

$$\text{E.Q.D} \approx \eta \geq \frac{5}{1\,750\,T_{\text{max}}} \quad (66)$$

avec $T_{\text{max}} = 1 \%$ à 6% .

ce qui conduit à une estimation de l'E.Q.D. minimale comprise entre **5 %** et **30 %**.

d) Conclusion

De ces expériences, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- . il est possible d'atteindre 10 μm de résolution
- . bien qu'il soit difficile d'estimer précisément l'E.Q.D. sans avoir recours au comptage de photons, on peut comparer favorablement l'ordre de grandeur de l'EQD du détecteur à fibres scintillantes (très certainement supérieure à 10 %) à celle d'une plaque photographique à grains fins exposée aux rayons X dans les mêmes conditions (de l'ordre de 0,1 %).
- . le dispositif a fonctionné avec des flux de l'ordre de $10^8 \text{ photons.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, ce qui est très nettement supérieur à ce que peuvent recevoir les détecteurs à amplification interne (galette de microcanaux, chambre proportionnelle multifils).

2.5.5 - Les améliorations possibles

a) Résolution spatiale

Il semble théoriquement possible d'atteindre une résolution égale à celle des meilleures plaques de fibres disponibles sur le marché : soit 5 μm .

La difficulté consiste à trouver un réseau de microtubes assez fin. Si la méthode d'attaque chimique donne de bons résultats jusqu'à ~~10 μm~~ , il semble que par ce procédé il soit extrêmement difficile de déboucher des fibres de 5 μm sur une longueur supérieure à quelques dizaines de microns ; le temps d'attaque devient trop long pour que les gaines ne soient pas détruites également.

b) Rendement lumineux global et efficacité quantique de détection

Dans sa forme actuelle, il faut tenir compte du fait que le mélange utilisé a un rendement de scintillation très inférieur (d'un facteur 5 à 10 environ) au scintillateur non modifié par adjonction de bromonaphtalène. Néanmoins, l'influence de ce dernier constituant sur l'E.Q.D. du détecteur n'est pas forcément mauvaise ; bien que l'absorption dans l'U.V tende à diminuer le nombre de photons visibles, nous avons vu que ce facteur a peu d'influence du moment que le nombre "d'évènements" détectés par photon X incident reste constant. De plus, le brome améliore considérablement le pouvoir d'arrêt (absorption X) et l'efficacité de collection (indice de réfraction) du détecteur.

Il serait très intéressant de pouvoir utiliser d'autres matériaux tels que les plastiques afin d'améliorer la différence d'indice entre le coeur et la gaine sans utiliser d'additifs halogénés. En ce qui concerne le pouvoir d'arrêt, une solution utilisée dans le domaine des détecteurs de particules de haute énergie consiste à ajouter des sels d'étain (élément de numéro atomique Z élevé) dans le scintillateur, ce qui ne semble pas "empoisonner" la scintillation.

Il serait aussi possible de cette façon d'utiliser le détecteur dans le domaine 10 - 50 keV sans être obligé d'augmenter trop l'épaisseur.

- L'image était agrandie d'un facteur 10 à 25, afin de bien apprécier les limites de résolution du dispositif, ce qui tend à diminuer l'éclairement dans l'image finale d'un facteur 100 à 600 par rapport à une détection à grandissement 1.

- Enfin la détection photographique utilisée dans le visible n'est pas la façon la plus efficace pour enregistrer l'image : l'efficacité quantique équivalente des films à $\lambda = 0,4 \mu\text{m}$ est de l'ordre du pourcent [91].

Il est donc souhaitable, pour cette raison, et afin d'utiliser une détection d'image en temps réel, de remplacer le film par un récepteur photoélectronique plus efficace : par exemple un intensificateur d'images couplé à un détecteur CCD. Cette question sera abordée au chapitre suivant.

CONCLUSION DU CHAPITRE 2

Dans cette partie, nous nous sommes efforcés d'aborder les différents aspects théoriques et expérimentaux de la détection de rayons X par un écran à fibres scintillantes. Bien entendu, un certain nombre de problèmes ne sont pas résolus, en particulier le problème théorique des fuites de lumière d'un canal à l'autre lorsque les fibres atteignent $10 \mu\text{m}$ et moins. Néanmoins, nous pensons avoir pu montrer clairement :

- l'intérêt du dispositif dans l'amélioration du compromis flux/résolution, en particulier au-delà de 10 keV,
- qu'il est possible d'atteindre $10 \mu\text{m}$ de résolution avec quelques précautions (fibres noires, ouverture limitée de l'optique d'agrandissement),

- qu'un tel dispositif peut fonctionner avec des flux élevés (une étude expérimentale des phénomènes de vieillissement restant à faire).

Il nous faut maintenant étudier l'intégration d'un dispositif analogue à celui que nous avons réalisé dans un détecteur d'images X quantitatives en temps réel.

Le chapitre 3 a pour but de proposer des possibilités d'applications avec le rayonnement synchrotron qui est, par son faisceau quasi-parallèle et son haut flux, particulièrement adapté à un détecteur à fibres scintillantes parallèles.

CHAPITRE 3

APPLICATIONS DE L'ECRAN HAUTE RESOLUTION A FIBRES SCINTILLANTES

INTRODUCTION

Au début de la partie B, nous nous étions fixé comme but d'étudier la possibilité de former des images X en temps réel. Or, dans les expériences présentées au chapitre précédent, nous avons utilisé une détection photographique, par raison de commodité et de simplicité.

Dans un premier paragraphe, nous étudierons donc les possibilités d'associer un écran à fibres à un détecteur électronique afin d'obtenir une image numérique.

L'intérêt de la conversion $X \rightarrow$ visible est qu'on ramène le problème d'imagerie X à celui d'une détection d'image visible : mais l'image ainsi convertie correspond à des niveaux de lumière très faibles qui, dans la plupart des cas, ne peuvent pas être correctement détectés sans un amplificateur de brillance.

Nous examinerons les flux disponibles en vue du couplage à un détecteur de type mosaïque CCD.

Nous étudierons ensuite des possibilités d'application avec le rayonnement synchrotron.

3.1 - ACQUISITION NUMERIQUE DE L'IMAGE

3.1.1 - Niveaux de lumière disponibles

Dans l'expérience préliminaire décrite au chapitre précédent, les caractéristiques photométriques étaient les suivantes (voir annexe 4) :

- . Eclairement X disponible : (utilisation d'un tube X classique)
 $1,5 \times 10^8 \text{ photons cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
- . Eclairement dans l'image visible sur le film ($\lambda = 0,5 \mu$) :
 $E \approx 5 \times 10^{-9} \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$
- . En unités visuelles (600 lumens par watt) :
 $E \approx 3 \times 10^{-6} \text{ lux}$.

Ces chiffres sont à comparer aux spécifications des amplificateurs de brillance récents [92] :

niveau de bruit équivalent à l'entrée : 10^{-6} lux
niveau de fonctionnement moyen : 10^{-3} lux
(correspond à une scène éclairée par le ciel nocturne étoilé sans lune)
gain lumineux : 1 000

Dans sa forme actuelle, l'image est donc difficilement exploitable, néanmoins il nous semble tout à fait possible (en conservant le tube X classique) de gagner un facteur 100 sur le rendement lumineux de la façon suivante :

- . optimisation du scintillateur : en effet l'adjonction de bromonaphtalène fait perdre un facteur 10 environ au rendement de scintillation.
- . réduction du grandissement : en passant de $\times 25$ à $\times 8$ (pour une même ouverture numérique objet) on gagne un facteur 10 en éclairement. Ceci suppose un détecteur final de résolution spatiale suffisante et donc un grand nombre de pixels pour conserver l'avantage du grand champ (voir plus bas § B.3.1.3).

Avec le rayonnement synchrotron, l'éclairement X va passer de $10^8 \text{ ph} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ à $10^{12} - 10^{14} \text{ ph} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, ce qui peut permettre de détecter l'image, même sans amplificateur de brillance, selon la sensibilité du détecteur utilisé.

3.1.2 - Caractéristiques des détecteurs CCD

a) Fonctionnement

Rappelons brièvement le fonctionnement d'un tel dispositif. Le détecteur se comporte comme une rangée de photodiodes associées à un condensateur. Chaque photodiode se comporte comme une source de courant photoélectrique. La charge de chaque photodiode est recueillie dans un condensateur après transfert par le registre de décalage associé à la ligne correspondante. La charge de chaque condensateur est mesurée, puis remise à zéro périodiquement, l'intervalle entre deux lectures correspondant au temps d'intégration. Le schéma fonctionnel d'une cellule désignée habituellement sous le nom de "pixel" est donc le suivant (Fig. 59) :

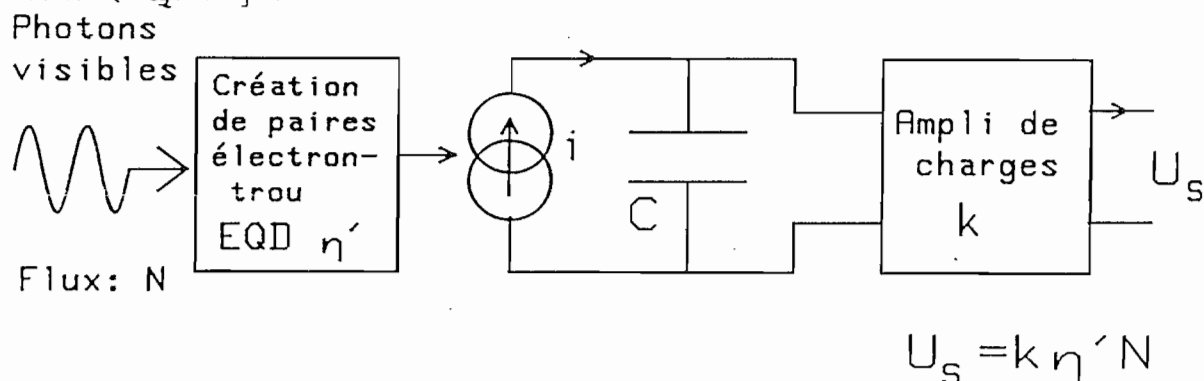


Figure 59 : Schéma fonctionnel d'un élément d'image dans un détecteur CCD

Nous nous référerons à un détecteur CCD uniligne de fabrication récente [93] afin de fixer les ordres de grandeur ci-dessous (Tableau 9) :

Caractéristiques photométriques du détecteur TH 7802 [93]	
Résolution spatiale	éléments de $13 \times 13 \mu\text{m}^2$ au pas de $13 \mu\text{m}$
EQD à 400 nm (à 600 nm)	$\eta' \approx 50 \% \quad (80 \%)$
Sensibilité à 400 nm (à 600 nm)	$1 \text{ V} \cdot \mu\text{J}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \quad (3 \text{ V} \cdot \mu\text{J}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2})$
Saturation en volts (sortie)	1,2 V
Saturation en électrons* (entrée)	$1,6 \times 10^6$ électrons par pixel
Facteur de conversion*	$K = 7,5 \times 10^{-7}$ volts par électron
Tension d'obscurité (sortie) à 25°C pour un temps d'intégration $t_i = 10\text{ms}$ soit	$\approx 0,5 \text{ mV}$ (valeur moyenne)
en électrons à l'entrée ($t_i = 10 \text{ ms}$)	670 électrons
* valeurs que nous avons recalculées d'après les données du fabricant	

Tableau 9 : Caractéristiques photométriques du détecteur uniligne CCD Thomson TH 7802 [93]

La détection de signaux lumineux faibles à l'aide d'un récepteur de type "CCD" se heurte aux limitations suivantes :

- existence d'un courant d'obscurité additif par rapport au courant photo-électrique.

conséquence : le temps d'intégration t_i est limité au temps au bout duquel le signal dû au courant d'obscurité atteint une certaine fraction (considérée comme maximale) de la tension de saturation

(ici : $t_{i,max} = 0,2$ s à 25 °C pour une tension d'obscurité de 0,05 mV par milliseconde, en prenant une limite $\frac{\text{signal utile}}{\text{signal d'obscurité}} = 100$)

Il est possible de soustraire le signal d'obscurité du signal enregistré pour l'exploitation quantitative. Cette procédure ne permet cependant pas de s'affranchir des fluctuations de courant d'obscurité, proportionnelles à la racine carrée de ce courant (bruit de grenaille).

- Remède possible :

Refroidir le détecteur [93,94]

M. Fauconnier indique dans sa thèse [94] la formule suivante pour la dépendance du courant d'obscurité en fonction de la température :

$$I(T) = I_0 \exp \left\{ - \frac{E}{k_B T} \right\} \quad (67)$$

avec les valeurs numériques suivantes :

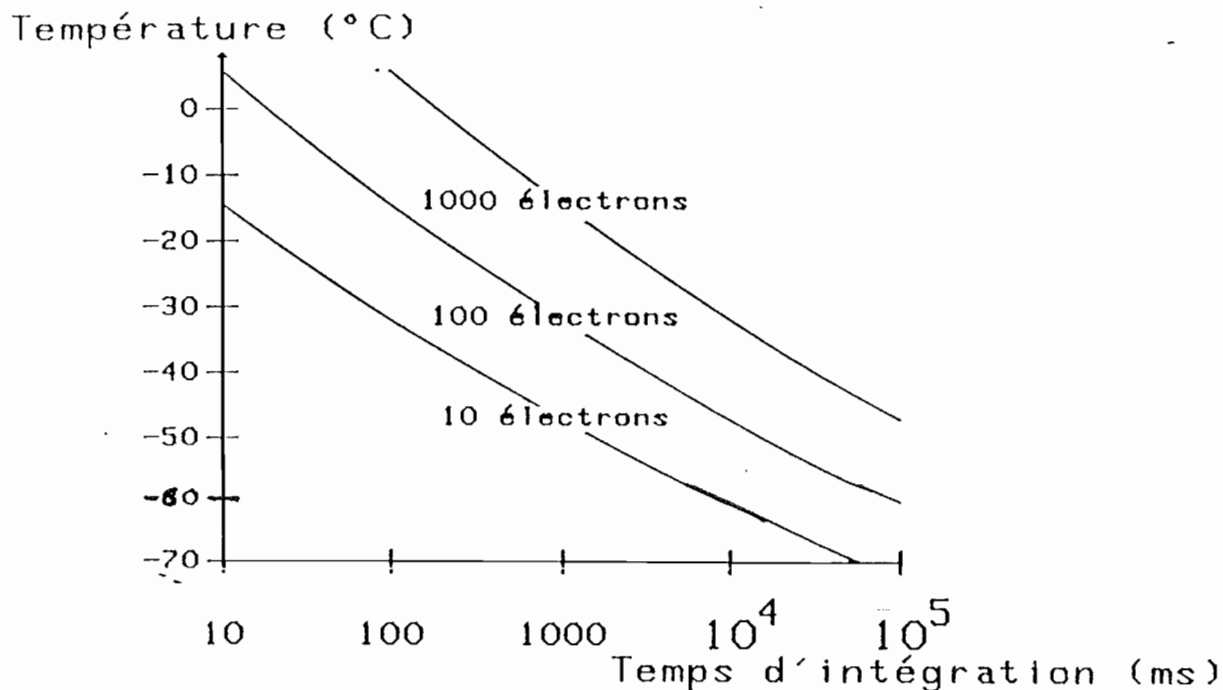
$$E = 0,7 \text{ eV} \quad E/k_B = 8,2 \times 10^3 \text{ K} \quad (k_B = \text{cste de Boltzmann})$$

La figure 60 indique, en fonction du temps d'intégration, la température à laquelle il faut refroidir le détecteur pour diminuer le signal d'obscurité (valeurs numériques pour le TH 7802 exprimées en électrons par pixel). On constate qu'il n'est pas indispensable de refroidir à la température de l'azote liquide pour avoir une bonne réduction du courant d'obscurité, un refroidissement par effet Peltier peut suffire*.

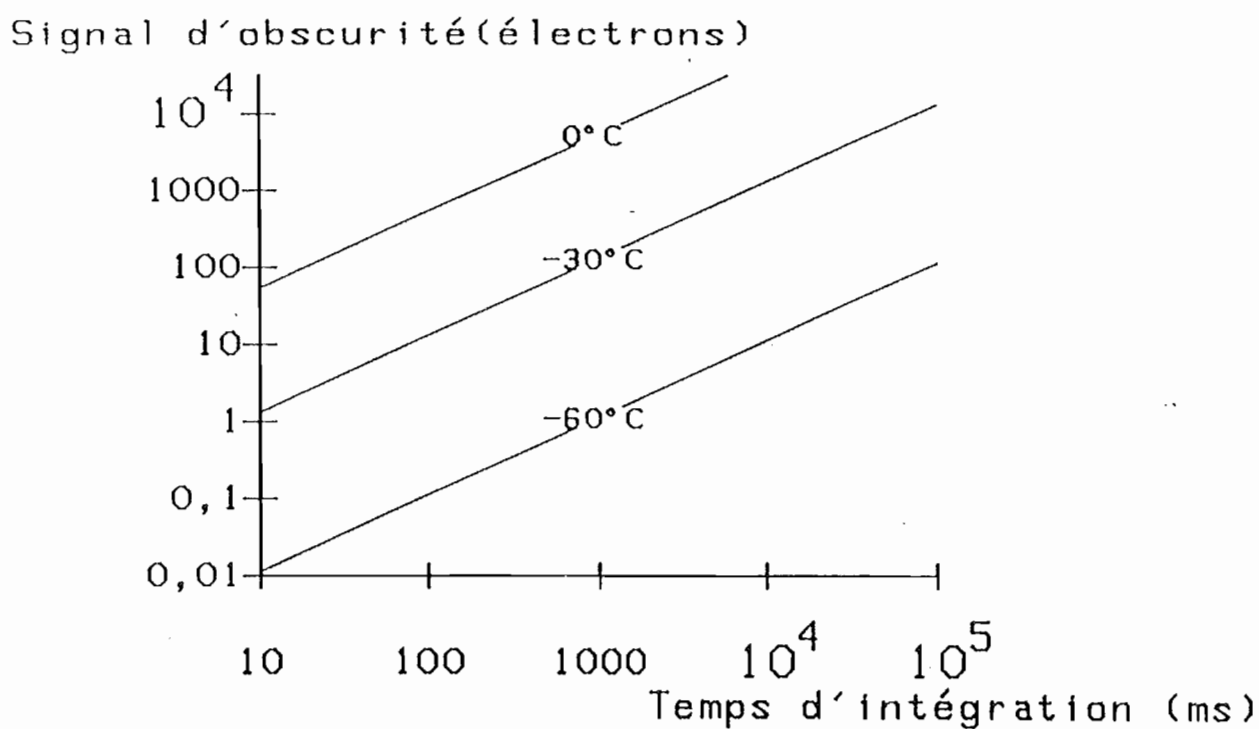
- autres bruits électroniques (pour mémoire)

- . bruit dû à l'efficacité partielle des registres à transfert de charges
- . bruit de l'ampli de charge
- . bruits de commutation et d'échantillonnage.

* En pratique, la nécessité d'avoir une excellente régulation thermique pour maintenir le gain de l'électronique constant modifie cette analyse puisque l'effet Peltier seul n'assure pas de régulation si la source chaude n'est pas elle-même thermostatée.



a : Refroidissement nécessaire pour un signal d'obscurité donné



b : Signal d'obscurité pour différentes températures

Figure 60 : Influence de la température sur le signal d'obscurité pour le CCD Thomson TH7802 suivant l'expression (67)

avec : $I_0 = 6 \times 10^3$ électrons par pixel et par ms, $E/k = 8,2 \times 10^3$ K
d'après [93] et [94]

b) Détection d'une image issue d'une conversion X-visible

Fixons maintenant les ordres de grandeurs des temps d'intégration en supposant qu'on cherche à détecter l'image issue d'une conversion $X \rightarrow$ visible dans les conditions suivantes :

Eclairement X disponible :	E_o (photons $X.cm^{-2}.s^{-1}$)
Nombre de photons visibles par photon X incident	$N = \eta GT$ (notations du § B.2.4.4c)
Grandissement optique intermédiaire	g
Eclairement visible	E_ϕ (photons visibles. $cm^{-2}.s^{-1}$)

On a les relations suivantes :

$$E_\phi = \frac{N E_o}{g^2} \quad (68)$$

Supposons que l'image ainsi formée soit reçue par un détecteur CCD de caractéristiques suivantes :

surface de chaque cellule :	S (en cm^2)
EQD	η'
facteur de conversion	K (en volts de sortie par électron d'entrée)
tension de saturation	V_{sat}

La tension de sortie V du dispositif sera donc égale, pour un temps d'intégration t_i à :

$$V = E_o \cdot N \cdot \frac{S}{g^2} \cdot \eta' \cdot K t_i \quad (69)$$

Le temps d'intégration maximal est donc égal à :

$$t_{isat} = \frac{V_{sat} \cdot g^2}{E_o \cdot N \cdot S \cdot \eta' \cdot K} \quad (70)$$

D'autre part, le temps d'intégration limite t_{lim} imposé par un signal d'obscurité égal à la fraction $1/r$ du signal à saturation s'écrit, d'après l'expression (67) :

$$t_{lim}(\theta) = \frac{V_{sat}}{K.r.I_o} \exp \left\{ + \frac{E}{k_B (\theta + 273)} \right\} \quad (71)$$

θ étant la température en degrés Celsius.

Les abaques de la figure 61 permettront de mieux fixer les ordres de grandeur des temps d'intégration t_{isat} , sachant que les temps trop longs sont inexploitable à cause de la présence du courant d'obscurité (droites-limites t_{lim} sur la figure 61).

Les valeurs numériques utilisées sont les suivantes :

surface	: $S = 13 \times 13 \mu\text{m}^2$ pour un pixel
E.Q.D. du CCD	: $\eta' = 50 \%$ (dans le bleu)
facteur de conversion	: $K = 7,5 \times 10^{-7}$ volts de sortie par électron à l'entrée
tension de saturation	: $V_{\text{sat}} = 1,2 \text{ V}$
rendement de conversion $X \rightarrow$ visible	: $N =$ de 3 à 100 photons visibles par photon X incident
grandissement optique	: $g =$ de 1 à 20 fois
éclairage X	: $E_0 =$ de 10^{10} à 10^{14} photons $X \cdot \text{cm}^{-2} / \text{s}^{-1}$
constante de courant d'obscurité	: $I_0 = 6 \times 10^{13}$ électrons par pixel et par ms (correspond à 670 électrons par pixel pour 10 ms d'intégration à 25°C)
$\frac{\text{tension de saturation}}{\text{signal d'obscurité admissible}}$	: $r = 100$
constante d'activation	: $E/k_B = 8,2 \times 10^3$ Kelvins.

Conclusion sur la détection par mosaïque CCD

Par rapport à notre expérience préliminaire (1 H de pose sur film, grandissement 10 à 20, source X classique), on peut résumer ainsi les gains en temps de pose qu'on peut espérer en microscopie pure (le cas de la microanalyse sera étudié au § B.3.2.1).

- . rayonnement synchrotron : gain de 10^3 et plus par rapport au tube classique
- . grandissement 5 au lieu de 20 : gain de 16
- . détection par CCD (E.Q.D visible supérieure à 50 %) au lieu de la détection photographique (E.Q.D visible de 1 %) : gain de 50.

Ce qui conduit, pour un rapport signal/bruit donné à un gain en temps de pose de l'ordre de 10^6 , c'est-à-dire des temps de pose de l'ordre de la milliseconde. Cette estimation est certainement optimiste car il y a certainement d'autres sources de pertes non prises en compte. D'autre part, notre but étant la

microscopie quantitative (et non pas la détection d'objets à transmittance binaire), il est nécessaire de compter un grand nombre de photons afin que l'image ait un rapport signal/bruit très supérieur à l'unité.

Rappelons pour cela les caractéristiques des images photographiques que nous avons enregistrées directement en rayons X :

E.Q.D des plaques holographiques en rayons X : 0,2 % environ

Temps de pose à saturation en rayonnement

synchrotron monochromatique : 5 minutes environ

pour un éclairage de : 4×10^{10} photons.cm⁻².s⁻¹

Soit une lumination X maximale de : $N = 1,2 \times 10^{13}$ photons.cm⁻²

Rapport signal/bruit dans ces conditions, pour une cellule de surface $S = 10 \times 10 \mu\text{m}^2$:

$$S/B = \sqrt{N \cdot S \cdot \text{EQD}} \approx 150$$

Dans des conditions d'éclairage X identiques, étudions une détection par un écran haute résolution couplé à un CCD de caractéristiques analogues à celles de la figure 61 :

Pour 4×10^{10} photons.cm⁻².s⁻¹ incidents, en recueillant 10 photons visibles par photon X (au grandissement 5), le temps d'intégration requis pour saturer le détecteur est de 100 secondes environ. (Un tel temps n'est utilisable qu'en refroidissant le CCD à -40 °C).

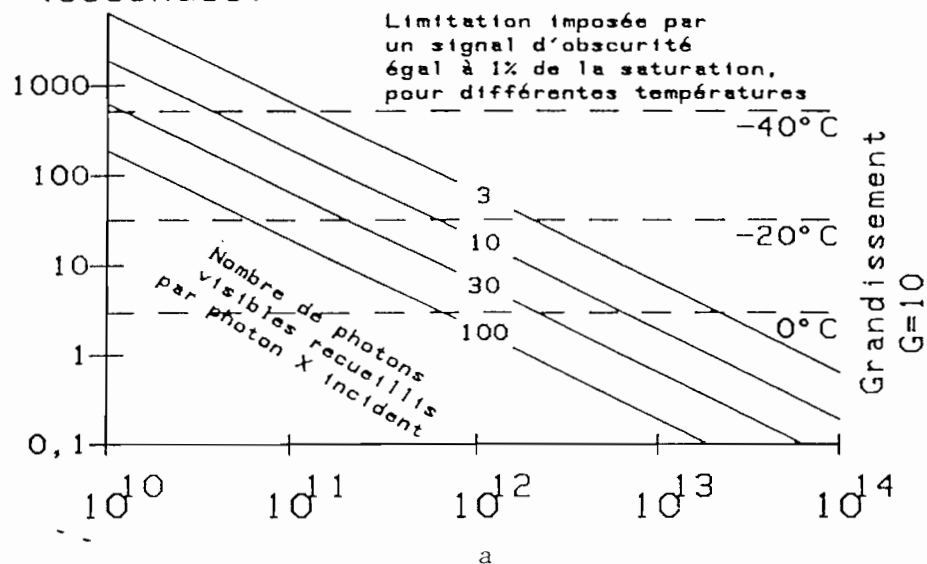
En prenant une EQD totale (écran + CCD) égale à 10 %, il vient, pour 100 secondes d'exposition et pour une cellule d'analyse de surface $S = 10 \times 10 \mu\text{m}^2$:

lumination X : 4×10^{12} photons.cm⁻²

$$S/B = \sqrt{N \cdot S \cdot \text{EQD}_{\text{totale}}} = 630$$

Mais le gain en rapport signal/bruit sera surtout intéressant si les flux X disponibles sont multipliés par un facteur 10 à 100 ; dans ce cas, le temps de saturation du CCD tombe entre 1 et 10 s, ce qui permet d'envisager une acquisition de type "multi-trame" en additionnant en mémoire plusieurs mesures consécutives séparées par une remise à zéro du détecteur. On peut de cette façon (sous réserve que le signal d'obscurité soit négligeable) améliorer le rapport S/B comme la racine carrée du nombre de "trames", possibilité qui n'existe pas bien sûr avec une plaque photographique. (Le calcul du rapport S/B pour un CCD en acquisition de type "multitrane" est détaillé un peu plus loin au § B.3.2.1a).

Temps d'intégration maximum
(secondes)



Temps d'intégration maximum
(secondes)

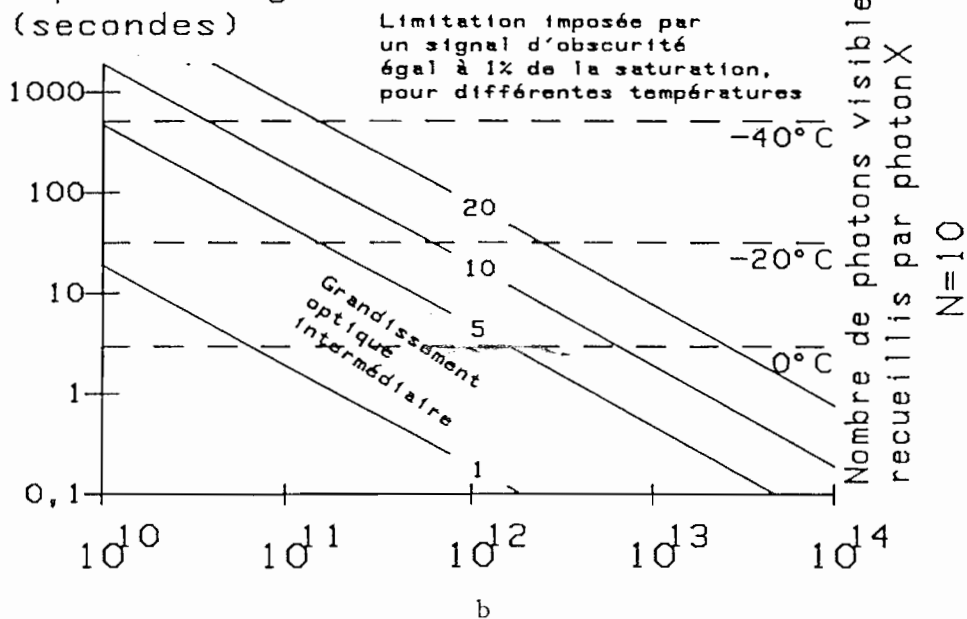


Figure 61 : Temps d'intégration t_{isat} nécessaire avec un CCD TH 7802 pour l'acquisition de l'image issue d'une conversion $X \rightarrow$ visible en fonction de l'éclairement X disponible, suivant les expressions (70) et (71)

- a : grandissement optique intermédiaire égal à 10
nombre de photons visibles recueillis par photon X : de 3 à 100
- b : grandissement optique intermédiaire de 1 à 20 fois
nombre de photons visibles recueillis par photon X : 10

Les autres valeurs numériques sont données dans le texte.

3.1.3 - Conservation de la résolution spatiale

Si l'écran à haute résolution (~ 5 à $10 \mu\text{m}$) est couplé à un détecteur d'images de résolution plus faible, il faut agrandir optiquement l'image issue de la première conversion $X \rightarrow$ visible pour attaquer ce détecteur.

Dans le cas d'une barrette CCD de $16 \mu\text{m}$ de résolution, on peut penser qu'un facteur de grandissement dans le rapport de la dimension des cellules de résolution est suffisant.

Mais une difficulté supplémentaire survient à cause de la structure réticulaire des éléments qu'on cherche à coupler : galette de fibres, galette de microcanaux (dans un intensificateur intermédiaire), mosaïque CCD finale. Des phénomènes de "moiré" pratiquement incontrôlables apparaissent par suite du chevauchement des différentes cellules d'image. Un alignement même soigné des deux structures n'est pas réalisable à cause de la régularité insuffisante des réseaux de fibres optiques (distorsion, dislocations, ...).

De ce fait, l'image finale risque d'être entachée d'artefacts gênants. Dans les imageurs à fibre utilisant une détection photographique, une méthode classique dite de "fibre dynamique" consiste à faire vibrer la plaque de fibres en conservant fixes les positions relatives de l'image d'entrée et du film. Cette méthode nous semble difficilement applicable à notre problème. Le seul moyen simple de réduire ces artefacts est d'augmenter le rapport d'agrandissement intermédiaire.

La contrepartie de l'agrandissement optique, c'est la réduction de l'éclairement disponible, dans le rapport inverse du carré du grandissement, ce qui tend à augmenter l'importance relative des effets du courant d'obscurité. Le champ diminue également pour un CCD final donné.

Il pourra donc être difficile de détecter l'image à l'aide d'une barrette CCD lorsque la source est un tube classique, dont la faible luminosité implique l'utilisation d'un amplificateur de brillance à galette de microcanaux. Dans le cas du rayonnement synchrotron où le flux est suffisant, seul reste le couplage entre l'écran à fibres et le détecteur CCD et de ce fait les effets de moiré seront beaucoup moins gênants.

3.2 - APPLICATIONS AU RAYONNEMENT SYNCHROTRON

Les développements des sources synchrotron (en particulier les onduleurs) vont conduire à obtenir dans les prochaines années :

- . des flux de plusieurs ordres de grandeur supérieurs à ceux des sources synchrotron de 1ère génération (à aimants de courbure uniquement)
- . une meilleure collimation du faisceau : réduction de la divergence angulaire (onduleurs) et diminution des dimensions des paquets d'électrons (donc de la surface apparente de la source)
- . du rayonnement disponible en X durs (onduleurs) où l'écran à fibres présente le plus d'avantages.

Pour toutes ces raisons, les limitations de la qualité d'image imposées à l'écran à fibres par les générateurs classiques (flux trop faibles, collimation insuffisante) semblent pouvoir être surmontées à l'aide des nouvelles sources synchrotron.

Cependant les très hauts flux risquent de poser des problèmes de dégradation et de saturation des scintillateurs quels qu'ils soient (verre, plastique, liquide), ainsi que de destruction des échantillons observés, surtout s'il s'agit de cellules biologiques ou d'organismes vivants ; mais pour l'instant il est difficile de prévoir l'évolution des éventuels détecteurs à fibres pour résister au rayonnement.

Parmi les applications possibles, nous avons retenu les suivantes (liste non limitative) :

- . microscopie de contact et microanalyse
- . micro-angiographie
- . autres applications au rayonnement synchrotron : par exemple topographie X

3.2.1 - Microscopie de contact et microanalyse chimique à grand champ

a) Améliorations par rapport à la détection photographique

Il s'agit d'étendre les résultats obtenus avec des plaques photographiques (partie A de ce mémoire) qu'on peut résumer ainsi :

- **champ** : non limité par le détecteur
- **résolution spatiale** : quelques microns avec les plaques holographiques (images non quantitatives)
5 à 10 μm (images numérisées)

- **Temps total d'acquisition** d'une paire d'images 256×256 points, $5 \times 5 \text{ mm}^2$
 - enregistrement : 5 à 10 minutes (champ de 3 cm^2)
 - numérisation : 10 minutes
- **Sensibilité pratique**
 - en microanalyse chimique : environ 1 %
 - (échantillon de $30 \text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur
 - densité 4, détection du fer au seuil K)

Discutons maintenant les possibilités offertes par la détection à l'aide d'un écran à fibres haute résolution :

- **champ** : peut atteindre des surfaces de l'ordre de plusieurs cm^2 , ce qui n'est pas vraiment une limitation vu la surface utile du faisceau synchrotron (2 à 3 cm^2).
- **résolution spatiale** : 5 à $10 \text{ }\mu\text{m}$
- **temps d'acquisition et sensibilité en microanalyse** :

Ces deux notions sont liées, puisqu'il est théoriquement possible d'améliorer le rapport signal sur bruit en faisant fonctionner le détecteur avec un temps d'intégration suffisamment long.

En effet, rappelons l'expression de la masse surfacique minimale détectable par absorption différentielle au voisinage d'un seuil :

$$\delta m_{\text{mini}} = \frac{2D}{\sqrt{N} \Delta(\mu/\rho)} \quad (72)$$

δm_{mini} : masse surfacique minimale détectable (en g.cm^{-2})

D = rapport signal/bruit minimum (seuil de détectivité)

N = nombre de photons reçus dans la cellule de résolution

$\Delta(\mu/\rho)$ = saut du coefficient d'absorption au seuil considéré (en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$)

Pour un même temps d'exposition, l'utilisation d'un écran à fibres (EQD de 10 à 20 %) permet de gagner un facteur 100 et plus sur le nombre de photons reçus par rapport à la détection photographique directe des rayons X avec une plaque haute résolution (EQD $\sim 0,1 \%$).

D'après l'expression (72), on peut donc espérer une amélioration de la sensibilité ultime de la microanalyse d'absorption dans le rapport des racines carrées de l'EQD, soit un facteur 10 à 15 toutes choses égales par ailleurs (dimension de la cellule d'analyse, temps d'exposition).

Reprenant le calcul fait à la partie A, § A.3.1.2, sur la sensibilité de détection du fer au seuil K dans un échantillon de 30 μm d'épaisseur, densité 4, on trouve les résultats suivants (Tableau 10) :

nombre de photons reçus dans une cellule	Temps de pose nécessaire éclairage X incident : $10^{12} \text{ ph.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ EQD du détecteur : 20 % cellule d'analyse : $10 \times 10 \mu\text{m}^2$	Limite de détection (signal/bruit = 1) en concentration Fer, au seuil K. échantillon $d = 4$ $e = 30 \mu\text{m}$ (en masses surfaciques)
10^4	50 millisecondes	0,5 % ($5 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^2$)
10^6	5 secondes	0,05 % ($5 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^2$)
10^8	500 secondes	50 ppm ($5 \times 10^{-7} \text{ g/cm}^2$)

Tableau 10 : Limites ultimes de détection en microanalyse d'absorption X différentielle avec le rayonnement synchrotron

Il est néanmoins nécessaire de tenir compte des limitations imposées par la détection lumineuse de type CCD, en particulier l'influence du courant d'obscurité.

Comme il est toujours possible de soustraire la valeur moyenne du signal d'obscurité au signal enregistré, les limites ultimes de détection sont données :

- . par le bruit de photons pour un temps d'analyse donné
- . par les fluctuations du courant d'obscurité
- . par les bruits de commutation et d'échantillonnage.

Nous nous intéresserons aux deux premières sources de bruit qui sont plus aisées à estimer.

Pour étudier l'influence du signal d'obscurité, nous rappellerons ici un calcul classique donnant le rapport signal sur bruit lors de l'acquisition d'un signal (statistique poissonnienne) avec un bruit additif, lorsqu'on additionne plusieurs mesures comme c'est le cas dans un détecteur CCD en acquisition "multitrace".

Si S_i est le signal (nombre d'électrons recueillis) résultant de la superposition du signal photoélectrique vrai E_i et d'un signal d'obscurité B_i , on a pour le signal total résultant de la superposition de N mesures :

$$S = \sum_{i=1}^N (E_i + B_i)$$

Ces processus étant statistiquement indépendants, les valeurs moyennes et les variances s'ajoutent :

$$\begin{aligned}\bar{S} &= \sum_{i=1}^N \bar{E}_i + \bar{B}_i \\ \sigma_s^2 &= \sum_{i=1}^N \sigma_{E_i}^2 + \sigma_{B_i}^2\end{aligned}$$

Supposant une statistique poissonnienne, il vient :

$$\sigma_s^2 = \sum_{i=1}^N (\bar{E}_i + \bar{B}_i)$$

Introduisant le signal utile $\sum \bar{E}_i$ par soustraction de la valeur moyenne du courant d'obscurité, il vient finalement :

$$\frac{\text{signal}}{\text{bruit}} = \frac{\sum \bar{E}_i}{\sqrt{\sum (\bar{E}_i + \bar{B}_i)}} \quad (73)$$

Pour simplifier, nous supposons que les $\bar{E}_i$ et $\bar{B}_i$ sont identiques, d'où :

$$\frac{\text{signal}}{\text{bruit}} = \frac{N \bar{E}}{\sqrt{N \bar{E} + N \bar{B}}} = \sqrt{N \bar{E}} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \bar{B}/\bar{E}}} \quad (74)$$

On voit que le rapport signal sur bruit s'améliore comme la racine carrée du nombre de trames.

De plus, l'influence du bruit d'obscurité est faible puisqu'en pratique avec $\bar{E} = 10^4$ à 10^6 électrons et $\bar{B} = 500$ électrons, l'écart au détecteur idéal ($S/B = \sqrt{\bar{N}\bar{E}}$) introduit par le facteur $\frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\bar{B}}{\bar{E}}}}$ n'excède pas quelques pourcents.

Les facteurs limitatifs seront donc imposés par des bruits de commutation et d'échantillonnage que seule une étude expérimentale permettrait de chiffrer raisonnablement.

Signalons pour terminer une limite pratique supplémentaire de la sensibilité en microanalyse lorsqu'on cherche simultanément à voir une image de l'objet. Comme on ne peut pas prévoir où se trouveront les concentrations de l'élément recherché, on éclairera tout l'objet de la même façon, en interrompant l'acquisition d'une trame lorsque les pixels les plus "brillants" seront saturés.

De fait, lorsque l'élément recherché se trouve "caché" sous une épaisseur importante de substrat agissant comme un atténuateur, les pixels correspondants donneront un signal très inférieur à la saturation, pouvant être noyé dans le bruit. Ceci ne modifie pas la valeur de la masse surfacique calculée qui résulte du rapport de 2 mesures, mais peut diminuer de façon importante (en moyenne sur toute l'image) la sensibilité de la méthode par rapport à une sonde ponctuelle.

b) Possibilités d'architecture pour un microscope quantitatif à grand champ utilisant un écran à fibres scintillantes

Afin de réaliser une microanalyse par absorption différentielle au voisinage d'un seuil, le système objet/récepteur doit être illuminé en rayonnement X monochromatique ; le dispositif le plus simple est le monochromateur à double cristal plan qui permet à la fois un éclairage grand champ et une excellente résolution en longueur d'onde.

Pour passer à l'acquisition quantitative de l'image avec un récepteur "CCD" uniligne, on peut envisager un autre mode d'éclairage, par analogie avec le microscope à balayage. Il s'agirait ici de focaliser le rayonnement suivant une ligne (idéalement : de largeur égale à une ligne de l'image soit 5 à 10 μm) et de détecter quantitativement cette image (après conversion X $\rightarrow$

visible) à l'aide d'une barrette CCD, en effectuant une translation de l'objet suivant l'autre direction.

Ce procédé aurait pour avantage de ne pas nécessiter de détecteur CCD bi-dimensionnel, dont le nombre de pixels par ligne est plus faible. En outre, il est courant de focaliser le rayonnement sur une ligne à l'aide d'un monochromateur à cristal courbé ; mais il ne faut pas négliger le fait qu'en focalisant le rayonnement, on augmente sa divergence angulaire dans le rapport inverse du facteur de réduction de la focalisation. Or le détecteur à fibres impose une limite à l'ouverture angulaire du faisceau d'éclairage (voir § B.2.4.1) pour que la résolution spatiale soit préservée.

En prenant les valeurs numériques réalistes suivantes :

ouverture du faisceau synchrotron :	$2,5 \times 10^{-4}$ rd (soit 5 mm à 20 m)
dimension de source	: 3 mm
diamètre des fibres	: $d = 10 \mu\text{m}$
longueur des fibres	: $L = 1 \text{ mm}$
soit une ouverture limite	$d/L = 10^{-2}$ rd,

le facteur de réduction maximum est de l'ordre de 100, ce qui conduit à une focalisation sur une ligne de $30 \mu\text{m}$ de large environ.

Rappelons enfin que le temps d'analyse pour un rapport signal sur bruit donné est exactement le même selon qu'on travaille en détection d'image directe ou en balayage pourvu que dans ce dernier cas la focalisation du rayonnement s'effectue sans pertes (ce qui est rarement le cas), et que les détecteurs utilisés aient la même efficacité quantique de détection.

En ce qui concerne la microanalyse d'absorption au voisinage d'un seuil, il est possible de s'affranchir des problèmes de superposition des deux images à soustraire si l'acquisition s'effectue paire de lignes par paire de lignes ; pour cela il faut commuter le monochromateur de part et d'autre du seuil, avant de traduire l'objet pour l'acquisition suivante.

Tout ceci implique donc une infrastructure complexe (mécanique, électronique rapide d'acquisition, ordinateur pilotant l'ensemble) qui demande à elle seule une étude dépassant largement le cadre de cette thèse.

c) Conclusion

Compte tenu des progrès récents [12-17] des microscopes X à balayage, quel est l'intérêt du microscope grand champ utilisant un détecteur d'images ? A notre avis, l'intérêt est double :

- . d'abord, comme dans toute méthode de microscopie, il est intéressant de disposer d'un champ de l'ordre du cm^2 lorsqu'on désire étudier les objets à structure particulièrement complexe : considérer par exemple l'image de la répartition du manganèse ou du nickel (Fig. 22) que nous avons obtenue avec un champ de $5 \times 5 \text{ mm}^2$). Par comparaison, le champ d'un microscope à balayage X [17] est de l'ordre de $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ au maximum.
- . Ensuite, la méthode de contact reste applicable même en X cristallographiques (énergie $> 5 \text{ keV}$) où il n'est plus possible de focaliser le rayonnement sur des taches inférieures à la dizaine de microns. En effet, dans la plupart des microscopes X à balayage en cours de développement, la tache de focalisation est obtenue à l'aide d'une zone de Fresnel qui ne peut fonctionner qu'en X mous (énergie $< 1 \text{ keV}$). Or l'utilisation de rayonnement X plus pénétrant permet l'étude d'échantillons épais et absorbants tels que ceux rencontrés en géologie et en métallurgie, dont on ne pourrait pas faire une image en X mous.

3.2.2 - Micro-angiographie

a) Principe

La micro-angiographie est une application médicale de la microanalyse d'absorption au voisinage d'un seuil. Rappelons-en les principes [95].

En radiographie médicale classique, il est souvent nécessaire d'injecter un "colorant" de numéro atomique Z élevé (appelé "liquide de contraste") afin d'augmenter sélectivement le pouvoir d'arrêt de l'organe à observer.

Afin d'améliorer le contraste des images des vaisseaux sanguins, la méthode consiste à injecter des dérivés iodés ($Z = 53$) dans le sang et de procéder ensuite avec les vaisseaux comme dans la méthode d'absorption différentielle au voisinage d'un seuil ; l'élément étant ici l'iode au seuil K (33,16 keV). Après soustraction des images, on reconstitue une cartographie des vaisseaux

avec une qualité meilleure et une dose d'irradiation plus faible qu'une méthode classique basée sur l'absorption simple.

Seul le rayonnement synchrotron permet d'envisager cette méthode à cause de la nécessité de travailler en rayonnement monochromatique accordable ($\Delta\lambda/\lambda \approx 1\%$)

b) L'apport d'un détecteur haute résolution à fibres scintillantes

Nous avons montré, en particulier aux énergies X supérieures à 10 keV, le gain important en E.Q.D. du scintillateur à fibres par rapport à une poudre classique. Pour l'instant, la résolution en imagerie médicale est, au mieux, de l'ordre du mm, et c'est également le cas en micro-angiographie [95].

Rappelons les limites de résolution en imagerie de contact pour un objet de 20 cm d'épaisseur, à 33 keV (0,4 Å) :

- . effet de pénombre géométrique (source de 3 mm à 24 m) : 25 μm
- . effet de diffraction de Fresnel : 3 μm .

On voit dans ces conditions que c'est l'effet de pénombre qui limite ; les futures sources synchrotron ayant des dimensions de source de l'ordre de 0,1 mm conduiront dans des conditions analogues à des limites de résolution de l'ordre de quelques microns.

Un détecteur à fibres permettrait certainement d'atteindre 50 μm de résolution en conservant une E.Q.D. voisine de celle des détecteurs médicaux ; néanmoins on peut s'interroger sur l'intérêt d'une résolution latérale de plusieurs ordres de grandeur inférieure aux épaisseurs traversées dans l'objet ($\sim 10\text{cm}$). Pour cela, on pourrait tirer avantage du fait que le rayonnement synchrotron réalise une projection orthogonale quasi-parfaite de l'objet sur le détecteur pour associer l'absorption différentielle à une méthode de reconstruction d'images tridimensionnelles (analogue au scanner) en faisant tourner ici l'objet pour enregistrer un grand nombre de projections.

3.2.3 - Autres applications au rayonnement synchrotron d'un détecteur d'images à fibres scintillantes

De façon plus générale, un détecteur X à fibres scintillantes pourra avoir une application chaque fois qu'on recherche une haute résolution spatiale et une bonne efficacité quantique de détection. Nous pensons par exemple à la topographie X où les films donnent encore actuellement les meilleures résolutions ($5\text{ }\mu\text{m}$), mais ne permettent pas une étude dynamique ; ils sont alors remplacés par un écran scintillateur suivi d'un imageur. L'écran scintillateur classique étant soumis au compromis efficacité/résolution dont nous avons longuement discuté, pourrait être remplacé par un écran à fibres.

Afin de respecter la condition de collimation faisceau/fibres, il serait nécessaire, après avoir choisi une tache de Bragg donnée, d'aligner le détecteur dans l'axe de la direction de diffraction. Cette condition n'est pas très restrictive compte tenu de la précision des goniomètres utilisés en topographie X.

CONCLUSION DE LA PARTIE B

La conversion $X \rightarrow$ visible dans un écran à fibres scintillantes permettra certainement de développer de nouveaux imageurs haute résolution pour le rayonnement synchrotron.

Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus en utilisant des scintillateurs liquides peuvent être résumés ainsi :

champ : de l'ordre du cm

résolution : $10\text{ }\mu\text{m}$

efficacité quantique de détection : entre 5 % et 30 %.

Des améliorations de la résolution spatiale jusqu'à quelques microns nous semblent théoriquement possibles, mais la technologie de fabrication à mettre en oeuvre n'était pas à notre disposition. Nous pensons en particulier aux procédés de fibrage analogues à ceux des plaques conductrices d'images.

La sensibilité de notre montage expérimental pourra être nettement améliorée en optimisant le choix du scintillateur et de l'indice des microtubes. Mais le point qui nous semble le plus important, c'est que même dans les conditions où la **luminosité** de l'écran à fibres n'est pas supérieure à celle d'un écran classique, son **efficacité quantique de détection sera très supérieure pour une résolution spatiale donnée**, et ceci d'autant plus que les rayons X seront plus durs. Cet avantage nous semble décisif pour toutes les applications d'imagerie quantitative avec le rayonnement synchrotron.

CONCLUSION GENERALE

Compte tenu des résultats que nous avons obtenus et de ce que nous savons sur l'évolution de l'instrumentation avec le rayonnement synchrotron, comment envisageons-nous l'évolution de la microscopie X et de la microanalyse en ce qui concerne la résolution, la qualité des images et le développement des détecteurs pour l'imagerie de contact ?

Résolution

C'est dans le domaine des X mous que les meilleures résolutions ont été obtenues ; mais il s'agit d'images sur résines qui sont difficilement exploitables. Nous pensons qu'il sera très difficile d'atteindre la même résolution avec un détecteur "temps réel" ; mais les résultats déjà obtenus en imagerie X agrandie avec des zones de Fresnel ainsi que les possibilités des convertisseurs photoélectriques permettent d'espérer atteindre 50 nm de résolution dans un proche avenir. Dans le domaine des X cristallographiques et a fortiori aux énergies plus élevées, la limite de résolution de l'ordre du micron nous semble très difficile à améliorer.

Qualité des images en microscopie quantitative

Tout au long de ce mémoire, le lecteur aura sans doute remarqué notre attachement à obtenir des images à la fois quantitatives, à grand champ et grande résolution, c'est-à-dire à grand nombre de points : malheureusement, dans toute méthode de microanalyse, le nombre de particules-sonde par cellule de résolution est toujours limité par le temps disponible pour l'expérience.

On est donc contraint de choisir entre sensibilité (analyse ponctuelle) et qualité globale de l'image (grand champ).

Le développement considérable des sources synchrotron intervenu depuis le début de ce travail nous laisse espérer que les méthodes d'analyse par rayons X pourraient satisfaire ces exigences contradictoires grâce aux flux de plus en

plus élevés délivrés par les nouvelles machines telles que (en France) Super ACO ou le futur Synchrotron Européen. La seule limite semble être la saturation des détecteurs et la tenue aux radiations des échantillons et de l'instrumentation.

De ce point de vue, il nous semble en microscopie que la détection d'image (éclairage grand champ) pourrait être moins "destructrice" que la méthode de balayage qui suppose une focalisation de tout le faisceau en un point unique à densité d'énergie très élevée. Sans doute en saurons-nous plus sur ce point lorsque les différents microscopes en développement dans les centres de rayonnement synchrotron fonctionneront en routine.

Evolution des détecteurs d'images pour la microscopie de contact

En ce qui concerne les détecteurs d'images, c'est là encore dans le domaine des X mous que le plus de travaux ont été faits à cause de la disponibilité de sources synchrotron émettant entre 10 et 100 Å ainsi que de la possibilité d'obtenir une excellente résolution spatiale et un excellent contraste sur des objets biologiques non colorés. Il nous semble que dans les prochaines années la possibilité d'obtenir des sources synchrotron à des énergies supérieures à 10 keV entraînera un développement important de l'imagerie X dans ce domaine d'énergie, en particulier pour des applications médicales.

Le seul mode d'imagerie à haute résolution utilisable au-delà de la dizaine de keV est la méthode de contact : les progrès possibles sont donc ceux des détecteurs d'images. Nous pensons avoir montré l'intérêt de la conversion $X \rightarrow$ visible par écran à fibres scintillantes dans l'amélioration du compromis résolution/efficacité quantique pour les détecteurs à haut flux ; quant à la détection de l'image visible issue de cette conversion, elle profitera certainement du progrès des dispositifs qui est extrêmement rapide dans le domaine des intensificateurs, des détecteurs CCD et de l'électronique associée.

ANNEXES

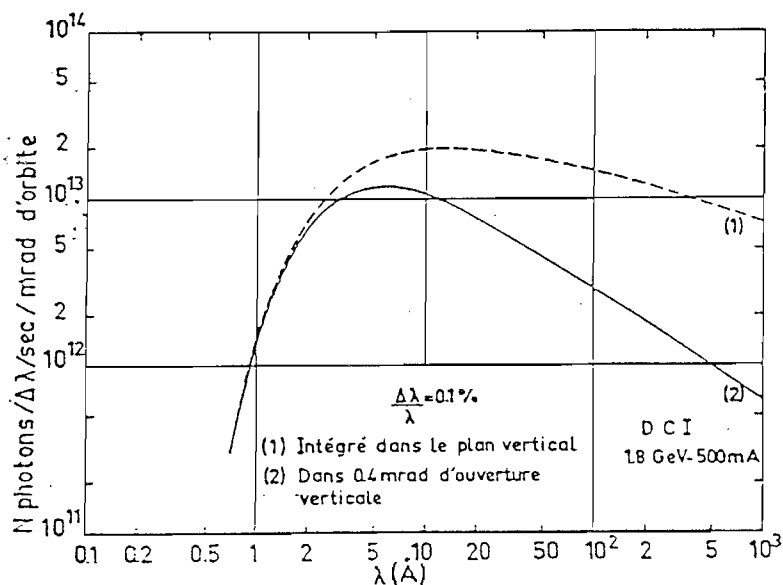
COMPARAISON DE LA SOURCE SYNCHROTRON AVEC UN TUBE A RAYONS X

Nous nous proposons de comparer les propriétés photométriques de la source synchrotron DCI de LURE avec un tube à anode tournante en cuivre.

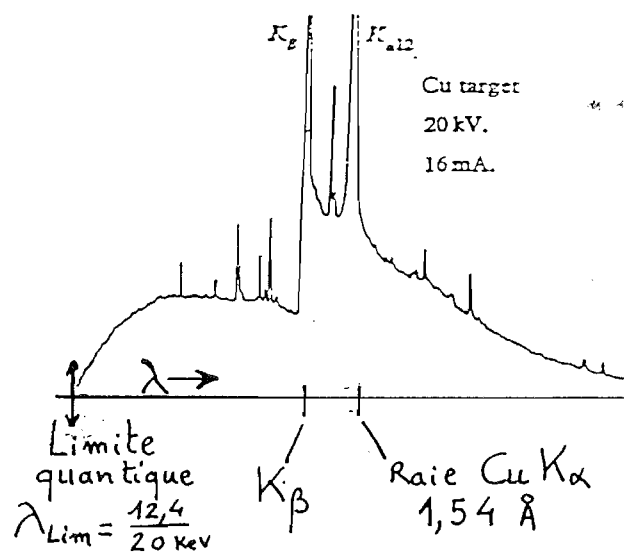
Les données relatives à l'intensité spectrale du rayonnement synchrotron sont extraites de [96] tandis que pour une source classique au cuivre, nous avons utilisé les données de [87].

1 - Choix de l'intervalle de longueurs d'onde

Le domaine de longueur d'onde choisi sera le domaine 1 à 2 Å, qui comprend les raies d'émission K_α , K_β du cuivre. Par suite de la différence des spectres d'émission (spectre continu du synchrotron, spectre de raies et fond continu du tube (voir Fig. 62), il convient de distinguer deux cas pour les applications de microscopie pure ou de microanalyse d'absorption.



Spectre DCI
d'après [96]



Spectre tube X au cuivre
d'après [97]

Figure 62 :
Comparaison des spectres d'émission pour le rayonnement synchrotron
et pour un tube à anticathode de cuivre

a) Cas de la microscopie pure

Dans ce cas, on n'a pas besoin d'une grande pureté spectrale.

Nous choisirons l'intervalle spectral 1,3 Å à 1,6 Å qui contient les deux raies d'émission K_α et K_β du cuivre. Ce choix est en fait plutôt défavorable au rayonnement synchrotron, qui peut émettre dans tout le spectre X de 1 à 1 000 Å.

b) Cas de la microanalyse d'absorption

Si on veut faire de la microanalyse d'absorption avec un tube classique, on ne peut utiliser les raies d'émission qui ne sont pas accordables. Il faut donc travailler avec le fond continu et un monochromateur.

Nous choisirons un intervalle spectral pris arbitrairement égal à 0,02 Å (incrément des tables [87]), centré sur la longueur d'onde 1,74 Å qui correspond à l'analyse du fer au voisinage du seuil K d'absorption.

2 - Choix des facteurs géométriques

Pour comparer deux sources, il faut en toute rigueur comparer leurs **luminances spectrales**, c'est-à-dire l'intensité spectrale (en nombre de photons par seconde, par unité d'angle solide et par intervalle spectral) divisée par la surface apparente de la source.

Mais il faut, pour que la comparaison soit significative, que les deux sources aient à peu près la même surface et que la luminance soit disponible dans le même angle solide.

Nous comparerons donc les **intensités spectrales** après avoir choisi des dimensions de sources du même ordre de grandeur.

a) Dimension de la source

La dimension d'une source X peut varier de 0,1 μm (cas des sources utilisées en microscopie par projection) jusqu'à plusieurs mm^2 pour les tubes les plus puissants.

La dimension qu'on peut attribuer à la source synchrotron varie entre 1 et 3 mm à DCI.

Nous comparerons donc le rayonnement de DCI à celui d'un tube X dont le foyer a des dimensions de l'ordre du mm (cas des tubes X les plus puissants).

b) Facteurs angulaires

L'intensité émise par la source synchrotron DCI est disponible pour chaque ligne de lumière dans un angle solide $\Omega_{S.S}$:

$$\Omega_{S.S} = \phi \times 2\Psi$$

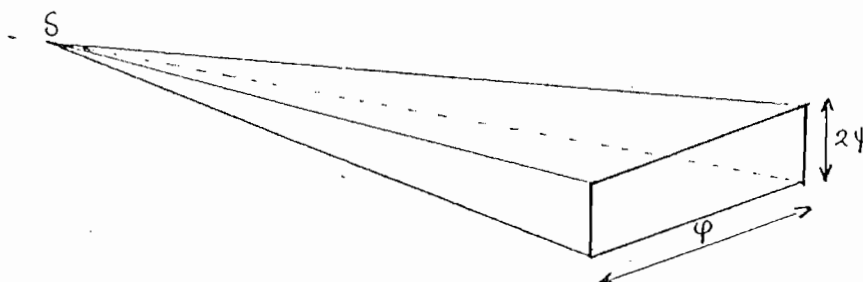


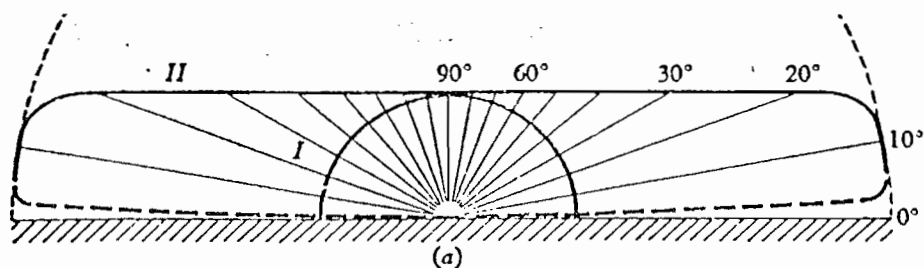
Figure 63 : Géométrie du faisceau synchrotron

La variation de l'indicateur d'émission suivant Ψ est gaussienne tandis que, horizontalement, l'indicateur peut être considérée comme constante.

Remarquons à ce sujet que la distinction entre surface de source et surface apparente est sans objet pour la source synchrotron vu l'ordre de grandeur des angles dans lesquels l'intensité (ou la luminance) sont disponibles.

Par contre, un tube X dont l'anticathode est épaisse, se comporte comme une source à **intensité** constante en fonction de l'angle entre le faisceau émis et la surface de l'anticathode, parce que l'émission X est un phénomène volumique [97].

Cette propriété est vérifiée tant que l'angle d'émission (mesuré par rapport à la surface) est supérieur à 5° (Fig. 64). Dans ce cas, nous nous servirons des données de [87] en supposant que l'intensité reste constante dans un cône de demi-angle au sommet inférieur à 10 degrés, puisque l'angle d'émission de référence dans [87] est 20 degrés.



I : émission surfacique = luminance constante
 II : émission volumique = intensité constante

Figure 64 :
 Indicatrice de luminance d'une source X classique d'après [97]

3 - Comparaison des intensités

Compte tenu des remarques faites précédemment aux § 1 et 2, il reste à choisir les paramètres de fonctionnement de l'une et l'autre source.

Pour DCI, nous choisirons une intensité du faisceau d'électrons de 200 mA à une énergie de 1,8 GeV, ce qui est très proche des conditions expérimentales courantes à LURE. Les tables de [96] sont calculées pour 500 mA, nous prendrons donc en compte un facteur 2/5. Pour le tube X, nous prendrons un tube à anode tournante supposé fonctionner à 45 kV (tension de référence dans [87]).

Un tel tube peut fonctionner à une puissance de 4,5 kW [98], ce qui fait une intensité de 100 mA.

On peut finalement résumer les intensités dans les deux sources par le tableau suivant (Tableau 11).

L'unité utilisée est le nombre de photons par seconde et par stéradian.

Intensités	Dans toute la bande 1,3 à 1,6 Å	Pour une largeur de bande $\delta\lambda = 0,02$ Å centrée sur $\lambda = 1,7$ Å
<u>Synchrotron DCI</u> 1,8 GeV - 200 mA (Intensité disponible dans $1,5 \times 0,8$ mrad = 10^{-7} stéradian)	$4,7 \times 10^{21}$ ph/S.Sr	$3,8 \times 10^{20}$ ph/S.Sr
<u>Tube à anode tournante en cuivre</u> 45 kV - 100 mA (intensité disponible dans 0,1 stéradian)	raie K_{β} : 392×10^{11} ph/S.St raie K_{α} : 2154×10^{11} ph/S.St fond continu 190×10^{11} total $2,7 \times 10^{14}$ ph/S.St	$9,3 \times 10^{11}$ ph/S.St

Tableau 11 : Comparaison des intensités entre le rayonnement synchrotron et un tube classique

4 - Comparaison des éclairagements utilisables en pratique

Le tableau de comparaison des intensités peut apparaître irréaliste, en ce sens que l'intensité du rayonnement synchrotron n'est disponible que dans un angle solide très faible correspondant à quelques cm^2 seulement à 24 m. On peut donc imaginer de comparer les éclairagements moyens reçus par une surface de l'ordre du cm^2 placée soit à 24 m de la source dans le cas du synchrotron (cas du poste d'expériences où nous avons travaillé), soit à 0,5 m du foyer du tube à anode tournante (conditions usuelles de travail en cristallographie).

Cette dernière distance semble plus réaliste lorsqu'on utilise un tube. Les résultats sont exprimés en photons par centimètre carré et par seconde.

Le tableau précédent devient ainsi (Tableau 12) :

Eclairements moyens	Dans toute la bande 1,3 à 1,6 Å	Pour une largeur de bande $\delta\lambda = 0,02$ Å centrée sur $\lambda = 1,7$ Å
<u>DCI</u> 1,8 GeV - 200 mA éclairage à 24 m	$6,5 \times 10^{13}$ ph/cm ² .s	$5,2 \times 10^{12}$ ph/cm ² .s
<u>Tube cuivre</u> 45 kV - 100 mA éclairage à 0,5 m	$8,6 \times 10^9$ ph/cm ² .s	3×10^7 ph/cm ² .s

Tableau 12 : Comparaison des éclairagements

CONCLUSION

Le gain en éclairage sera de l'ordre de 10^4 dans la bande 1,3 à 1,6 Å et 10^5 en rayonnement monochromatique. Traduits en terme de temps de pose, on obtient les nombres suivants :

- * Une expérience de microscopie pure, nécessitant plusieurs heures de pose avec un tube classique, sera réalisée en quelques secondes avec le rayonnement synchrotron.
- * Un double enregistrement de microanalyse en faisceau monochromatique tel que ceux que nous réalisons à DCI en 6 minutes avec les plaques haute résolution nécessiterait environ une semaine de pose, même avec les tubes les plus puissants actuellement disponibles.

Tableau 13

Données photométriques pour le rayonnement synchrotron de DCI (LURE)
à 0,8 Å et 1,6 Å d'après [96]

LISTE DES TABLES POUR DCI

Les tables XLIII à LXXIII donnent les caractéristiques du faisceau de photons émis par 1 mrad de l'orbite dans la section du plan vertical par un demi-cône d'angle au sommet ψ . Elles correspondent à des valeurs intégrées jusqu'à ψ .

La table LXXIV donne les caractéristiques d'un mince pinceau de photons, d'ouverture verticale et horizontale 0,1 mrad, émis à un angle donné ψ_0 dans le plan vertical, mesuré par rapport au plan de l'orbite.

Toutes les valeurs indiquées correspondent à un courant d'électrons de 500 mA.

TABLE XLIV

Caractéristiques du rayonnement émis par DCI à 0,8 Å dans la section du plan vertical délimitée par le demi-cône d'angle au sommet ψ .

ψ_{mR}^a	$N_{//}^b$	$N_{\perp}^c$	N_{tot}^d	R_x^e	P_x^f	N_{z}^g	Q^i
0,01	$3,59 \times 10^{13}$	$1,97 \times 10^{10}$	$3,59 \times 10^{13}$	5,0	99,9	99,9	1925
0,02	7,12	$1,17 \times 10^{11}$	7,13	10,0	99,7	99,8	605
0,03	$1,05 \times 10^{12}$	3,60	$1,05 \times 10^{12}$	14,7	99,3	99,7	293
0,04	1,38	7,97	1,39	19,5	98,6	99,4	173
0,05	1,65	$1,46 \times 10^{12}$	1,69	23,7	98,3	99,1	115
0,06	1,96	2,35	1,95	27,7	97,6	98,6	53,3
0,07	2,21	3,46	2,24	31,4	96,9	98,5	63,9
0,08	2,43	4,75	2,47	34,6	96,2	98,1	51,2
0,09	2,62	6,15	2,65	37,5	95,4	97,7	42,6
0,10	2,75	7,62	2,66	40,0	94,7	97,3	36,5
0,12	3,03	$1,05 \times 10^{13}$	3,14	44,0	93,3	96,7	28,9
0,14	3,20	1,30	3,33	46,6	92,2	96,1	24,6
0,16	3,29	1,49	3,44	48,2	91,3	95,7	22,1
0,18	3,35	1,62	3,51	49,1	90,6	95,4	20,7
0,20	3,37	1,69	3,54	49,6	90,5	95,2	20,0
0,25	3,39	1,76	3,57	50,0	90,2	95,1	19,3

E = 1,8 GeV I = 500 mA

TABLE XLVII

Caractéristiques du rayonnement émis par DCI à 1,6 Å dans la section du plan vertical délimitée par le demi-cône d'angle au sommet ψ .

ψ_{mR}^a	$N_{//}^b$	$N_{\perp}^c$	N_{tot}^d	R_x^e	P_x^f	N_{z}^g	Q^i
0,01	$1,04 \times 10^{14}$	$5,21 \times 10^{10}$	$1,04 \times 10^{14}$	3,4	100,0	100,0	2000
0,02	2,07	$3,15 \times 10^{11}$	2,07	6,8	99,7	99,9	657
0,03	3,09	9,77	3,10	10,2	99,4	99,7	316
0,04	4,07	$2,21 \times 10^{12}$	4,09	13,5	99,0	99,5	154
0,05	5,03	4,15	5,07	16,7	98,4	99,2	121
0,06	5,95	6,57	6,02	19,8	97,7	98,8	86,6
0,07	6,83	$1,04 \times 10^{13}$	6,93	22,8	97,1	98,5	65,7
0,08	7,65	1,49	7,80	25,7	96,2	98,1	51,3
0,09	8,43	2,01	8,63	28,4	95,4	97,7	41,9
0,10	9,15	2,61	9,41	31,0	94,5	97,2	35,1
0,12	$1,04 \times 10^{15}$	3,95	$1,05 \times 10^{15}$	35,5	92,6	96,3	26,3
0,14	1,15	5,41	1,20	39,5	91,7	95,8	21,3
0,16	1,23	6,56	1,30	42,8	89,2	94,6	17,9
0,18	1,29	8,17	1,37	45,1	86,3	94,2	15,5
0,20	1,33	9,25	1,42	46,7	87,3	93,7	14,4
0,25	1,35	$1,09 \times 10^{14}$	1,50	49,0	86,0	92,1	12,7
0,30	1,40	1,15	1,52	49,7	85,4	92,1	12,2
0,40	1,40	1,17	1,52	50,0	84,9	92,1	12,0

E = 1,5 GeV I = 500 mA

IMAGERIE X PAR CONTACT CONTRE UNE LAME TRANSPARENTE SCINTILLATRICE : OBSERVATION A L'AIDE D'UNE OPTIQUE, LIMITE DE RESOLUTION

Ce modèle suppose une conversion $X \rightarrow$ visible à un seul étage, ce qui est, en fait, peu réaliste puisqu'il y a en général conversion $X \rightarrow UV$ dans un scintillateur primaire puis adaptation $UV \rightarrow$ visible par scintillation secondaire. Néanmoins, le modèle que nous allons décrire ici permet de fixer l'ordre de grandeur de la résolution qu'on peut obtenir par agrandissement optique d'une "image-contact" obtenue par scintillation dans une lame transparente. Les résultats ainsi obtenus doivent être comparés ensuite aux longueurs d'atténuation du rayonnement UV intermédiaire dans le matériau, afin de juger lequel des 2 facteurs est la cause prépondérante : le défaut de mise au point dû à l'épaisseur de la lame ou le libre parcours du rayonnement UV dans le scintillateur.

Considérons une lame à faces parallèles d'épaisseur e , faite d'un matériau scintillateur transparent d'indice n . Un objet placé contre la face d'entrée est éclairé par un rayonnement X parallèle, parfaitement collimaté, tombant normalement à la face d'entrée (Fig. 65).

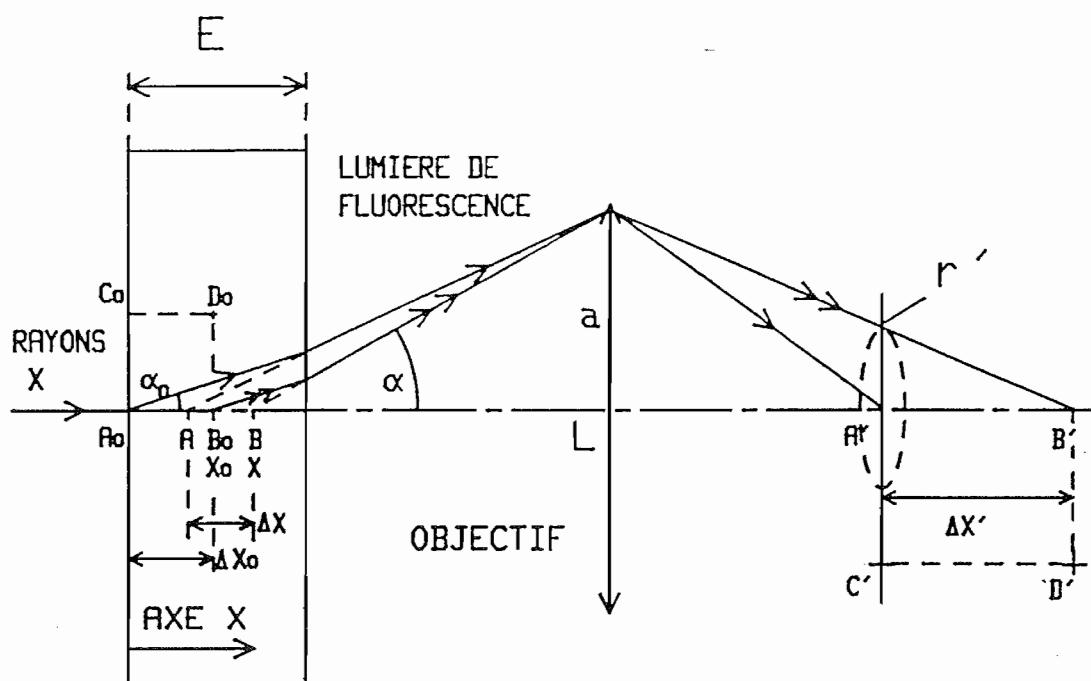


Figure 65 : Limite de résolution spatiale en imagerie de contact avec une lame fluorescente transparente d'épaisseur E , imagée à travers un objectif d'ouverture limitée

L'ensemble est observé par un objectif d'ouverture numérique objet $\sin \alpha$, avec un grandissement G :

$$G = \frac{A'L}{AL} \quad (75)$$

Par suite de l'interaction des rayons X avec le plastique scintillateur, la droite A_0B_0 se comporte comme un segment lumineux à l'intérieur du matériau, chaque portion dx_0 se comportant comme une source de lumière d'intensité $I(x_0) dx_0$ proportionnelle à l'intensité du rayonnement X présent à l'abscisse x_0 . Par suite de l'atténuation progressive du faisceau, on peut introduire une loi d'émission de la forme :

$$I(x_0) = I_0 \exp \{-\mu x_0\} \quad (76)$$

où μ représente le coefficient linéaire d'atténuation des rayons X dans le plastique.

De ce fait, "l'image de scintillation" la plus intense est formée juste à l'interface objet/scintillateur et nous supposons que la mise au point est faite à cet endroit (point A_0 sur la figure 65).

Le point A_0 donne une image A' ponctuelle, mais le point B_0 donne une image B' défocalisée qui n'est autre que la projection cônica (de centre B') de la pupille de l'objectif (rayon a) sur le plan $A'C'$.

De même, le point D_0 se projette sur le plan $A'C'$ comme un cercle de même rayon, mais qui n'est plus centré sur C' .

La tache, image du segment A_0B_0 , s'obtient en sommant la contribution de ces différents disques ; pour simplifier, nous allons supposer que la tache ainsi obtenue serait la même pour l'image du segment C_0D_0 , à une translation près. Ceci nous permettra de raisonner sur un filtrage linéaire et invariant par translation. La qualité de l'image n'est donc définie que par la réponse percussionnelle, c'est-à-dire la répartition d'intensité lumineuse dans la tache-image de l'objet A_0B_0 .

Calculons maintenant la contribution à la tache-image d'une portion dx_0 de l'objet.

Le flux émis dans l'angle solide Ω limité par l'optique s'écrit :

$$f(x_o) dx_o = I(x_o) \Omega dx_o$$

Nous supposons que cet angle solide reste constant pour tous les points B_o , donc l'éclairement résultant dans le plan image peut s'écrire, en introduisant le rayon $r'(x_o)$ de la trace du faisceau dans le plan $A'C'$ et la distance au centre dans le plan $A'C'$

$$E(R) = \begin{cases} \frac{f(x_o) dx_o}{\pi r'^2(x_o)} & \text{pour } R < r'(x_o) \\ 0 & \text{pour } R > r'(x_o) \end{cases} \quad (77)$$

Un point M fixé dans le plan $A'C'$ à une distance R du centre ne reçoit de la lumière que des points du segment $A_o B_o$ qui se projettent avec une tache de rayon supérieur à R. On peut donc écrire finalement, en sommant la contribution de ces différents points :

$$E(H) = \int_{x_o \min(R)}^{x_o \max} \frac{f(x_o) dx_o}{\pi r'^2(x_o)} \quad (78)$$

Explicitons la relation $r'(x_o)$.

Pour cela, on a d'après la figure 65 :

$$\frac{r'}{A'B'} = \frac{a}{LB'}$$

Supposons l'écart $A_o B_o$ faible, on aura alors, en appliquant les formules classiques de l'optique géométrique paraxiale (grandissement axial) :

$$\frac{A'B'}{A_o B_o} = \frac{A'B'}{AB} \cdot \frac{AB}{A_o B_o} = \left(\frac{LA'}{LA} \right)^2 \times \frac{1}{n} = \frac{G^2}{n} \quad (79)$$

G désignant le grandissement de l'image intermédiaire introduit par le système optique

$n \equiv$ indice de la lame

On a finalement :

$$r' = \frac{A'B'}{LB'} \cdot a \approx \frac{A'B'}{LA'} \cdot a = A'B' \cdot \frac{a}{LA'} \cdot \frac{LA}{LA'} = A'B' \cdot \alpha \cdot \frac{1}{G}$$

d'où, d'après la formule (79) du grandissement axial :

$$r' = \frac{A_0 B_0}{n} \alpha G \quad (80)$$

Posant : $x_0 = A_0 B_0$, on a finalement, posant $k = G\alpha/n$:

$$r'(x_0) = kx_0 \quad (81)$$

L'éclairement s'écrit donc :

$$E(R) = \int \frac{e^{f(x_0)} dx_0}{R/k \pi k^2/x_0^2} \quad (82)$$

avec :

$$f(x_0) = f_0 e^{-\mu x_0}$$

L'intégration explicite se ramène au calcul d'une intégrale du type $\int_a^b \frac{e^{-t}}{t^2} dt$ qui peut s'exprimer à l'aide de la fonction $E_1(u) = \int_u^{+\infty} \frac{e^{-t}}{t} dt$:

$$\int_a^b \frac{e^{-t}}{t^2} dt = \left[-\frac{e^{-t}}{t} \right]_a^b - \int_a^b \frac{e^{-t}}{t} dt \quad (83)$$

Posant :

$$F(a,b) = \frac{e^{-a}}{a} - \frac{e^{-b}}{b} - E_1(a) + E_1(b) \quad (83bis)$$

$$t = \mu x_0 \quad dx_0 = \frac{dt}{\mu}$$

Il vient finalement :

$$E(R) = \frac{\mu f_0}{\pi k^2} \int_{t=\mu R/k}^{\mu e} \frac{e^{-t}}{t^2} dt \quad (84)$$

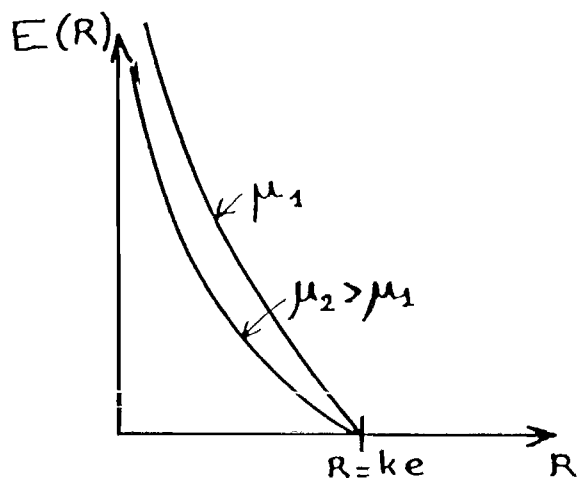
$$E(R) = \frac{\mu f_0}{\pi k^2} \{F(\mu R/k, \mu e)\} \quad (84bis)$$

Cette fonction s'annule pour $R = ke$.

Quand $R \rightarrow 0$, on a la superposition d'une singularité en $1/R$ et d'une singularité logarithmique $E_1(0+)$; c'est la première qui l'emporte et la fonction prend l'allure suivante (Fig. 66) :

Figure 66 :

Allure de la réponse percuSSIONNELLE dans le processus d'imagerie décrit sur la figure 65



Bien entendu, on ne peut pas attribuer de "largeur à mi-hauteur" à cette fonction qui tend vers l'infini quand $R \rightarrow 0$, et l'estimation de la qualité de l'image ne peut se faire rigoureusement qu'en calculant la F.T.M. de ce processus d'imagerie (par transformation de Fourier bi-dimensionnelle de la fonction $E(R)$). Ceci dépasse largement le cadre de ce calcul, qui visait simplement à estimer un ordre de grandeur.

On peut cependant faire la remarque "physique" que si la longueur d'absorption $1/\mu$ est faible, l'épaisseur de la lame n'intervient plus et c'est $1/\mu$ qui va déterminer le diamètre de la tache image.

Dans le cas où cette longueur est de l'ordre du mm (cas des X de 1 à 10 keV), on peut alors estimer l'ordre de grandeur de la tache image.

Reprenant la formule (81) :

$$r'(x_0) = k(x_0) \quad \text{avec} \quad k = \frac{G\alpha}{n}$$

on voit que, ramené à l'objet, en tenant compte du grandissement G , le rayon de la tache peut s'écrire :

$$r = \frac{\alpha}{n} x_0 \tag{85}$$

où x_0 est une dimension de l'ordre de la longueur d'absorption $1/\mu$.

A N N E X E 3

LIMITE DE RESOLUTION DANS UN DETECTEUR A FIBRES SCINTILLANTES PARALLELES LORSQUE LE FAISCEAU X INCIDENT, SUPPOSE PARALLELE, FAIT UN ANGLE NON NUL AVEC L'AXE DES FIBRES

La géométrie du problème (supposé uni-dimensionnel) est celle de la figure 45 (§ B.2.4.1c) reproduite ici (Fig. 67) :

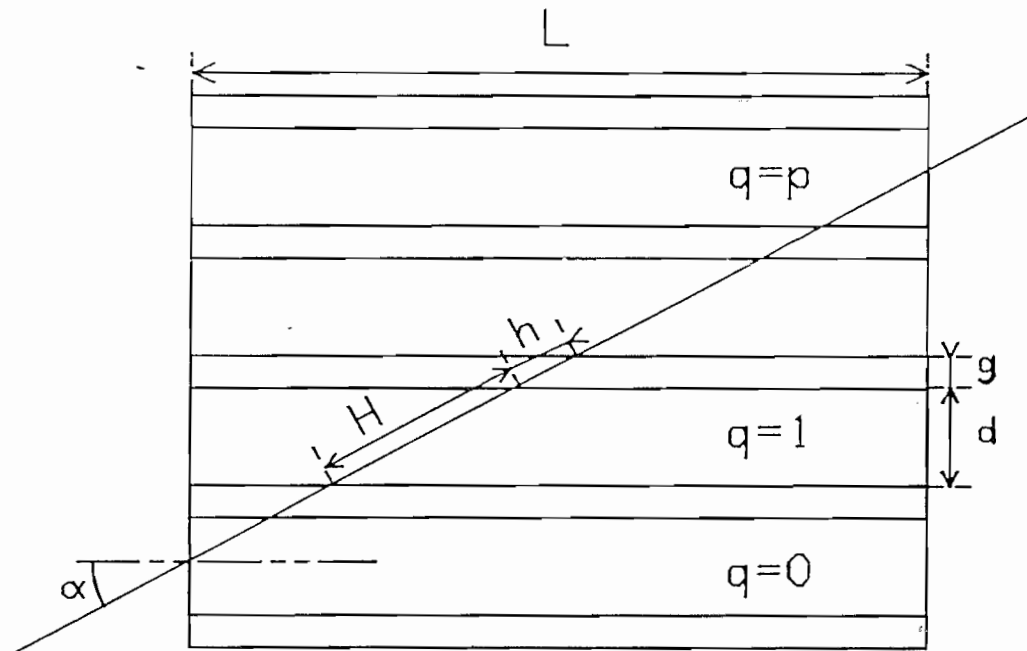


Figure 67 : Propagation d'un rayonnement X non parallèle aux fibres scintillantes : influence de l'absorption des X dans les cœurs et les gaines des fibres sur la distribution de lumière de fluorescence dans les fibres adjacentes à la fibre d'entrée.

Les paramètres sont les suivants :

α = angle d'inclinaison du faisceau incident par rapport aux fibres

L = longueur des fibres

p = nombre (supposé entier) de fibres traversées en biais par le rayonnement

$q = n^{\circ}$ de la fibre compris entre 0 (fibre d'entrée) et p (fibre de sortie)

$H, (h)$: longueur de cœur (gaine) traversée en biais, données par :

d : diamètre de cœur ; g : épaisseur de gaine

$\mu_c (\mu_g)$: coefficient d'absorption du rayonnement X dans le cœur (gaine).

On a les relations suivantes :

$$q = \frac{L\alpha}{(\alpha + g)} \quad (86)$$

$$h = \frac{Lg}{p(d+g)} \quad H = \frac{Ld}{p(d+g)} \quad (87)$$

Ne considérons pour simplifier que le rayon moyen, l'inclinaison α (supposée faible) étant telle que $p = \frac{L\alpha}{(\alpha+g)}$ est un entier.

Supposons l'intensité du rayonnement entrant égale à 1.

$IE_p(q)$ désigne l'intensité à l'entre de la q-ième fibre

$IS_p(q)$ désigne l'intensité à la sortie de la q-ième fibre.

$I_p(q)$ désigne l'intensité convertie en visible dans la q-ième fibre ; on a, en négligeant les facteurs correctifs de conversion $X \rightarrow$ visible :

$$I_p(q) = IE_p(q) - IS_p(q) \quad (88)$$

Appliquant la loi d'absorption X le long du trajet du rayonnement, il vient :

$$\begin{aligned} IE_p(0) &= 1 & IS_p(0) &= \exp \left\{ -\mu_c \frac{H}{2} \right\} \\ IE_p(q) &= IS_p(q-1) \cdot \exp \{ -\mu_g h \} \\ IS_p(q) &= IE_p(q) \cdot \exp \{ -\mu_c H \} \\ IE_p(p) &= IS_p(p-1) \cdot \exp \{ -\mu_g h \} \\ IS_p(p) &= IE_p(p) \cdot \exp \left\{ -\mu_c \frac{H}{2} \right\} \end{aligned} \quad (89)$$

En résolvant la récurrence, les équations précédentes s'écrivent :

$$\begin{aligned} IS_p(0) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \\ IE_p(1) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g h \\ IS_p(1) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g h \exp -\mu_c H \\ IE_p(2) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g (2h) \exp -\mu_c H \\ IS_p(2) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g (2h) \exp -\mu_c (2H) \end{aligned} \quad (90)$$

$$\begin{aligned}
IE_p(q) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g(qh) \exp -\mu_c (q-1) H \\
IS_p(q) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g(qh) \exp -\mu_c q H \\
IE_p(p) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g(ph) \exp -\mu_c (p-1) H \\
IS_p(p) &= \exp -\mu_c \frac{H}{2} \exp -\mu_g(ph) \exp -\mu_c \left[(p-1)H + \frac{H}{2} \right]
\end{aligned} \tag{90}$$

Les intensités susceptibles d'être converties dans chaque fibre s'écrivent finalement, en tenant compte des équations (88, 89, 90) :

$q = 0$:

$$I_p(0) = 1 - \exp \left\{ -\mu_c \frac{H}{2} \right\}$$

$0 < q < p$:

$$I_p(q) = \exp \left\{ -\mu_c \frac{H}{2} \right\} \exp \{ -\mu_g(qh) \} \exp \{ -\mu_c (q-1)H \} \cdot (1 - \exp \{ -\mu_c H \}) \tag{91}$$

$$I_p(p) = \exp \left\{ -\mu_c \frac{H}{2} \right\} \exp \{ -\mu_g(ph) \} \exp \{ -\mu_c (p-1)H \} \cdot (1 - \exp \{ -\mu_c \frac{H}{2} \})$$

Afin de simplifier ces expressions, nous introduirons les conditions supplémentaires :

$$L = 2 \mu_c^{-1} \tag{92}$$

qui signifie physiquement que l'efficacité d'arrêt du matériau de coeur est de l'ordre de 86 %.

Posant :

$$m = \frac{\mu_g}{\mu_c} \quad ; \quad r = \frac{d}{g} \tag{93}$$

il vient finalement :

$$\mu_c H = \frac{2}{p} \frac{r}{r+1} \quad ; \quad \mu_g h = \frac{2m}{p} \frac{1}{r+1} \tag{94}$$

D'où les expressions de $I_p(q)$:

Posant :

$$I_o(p, q, m, r) = \exp\left\{-\frac{1}{p} \frac{r}{r+1}\right\} \exp\left\{-q \frac{2m}{p} \frac{1}{r+1}\right\} \exp\left\{-(q-1) \frac{2}{p} \frac{r}{r+1}\right\} \quad (95)$$

$q = 0$:

$$I_p(0) = 1 - \exp\left\{-\frac{1}{p} \frac{r}{r+1}\right\}$$

$0 < q < p$:

$$I_p(q) = I_o(p, q, m, r) \left(1 - \exp\left\{-\frac{2}{p} \frac{r}{r+1}\right\}\right) \quad (96)$$

$q = p$:

$$I_p(p) = I_o(p, p, m, r) \left(1 - \exp\left\{-\frac{1}{p} \frac{r}{r+1}\right\}\right)$$

A N N E X E 4

CALCULS PHOTOMETRIQUES RELATIFS A L'EXPERIENCE DE CONVERSION X → VISIBLE DANS LES MICROTUBES SCINTILLATEURS

(§ B.2.4.5b ...)

1) Estimation de l'éclairement X disponible

a) Données tabulées

Il s'agit d'un tube cristallographique émettant la raie caractéristique $C_{rK_{\alpha}}$, alimenté sous 20 kV, 20 mA.

Les tables de calibration [87] donnent l'intensité émise par un tube ($C_{rK_{\alpha}}$) fonctionnant dans les conditions suivantes :

$$V = 45 \text{ kV}$$

$$I = 1 \text{ mA}$$

angle rasant d'émission : 20°

$$I(45 \text{ kV}, 1 \text{ mA}, 20^{\circ}) = 3 \times 10^9 \text{ photons.s}^{-1}.\text{mA}^{-1}.\text{stéradian}^{-1}$$

Alors que notre tube fonctionne dans les conditions :

$$V = 20 \text{ kV}$$

$$I = 20 \text{ mA}$$

angle rasant d'émission : 6° .

b) Corrections

. Correction de tension d'alimentation

d'après Agarwal [89], on a :

$$I(V) = \text{cste} (V^2 - V_i^2)$$

où V_i = énergie de la raie, en kV (ici $C_{rK_{\alpha}} = 5,4 \text{ kV}$).

Pour $V = 20 \text{ kV}$ au lieu de 45, le facteur correctif est donc :

$$I(20 \text{ kV}) = I(45 \text{ kV}) \times \frac{20^2 - 5,4^2}{45^2 - 5,4^2} \approx 0,19 I(45 \text{ kV})$$

. Correction pour le courant

aucune, il s'agit d'une simple proportionnalité.

. Correction d'angle d'émission selon [88]

Aux angles d'émission très rasants ($< 20^\circ$) les tubes X émettent comme des sources à luminance constante alors que lorsque l'émission a lieu au voisinage de la normale, ils se comportent comme des sources à intensité constante. Supposant la première hypothèse vérifiée (voir en particulier la figure 63 dans l'annexe 1), nous avons :

$$I(6^\circ) = I(20^\circ) \times \frac{\sin 6^\circ}{\sin 20^\circ} = 0,31 \times I(20^\circ)$$

-

c) Eclairement disponible à 5 cm du foyer

Compte tenu du a) et du b) et sachant qu'à 5 cm, 1 stéradian représente environ 25 cm^2 , l'éclairement s'écrit finalement :

$$E = 3 \times 10^9 \times 0,31 \times 0,19 \times 20 \times \frac{1}{25} \text{ photons.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$$

$$\begin{array}{ccccccc} \text{table} & 6^\circ & 20 \text{ kV} & 20 \text{ mA} & \text{par } \text{cm}^2 & & \\ & (\rightarrow 20^\circ) & (45 \text{ kV}) & & \text{à } 5 \text{ cm} & & \end{array}$$

$$E = 1,4 \times 10^8 \text{ photons.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$$

2) Estimation des niveaux de lumière visible dans l'image finale

Cette estimation repose sur le noircissement du film ; elle est donc peu précise, mais permet de fixer l'ordre de grandeur.

Dans le catalogue du CECEP [90], on peut trouver la lumination énergétique nécessaire à l'obtention d'une densité optique de 1 :

$$\begin{aligned} L_1 &= 0,02 \text{ erg/cm}^{-2} \text{ pour un film de 400 ASA} \\ &= 0,02 \times 10^{-7} \text{ joules.cm}^{-2} \end{aligned}$$

Ici un tel noircissement est obtenu pour un temps de pose de 1 H environ, ce qui conduit à un éclairement énergétique égal à :

$$E = 5,5 \times 10^{-13} \text{ J.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$$

3) Estimation du nombre de photons visibles recueillis par photon X incident

a) Nombre de photons X incidents dans chaque canal de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$

D'après le 1), il vient :

$$N = 140 \text{ photons.s}^{-1}.$$

b) Nombre de photons visibles réémis par canal

Les photons visibles réémis par chaque canal dans l'angle d'acceptance de l'optique se répartissent dans l'image agrandie de ce canal ($G = 25$ ici).

Compte tenu de l'éclairement énergétique de l'image estimé au 2) et supposant des photons de longueur d'onde moyenne $0,4 \mu\text{m}$, le nombre de photons cherché est celui qui tombe dans une image de dimension $250 \times 250 \mu\text{m}$; d'où finalement en convertissant l'énergie en nombre de photons :

Facteur de conversion en nombre de photons pour $0,4 \mu\text{m}$:

$$N (\text{photons}) = \frac{\lambda}{h c} = 2 \times 10^{18} E (\text{Joules})$$

Nombre de photons reçus dans $250 \times 250 \mu\text{m}^2$, provenant de 1 canal :

$$N = \begin{array}{ccccc} 2 \times 10^{18} & \times & 6,25 \times 10^{-4} & \times & 5,5 \times 10^{-13} & = & 694 \text{ photons} \\ \text{conversion} & & \text{surface de} & & \text{éclairement} & & \\ \text{en nombre} & & 250 \times 250 \mu\text{m}^2 & & \text{en J.s}^{-1}.\text{cm}^{-2} & & \\ \text{de photons} & & & & & & \end{array}$$

Pour pouvoir identifier ces photons avec ceux de la fluorescence guidée, il faut admettre, en plus, que la limitation angulaire de la lumière guidée est faite par l'optique de microscope ; ceci suppose une différence d'indices coeur/gaine suffisante, ou autrement dit, que la fibre ait une ouverture supérieure à l'optique.

A N N E X E 5

RENDEMENT LUMINEUX D'UNE FIBRE SCINTILLANTE A GUIDAGE METALLIQUE

(modèle de rayons méridiens)

Le nombre de réflexions subies par un rayon, incliné d'un angle θ , issu d'une source distante de x de l'entrée de la fibre (longueur totale L , diamètre d) s'écrit :

$$N(x) = \frac{L - x}{d} \operatorname{tg} \theta \quad (97)$$

A cet endroit, par suite de l'atténuation, l'intensité d'une source de scintillation est proportionnelle à $e^{-\mu x}$ où μ est le coefficient linéaire d'absorption.

La contribution de la portion de fibre comprise entre x et $x+dx$ s'écrit donc, pour les rayons inclinés de l'angle θ :

$$I_0(x, \theta) dx d\theta = 2\pi \sin \theta d\theta I_0 e^{-\mu x} dx \quad (98)$$

Par suite de l'atténuation à chaque réflexion, la lumière finalement collectée à l'extrémité de la fibre s'écrit, en introduisant le coefficient de réflexion R

$$I(x, \theta) dx d\theta = 2\pi \sin \theta I_0 e^{-\mu x} dx R^{N(x)}$$

D'où l'expression du rendement, obtenue en normalisant à la totalité de la lumière émise vers l'avant :

$$\frac{I_{\text{reçu}}}{I_{\text{total}}} (R) = \frac{\int_{x=0}^{x=L} e^{-\mu x} dx \int_{\theta=0}^{\pi/2} 2\pi \sin \theta d\theta R^{\frac{L-x}{d} \operatorname{tg} \theta}}{\int_{x=0}^{x=L} e^{-\mu x} dx \int_{\theta=0}^{\pi/2} 2\pi \sin \theta d\theta} \quad (99)$$

Pour simplifier, nous choisirons $a = L/d = 100$ et $L = 2\mu^{-1}$, cette dernière condition correspondant à une pouvoir d'arrêt de 86 %.

Après simplification et utilisation de variables sans dimension, on obtient finalement l'expression suivante, utilisable pour une intégration numérique :

$$\frac{I_{\text{reçu}}}{I_{\text{total}}} (R) = \frac{2}{1 - e^{-2}} \int_0^1 e^{-2u} \int_0^{\pi/2} \sin\theta R^{a(1-u)\text{tg}\theta} d\theta du \quad (100)$$

où $a = L/d \approx 100$ dans notre application numérique.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] A. ENGSTROM, Acta Radiol. Stockh., Suppl. 63 (1946).
- [2] F. POLACK, S. LOWENTHAL, Y. PETROFF, Y. FARGE, Applied Physics Letters, 31(11), 785 (1977).
- [3] M. STEINBERG, F. POLACK, M. RIVIERE, A. MARTIN, "Utilisation du Rayonnement Synchrotron pour la localisation d'éléments à l'échelle de la lame mince dans diverses concrétions polymétalliques", Gif/Yvette, Sept. 78, dans "Colloques du CNRS n° 289 : La genèse des nodules de manganèse", p. 357.
- [4] E. BIGLER, Thèse de 3e cycle (Orsay, 1982).
- [5] V.E. COSSLETT and W.C. NIXON, "X-ray Absorption Microanalysis", dans : X-ray Microscopy, p. 53 (Cambridge University Press, Cambridge, 1960).
- [6] V.E. COSSLETT and W.C. NIXON, X-ray Micr., op. cit., p. 70.
- [7] H. WOLTER, Ann. Phys. Leipzig, 10 : 94 et 10 : 268 (1952).
- [8] R.P. HAELBICH, "A Scanning Ultrasoft X-ray Microscope with Multilayer Coated Reflection Optics : First Test with Synchrotron Radiation Around 60 eV Photon Energy", dans : Scanned Image Microscopy, p. 413, edited by E.A. ASH (Academic Press, 1980).
- [9] G. SCHMAHL, D. RUDOLPH, B. NIEMANN and O. CHRIST, "X-ray Microscopy of Biological Specimen with a Zone Plate Microscope", dans : Ultrasoft X-ray Microscopy, its Applications to Biological and Physical Sciences, p. 269, edited by Donald F. Parsons (Annals of the New York Academy of Sciences, vol. 342, 1980).
- [10] J.K. SILK, "Grazing Incidence Microscope for X-ray Imaging Applications", dans : Ultr. X-ray Micr., (Ann. N.Y. Acad. Sci.), op. cit., p. 116.
- [11] P. HOROVITZ, J.A. HOWELL, Science, 138 (1972), 608.
- [12] J. KIRZ, R. BURG and H. RARBACK, Ann. N.Y. Acad. Sci., 342 (1980), 135.
H. RARBACK and J. KIRZ, SPIE Proc. 316 (1981), 120.
- [13] R.P. HAELBICH, W. STAEHR and C. KUNZ, Ann. N.Y. Acad. Sci. 342 (1980), 148
- [14] P.J. DUKE, Proc. Roy. Micr. Soc., 16 (1981).
- [15] B. NIEMANN, G. SCHMAHL and D. RUDOLPH, SPIE Proc. 316 (1982), 106.
- [16] B. NIEMANN, D. RUDOLPH and G. SCHMAHL, Nucl. Instr. Methods, 208 (1983), 367.

- [17] J.M. KENNEY, C. JACOBSEN, J. KIRZ, H. RARBACK, F. CINOTTI, W. THOMLINSON, R. ROSSER, G. SCHIDLOWSKY, J. Microsc., 138, n° 3 (June 1985).
- [18] F. POLACK, S. LOWENTHAL in : "X-ray Microscopy", publié sous la direction de G. Schmahl et D. Rudolph (Springer, 1984), p. 251.
- [19] D.W. TURNER, I.R. PLUMMER, H.Q. PORTER, J. Microscopy, 136 (1984), 259.
- [20] E. SPILLER, R. FEDER, J. TOPALIAN, D. EASTMANN, W. GUDAT and D. SAYRE, Science, 191, 1172 (1976).
- [21] E. SPILLER and R. FEDER, "X-ray Lithography" dans : X-ray Optics, edited by H.J. QUEISSER, Topics in Appl. Phys., vol. 22, p. 35 (Springer Verlag, Berlin 1977).
- [22] A. ENGSTROM, cité par Cosslett et Nixon, "X-ray Microscopy", op. cit., p. 164.
- [23] A. ENGSTROM, R. GREULICH, B.L. HENKE, B. LUNDBERG, "High Resolution Contact Microscopy with Ultrasoft Polychromatic X-ray" dans : X-ray Microscopy and microradiography, Proceedings of Symposium Cavendish Laboratory, 1956 (Academic Press, New-York, 1957).
- [24] Remarque de A. ENGSTROM dans la discussion sur la conférence de R. FEDER et D. SAYRE : "Recent Developments in X-ray Microscopy", Ann. N.Y. Acad. Sci., 342 (1980), 213.
- [25] ~~J.Wm.~~ J.Wm. Mc. GOWAN and M.J. MALACHOWSKI, "Soft X-ray Replication of Biological material X-ray Microscopy and Microchemical analysis of Cells", Ann. N.Y. Acad. Sci., 342 (1980), 288.
- [26] = [1]
- [27] V.E. COSSLETT et W.C. NIXON, X-ray Micr., Op. cit., chapitre 6.
- [28] E. BIGLER, Thèse de 3e cycle (Orsay, 1982), chapitres 2 et 3.
- [29] W.J. VEIGELE, "Mass Attenuation and Absorption Cross Sections for 94 Elements ; 0,1 keV to 1 MeV", in Handbook of Spectroscopy 2nd edition, 1, 28 (CRC Press, 1979).
- [30] "X-ray Fluorescence Analysis of Minimum Traces of Elements : Principles of Application", in : European Synchrotron Facility, suppl. 1, p. 78 (European Science Foundation, Strasbourg 1979).
- [31] J. KIRTZ, "Mapping the Distribution of Particular Atomic Species", in Ultra X-ray Micr., (Ann. N.Y. Acad. Sci.), op. cit., p. 273.

- [32] L.S. BIRKS, in : Electron Probe Microanalysis, 2nd Edition, p. 4 (Wiley - Interscience, New-York 1971).
- [33] M. TAVERNIER, Thèse (Paris, 1982).
- [34] E. BIGLER, Thèse de 3e cycle (Orsay, 1982), Annexe 2.
- [35] M. STEINBERG, E. BIGLER, S. TLIG, C. BONNOT-COURTOIS, A. DESPRAIRIES, E. LALLIER-VERGES, M. RIVIERE, J. MARCOUX, "Comparaison de caractéristiques texturales et géochimiques de quelques concrétions ferro-manganésifères récentes et fossiles", Bulletin de la Société Géologique de France, 26 (1984), 15-23.
- [36] J. GOULON, M. LEMONNIER, R. CORTES, A. RETOURNARD, D. RAOUX, "Development of a new Energy-scanned (4 - 20 keV) EXAFS-II Spectrometer at LURE", Nucl. Instr. Meth., 208 (1983), 625.
- [37] A. MARION et S. EQUILBEY, "La nouvelle chaîne photométrique", dans : Bulletin d'information du CDSI, n° 3 (Orsay, avril 1980).
- [38] E. BIGLER, Thèse de 3e cycle (Orsay, 1982), annexe 3.
- [39] J.C. DAINTY et R. SHAW, "Image Science" (Academic Press 1974), pp. 28,153.
- [40] D.A. BELL, "Electrical Noise", (Van Nostrand, 1960), p. 179.
- [41] B. NIEMANN, "Detective Quantum Efficiency of some Film Materials in the Soft X-ray Region", dans : Ultr. X-ray Micr. (Ann. N.Y. Acad. Sci.), op. cit., p. 230.
- [42] G. MOLLENSTEDT et L.Y. HUANG dans : X-ray Microscopy and Microradiography, p. 392 (Academic Press, New-York 1957).
- [43] B.L. HENKE, J.P. KNAUER, K. PREMARATNE, J. Appl. Phys., 52(3), (1981), 1509.
- [44] F. POLACK and S. LOWENTHAL, Rev. Sci. Instrum., 52(2) (1981), 207.
- [45] J.E. BATEMAN, R.J. APSIMON, "A new photocathode for X-ray image intensifiers operating in the 1 - 50 keV region" dans : Photo-electronic Image Devices, Proceedings of the 7th Symposium, edited by B.L. Morgan and D. McMullan (Academic Press, 1979), p. 189.
- [46] L.G. ELISEENKO, V.N. SHCHEMELEV, M.A. RUMSH, Sov. Phys. Tech. Phys., 13 (1968), 122.
- [47] = [48, 51]

- [48] J.E. MACK, F. PARESCE, S. BOWYER, "Channel electron multiplier : its quantum efficiency at soft X-ray wavelengths and vacuum ultra-violet wavelengths", *Applied Optics*, 15(4) (1976), 861.
- [49] G. SLODZIAN, "Microanalyser Using Secondary Ion Emission", dans : *Applied Charged Particles Optics*, edited by A. Septier (Academic Press, 1980), partie B, p. 1.
- [50] "DéTECTEUR à galettes de micro-canaux", Notice RTC, n° G34X, décembre 1982.
- [51] E. KELLOG, P. HENRY, S. MURAY, L. VAN SPEYBROECK, "High Resolution Imaging X-ray Detector", *Rev. Sci. Instr.*, 47(3) (1976), 282.
- [52] KAHN et al, *Nucl. Instr. Methods*, 172 (1980), 337.
- [53] K.C. TAM, "Spatial Resolution in High-Pressure Xenon X-ray Detectors", *Rev. Sci. Instr.*, 54(12) (1983), 1771.
- [54] R.C. CATURA, R.C. SMITHSON, "Single Photon X-ray detection with a CCD image sensor", *Rev. Sci. Instr.*, 50(2) (1979), 219.
- [55] M.C. PECKERAR, W.D. BAKER, D.J. NAGEL, "X-ray Sensitivity of a CCD array", *Journal of Appl. Phys.*, 48(6) (1977), 2565.
- [56] "Application of Reticon Photodiode Arrays as Electron and X-ray Detectors" note d'application n° 101, Reticon Corp., 1975.
- [57] J.McGINNIS (EG & G - Reticon), "X-ray sensitive photodiode array", Industrial research and development, mars 1980.
- [58] M. LEMONNIER (L.U.R.E., Orsay), communication privée.
- [59] J.C. GAUTHIER (I.E.F., Orsay), communication privée.
- [60] C.J. HAILEY, T.T. HAMILTON, W.H.M. KU, "Imaging X-ray Spectrophotometer", *Nucl. Instr. Methods*, 184 (1981), 543.
- [61] C.E. DICK, J.W. MOTZ, "Image Information Transfer Properties of X-ray Fluorescent Screens", *Med. Phys.*, 8(3) (1981), 337.
- [62] R.K. SWANK, "Absorption and Noise in X-ray Phosphors", *J. Appl. Phys.*, 44(9) (1973), 4199.
- [63] R.K. SWANK, "Calculation of Modulation Transfer Function of X-ray Fluorescent Screens", *Appl. Opt.*, 12(8) (1973), 1865.

- [64] Y. BEAUVAIS, A. MATHIOT, "X-ray Topography with Scintillators Coupled to Image Intensifiers or Camera Tube", dans "Photo-electronic Image Devices", op. cit., p. 217.
- [65] W. HARTMANN, in "X-ray Optics", H.J. Queisser ed. (Springer, Heidelberg 1977), p. 191.
- [66] F. POLACK, E. BIGLER, "Dispositif de détection de rayonnements X à scintillation", Brevet Français n° 83-18319 déposé le 17-11-1983.
- [67] N. McLEOD, "Luminescent Screens and Methods of Making same", U.S. Patent n° 624.378 (1956) et n° 3041456 (1962).
- [68] GNK Limited, "Perfectionnements apportés aux appareils pour l'examen de matériaux", Brevet Français n° 1372722 (1964).
- [69] M.A. LIGTENBERG et col., "Luminescent Screen having a Mosaic Structure", U.S. Patent 3825763 (1974).
- [70] J.P. GALVES, J.M. GUTIERREZ, "Intensificateur d'images radiologiques et son procédé de fabrication", Brevet Français n° 76-23726.
- [71] NOJI TAKASHI et col., "Radiation Excited Phosphor Screen and Method for Manufacturing the same", European Patent n° 0042149 (1981).
- [72] H. BLUMENFELD et col., NIM 225 (1984), 518.
- [73] R. RUCHTI et col., "Scintillating glass fiber-optic plate Detectors for Active Target and Tracking Applications in high Energy Physics Experiments", IEEE Trans. Nucl. Sci., NS32 (1985), 590.
- [74] C.M. FISHER, "Scintillating Optical Fibres and the Detection of very Short Lived Particles", dans : Photonics Applied to Nuclear Physics : 2 Nucleo-phot (Proceedings of Symposium : Strasbourg, 5/7 December 1984), Publication CERN n° 85-10 du 12/7/1985, page 195.
- [75] A.W. SNYDER, C. PASK, D.J. MITCHELL, "Light Acceptance of an Optical Fiber", J. Opt. Soc. Am., 63(1) (1973), 59.
- [76] A.W. SNYDER, C. PASK, "Incoherent Illumination of an Optical Fiber", J. Opt. Soc. Am., 63(7) (1973), 806.
- [77] C. PASK, A.W. SNYDER, D.J. MITCHELL, "Number of Modes on Optical Waveguides", J. Opt. Soc. Am., 65(3) (1975), 356.
- [78] R.G. ROSEMEIER, R.E. GREEN, "A new Miniature Microchannel Plate X-ray Detector for Synchrotron Radiation", NIM 195 (1982), 299.

- [79] A.W. SNYDER, D.J. LOVE, "Tunnelling Leaky Modes on Optical Waveguides", Opt. Comm., 12(3) (1974), 326.
- [80] E.A.J. MARCATILI, "Extrapolation of Snell's Law to Optical Fibres", J. Opt. Soc. Am., 63(11) (1973), 1372.
- [81] A.W. SNYDER, D.J. MITCHELL, "Leaky Rays on Circular Optical Fibers", J. Opt. Soc. Am., 64(5) (1974), 599.
- [82] N.S. KAPANY, J.J. BURKE, "Optical Waveguides", p. 64 (Academic Press, 1972).
- [83] P. WASHINGTON, V. DUCHENOIS, R. POLAERT, R.M. BEASLEY, "Technologie de fabrication des galettes de microcanaux", Acta Electronica, vol. 14, n^o 2 (1971), 207.
- [84] R.C. GAMBLE, J.D. BALDESCHWIELER, note 14 in "Linear Position-Sensitive X-ray Detector Incorporating a Self-Scanning Photodiode Array", Rev. Sci. Instr., 50(11) (1979), 1420.
- [85] "Index of Refraction of some Liquids Relative to air", Smithsonian Physical Tables, 1954, Table 551.
- [86] "Properties of Dielectrics : Molar Refraction", American Institute of Physics Handbook, D.E. Gray, Ed., 3e édition (1972), pp. 5-124.
- [87] J.V. GILFRICH, "Spectral Distribution of X-ray Tubes", in Handbook of Spectroscopy, vol. 1, J.W. Robinson, Ed. (CRC Press, Cleveland, 1979), p. 233.
- [88] V.E. COSSLETT, W.C. NIXON, op. cit., p. 232.
- [89] B.K. AGARWAL, X-ray Spectroscopy (Springer, New-York, 1979), p. 65.
- [90] C.E.C.E.P. (L.N.E.) : Catalogue des films et papiers photographiques (1984).
- [91] DAINTY & SHAW, in "Image Science" (Acad. Press, 1974).
- [92] "Tube intensificateur d'image à galette de microcanaux de grand diamètre et à haute résolution pour applications photographiques", LEP, communiqué à la presse, CP 82-80.
- [93] "Dispositif photosensible linéaire à transfert de charges TH7802", Notice technique Thomson-CSF, n^o TEV 3508 (1983).
- [94] T. FAUCONNIER, "Application des CCD à l'astronomie", Thèse (Orsay, 1983).

- [95] E.B. HUGHES et al., "The Application of Synchrotron Radiation to Non-Invasive Angiography", Nucl. Instrum. Methods, 208, 665 (1983).
- [96] P. DAGNEAUX et col., "L'utilisation du rayonnement synchrotron en France", Ann. Phys., 9, 46 (1975).
- [97] V.E. COSSLETT, W.C. NIXON, X-ray Micr., op. cit., p. 232.
- [98] M. YOSHIMATSU and S. KOZAKI, "High Brilliance X-ray Sources", dans : X-ray Optics, op. cit., p. 9.
- [99] V. DUCHENOIS, M. FOUASSIER, C. PIAGET, "High-Resolution Luminescent Screens for Image Intensifier Tubes", Advances Electr. Electron. Phys., 64B, 365 (1985).