



Microscopie x sans lentilles. Méthode de contact par conversion d'image et holographie X

François Polack

► To cite this version:

François Polack. Microscopie x sans lentilles. Méthode de contact par conversion d'image et holographie X. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1991. Français. NNT : 1991PA112376 . pastel-00739500

HAL Id: pastel-00739500

<https://pastel.hal.science/pastel-00739500>

Submitted on 8 Oct 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.

ORSAY
n° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

François POLACK

SUJET :

MICROSCOPIE X "SANS LENTILLES"

Microscopie de Contact par conversion d'image
et
Holographie X

soutenue le 19 novembre 1991 devant la Commission d'examen

MM.	Serge	LOWENTHAL	<i>Président</i>
	Jacques	CAZAUX	<i>Rapporteur</i>
	Pierre	CHAVEL	
	Malcolm	HOWELLS	
	Christian	IMBERT	
	Yves	PETROFF	
	Georges	SLODZIAN	

Toute la conduite de notre vie dépend de nos sens, entre lesquels celui de la vue étant le plus universel et le plus noble, il n'y a point de doute que les inventions qui servent à augmenter sa puissance ne soient les plus utiles qui puissent être.

René Descartes, La Dioptrique

A Marie-France,

*Pierre-Olivier, Anne-Sophie,
Antoine et Jérôme.*

REMERCIEMENTS

Au début de ce mémoire il m'est agréable de remercier tous ceux sans lesquels ce travail n'aurait pu être mené à bien.

Mes remerciements s'adressent tout d'abord à celui qui le premier m'a témoigné sa confiance, Monsieur le Professeur Serge Lowenthal, pour son soutien attentif à mon travail et la part qu'il a prise à son aboutissement. Il a su me diriger sans jamais m'imposer ses propres vues, mais plutôt en tempérant mes excès et en stimulant mes réflexions. Qu'il trouve ici l'expression de ma très profonde gratitude

Je voudrais associer dans un même hommage Messieurs Yves Farge et Yves Pétroff qui, en tant que directeurs de LURE, ont beaucoup soutenu ce travail. Je suis spécialement reconnaissant à Monsieur Yves Farge de m'avoir confié un sujet aussi passionnant que la celui de la microscopie X et de m'avoir ainsi permis d'entrer au CNRS dans son laboratoire. Je me sens particulièrement redevable envers Monsieur Yves Pétroff de l'attention qu'il a toujours portée à mes travaux. Son soutien et son grand intérêt pour l'holographie X ont été précieux pour obtenir rapidement les premières images X holographiques à haute résolution.

Je remercie Messieurs les Professeurs André Maréchal et Christian Imbert de m'avoir ouvert leur laboratoire. En me permettant de me joindre à une équipe d'opticiens, ils m'ont évité la position inconfortable de chercheur isolé. Je sais gré à Monsieur Christian Imbert d'avoir accepté de figurer dans le jury de cette thèse.

J'ai une dette de reconnaissance particulière envers Monsieur le Professeur Georges Slodzian. Grâce à lui et aux personnes qu'il m'a fait rencontrer, j'ai pu m'initier aux problèmes de l'optique électronique. Je le remercie des discussions fructueuses que nous avons eu sur la lentille à émission du microscope électronique et pour les programmes de calcul optique qu'il m'a communiqués et qui ont servi de base à mon travail en ce domaine.

Je remercie bien sincèrement Monsieur le Professeur Jacques Cazaux d'avoir accepté la tâche ingrate d'être mon rapporteur scientifique. Je lui sais gré des remarques qu'il m'a adressées qui m'ont permis d'améliorer ce manuscrit, tout particulièrement dans sa partie introductive. Qu'il trouve ici le témoignage de ma profonde estime.

Je suis heureux que Monsieur Malcolm Howells dont les travaux en holographie X font autorité, ait accepté de se joindre à mon jury. Je lui adresse ici l'expression de ma sincère reconnaissance.

De Pierre Chavel qui, avec la rigueur et la compétence que chacun lui reconnaît, a relu en détail ce manuscrit, je suis redevable de nombreuses observations qui m'ont permis de préciser ma pensée. Je le remercie vivement de toutes les discussions scientifiques impromptues que, malgré ses nombreuses activités, nous avons pu avoir. Son savoir et son amitié m'ont été précieux.

Je remercie l'ensemble du groupe de recherche de physique des images de l'Institut d'Optique pour le climat d'amitié franche et cordiale qui y a toujours régné. Parmi ses membres actuels ou anciens, je voudrais tout spécialement distinguer :

- Daniel Phalippou, qui a été associé à toutes les expériences présentées dans ce mémoire. Son esprit d'organisation, son don infaillible pour réduire un montage complexe à l'essentiel, sa disponibilité, sont connus et appréciés de tous. Je le remercie de son assistance toujours fidèle.

- Denis Joyeux, avec lequel j'ai eu la chance de pouvoir monter les expériences d'holographie X. Si nos véhémentes discussions sont devenues proverbiales, elles témoignent, je pense, d'une solide et amicale estime.

- Emmanuel Bigler, en souvenir des nuits de veille passées à enregistrer, puis à numériser des clichés de microanalyse.

- Raymond Mercier, dont les connaissances en calcul des combinaisons optiques et le talent en calcul numérique, ont été bien souvent sollicité - notamment pour le calcul des courbes de FTM de la figure 5.10 et celui de l'objectif de reconstruction holographique (fig. 9.4) -

- Madeleine Calvignac qui a assuré une grande part de la saisie de ce texte

à eux et tous les membres du groupe je voudrais témoigner ici de ma fidèle amitié.

Je ne saurais pas non plus oublier le soutien amical de beaucoup d'autres membres de l'Institut d'Optique que je ne peux tous nommer individuellement. Je remercie cependant tout particulièrement :

- Pierre Fournet qui a su donner forme à toute mes idées, et triompher des problèmes de vide et de mécanique les plus complexes. J'ai plaisir à reconnaître que j'ai beaucoup appris avec lui, et pas uniquement dans le domaine de la conception instrumentale.

- Monsieur Jean-Paul Marioge et les membres des ateliers de l'Institut d'Optique pour leur assistance technique : Monsieur Francis Contet et les membres de l'atelier de mécanique qui ont réalisé une grande partie de l'optique magnétique du microscope photoélectronique ; Monsieur Bernard Bonino qui a fabriqué le miroir torique de son condenseur et les autres membres de l'atelier de travail du verre.

- Madame Delmotte pour le tirage de ce texte.

Je remercie les membres du Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay pour l'aide qu'il m'ont apporté dans mon aventure électronique, et plus particulièrement Monsieur le Professeur Lucien Henry pour ses conseils sur le filtrage des vitesses électroniques ainsi que pour le prisme magnétique, qui devait servir au microscope photoélectronique, qu'il m'a obligeamment donné. Je remercie aussi tout spécialement Monsieur Roger Quettier de m'avoir fait bénéficier de sa grande expérience des microscopes électroniques lorsque je dessinais mon propre instrument.

Je remercie enfin tous les membres de LURE qui à des titres divers m'ont assisté.

AVANT PROPOS

Ce mémoire présente un travail qui s'est étendu sur 10 ans environ, de 1980 à 1990, et est consacré à deux techniques particulières de microscopie X : la microscopie de contact, dans une variante utilisant la conversion de l'image par émission photoélectronique secondaire pour former l'image en temps réel ; la microscopie par holographie dans la configuration particulière de Gabor. Ces deux techniques présentent la caractéristique commune de ne pas reposer, pour la formation d'une image X agrandie, sur l'utilisation d'optiques X.

On pourra objecter qu'un tel choix se situe délibérément en dehors du puissant courant qui renouvelle depuis près de quinze ans la microscopie X, sous l'impulsion notamment de G. Schmahl en Allemagne et E. Spiller puis de J. Kirz aux Etats Unis. Sans vouloir nier la qualité remarquable à laquelle, en quelques années, est parvenue l'optique et particulièrement la fabrication des réseaux zonés de Fresnel, nous affirmerons seulement l'intérêt d'explorer des méthodes dont les limitations intrinsèques sont largement différentes. Les résultats dont nous ferons état dans les chapitres qui suivent, ne sont pas toujours à la hauteur des ambitions que nous pouvions avoir dans l'enthousiasme des débuts. Cependant, à quelques signes encourageants, nous voyons maintenant que la microscopie par conversion photoélectronique n'est pas nécessairement dépassée par les progrès des réseaux de Fresnel, et pourrait avoir des suites pour des applications nouvelles dont nous reparlerons, comme le contrôle d'optiques de photoréduc-

tion. Quant à l'holographie, dont cinq années de travail n'ont épuisé ni la difficulté ni l'intérêt, nous la tenons toujours pour capable de rivaliser avec les autres méthodes actuelles de microscopie X.

Ce mémoire est divisé en trois parties largement indépendantes, que précèdent une courte introduction destinée à mettre le déroulement de notre propre recherche dans la perspective du développement de la microscopie X et de ses motivations essentielles.

La première partie - chapitres 2 à 4 - intitulée Considérations générales sur la microscopie X est une synthèse d'informations que l'on peut trouver, le plus souvent de façon dispersée, dans divers ouvrages et publications consacrés aux rayons X et à la microscopie X, avec des considérations et des développements personnels. Nous avons regroupé dans les deux premiers chapitres, ce qui concerne l'interaction des rayons X avec la matière et plus spécialement l'interaction des rayons X avec les objets : la nature du contraste des images, qui demeure encore l'objet d'idées fausses et de controverses, ainsi que le problème des dommages causés aux objets. Dans le chapitre 4, nous établissons un bref état des connaissances en matière d'optique des rayons X appliquée à la microscopie. Malgré le traitement rapide accordé à certaines questions, cette première partie permettra, nous l'espérons, de mieux situer le contexte de nos travaux.

La deuxième partie - chapitres 5 à 7 - relate la conception, la réalisation et la mise au point d'un instrument destiné à la microscopie X de contact par conversion d'image. Le travail sur ce *microscope photoélectronique* a abouti aux quelques images qui sont présentées au chapitre 7. Il s'est poursuivi jusqu'en 1987 sur l'anneau ACO de LURE et s'est interrompu à la fermeture de celui-ci.

La troisième partie - chapitres 8 et 9 - est consacrée à la microscopie X par holographie. Nous avons pu développer cette technique à partir de 1985 lorsque, un monochromateur ayant été installé sur l'onduleur d'ACO, il devint possible d'obtenir, à 10 nm de longueur d'onde, une certaine cohérence avec le flux nécessaire. Les deux chapitres de cette partie suivent les divisions de la technique elle-même en deux étapes distinctes, celle de l'enregistrement en rayons X d'un hologramme et celle de la reconstruction d'une image à partir de l'hologramme, en lumière ultra-violette.

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

ORIGINE ET MOTIVATIONS DE LA MICROSCOPIE X ET DE NOS EXPERIENCES

1.1 APERCU HISTORIQUE

Faire de la microscopie avec des rayons X est une idée qui remonte aux premiers temps de leur découverte [RÖNTGEN 1895]. Dès 1896 Burch et Ranwez, posant des objets sur une plaque photographique produisirent des microradiographies. La première amélioration du procédé semble due à Dauvillier. Elle consista à employer des rayons X mous [DAUVILLIER 1927] et des émulsions très fines de type Lippmann dont le grain inférieur à $1\text{ }\mu\text{m}$ lui permit d'atteindre des grossissements de $\times 600$ [DAUVILLIER 1930].

La microscopie X demeura cependant marginale et ne fut guère employée qu'en France jusque vers 1947, où, sous l'impulsion du Suédois A. Engström, elle connut un essor considérable. On assiste alors à une compétition entre la naissante microscopie électronique et la microscopie X. Entre 1950 et 1960 une intense activité fut déployée pour améliorer la résolution, et nombre d'idées furent alors proposées, dont plusieurs, comme l'holographie X, ont récemment repris un caractère d'actualité. A cette époque, on ne connaissait que les méthodes de projection, ou encore, les optiques à miroirs en incidence rasante et la résolution, malgré les efforts de quel-

ques pionniers ne dépassa que rarement celle des microscopes optiques. Surclassée par la résolution du microscope électronique, la microscopie X se tourna davantage, à partir de 1955, vers les méthodes de microanalyse. Dans ce domaine également elle ne put rivaliser avec les microsondes électroniques, et cette première période de développement de la microscopie X s'éteignit après 1960. On trouvera un remarquable compte rendu de tous ces travaux dans l'ouvrage de V.E. Cosslett et W.C. Nixon, X-ray microscopy [COSSLETT 1960].

La véritable raison de la désaffection que connut la microscopie X pendant près de vingt ans tient surtout à la qualité des sources. En effet jusqu'en 1975, on ne pouvait compter que sur des sources à bombardement électronique, dont l'émission est dispensée dans un angle solide proche de 2π . A partir de cette date il devint possible d'utiliser le rayonnement synchrotron émis par des synchrotrons et des collisionneurs électrons-positons, d'abord en "parasitant" les expériences de physique des particules qui utilisaient ces machines, puis, à mesure que les physiciens des hautes énergies les abandonnaient pour des machines plus puissantes, celles-ci ont été reprises en propre par les utilisateurs de rayons X. Depuis quelques années, une nouvelle génération de machines est apparue, construites spécialement pour le rayonnement synchrotron.

A la microscopie X, le rayonnement synchrotron a apporté les qualités qui manquaient aux sources de rayons X. Tout d'abord, une luminance très élevée. Cette luminance résulte essentiellement des propriétés de collimation du rayonnement synchrotron, les effets relativistes confinant l'énergie émise dans une nappe très étroite. Nous verrons (chapitre 4) que c'est la luminance qui définit la quantité de lumière acceptée dans la très petite étendue géométrique d'un microscope à rayons X. Le rayonnement synchrotron a aussi apporté la possibilité d'accorder continuellement la longueur d'onde qui manquait aux méthodes de microanalyse. Plus récemment, à partir de 1984 environ, les sources de rayonnement synchrotron à onduleurs, dont le rayonnement est collimaté dans les deux directions, a permis d'entreprendre des expériences exigeant une certaine cohérence de la source (microscopie à balayage, contraste de phase et holographie).

Le rayonnement synchrotron a marqué le début d'une période de renouvellement de la microscopie X. A vrai dire presque toutes les méthodes qui se sont développées à cette occasion ont eu des antécédents dans les années 1950 - 1960.

La microscopie de contact a repris, mais avec des détecteurs plus résolvants que la plaque photographique que les sources des années 60 ne permettaient guère d'utiliser. Les matériaux photosensibles observés après développement au microscope électronique avaient été utilisés dès 1956 par W.A. Ladd, W.M. Hess et M.W. Ladd [LADD 1956]. Des polymères photosensibles parmi lesquels déjà le "plexiglass", l'actuelle résine PMMA, ont été employés par Pattee et Warnes en 1957 mais les moyens d'alors obligeaient à des poses de près de 10 heures [PATTEE 1957]. En 1977 Feder et al. obtenaient sur cette même résine PMMA, et en quelques secondes de pose des images dont la résolution proche de 10 nm n'a encore été dépassée par aucune autre méthode [SPILLER 1976, FEDER 1977]. Les résines ont toutefois des défauts qui rendent leur usage difficile en microscopie et interdit pratiquement de faire de la microanalyse d'absorption. C'est pour cela que nous avons entrepris l'étude d'un microscope à conversion d'image pour la microscopie de contact. Cette idée nous a été suggérée par la lecture d'un article de Mueller et Jorna où la conversion d'image était envisagée comme un moyen d'enregistrer des hologrammes X à très haute résolution. En fait cette idée non plus, n'était pas entièrement nouvelle et nous devions bientôt découvrir qu'elle avait déjà été explorée 25 ans plus tôt par Möllensstedt et Huang [HUANG 1957]. Plus tard, Cazaux [CAZAUX 1973] avait lui aussi proposé un dispositif très proche du nôtre pour l'ESCA (Analyse Chimique par Spectrométrie d'Electrons)

En partie grâce au rayonnement synchrotron s'est développée toute une classe de microscopes qui utilisent des optiques X de la même façon qu'en microscopie optique. Le rayonnement des onduleurs, spécialement, a permis de développer des microscopes à balayage avec lesquels les temps d'acquisition ne sont pas prohibitifs [RARBACK 1988]. Il a aussi permis d'étudier des modes de fonctionnement, inspirés de la microscopie optique, qui permettent d'observer le contraste de phase produit par l'objet et non pas seulement le contraste d'absorption [SCHMAHL 1988].

Les formes de microscopie X qui se sont le plus développées avec le rayonnement synchrotron sont certainement celles qui utilisent des réseaux zonés de Fresnel*. Là encore l'usage

* On a coutume, dans le milieu de la microscopie X, d'appeler simplement ce type de réseau : "Zone de Fresnel". L'appellation est pratique, mais évidemment fautive, puisqu'un tel réseau comporte un grand nombre de zones de Fresnel (de largeurs telles que la différence de chemin optique entre des ... /

de ces réseaux circulaires avait été préconisé dès 1961 par A.V. Baez pour la microscopie X [BAEZ 1961]. L'idée fut reprise ensuite par plusieurs chercheurs. En 1969, Schmahl et Rudolph proposèrent la fabrication de réseaux zonés par holographie et microlithographie [SCHMAHL 1969]. Puis en 1974, J. Kirz étudia les propriétés de réseaux de phase pour l'UV extrême [KIRZ 1974]. Curieusement, il ne semble pas que G. Schmahl et D. Rudolph qui furent les premiers à obtenir des images de microscopie X par ce moyen [NIEMANN 1976, SCHMAHL 1980], n'aient eu connaissance des antécédents. Ils étaient alors astronomes et ce fut plutôt l'échec de l'application des réseaux de Fresnel à la radioastronomie, une idée due à Mertz et Young [MERTZ 1961], qui les fit se tourner vers la microscopie X. Quoiqu'il en soit l'idée s'est révélée extrêmement féconde et malgré de réelles difficultés de fabrication dont nous ferons état plus loin, les meilleurs réseaux de Fresnel parviennent, sur des tests binaires, à des résolutions de 35 nm [ANDERSON 1991].

Une deuxième catégorie d'optiques X utilise des miroirs à revêtement multicouches, ce qui leur permet de fonctionner en incidence normale. L'idée d'un tel revêtement revient à E. Spiller [SPILLER 1972]. Leur réalisation exige une extrême précision du dépôt, sous vide, de chacune des couches minces qui constituent le traitement. Des techniques de fabrication adaptées ont été développées et donnent d'excellents résultats sur des substrats plans ou faiblement courbés, aux longueurs d'ondes supérieures à 10 nm. Ces caractéristiques qui correspondent mieux aux besoins de la radioastronomie, les ont d'abord fait employer à la réalisation de télescopes. On sait maintenant fabriquer des multicouches pour des longueurs d'ondes plus courtes et on maîtrise mieux leur dépôt sur des surfaces courbes. Les optiques à multicouches commencent à être utilisées à certaines formes de microscopie X où la très haute résolution n'est pas nécessaire : microsonde à photoémission [CERRINA 1988].

Le rayonnement synchrotron, ou plus exactement celui des onduleurs, a enfin permis de donner à certains faisceaux de rayons X une cohérence partielle suffisante pour enregistrer des hologrammes et les reconstruire, en principe en amplitude

.....
/ ...

rayons qui s'appuient sur deux bords de zones consécutifs est $\lambda/2$). Pour éviter toute ambiguïté mais rester court, nous abrègerons ce nom soit en "réseau de Fresnel" soit encore en "réseau zoné".

et en phase, avec une résolution rapportée à l'objet meilleure que $1\text{ }\mu\text{m}$. Les premières expériences de ce type ont été réalisées presque simultanément par M. Howells et C. Jacobsen à Brookhaven [JACOBSEN 1988-a et 1988-b] et D. Joyeux et nous-même à Orsay [JOYEUX 1988-a et 1988-b]. Encore une fois, ces expériences ne faisaient que reprendre, mais dans de bonnes conditions, les tentatives infructueuses entreprises dès 1952 par le même A.V Baez [BAEZ 1952].

1.2 MOTIVATIONS

On peut se demander pourquoi, alors qu'il est beaucoup plus difficile de faire des images avec des rayons X qu'avec des électrons ou des photons visibles, tant d'efforts ont été consentis à développer la microscopie X. En effet, quelles que soient les techniques utilisées, on se heurte à de grandes difficultés pratiques de réalisation et aucune méthode de formation d'image en rayons X ne permet d'atteindre, comme en optique du visible, une résolution proche de la longueur d'onde. Une résolution de $0,1\text{ }\mu\text{m}$, qui constitue actuellement une bonne performance en rayons X, est en fait à peine meilleure que celle d'un excellent microscope optique et particulièrement de ce que l'on sait faire en microscopie optique confocale. On peut donc légitimement se demander quel est l'intérêt de développer, dans ces conditions, une microscopie concurrente de la microscopie optique et électronique.

La réponse, en bref, est que les rayons X ne montrent pas la même chose que les électrons ou les photons visibles ou du proche U.V., et que, plutôt que d'être en concurrence avec les méthodes classiques de microscopie, la microscopie X en est bien davantage complémentaire.

OBJETS VIVANTS

Savoir si les structures visibles sur les images d'un objet sont réelles ou si elles sont des artefacts de la préparation ou de la méthode d'observation, est un problème essentiel qui se pose à tout biologiste utilisateur d'un microscope. En effet, ce qu'un microscope optique permet de voir dans un objet biologique naturel est extrêmement limité : la plupart des milieux biologiques ont un indice de réfraction proche de celui de l'eau et leur absorption est faible. On est donc conduit à utiliser des colorants généralement après fixation de l'objet. En microscopie électronique, la préparation infligée aux objets est encore plus sévère puisque l'objet doit être

fixé et déshydraté afin d'être placé sous vide. De plus, le libre parcours moyen d'électrons de 100 KeV environ étant très faible, l'épaisseur d'objet ne peut excéder $0,1\ \mu\text{m}$, et l'on doit recourir à des coupes ultrafines. Enfin, pour obtenir un contraste suffisant, il est nécessaire de fixer sur les structures à observer, des atomes lourds qui diffusent davantage les électrons. Avant l'observation au microscope électronique, un objet subit donc une succession d'opérations de préparation et il est important de savoir en fin de compte si les images observées reflètent l'organisation de l'objet *in vivo* ou si elles présentent des artefacts dus à ces traitements.

A son échelle de résolution, la microscopie X offre les moyens de lever ce doute parce que l'observation directe d'un objet non préparé, dans un milieu permettant sa survie, y est possible.

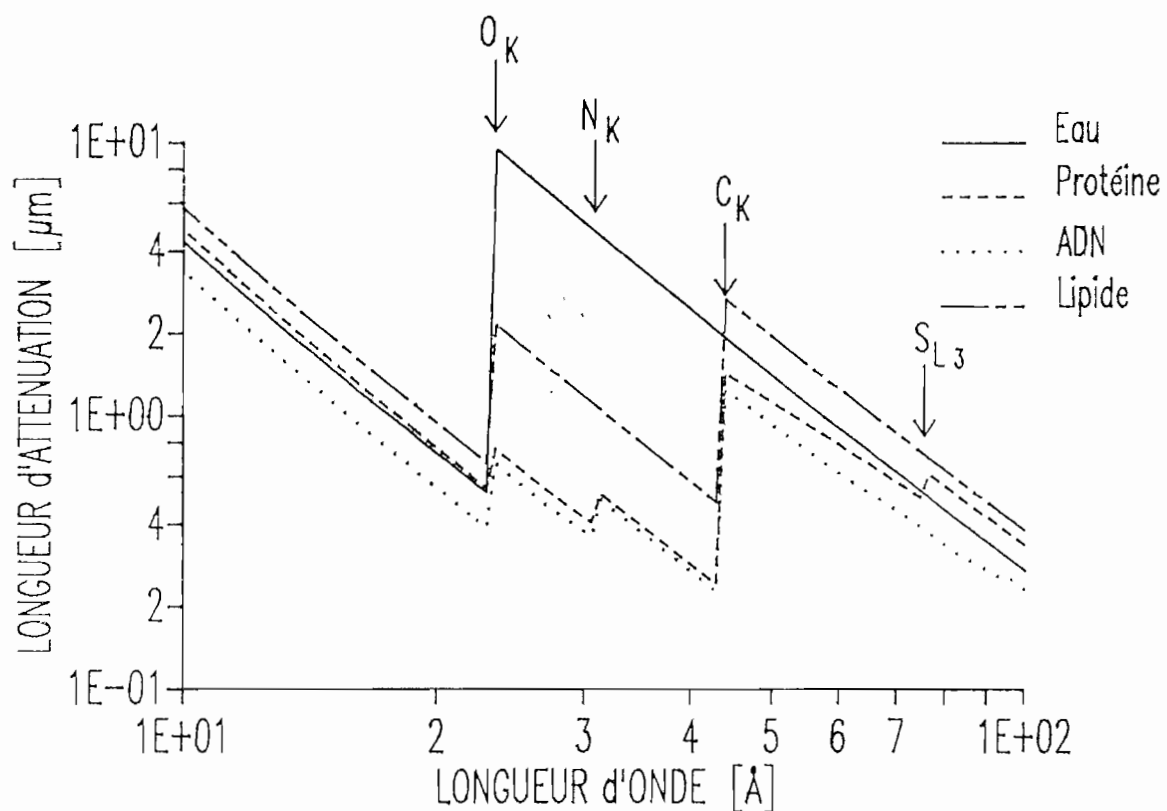


Figure 1.1

Profondeur de pénétration des rayons X dans quelques matériaux biologiques. Les seuils d'absorptions sont indiqués par des flèches.

La figure 1.1 donne la profondeur de pénétration (définie comme la longueur d'atténuation à $1/e$) des rayons X dans l'eau et dans différents matériaux d'origine biologique, pour des longueurs d'onde comprises entre 10 et 60 Å [HENKE,1982]. Ce domaine spectral, où le rayonnement est appelé rayonnement X mou, est particulièrement favorable à la microscopie X. Sur la plus grande partie de ce domaine, la transmission d'une couche d'eau de 3 µm d'épaisseur est supérieure à 10 %. Dans ces régions, il est possible de placer les objets à examiner dans ce qu'il est convenu d'appeler une "chambre d'environnement" : c'est-à-dire une microcavité formée par deux membranes ultra-minces transparentes aux rayons X et maintenues par un espaceur, à une distance de quelques microns. Des cellules en culture peuvent être injectées dans cet espace. Dans des conditions favorables, elles se fixent sur la fenêtre. On peut en faire une image dans cet état parce que, à ces longueurs d'onde, les paramètres optiques de l'eau (indice et absorption) sont le plus souvent très différents de ceux des hydrates de carbone qui constituent les objets biologiques.

CONTRASTE

La question du contraste sera examinée en détail au chapitre 3. On ne saurait toutefois traiter des motivations de la microscopie X sans parler de ce sujet fondamental. Un résumé des possibilités de contraste offertes par la microscopie X permettra mieux de la différencier de la microscopie électronique.

L'examen de la figure 1.1 montre d'abord qu'il existe à certaines longueurs d'onde une très forte différence d'absorption entre l'eau et la matière organique (c'est entre 2,3 et 4,4 nm, ce que l'on appelle la fenêtre de l'eau). Il montre également que les matériaux organiques constitutifs des cellules vivantes présentent entre eux des différences d'absorption significatives. Ce sont ces différences d'absorption qui permettent d'observer facilement la structure d'un objet biologique à l'état naturel.

On peut également tirer profit des seuils d'absorption qui caractérisent les différents éléments chimiques. On appelle ainsi le saut d'absorption qui se produit lorsque l'énergie de photon atteint l'énergie de liaison d'une couche électronique interne (seuil d'excitation K ou L selon les matériaux). Deux mesures d'absorption effectuées à des longueurs d'onde situées de part et d'autre d'un seuil d'un élément chimique donné, permettent, par différence, de mettre en évidence les

structures associées à cet élément, structures qui ne sont pas toujours discernables sur les images d'origine prises séparément [POLACK 1977, BIGLER 1982, KENNEY 1985, MORISSON 1988]. Rappelons aussi que les microscopes à balayage permettent de faire de la microanalyse de surface par spectrométrie des photoélectrons [ADE 1988].

Il convient d'ajouter que l'interaction des rayons X avec les électrons de la matière ne se limite pas à une simple absorption. Comme en optique du visible, la polarisation électronique du milieu, induite par l'onde incidente, se traduit par une modulation en phase de l'onde transmise. Tous les dispositifs de microscopie X ne se prêtent pas à l'utilisation du signal de phase, qui exige de plus une certaine cohérence. C'est précisément l'avantage d'une méthode d'imagerie cohérente comme l'holographie, que de permettre l'utilisation du signal de phase comme du signal d'amplitude. Le contraste de phase permet, en principe, de faire des images à des longueurs d'onde où l'absorption par l'objet est la plus faible et donc de minimiser la dose de rayonnement reçue par l'objet dans le temps nécessaire à faire une image. L'estimation du gain en dose que l'on peut espérer grâce au contraste de phase (cf. ch. 3), conduit à tempérer ce jugement, et montre surtout que cette seconde technique peut permettre d'étendre le domaine spectral utilisable, et les contrastes entre matériaux sont également différents. Contraste de phase et contraste d'amplitude sont donc encore une fois essentiellement complémentaires.

PARTIE I

CONSIDERATIONS GENERALES

SUR LA

MICROSCOPIE X

INTRODUCTION

A LA PREMIERE PARTIE

Cette première partie ne se veut pas seulement un "état des connaissances" dans le domaine de la microscopie X, elle cherche aussi à clarifier quelques sujets controversés. La première de ces controverses tient à la validité dans le domaine X, du traitement optique de la propagation des ondes électromagnétiques, vis-à-vis de l'approche atomique. Nous montrerons au chapitre 2, quelles sont les limites et les applications de l'une et de l'autre et nous verrons en particulier, que l'approche optique est nécessaire pour connaître la phase de l'onde propagée.

Le chapitre suivant (chapitre 3) est consacré à l'interaction entre un objet et le rayonnement X. Il traite d'abord du signal détecté par le microscope et du contraste des images. Ceci est encore un sujet controversé, tout spécialement dans le domaine de la microscopie holographique, parcequ'il subsiste fréquemment une confusion entre le signal de phase associé à l'onde transmise (diffraction) et l'onde diffusée par l'objet (diffusion cohérente = diffusion Rayleigh). L'étude du contraste permettra aussi d'évaluer la dose de rayonnement reçue par l'objet pendant l'enregistrement d'une image et les risques de détériorations encourus. Nous discuterons enfin les possibilités de faire de la microanalyse.

Il nous a paru enfin nécessaire de récapituler aussi succinctement que possible, l'état des connaissances en optique des rayons X après dix années de développement dans les centres de rayonnement synchrotron : évolution des sources (sources synchrotrons et sources à plasma), détecteurs, progrès dans la technologie des optiques (miroirs et réseaux) et pour terminer, un panorama des différentes méthodes de microscopie X.

CHAPITRE 2

INTERACTION DES RAYONS X AVEC LA MATIERE

INTRODUCTION DE LA NOTION DE FACTEUR DE TRANSMISSION COMPLEXE ET VALIDITE DE CE FORMALISME

2.1 INTRODUCTION

Dans un domaine exploré à la fois par des personnes de formations différentes, les problèmes de langage peuvent parfois devenir des obstacles à la compréhension mutuelle. Le domaine des rayons X mous est précisément une région frontière entre deux représentations de l'interaction des photons et de la matière. Aux longueurs d'onde courtes, c'est-à-dire inférieures aux distances interatomiques, on emploie la description cristallographique : un milieu est caractérisé par l'organisation d'un réseau cristallin et les coefficients de diffusion atomique. Aux grandes longueurs d'onde, un milieu est caractérisé par un indice de réfraction. Cette représentation optique traduit la façon selon laquelle se propage une onde plane.

Dans le domaine des rayons X mous, la longueur d'onde étant voisine des distances interatomiques, les deux représentations sont à leur limite. Le but du présent chapitre est de montrer à quelles conditions elles peuvent y être étendues, et d'établir entre elles les liens qui permettent d'utiliser soit l'une soit l'autre selon la nature des problèmes.

Les relations ainsi établies serviront d'abord à étudier l'interaction avec les objets, origine du contraste des images (chapitre 3). Elles seront également utiles à l'étude des systèmes optiques applicables aux rayons X (chapitre 4).

2.2 GENERALITES

Lorsque les rayons X pénètrent dans la matière, ils interagissent essentiellement avec les électrons. Aux énergies de photons qui nous intéressent ($h\nu < 2 \text{ keV}$), trois types d'interactions interviennent.

N.B. Aux énergies élevées ($> 100 \text{ keV}$) les X interagissent avec les noyaux atomiques ; en-dessous de 10 keV , cette interaction est négligeable.

a) L'absorption photoélectrique

Un photon est absorbé et cède son énergie à un électron d'une couche profonde qui se trouve promu sur un niveau inoccupé de l'atome. La relaxation de cet état excité intervient par la suite, lorsqu'un électron d'une couche extérieure vient combler la lacune. Cette réorganisation libère une énergie qui est éliminée, soit par l'émission d'un photon de fluorescence à une longueur d'onde caractéristique (transition $L \rightarrow K$: raie K_α , $M \rightarrow K$: raie K_β , $M \rightarrow L$: une raie λ , etc...), soit par l'émission d'un électron Auger qui emporte le surplus d'énergie sous la forme d'énergie cinétique.

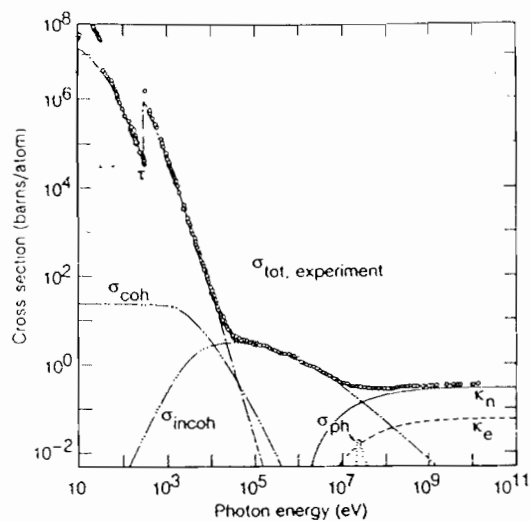
Ce mécanisme explique la brusque élévation de l'absorption des rayons X, lorsque l'énergie des photons franchit l'énergie d'ionisation d'une couche atomique particulière, que l'on appelle usuellement seuil d'absorption. Entre ces seuils, la section efficace d'absorption décroît rapidement avec l'énergie des photons en moyenne comme ν^{-3} .

b) La diffusion cohérente

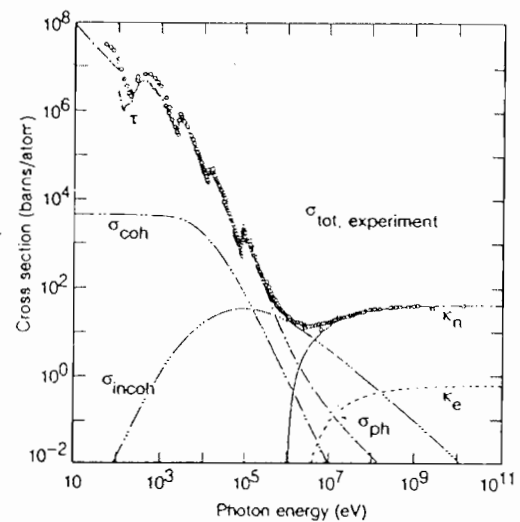
C'est une collision élastique électron-photon, les particules échangeant seulement de la quantité de mouvement. La diffusion cohérente s'interprète simplement en électromagnétisme classique : l'onde électromagnétique associée aux photons X fait entrer en résonance les électrons faiblement liés de l'atome qui rayonnent à leur tour une onde diffusée à la même longueur d'onde : diffusion Rayleigh.

c) La diffusion Compton

Il peut aussi se produire des collisions inélastiques entre photons et électrons. Dans ce cas, une partie de l'énergie du photon est transférée à un électron externe (électron de recul). La perte d'énergie dépend de l'angle de diffusion du photon ; elle est maximale lorsque le photon est diffusé à 90° . A cause de l'énergie liaison des électrons, la raie de diffusion Compton, dans une direction d'observation donnée, est plus large que la raie d'excitation [AGARWAL pp 227-235].



a



b

Figure 2.1

Sections efficaces des principales interactions entre les rayons X et la matière. Deux matériaux sont donnés à titre d'exemples : le carbone (fig.a) pour les éléments légers le plomb pour les éléments lourds (fig.b). τ , σ_{coh} et σ_{incoh} sont les sections efficaces d'absorption photoélectrique, de diffusion Rayleigh et de diffusion Compton. κ_n et κ_e sont les sections efficaces de productions de paires (nucléaire et électronique) ; σ_{ph} celle de l'absorption photonucléaire. [extrait de X-ray data booklet §3]

d) Sections efficaces de ces interactions

Ces trois effets contribuent inégalement à l'atténuation des X dans la matière. La figure 2-1 [d'après X-ray Data Booklet § 3] montre que l'absorption photoélectrique est l'effet principal dans le domaine d'énergie qui nous intéresse ($h\nu < 10^3$ eV). La section efficace de l'effet photoélectrique est de deux ordres de grandeur supérieure à celle de la diffusion cohérente. Le même écart se retrouve entre diffusion cohérente et diffusion Compton. Celle-ci pourra donc généralement être négligée. De ce fait, l'interaction se réduira à deux effets linéaires, absorption et diffusion, et pourra donc être décrite par une constante complexe, dépendant de la nature des atomes et de la longueur d'onde, et liant le champ diffracté au champ incident.

2.3 DESCRIPTION DE L'INTERACTION X MATIERE

Dans la pratique, deux constantes sont introduites pour décrire la même interaction. D'un point de vue de physique du solide ou de physique atomique, où l'on s'intéresse à une interaction photon-atome, on utilise facilement le facteur de diffusion atomique. Du point de vue de l'Optique, où on s'intéresse à la propagation d'ondes électromagnétiques, on utilise de préférence l'indice de réfraction complexe.

Les deux notations sont équivalentes, au moins dans le domaine des X mous, mais dans la pratique il est souvent commode de passer d'une représentation à l'autre, ainsi que nous le montrons dans les paragraphes suivants.

2.3.1 FACTEUR DE DIFFUSION ATOMIQUE

Lorsque la longueur d'onde est faible ou du même ordre de grandeur que les distances interatomiques, il est commode, pour étudier le champ diffracté par une collection d'atomes, de rapporter l'intensité diffractée par l'ensemble des électrons d'un atome à celle qui serait diffusée par un seul électron libre placé en son centre. Cela permet, par exemple, de ramener un calcul de diffraction cristalline à des sommes discrètes.

a) Modèle des électrons quasi libres (diffusion Thomson)

Une façon simple et habituelle de calculer la diffusion par un atome consiste à le représenter par une collection de Z électrons quasi libres diffusant indépendamment. Un électron faiblement lié, soumis à un champ électromagnétique incident $\vec{E}_0 = \vec{E}_0 e^{i\omega t}$, entre en résonance avec ce champ et oscille en opposition de phase avec lui. Le champ $\vec{E}_e$, rayonné dans la direction ϑ (repérée par rapport à la direction de polarisation) est alors de la forme

$$\vec{E}_e(R, \vartheta) = - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{mc^2 R} \sin \vartheta \vec{E}_0 e^{i\omega(t - R/c)} \quad (2.1)$$

où apparaît la quantité $r_e = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{mc^2}$, qui est le rayon classique de l'électron.

Si nous nous intéressons maintenant à l'effet collectif des Z électrons d'un atome, nous écrivons le champ diffusé sous une forme semblable à (2.1), en introduisant le facteur de diffusion atomique $f(\omega)$:

$$\begin{aligned} \vec{E}(R, \vartheta) &= f(\omega, \vartheta) \vec{E}_e(R, \vartheta) \\ &= f(\omega, \vartheta) \frac{r_e}{R} \sin \vartheta \vec{E}_0 e^{i\omega(t - R/c)} \end{aligned} \quad (2.2)$$

Le facteur de diffusion atomique, $f(\omega, \vartheta)$ relie le champ diffusé par l'atome, à la fréquence et dans la direction considérée, à celui qui serait diffusé par un électron libre placé en son centre. Si l'atome peut être considéré comme une collection ponctuelle à l'échelle de la longueur d'onde, d'électrons libres diffusant indépendamment, le facteur de diffusion atomique est simplement :

$$f(\omega) = Z = \text{nombre d'électrons de l'atome.}$$

b) Cas réel

Dans la réalité on doit considérer que :

- les électrons ne sont pas localisés au centre de l'atome mais distribués dans un volume qui peut être grand devant son rayon. Le facteur de diffusion s'exprime alors par la transformée de Fourier de la densité électronique

$$f(\vec{k}) = \int \rho_e(\vec{r}) \exp(i(\vec{k}-\vec{k}_0) \cdot \vec{r}) d\vec{r} \quad (2.3)$$

Notons qu'il s'agit ici d'un facteur de dépendance angulaire et que pour $\theta = 0$ on a toujours $f(\vec{0}) = \int \rho_e(\vec{r}) d\vec{r} = Z$.

- les électrons ne sont pas libres ni mutuellement indépendants. Si l'énergie de liaison n'est pas faible devant l'énergie du photon, le facteur de phase entre le champ électrique et le mouvement de l'électron n'est plus égal à π . Le facteur de diffusion atomique est alors complexe :

$$f = f_1 + i f_2 \quad (2.4)$$

- Le terme f_1 représente le nombre apparent d'électrons qui oscillent en phase avec le champ : c'est un terme de propagation.

- Le terme f_2 représente le nombre apparent d'électrons qui oscillent en quadrature avec le champ : c'est un terme d'absorption.

Ces deux effets coexistent bien entendu quelle que soit la longueur d'onde. Cependant, aux longueurs d'onde supérieures à 10 Å qui nous intéressent, on pourra légitimement considérer que la distribution électronique est ponctuelle à l'échelle de la longueur d'onde. On négligera la variation angulaire de f et on considérera le facteur de diffusion comme une constante complexe. De même, aux courtes longueurs d'onde on pourra négliger l'énergie de liaison des électrons vis-à-vis de l'énergie des photons : le facteur de diffusion atomique sera alors la distribution angulaire donnée par l'équation (2.3).

2.3.2 INDICE DE REFRACTION COMPLEXE

Changeant de point de vue, nous nous intéressons maintenant à la propagation d'une onde plane, à la fréquence $\nu = \omega/2\pi$, dans un milieu que nous supposons d'abord composé d'atomes identiques.

Sous l'influence du champ local $\vec{\mathcal{E}} = \vec{E} e^{i\omega t}$ un atome acquiert un moment dipolaire $\vec{p}_a$. La définition du facteur de diffusion atomique nous permet de relier $\vec{p}_a$ au moment dipolaire $\vec{p}_e$ induit par le champ $\vec{\mathcal{E}}$ sur un électron libre

$$\vec{p}_a = f(\omega, 0) \vec{p}_e = f(\omega, 0) \frac{-e^2}{m\omega^2} E_0 e^{i\omega t} \quad (2.5)$$

Nous utilisons ici $f(\omega, 0)$, que nous noterons par la suite $f(\omega)$, ou $f(\lambda)$ en faisant intervenir la longueur d'onde, parce que seuls les dipôles induits qui rayonnent dans la direction $\theta = 0$ contribuent à la propagation de l'onde plane considérée. En nous intéressant uniquement à cette onde, nous faisons l'hypothèse supplémentaire que l'énergie diffusée hors de la direction $\theta = 0$ ne peut pas y retourner par diffusion sur d'autres atomes. Dans ce cas où la probabilité de double diffusion dans le milieu est très faible, la diffusion et la propagation peuvent être traitées indépendamment. L'examen de la figure 2.1 montre que cette hypothèse est certainement valide pour des énergies de photon inférieures à 1 keV ($\lambda \gtrsim 10$ nm).

Alors, si n_a est le nombre d'atomes par unité de volume, la polarisation du milieu est

$$\vec{P} = -n_a f(\omega) \frac{e^2}{m\omega^2} \vec{E} = -\frac{\epsilon_0}{\pi} r_e n_a f(\lambda) \lambda^2 \vec{E} \quad (2.6)$$

Les équations de Maxwell imposent des relations entre le champ électrique et la polarisation. Lorsqu'il s'agit de la propagation d'une onde électromagnétique, celles-ci conduisent à l'équation de propagation suivante

$$\Delta \mathcal{E} = -\frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E} \quad (2.7)$$

où ϵ est la constante diélectrique du milieu. Ce milieu est isotrope, $\vec{E} \parallel \vec{P}$ (cf. éq. 2.26), et par suite, ϵ dépend de la polarisabilité par

$$\epsilon = 1 + \chi = 1 + \frac{P}{\epsilon_0 \mathcal{E}} \quad (2.8)$$

(χ est appelée la susceptibilité diélectrique).

Dans le domaine optique, on écrit plutôt l'équation de propagation sous la forme

$$\Delta \mathcal{E} = -\frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E} \quad (2.9)$$

où $n = \sqrt{\epsilon}$ est l'indice de réfraction du milieu.

Les équations (2.6) et (2.9) permettent d'exprimer les constantes optiques à l'aide du facteur de diffusion atomique

$$n^2 = \varepsilon = 1 - n_a \frac{r_e}{\pi} f(\lambda) \lambda^2 \quad (2.10)$$

n et ε sont des constantes complexes, de même que f .

Si, maintenant nous considérons un milieu homogène mais constitué d'atomes différents, où les n_i sont les nombres d'atomes par unité de volume, et les f_i sont les facteurs de diffusion atomique de chacune des espèces d'atomes représentées, les constantes optiques sont définies par

$$n^2 = \varepsilon = 1 - \frac{r_e \lambda^2}{\pi} \sum_i n_i f_i(\lambda) \quad (2.11)$$

2.4 PROPRIETES ESSENTIELLES DES CONSTANTES OPTIQUES DANS LE DOMAINE X

2.4.1 ORDRE DE GRANDEUR

L'ordre de grandeur des parties réelles et imaginaires de l'indice complexe peut être estimé simplement à partir de considérations simples sur le facteur de diffusion atomique $f = f_1 + i f_2$.

Aux grandes énergies de photons, l'influence des liaisons électroniques devient très faible ; les électrons résonnent tous passivement avec le champ, donc

$$\lim_{h\nu \rightarrow \infty} (f) = Z \quad (2.12)$$

En reportant cette relation dans (2.10), on voit que l'écart à 1 de la constante diélectrique est un terme très petit dans le domaine de longueur d'onde $\lambda < 100$ nm qui nous intéresse :

$$|\Delta\varepsilon| = \frac{n_a r_e}{\pi} |f| \lambda^2 \sim \frac{r_e N}{\pi} \frac{\rho Z}{A} \lambda^2 \sim 10^{-4} \rho \lambda^2 \quad (2.13)$$

(N = nombre d'Avogadro, A = masse atomique, ρ = masse volumique du matériau, λ en nm).

Aux faibles énergies $h\nu$, les électrons susceptibles de résonner avec le champ incident sont ceux dont les énergies de

liaison sont inférieures à $h\nu$. Par suite, $|f|$ décroît en même temps que ν . On constate finalement que dans tout le domaine X et X mous ($\lambda < 10$ nm) et pour tous les éléments

$$|\Delta\epsilon| < 10^{-2} \quad (2.14)$$

On peut donc écrire les constantes optiques sous la forme

$$\begin{cases} \epsilon = 1 - 2\delta - 2i\beta \\ n = 1 - \delta - i\beta \end{cases} \quad (2.15)$$

avec

$$\delta = \frac{n_a r_e}{2\pi} f_1 \lambda^2 \quad (\text{terme de phase}) \quad (2.16)$$

$$\beta = \frac{n_a r_e}{2\pi} f_2 \lambda^2 \quad (\text{terme d'amplitude})$$

N.B. - L'expression (2.16) valable pour un corps simple s'étend à un milieu composé de plusieurs espèces chimiques de la façon suivante :

$$f = \frac{1}{n_a} \sum_i n_i f_i \quad (2.17)$$

où n_i et f_i sont les densités atomiques et facteurs de diffusion atomiques des différentes espèces et n_a le nombre total d'atomes par unité de volume. Ceci permet de calculer facilement les constantes optiques à partir des valeurs de f données par les tables.

A titre d'exemple et pour confirmer les approximations qui précèdent, nous donnons à la figure 2.2 le comportement des parties réelles et imaginaires du facteur de diffusion atomique et de l'indice du carbone ($Z = 6$) d'après Henke [HENKE 1982].

La partie réelle présente une singularité pour l'énergie du seuil K (284 eV), mais loin des seuils on a sensiblement la valeur prédite

$$f_1 \sim Z_p \quad (2.18)$$

où Z_p est le nombre apparent d'électrons pour des photons d'énergie E , c'est à dire le nombre d'électrons dont l'énergie de liaison est inférieure à E , ici

$$Z_p = 4 \quad \text{si} \quad E < E_k$$

$$Z_p = 6 \quad \text{si} \quad E > E_k$$

La partie imaginaire f_2 a un comportement semblable à celui du coefficient d'absorption.

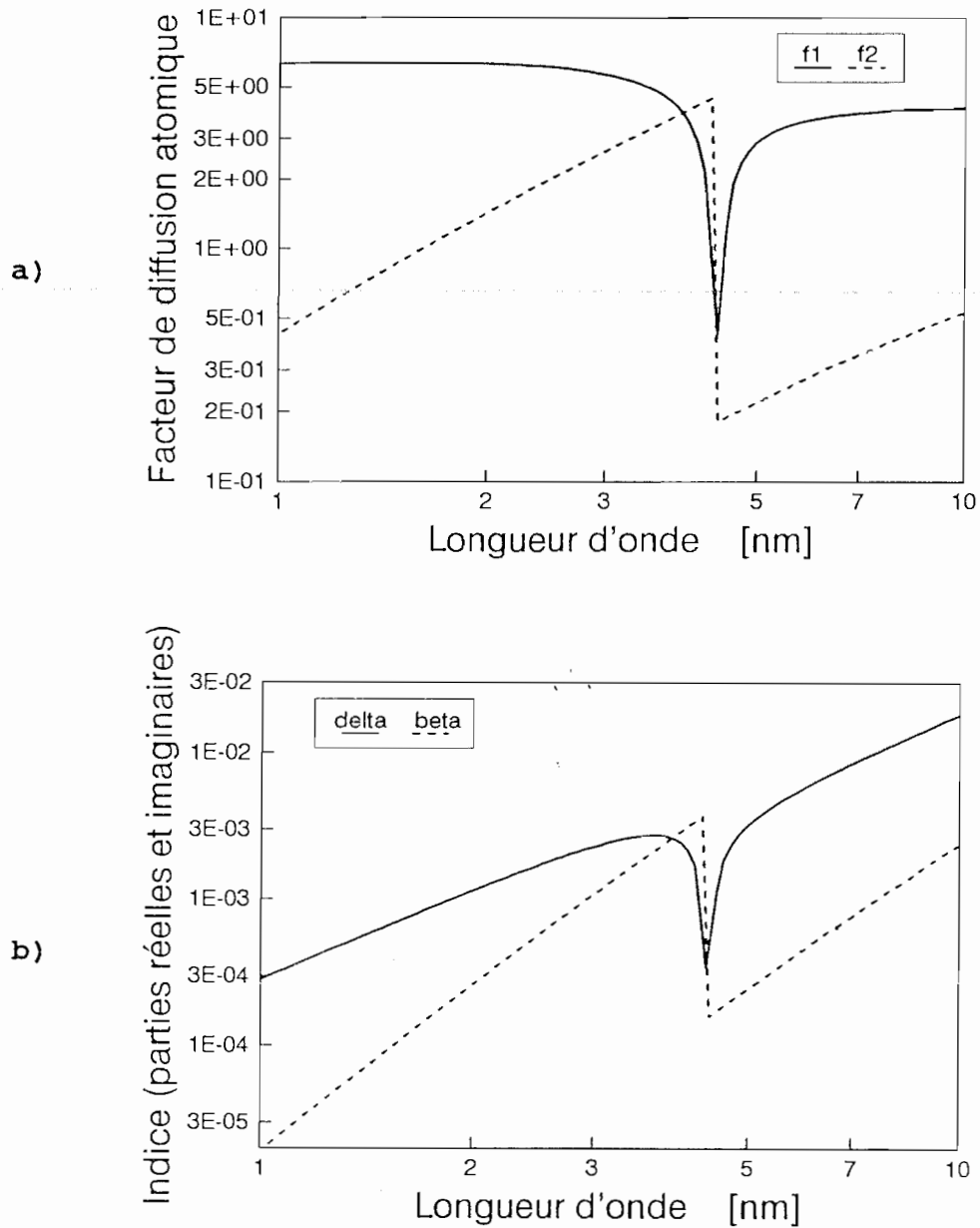


Figure 2.2

Constantes optiques du Carbone

- a) Facteur de diffusion atomique
b) Indice de réfraction

2.4.2 RELATIONS AVEC LES SECTIONS EFFICACES

On peut maintenant définir les sections efficaces dont nous avons parlé au paragraphe 2.2.

a) Section efficace d'absorption

D'après (2.15) et (2.16), le coefficient linéaire d'absorption est

$$\mu = \frac{1}{I} \frac{dI}{dx} = \frac{4\pi\beta}{\lambda} = 2 n_a r_e f_2 \lambda \quad (2.19)$$

On en déduit immédiatement le coefficient atomique ou section efficace d'absorption :

$$\sigma_a = 2 r_e f_2 \lambda \quad (2.20)$$

N.B. - L'expression de μ valable pour un corps simple s'étend à un corps composé comme dans l'équation (2.17). Il est commode d'employer le coefficient massique d'absorption, quotient de coefficient linéaire par la densité. On obtient alors :

$$\frac{\mu}{\rho} = \sum_i \frac{\mu_i}{\rho_i} C_i \quad (2.21)$$

C_i est la concentration massique du constituant i dont le coefficient massique est μ_i/ρ_i

b) Section efficace de diffusion cohérente

Le calcul de la diffusion cohérente demande de revenir au modèle de diffusion Thomson (équation 2.2). Nous supposons que l'onde incidente n'est pas polarisée ; dans ce cas, l'intensité diffusée $I_c = \epsilon_0 c \langle |\mathcal{E}|^2 \rangle$ s'obtient par une moyenne sur les polarisations indiquée par le symbole $\langle \rangle$. Cette intensité diffusée est liée à l'intensité incidente $I_0 = \epsilon_0 c \langle |\mathcal{E}_0|^2 \rangle$ par

$$I_c = I_0 |f(\omega, \theta)|^2 \frac{r_e^2}{R^2} \left(\frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \right) \quad (2.22)$$

qui est l'équation de Thomson modifiée pour tenir compte de f . θ est l'angle de diffusion par rapport à la direction de propagation de l'onde incidente.

On peut alors définir une section différentielle de diffusion pour l'angle θ :

$$\frac{d\sigma_c}{d\Omega} = \frac{I_c R^2}{I_0} = |f|^2 r_e^2 \left(\frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \right) \quad (2.23)$$

et la section efficace de diffusion atomique est obtenue par intégration sur θ . Cela oblige bien entendu à tenir compte de la variation angulaire de f . Pour trouver un ordre de grandeur nous continuons à négliger les variations angulaires, et nous admettons de plus que $f_1^2 \gg f_2^2$ (ce qui est généralement vrai loin des seuils). Dans ce cas on obtient :

$$\sigma_c \simeq (f_1^2 + f_2^2) \frac{8\pi}{3} r_e^2 \sim f_1^2 \frac{8\pi}{3} r_e^2 \quad (2.24)$$

Entre les deux sections efficaces σ_a et σ_c la différence d'ordre de grandeur est proche du rapport $\lambda/r_e \simeq 10^4$. Cela ne signifie pas pour autant que les effets d'absorptions, liés à f_2 donc à σ_a , prédominent sur les effets de phase, liés à f_1 donc à σ_c . Au contraire partout sauf du côté absorbant des seuils $f_1 > f_2$.

2.4.3 MESURES

La partie imaginaire de l'indice ou du facteur de diffusion atomique (f_2) peut être facilement déterminée par une mesure d'absorption. L'équation (2.19) montre qu'il se déduit du coefficient linéaire d'absorption par

$$f_2 = \frac{\mu}{2 n_a r_e \lambda} = \frac{E \mu / \rho A}{2 N r_e h c} \quad (2.25)$$

(A = masse atomique ; N = nombre d'Avogadro)

La partie réelle du facteur de diffusion atomique (f_1) ou de l'indice (δ) est très difficile à mesurer directement. La petitesse de δ implique qu'un dioptre n'a d'effets sensibles sur la propagation d'une onde qu'aux incidences rasantes.

a) Mesures par réfraction

Aux courtes longueurs d'onde $\sim 1 \text{ \AA}$, où l'absorption est faible, on a pu utiliser la réfraction en incidence rasante au voisinage de l'arête d'un prisme [cf. AGARWAL p. 141]. Au lon-

guez d'onde des X mous l'absorption trop forte ne permet pas cette mesure.

b) Mesures par réflexion

En théorie, lorsque l'indice de réfraction est inférieur à 1, $n = 1 - \delta$, une réflexion totale à l'interface vide matériau apparaît pour $\theta > \theta_c$ avec

$$\sin \theta_c = n \quad (2.26)$$

L'angle limite de réflexion totale, θ_c , est très rasant et on préfère souvent utiliser l'angle complémentaire appelé angle de rasance :

$$\theta'_c = \pi/2 - \theta_c = \sqrt{2\delta} \quad (2.27)$$

En réalité, il n'est pas possible de négliger l'absorption comme nous venons de le faire. Il faut donc recourir aux formules de FRESNEL (cf. chapitre 3). La figure 2.3 montre l'effet de l'absorption sur la réflectivité rasante : la disparition de l'angle limite ne permet plus une détermination simple de l'indice.

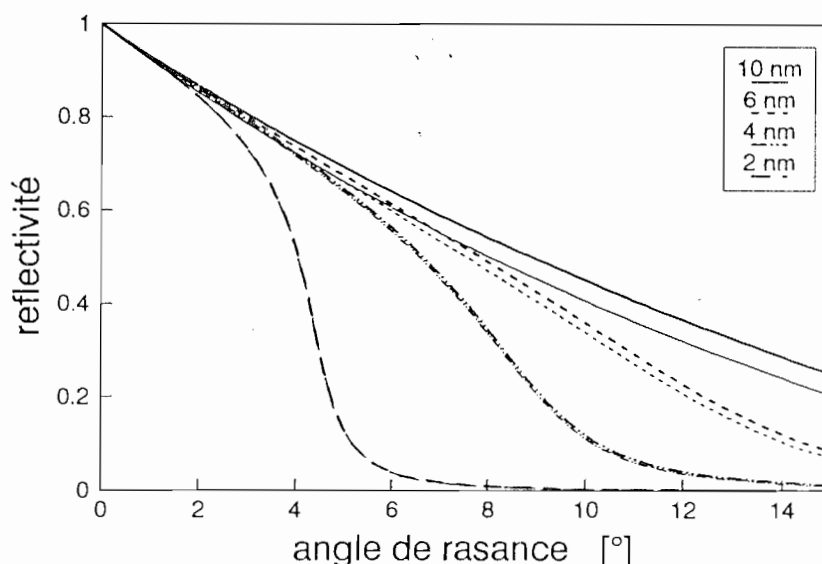


Figure 2.3

Réflectivité rasante du nickel en fonction de l'angle de rasance, pour quelques longueurs d'onde. $R_{\perp}$ en traits gras ; $R_{\parallel}$ en traits fins. Noter la disparition de l'angle limite, particulièrement aux grandes longueurs d'onde.

On peut améliorer cette méthode en utilisant une multicouche de deux matériaux, au lieu d'un miroir homogène ; la courbe de réflectivité est alors plus complexe et permet des mesures plus précises [SPILLER 1990]. L'absorption réduit ici encore la précision.

c) Mesures interférométriques

Aux courtes longueurs d'onde on sait réaliser des interféromètres de type Mach-Zehnder en utilisant des lames minces cristallines comme séparatrices et des réflexions de Bragg. Miroirs et séparatrices sont taillés dans un même monocristal. L'indice d'un objet est déterminé à partir du déphasage qu'il produit sur l'une des voies [BONSE 1989]

Aux longueurs d'onde X-UV un tel dispositif n'est plus possible. Nous avons récemment imaginé d'utiliser pour cela un interféromètre à miroir de Fresnel. L'expérience est en cours de réalisation [POLACK 1991].

d) Détermination indirecte

Dans la pratique, la partie réelle des constantes optiques n'est pas déterminée par une mesure directe. On préfère, à la suite de Henke [HENKE 1982] utiliser les relations de KRAMERS-KRÖNIG qui relient les parties réelles et imaginaires de la susceptibilité diélectrique

$$\chi = \frac{\mathcal{P}}{\varepsilon_0 \mathcal{E}} = \varepsilon - 1$$

$$\chi(\omega) = 4 \pi n r_0 c^2 \frac{f(\omega)}{\omega^2} \quad (2.28)$$

Ces relations, qui s'appliquent très généralement pour toute fonction de transfert d'un système linéaire causal, s'écrivent ici en notant $\chi(\omega) = \chi_1(\omega) + i\chi_2(\omega)$ [cf. YARIV p. 455].

$$\begin{cases} \chi_1(\omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\chi_2(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \\ \chi_2(\omega) = \frac{-1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\chi_1(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \end{cases} \quad (2.29)$$

(Les sommations sont prises en valeurs principales).

Pour les constantes optiques on peut donner à ces relations générales de KRAMERS-KRÖNIG une forme plus simple qui tient compte de leur parité : $\chi(-\omega) = \chi^*(\omega)$ (et relations semblables pour ϵ , f , et n). Nous démontrerons cette propriété pour l'indice de réfraction, en reprenant les étapes du calcul fait précédemment.

Nous avons établi que lorsque l'atome est soumis à un champ local $\mathcal{E}_l = e^{i\omega t}$, il se propage dans le milieu une onde de la forme $\mathcal{E}_p = e^{i\omega(t - n(\omega)x/c)}$. Si nous avions décrit le champ local par $\mathcal{E}_l' = e^{-i\omega t}$, le même raisonnement aurait conduit à une onde propagée de la forme $\mathcal{E}_p' = e^{-i\omega(t - n(-\omega)x/c)}$. Or $\mathcal{E}_l$ et $\mathcal{E}_l'$ décrivent différemment une même excitation ; $\mathcal{E}_p$ et $\mathcal{E}_p'$ doivent également correspondre à la propagation d'une même onde. Pour cela il faut seulement que $n(-\omega) = n^*(\omega)$.

Des relations entre n et les autres constantes optiques, on déduit les mêmes relations de parité pour ϵ , χ et f , et notamment que $f_1(\omega)$ est une fonction paire et $f_2(\omega)$ est une fonction impaire. Ceci implique alors

$$f_1(\omega) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\omega' f_2(\omega')}{\omega^2 - \omega'^2} d\omega' + \lim_{\omega' \rightarrow \infty} f_2(\omega') \quad (2.30)$$

Il est évident que $f_2 \rightarrow 0$ quand $\omega \rightarrow \infty$, parce que les électrons résonnent alors passivement et n'absorbent plus. On en déduit, en utilisant (2.12) et (2.24) les relations suivantes (l'énergie de photon est notée $E = h\nu$)

$$\begin{cases} f_1(E) = Z + \frac{1}{\pi r_e c h} \int_0^\infty \frac{E'^2 \mu(E') dE'}{E^2 - E'^2} \\ f_2(E) = \frac{E \mu(E)}{2 r_2 c h} \end{cases} \quad (2.31)$$

Ces expressions ne sont pas habituellement exploitées dans le domaine optique. Dans le domaine X, elles permettent de déterminer les constantes optiques à toutes les longueurs d'onde (excepté dans un faible voisinage autour des seuils), à partir de mesures discrètes d'absorption et d'une loi raisonnable d'interpolation. C'est sur ce principe que sont calculées les tables d'indices de HENKE, qui sont universellement utilisées pour les calculs de contraste et de réflectivité dans le domaine X mou [HENKE 1982]. Ces tables ont constitué un très grand progrès par rapport aux valeurs, très lacunaires, mesurées précédemment par les diverses méthodes que nous avons évoqué. Elles restent encore relativement approximatives

dans certains domaines de longueurs d'onde, particulièrement au voisinage des seuils d'absorption et pour les grandes longueurs d'ondes ; en témoignent les difficultés qu'éprouvent fréquemment ceux qui fabriquent des traitements multicouches à prévoir la réflectivité à partir de ces données.

2.5 CONCLUSION

Nous avons décrit les relations qui permettent de passer d'une description atomique de l'interaction des rayons X avec la matière, à une description optique qui décrit la propagation des ondes électromagnétiques dans un milieu homogène. C'est le facteur de diffusion atomique qui permet de passer facilement d'une description à l'autre. Pour résumer et mieux comprendre ce qui différencie et ce qui unit ces deux descriptions d'un même phénomène, nous les caractériserons de la façon suivante

Approche atomique :

- Dans l'interaction, l'onde incidente perd de l'énergie qui est absorbée par l'atome.
- Une onde diffusée est rayonnée par l'atome en phase avec l'onde incidente (diffusion cohérente)
- Le reste de l'énergie continue sa propagation sous la forme d'une onde transmise qui ne peut pas être précisée, parce que cela suppose la présence et la connaissance d'une densité d'atomes.

Approche optique :

- Précise la phase et l'amplitude de l'onde transmise en fonction de la densité d'atomes.
- Ne traite pas la diffusion.

Le fait que la partie réelle du facteur de diffusion atomique caractérise le phénomène de diffusion dans l'approche atomique (en toute rigueur la diffusion dépend de $|f|$ et non de f_1), et la propagation de la phase dans l'approche optique a souvent porté (et porte encore) à confusion. Le signal que l'on peut obtenir en employant une méthode de contraste de phase sur l'onde transmise, n'est en rien égal au nombre de

photons diffusés, transmis par un instrument ou un montage holographique. Dans la plupart des dispositifs de microscopie X, c'est bien l'onde transmise qui contribue à former l'image. La connaissance du facteur de transmission complexe nous permet maintenant d'aborder le problème du contraste de ces images.

CHAPITRE 3

INTERACTION DES RAYONS X AVEC UN OBJET

3.1 INTRODUCTION : QUE PEUT-ON VOIR PAR MICROSCOPIE X ?

Un échantillon pour la microscopie est essentiellement un objet hétérogène dont on cherche à faire apparaître et à observer les structures. Comme les matériaux homogènes étudiés au chapitre précédent, il est caractérisé par un indice de réfraction, ou plus exactement par la distribution de l'indice de réfraction. Placé dans un faisceau de rayons X, il module celui-ci en amplitude et en phase et cette modulation est caractérisée par un facteur de transmission complexe. Les dispositifs de microscopie X pourront donc être construits selon les mêmes principes de base qui sont habituellement utilisés en microscopie optique pour les objets d'amplitude comme pour les objets de phase (contraste de phase ou contraste interférentiel). Nous avons vu cependant que dans le domaine X, contrairement à celui du visible, l'indice est généralement très peu différent de 1. Il se pose donc une question essentielle : que peut-on voir par microscopie X ?

Pour répondre à cette question de façon précise et complète, les considérations générales sur la pénétration des rayons X sont insuffisantes. Nous nous attacherons donc en premier lieu à examiner quel contraste on peut espérer pour des objets typiques dans diverses conditions d'observation. Pour le contraste d'absorption, ces calculs ont été faits de longue date [SAYRE 1977, KIRZ 1980 a et b]. Pour le contraste de phase, les calculs similaires qui ont été effectués, nous paraissent erronés parce que leurs auteurs utilisent un formalisme atomique [JACOBSEN 1988-c et 1990, LONDON 1989]. Nous pensons utile de reprendre complètement ces calculs dans un

formalisme d'onde transmise. On précisera en particulier le contraste que l'on peut attendre d'objets vivants n'ayant pas subi de préparation (au sens de la microscopie).

De fait, le contraste qu'on peut ainsi obtenir est souvent faible. Pour le détecter, on sera alors obligé d'exposer les objets à de fortes luminations, et il faudra alors se préoccuper de la dose absorbée par l'échantillon. Les rayons X induisent en effet, comme toutes les particules ionisantes, des dommages proportionnels aux énergies absorbées qui peuvent aller jusqu'au bouleversement des structures morphologiques. Dans certain cas, une préparation adéquate permet de protéger la structure d'un objet d'une irradiation trop importante. De nécessaire, la préparation devient aussi bénéfique si, par une coloration appropriée, on sait augmenter les contrastes et révéler certaines structures.

En dernier lieu, le contraste, comme l'indice, dépend fortement de la longueur d'onde. La transmission différente des diverses longueurs d'onde est susceptible de produire, comme en microscopie visible, un "effet de couleur" qui peut encore être renforcé par la préparation de l'échantillon. Les variations importantes du contraste au voisinage des seuils permettent aussi, lorsque les concentrations sont suffisantes, la localisation et le dosage d'un élément particulier (micro-analyse d'absorption).

Au lieu de recueillir les photons transmis ou diffractés par l'objet, on peut enfin détecter les particules secondaires émises sous l'action d'un faisceau de rayons X : photoélectrons, photons de fluorescence (X et même U.V. ou visible). Ces méthodes permettront encore dans certains cas, de connaître la nature chimique de l'objet (microanalyse d'émission).

3.2 CONTRASTE

3.2.1 RAPPEL DE QUELQUES NOTIONS ESSENTIELLES

Définition : Par définition, le contraste produit par une structure périodique est le taux de modulation du signal mesuré dans l'image de cette structure.

$$C = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \quad (3.1)$$

Remarquons tout de suite que le contraste ne dépend pas de l'éclairement incident I_0 . Si T est la fonction de transmittance liée à l'objet et au système optique, l'éclairement image est :

$$I(M) = I_0 T(M) \quad (3.2)$$

et le contraste :

$$C = \frac{T_{\max} - T_{\min}}{T_{\max} + T_{\min}} \quad (3.3)$$

Ainsi, le contraste n'est pas altéré par la superposition à l'objet d'une épaisseur uniforme d'un matériau homogène (support, milieu de conservation). Il n'en va pas de même, bien entendu, du signal détecté et partant, du rapport signal sur bruit (S/B), ce qui peut rendre le même contraste non détectable.

Le contraste d'une structure dépend de caractéristiques liées à celle-ci : nature chimique des matériaux qui la composent, dimensions, et de caractéristiques liées au système d'observation : longueur d'onde, cohérence de l'éclairement, système optique. On peut d'abord séparer l'influence de la qualité du système optique en considérant que celui-ci intervient par sa réponse percussionnelle (réponse à un objet ponctuel). La relation entre objet et image est une convolution. Selon les conditions d'éclairage, elle porte sur des grandeurs différentes : l'amplitude en éclairage cohérent*, l'intensité en éclairage incohérent :

$$\begin{aligned} \text{cas cohérent :} \quad & A(M) = A_0 \tau(M) * \rho(M) \\ \text{cas incohérent :} \quad & I(M) = I_0 T(M) * R(M) \end{aligned} \quad (3.4)$$

où l'on note $\tau(M)$ la transmittance en amplitude de l'objet et $T(M)$ sa transmittance en intensité ; $\rho(M)$ et $R(M) = |\rho(M)|^2$ sont respectivement les réponses percussionnelles du système optique en éclairage cohérent et incohérent. Les facteurs de transmission dépendent à la fois de l'épaisseur de l'objet et

* Cohérence : L'éclairage est dit cohérent s'il provient d'une surface d'onde bien définie (source monochromatique, limitée à la diffraction). L'éclairage est incohérent s'il provient d'une superposition de surfaces d'onde (source large ou polychromatique). Voir aussi au chapitre 8.

de son indice de réfraction complexe $n(M) = \delta(M) + i \beta(M)$:

$$\tau(x) = \exp\left(-2i\pi \frac{n(M) e(M)}{\lambda}\right) \quad (3.5)$$

et

$$\begin{aligned} T(x) = |\tau(x)| &= \exp\left(-4\pi \frac{\beta(M) e(M)}{\lambda}\right) \\ &= \exp(-\mu(M) e(M)) \end{aligned} \quad (3.6)$$

On doit noter que les effets de phases sont perdus en éclairage incohérent.

L'influence du système optique sur le contraste apparaît plus clairement en passant dans l'espace de Fourier. (Nous noterons la transformation de Fourier par le symbole $\sim$: $\tilde{f}(\nu) = \text{TF}[f(M)]$). Dans le cas usuel de l'éclairage incohérent, la relation (3-4) devient :

$$\tilde{I}(\nu) = I_0 \tilde{T}(\nu) \cdot \tilde{R}(\nu) \quad (3.7)$$

Pour étudier le contraste les facteurs constants n'importent pas ; on ajoute la normalisation de la réponse $\tilde{R}$

$$\tilde{R}(0) = \int R(M) dM = 1 \quad (3.8)$$

Dans cette notation, $\tilde{R}(\nu)$ est le facteur par lequel est réduit le contraste de l'image d'une structure de fréquence ν . La fonction $\tilde{R}(\nu)$ est pour cette raison appelée fonction de transfert de modulation (FTM). Nous séparons ainsi la contribution de la transmittance de l'objet liée à la composition chimique et à l'épaisseur des structures, de celle de l'optique et, par elle, de la fréquence spatiale des structures contenues dans l'objet.

La FTM d'un système optique parfait, c'est-à-dire limité par la diffraction, ne dépend que de son ouverture. Si le système optique présente des aberrations, celles-ci ont pour effet de réduire la FTM dans le domaine des fréquences moyennes. Un halo de lumière parasite autour de la réponse percussionnelle produira le même effet [voir MARECHAL et FRANÇON]

Ayant ainsi séparé l'influence du système optique de celle de l'objet, nous pouvons maintenant entreprendre l'étude du contraste lié à l'objet sans nous préoccuper des facteurs instrumentaux.

3.2.2 CONTRASTE D'ABSORPTION

Lorsqu'on dispose d'un objet suffisamment absorbant, la manière la plus simple de produire une image est de détecter l'intensité transmise en éclairage incohérent

$$I(M) = I_0 \exp [- \mu(M) e(M)] \quad (3.9)$$

Pour étudier le contraste de cette image, considérons un objet simple schématisé sur la figure 3.1, qui comporte une seule structure binaire périodique d'épaisseur e , constituée d'un matériau dont l'indice est n_1 et le coefficient d'absorption μ_1 , incluse dans un milieu homogène d'indice n_2 dont le coefficient d'absorption est μ_2 . on utilisera lorsque cela sera nécessaire son rapport cyclique défini par :

$$\tau_c = \frac{\text{surface matériau 1}}{\text{surface matériau 2}} \quad (3.10)$$

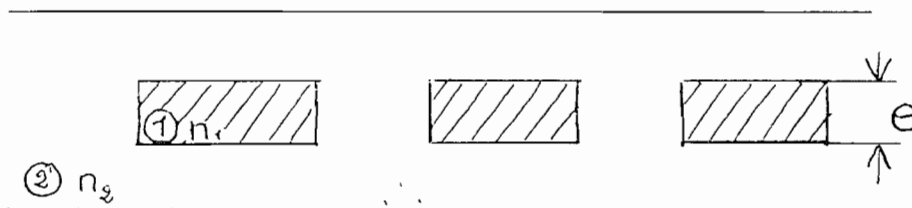


Figure 3.1

Structure binaire utilisée pour l'étude du contraste.

Le contraste de cette structure selon la définition de l'équation 3.1 est donc

$$C_a = \frac{e^{-\mu_1 e} - e^{-\mu_2 e}}{e^{-\mu_1 e} + e^{-\mu_2 e}} = \text{th} \left(\frac{\mu_2 - \mu_1}{2} e \right) \quad (3.11)$$

et pour les faibles contrastes

$$C \simeq \frac{\Delta\mu}{2} e = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta\beta e \quad (3.12)$$

Le contraste produit par un objet dépend donc à la fois de l'épaisseur des structures observées et de la différence d'absorption entre les matériaux qui constituent ces structures. A composition semblable, les différences de densité sont également génératrices de contraste (équ. 2.17).

Dans les objets biologiques, les structures ont des dimensions très variables de 1 μm ou plus pour les noyaux cellulaires jusqu'à des tailles proches des dimensions moléculaires (5 - 10 nm). Les matériaux qui les composent sont essentiellement constitués des mêmes éléments légers : H, C, N, O. Prévoir le contraste n'est pas, dans ces conditions, chose aisée. Pour en donner un ordre de grandeur, nous avons effectué le calcul du contraste dans quelques cas typiques, et pour cela nous avons choisi un exemple dans chacune des trois classes fondamentales de matériaux biologiques :

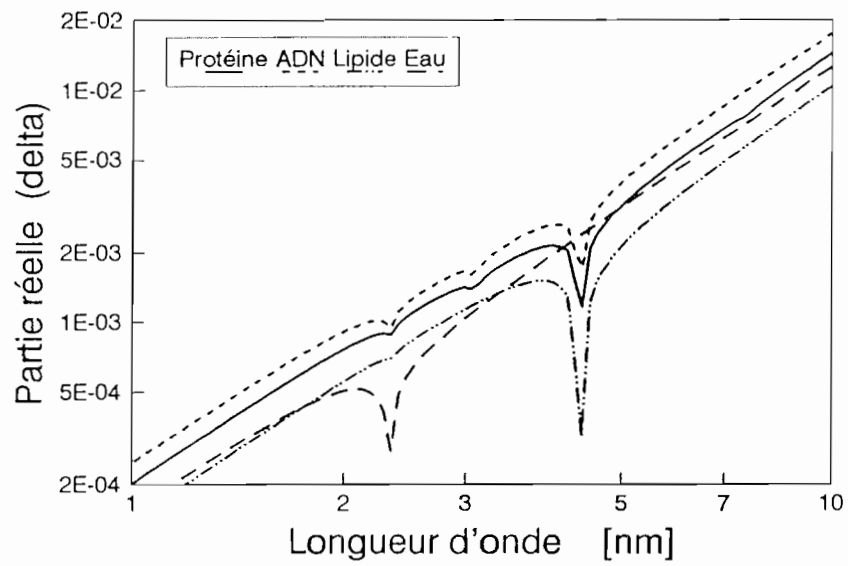
- Les protéines, représentées par une composition chimique moyenne des protéines animales ($\text{H}_{50}\text{C}_{30}\text{N}_9\text{O}_{10}\text{S}$, densité : $\rho = 1,35$) ;
- l'ADN ($\text{H}_{45}\text{C}_{39}\text{N}_{15}\text{O}_{24}\text{P}$, $\rho = 1,70$) ;
- les lipides, représentés par une composition moyenne de graisses animales ($\text{H}_{67}\text{C}_{35}\text{O}_4$, $\rho = 0,9$).

[Pour d'autres choix de compositions moyennes voir LONDON 1989 et JACOBSEN 1988-c]

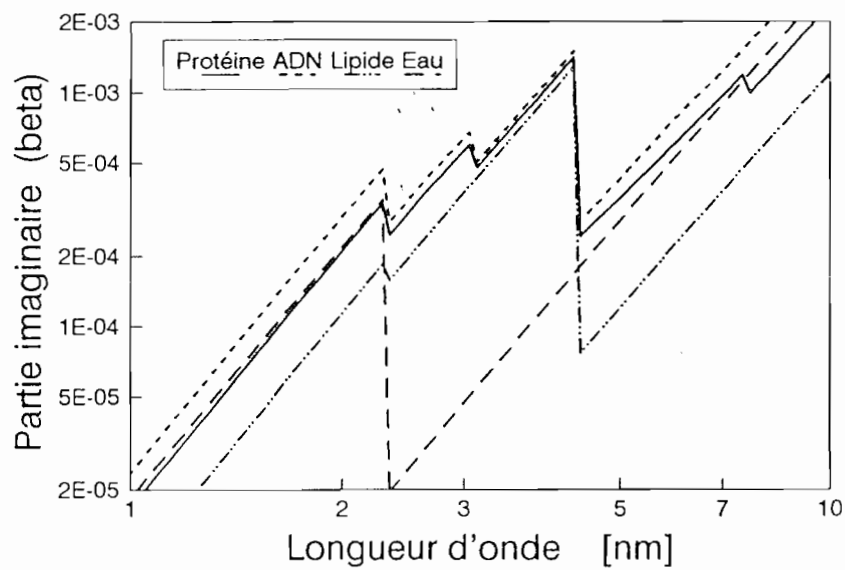
Ces compositions permettent de calculer les valeurs des composantes δ et β de l'indice complexe, qui sont présentées sous forme graphique à la figure 3.2 avec celles de l'eau (cf. équ. 2.16 et 2.17).

Les courbes des figures 3.3 à 3.5 présentent, en fonction de l'épaisseur d'une structure binaire définie comme à la figure 3.1, le contraste pour des couples formés de deux de ces matériaux, ou de l'un d'eux, et du milieu extérieur, c'est-à-dire l'eau ou le vide selon que l'échantillon est étudié vivant ou après préparation et déshydratation.

De ces courbes on peut tirer quelques conclusions générales : les variations de masse par unité de surface ou ce qui revient au même, les variations d'épaisseur de matière sèche pourront être détectées avec un excellent contraste même si l'objet est observé en milieu aqueux. Il faut alors utiliser une longueur d'onde située entre le seuil K de l'oxygène (2,3 nm) et celui du carbone (4,4 nm). dans ce domaine de longueur d'onde que l'on appelle généralement la "fenêtre de l'eau", une variation d'épaisseur de l'objet de 10 nm pourra encore produire une variation de 1% du contraste.



a) Partie réelle δ



b) Partie imaginaire β

Figure 3.2

Indice de réfraction de l'eau et de quelques constituants typiques des matériaux biologiques.

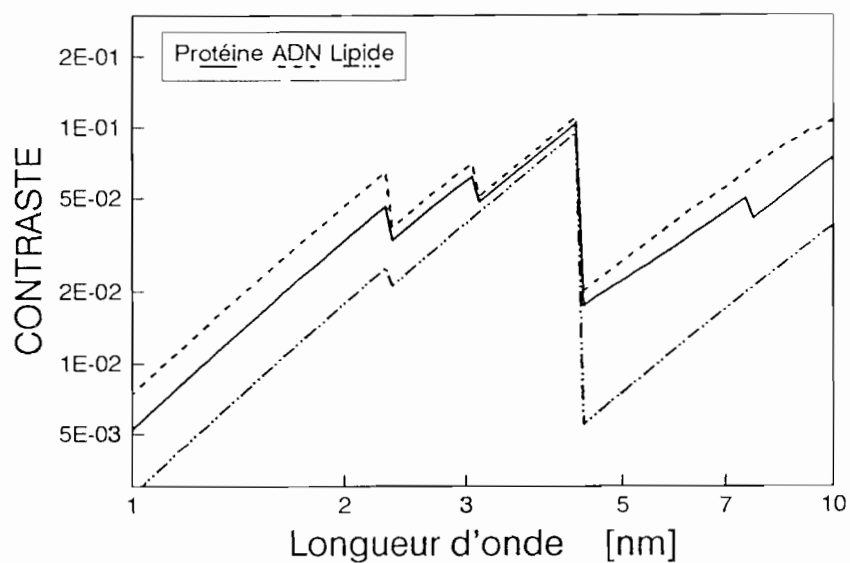


Figure 3.3

Contraste d'absorption des matériaux biologiques déshydratés.
 Epaisseur de l'objet : 50 nm

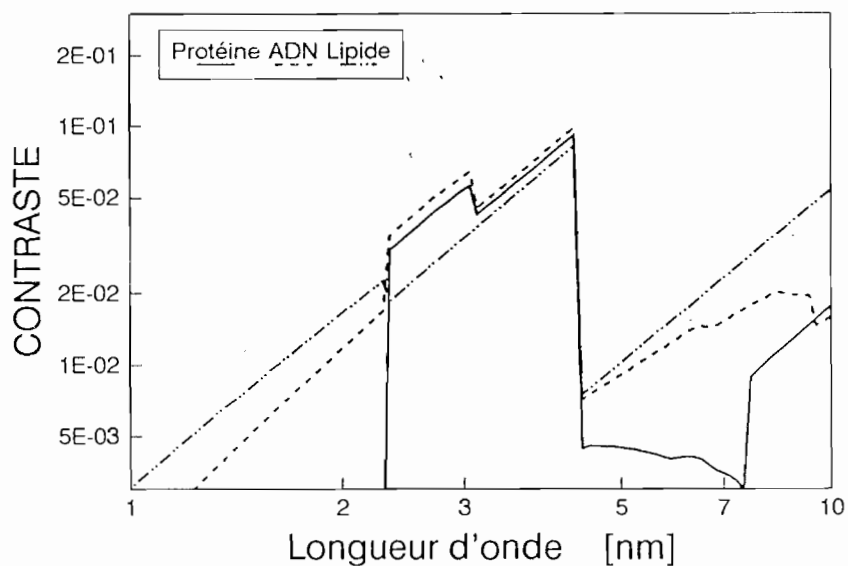


Figure 3.4

Contraste d'absorption des matériaux biologiques en milieu aqueux. Epaisseur de l'objet : 50 nm

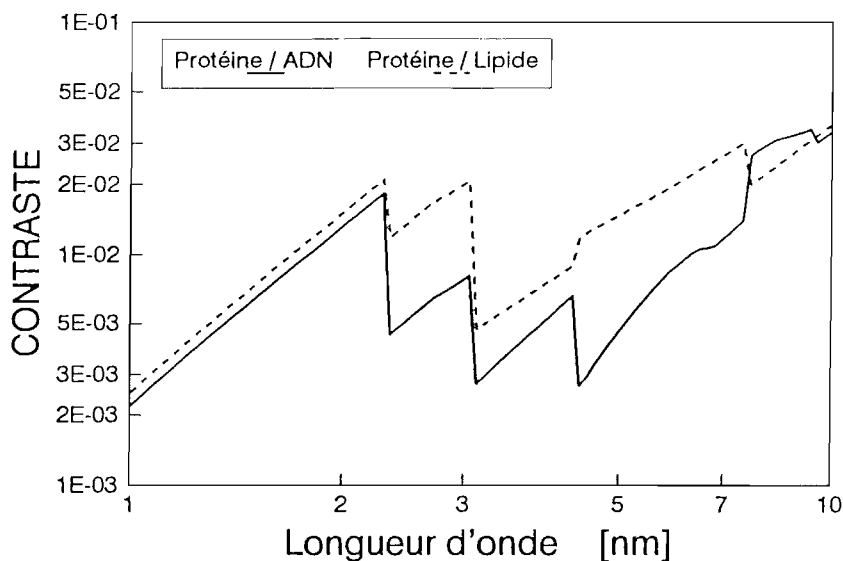


Figure 3.5

*Contraste d'absorption des matériaux biologiques entre eux.
Épaisseur de la structure : 50 nm*

Par contre, à épaisseur de matière organique égale, les contrastes sont toujours très faibles, même entre matériaux de nature biologique très différente. A fortiori, les contrastes de nature biochimique entre matériaux de même type (deux protéines par exemple) ne pourront certainement pas être obtenus sans une préparation particulière de l'objet.

3.2.3 CONTRASTE EN ECLAIRAGE COHERENT

En éclairage cohérent, l'amplitude $A(M)$, dans l'image, est reliée à l'amplitude A_0 de l'onde d'éclairage par :

$$A(M) = A_0 \exp \left[- \frac{2i\pi}{\lambda} n(M) e(M) \right] \quad (3.13)$$

(voir éq. 3.5)

Si nous reprenons l'exemple de l'objet binaire décrit sur la figure 3.1, l'amplitude dans le plan image est :

$$A(M) = t_1 \exp[ik \Delta n e(M)] \quad (3.14)$$

Nous notons t_1 le facteur de transmission du milieu d'observation sans objet, $\Delta n = \Delta\delta - i \Delta\beta$ la différence d'indice complexe entre les deux matériaux et $k = 2\pi/\lambda$. La fonction $e(M)$ qui décrit l'objet binaire est telle que

$$\begin{cases} e(M) = e & \text{si } M \in \text{objet} \\ e(M) = 0 & \text{si } M \notin \text{objet} \end{cases} \quad (3.15)$$

Pour une structure de faible épaisseur, on peut développer l'exponentielle de (3.14), sous la forme :

$$A(M) = t_1 A_0 [1 - k e(M) (\Delta\beta - i \Delta\delta)] \quad (3.16)$$

Cette amplitude comporte trois composantes: une composante continue, une modulation d'amplitude, et une modulation de phase. Le contraste de l'image observée dépend de la manière selon laquelle s'effectue la détection.

Si on détecte directement cette image avec un détecteur sensible à l'intensité $I(M) = |A(M)|^2$, on obtient exactement la même image que celle que l'on peut observer en éclairage incohérent

$$I(M) = |t_1|^2 I_0 [1 - 2k \Delta\beta e(M)] \quad (3.17)$$

dans laquelle on a perdu le terme de phase.

Pour observer ce terme de phase, on peut utiliser des méthodes basées sur les mêmes principes qu'en optique du visible : la strioscopie ou méthode du fond noir, et le contraste de phase - nous englobons sous ce terme aussi bien le contraste de phase proprement dit que les techniques de contraste interférentiel -. Nous ne nous posons pas ici la question de leur mise en oeuvre effective, plus difficile évidemment qu'en visible, dont nous reparlerons dans le paragraphe du chapitre suivant consacré aux microscopes X.

a) Fond noir

La méthode consiste à supprimer la composante continue, par un masque placé dans la pupille du microscope, de façon à occulter les rayons qui proviennent directement de la source, sans avoir été diffractés par l'objet. Les rayons diffractés par l'objet parviennent seuls sur le détecteur. L'image observée dépend du rapport cyclique (défini par l'équation 3.10) et s'exprime par :

$$I(M) = |t_1|^2 I_0 k^2 \left[e(M) - \frac{\tau_c}{1 + \tau_c} e \right]^2 (\Delta\beta^2 + \Delta\delta^2) \quad (3.18)$$

Notons que le contraste est substantiellement altéré. Il varie comme le carré de la modulation objet et présente donc des inversions de contraste. Plus précisément, le contraste dépend du rapport cyclique τ_c du motif, défini par l'équation 3.10 :

$$C_N = \frac{1 - \tau_c^2}{1 + \tau_c^2} \quad (3.19)$$

Le contraste est nul lorsque la largeur de "noir" est égale à la largeur de "blanc" ($\tau_c = 1$). Il vaut par contre 1, lorsque l'objet est une ligne étroite "noire" sur fond "blanc" ($\tau_c = 0$) ou "blanche" sur fond "noir" ($\tau_c = \infty$), ces deux configurations n'étant pas discernables à l'observation. Malgré ses défauts, le fond noir reste un mode d'observation souvent utilisé parce qu'il est simple à mettre en oeuvre et donne une bonne sensibilité aux très hautes fréquences.

Remarque : Lorsque l'objet présente des structures très fines, non résolues par l'instrument, la lumière qu'elles diffractent ou diffusent n'est pas recueillie par le détecteur. On observe alors un contraste appelé fond clair. C'est ainsi qu'est traitée la très faible composante diffusée [§ 2.4.2]. Ce mode de fonctionnement est habituel en microscopie électronique, où on le renforce au moyen d'atomes lourds très diffusants.

b) Contraste de phase

Au lieu de supprimer complètement la composante continue, il est encore possible de la déphaser et éventuellement de l'atténuer partiellement. Si la composante continue est déphasée de $\pi/2$, l'image observée est :

$$I(M) = |t_1|^2 I_0 [1 + 2k e(M) \Delta\delta] \quad (3.20)$$

et puisque $e(M) \in [0, e]$, le contraste est :

$$C_p = k e \Delta\delta \quad (3.21)$$

Entre deux matériaux de composition donnée, le contraste est maximal pour un angle de déphasage φ tel que $\tan \varphi = \Delta\delta/\Delta\beta$.

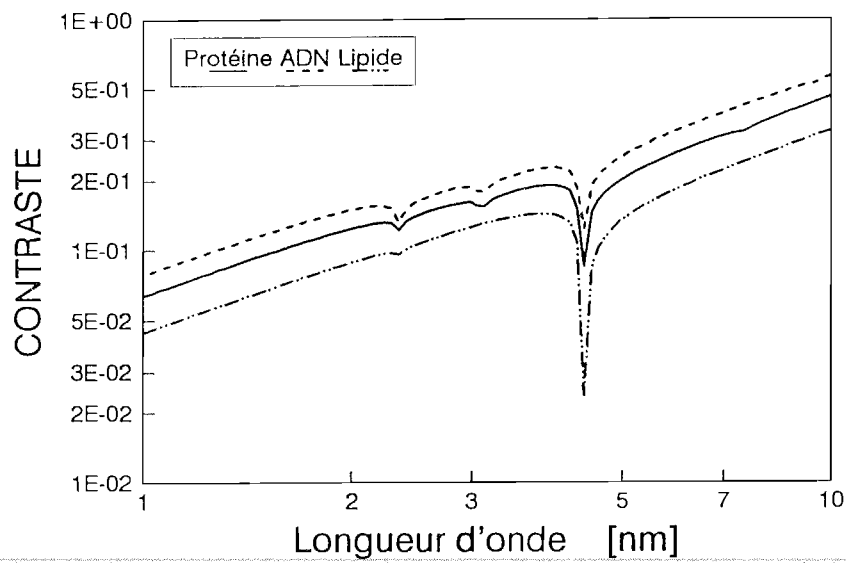


Figure 3.6

Contraste de phase optimal pour des matériaux biologiques déshydratés. Epaisseur de l'objet : 50 nm.

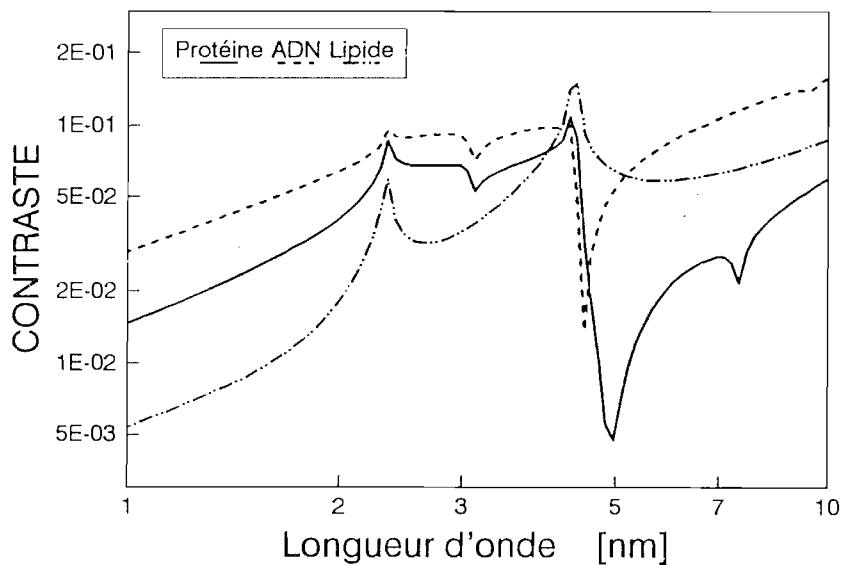


Figure 3.7

Contraste de phase optimal pour des matériaux biologiques en milieu aqueux. Epaisseur de l'objet : 50 nm.

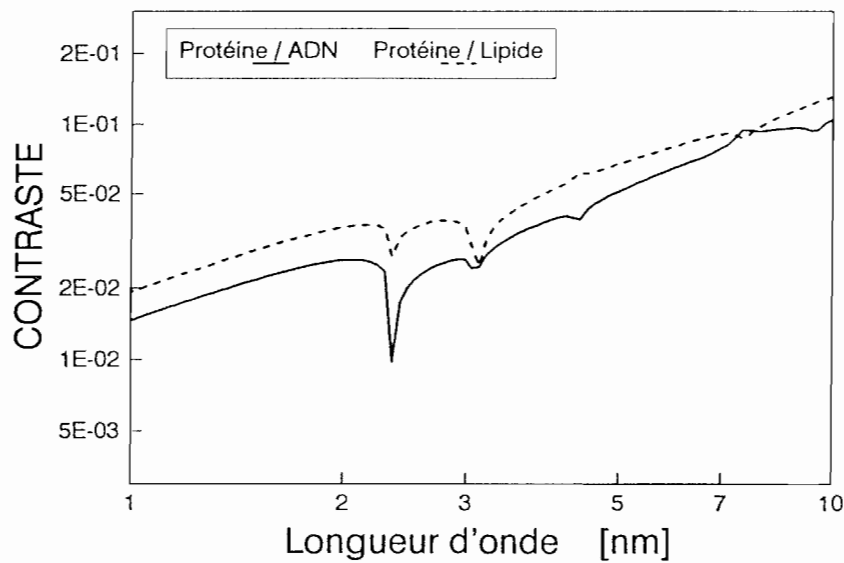


Figure 3.8

*Contraste de phase optimal entre matériaux biologiques.
Epaisseur de la structure : 50 nm.*

Ce contraste optimal est :

$$C_o = k e (\Delta\delta^2 + \Delta\beta^2)^{1/2} \quad (3.22)$$

Les figures 3.6 à 3.8 montrent comment varie ce contraste C_o en fonction de la longueur d'onde, pour les mêmes matériaux et dans les mêmes conditions que précédemment. Les contrastes restent du même ordre de grandeur que le contraste d'amplitude, mais le domaine spectral est un peu élargi. On peut encore améliorer le contraste en atténuant la composante continue.

3.2.4 LIMITE DE DETECTION DES FAIBLES CONTRASTES

Le contraste minimum détectable dépend des conditions d'observation de l'image. Si on observe à l'oeil, dans des conditions de lumière suffisante, on estime généralement le seuil de détection à 2 % de contraste [MARECHAL et FRANÇON, p. 67]. Pour les détails de petite dimension, on ne doit pas utiliser ce seuil directement pour interpréter les courbes de

contraste (Fig. 3.3 à 3.8), car on doit tenir compte de la FTM. Le seuil de détection de petits objets pourra être évalué entre 5 et 10 % de contraste objet.

Cependant le contraste n'est pas un véritable critère de détection. Nous avons déjà observé que l'atténuation de la composante continue permettait d'augmenter le contraste. De plus, si au lieu d'observer l'image visuellement, on utilise des moyens de détection électroniques, on pourra également amplifier le contraste par un traitement du signal enregistré. La limite de détection est alors fixée par la statistique des fluctuations du signal détecté.

Un détail de faible contraste ne pourra être observé que si le signal correspondant diffère nettement du bruit de mesure. La définition d'un seuil de détection en terme de rapport signal sur bruit renferme une certaine part d'arbitraire. Nous utiliserons ici un critère communément accepté, critère de Rose [ROSE 1946, cité par KIRZ 1980], :

Un objet est détectable si le signal produit est tel que :

$$S/B \geq 5 \quad (3.23)$$

Avec cette valeur du rapport S/B, on peut calculer la limite de visibilité de la structure binaire définie sur la figure 3.1, pour les différentes méthodes d'observation envisagées : contraste d'amplitude, fond noir, contraste de phase

Nous supposons que pendant la mesure, l'objet reçoit une illumination de N_0 photons par pixel. Les calculs effectués précédemment permettent de déterminer le nombre de photons par pixel, N , qui participent au signal lorsque l'efficacité de collection du système optique est 1. Le rapport S/B de détection dépend du nombre de photons reçus par le détecteur et de l'efficacité quantique de ce dernier (en toute rigueur on doit utiliser le $DQE = (S/B)_{det}^2 / (S/B)_{phot}^2$). Pour ne pas introduire de facteurs supplémentaires, nous supposerons une optique et un détecteur parfaits, et nous admettrons aussi que la transmission moyenne de l'échantillon est proche de 1. Tous ces facteurs devront être pris en compte dans l'analyse d'un problème réel, et conduisent à réduire le nombre effectif de photons par pixel N_0

a) Contraste d'amplitude

Si nous nous plaçons dans les conditions que nous venons d'indiquer, le nombre de photons détectés dans un pixel d'une

image d'amplitude est :

$$N = N_0 [1 + 2k \Delta\beta e(M)] \quad (3.24)$$

Le signal qui permet de détecter la structure binaire d'épaisseur caractéristique e , définie sur la figure 3.1, est :

$$S = 2 N_0 k \Delta\beta e \quad (3.25)$$

tandis que, pour de petits signaux, le bruit de la mesure est

$$B = \sqrt{N} \simeq \sqrt{N_0} \quad (3.26)$$

La plus fine structure détectable en contraste d'amplitude selon le critère de Rose (éq. 3.23), a une épaisseur égale à

$$e_a = \frac{5\lambda}{4\pi \Delta\beta \sqrt{N_0}} \quad (3.27)$$

b) Fond noir

En configuration de fond noir, le nombre de photons détectés par pixel est, d'après l'équation 3.18 :

$$N = N_0 k^2 \left[e(M) - \frac{\tau_c}{1 + \tau_c} e \right]^2 (\Delta\beta^2 + \Delta\delta^2) \quad (3.28)$$

Le signal est égal à N donc $S/B = \sqrt{N}$. On en déduit l'épaisseur limite de détection en fond noir pour une ligne très fine ($\tau_c = 0$ ou $1/\tau_c = 0$) :

$$e_n = \frac{5\lambda}{2\pi \sqrt{\Delta\beta^2 + \Delta\delta^2} \sqrt{N_0}} \quad (3.29)$$

c) Contraste de phase

Considérons d'abord un dispositif de contraste de phase dans lequel la composante continue est déphasée de $\pi/2$ et n'est pas atténuée. L'expression que nous avons obtenue pour l'image (éq. 3.20) est exactement semblable à celle établie pour le contraste d'amplitude (éq. 3.18), à la substitution près de $\Delta\delta$ à $\Delta\beta$. Il en résulte immédiatement que l'épaisseur limite de détection en contraste de phase est :

$$e_p = \frac{5\lambda}{4\pi \Delta\delta \sqrt{N_0}} \quad (3.30)$$

Il est également intéressant de calculer ce que devient la limite de détection lorsque, pour amplifier le contraste, on a aussi atténué la composante continue par un facteur de transmission t ($t < 1$). Le nombre de photons détecté devient alors :

$$N = N_0 [t + 2k \Delta\delta e(M)] \quad (3.31)$$

Il en résulte que si t n'est pas trop faible, ce qui serait une situation de fond noir, l'épaisseur limite de détection est devenue :

$$e'_p = \frac{5\lambda}{4\pi \Delta\delta \sqrt{N_0 t}} \quad (3.32)$$

Cette limite est supérieure à la précédente. Cela illustre bien que ce n'est pas le contraste qui définit la limite de sensibilité, mais bien davantage le nombre de photons détectés. Notons enfin que si on emploie le déphasage optimal (éq. 3.22), l'épaisseur limite détectable est :

$$e_o = \frac{5\lambda}{4\pi \sqrt{\Delta\beta^2 + \Delta\delta^2} \sqrt{N_0}} \quad (3.33)$$

la sensibilité est alors 2 fois meilleure qu'en fond noir pour une ligne très fine. Cela signifie que l'on détecte une même structure avec 4 fois moins de photons. Pour une structure large, le rapport est bien supérieur.

e) Ordre de grandeur

En contraste d'absorption comme en contraste de phase, les expressions du seuil de détection ont une forme semblable et dépendent essentiellement des écarts d'indice entre matériaux $\Delta\delta$ et $\Delta\beta$. La sensibilité est très différente selon les couples considérés (fig. 3.2). Sur une structure protéique observée dans l'eau, en contraste d'amplitude et à 4 nm de longueur d'onde ($\Delta\beta \sim 10^{-3}$), 10^6 photons effectifs par pixel permettent de détecter des détails jusqu'à 15 nm d'épaisseur. Il en est de même en contraste de phase au voisinage du seuil du carbone. Lorsque les structures sont composées de deux matériaux d'origine biologique, les différences d'indice sont beaucoup plus faibles et la détectivité est réduite. Le con-

traste de phase est alors un peu supérieur au contraste d'absorption.

La limite de détection que l'on peut effectivement atteindre dépend surtout du nombre de photons par pixel. On ne peut pas augmenter ce nombre sans causer de dommage à l'objet. Nous ne pourrions donc préciser davantage la sensibilité qu'après avoir étudié l'effet sur des objets biologiques, d'une irradiation par les rayons X (§ 3.3).

3.2.5 : IMAGES PAR DETECTION DE PARTICULES SECONDAIRES

Jusqu'à présent, nous avons seulement cherché à détecter les effets de l'échantillon sur le faisceau X transmis. On peut également détecter les effets secondaires de l'énergie déposée dans l'objet par absorption de rayons X. L'absorption d'un photon X se traduit par l'éjection d'un électron (émission photoélectronique). L'atome ainsi excité se désexcite ensuite en émettant soit un photon X de fluorescence soit un électron Auger. La détection de ces particules secondaires présente une difficulté constante : elles sont émises sous de très grands angles solides et il n'est généralement pas possible de les refocaliser pour former des images. On peut cependant refocaliser les photoélectrons avec une bonne efficacité de collection dans deux cas : pour les électrons secondaires de très faible énergie, en employant un microscope électronique à émission [cf. partie II] ; pour les électrons d'énergie plus élevée, en employant le dispositif de collection dans le champ magnétique d'une bobine supraconductrice décrit par Beamson, Porter et Turner [BEAMSON 1981], et utilisé notamment par Pianetta et al.. Il faut remarquer que la limite de résolution spatiale de ce dispositif est assez grande, 10 μm pour des électrons de 100 eV [PIANETTA 1989].

Ces deux cas exceptés, pour garder au signal son caractère local, il faut pouvoir disposer d'une sonde de rayons X et procéder par balayage. C'est la qualité de focalisation de la sonde qui fixe la résolution. Il faut de plus, réaliser un détecteur de particules secondaires capable de les collecter dans un angle solide aussi grand que possible.

a) Fluorescence X

Le signal de fluorescence X est formé des raies caractéristiques des éléments chimiques présents dans le volume irra-

dié, dont l'énergie est inférieure à celle de la sonde. Elles sont d'autant plus nombreuses que l'énergie de sonde est élevée. De ce signal on peut extraire l'information analytique concernant la composition locale. Nous calculerons les limites de détection d'une telle analyse chimique au paragraphe 3.4, consacré aux méthodes de microanalyse.

La réalisation pratique de l'appareillage dépend fortement de l'énergie du faisceau. Pour des énergies supérieures à 1 KeV, on peut utiliser les mêmes détecteurs qui sont couramment utilisés en analyse de fluorescence X par excitation électronique (microsonde électronique). L'excitation par photon à la place des électrons produit un signal plus propre par l'absence de rayonnement de freinage, mais n'élimine pas les "effets de matrices" dus à la réabsorption des raies de plus haute énergie. Les détecteurs solides à semi-conducteur (diodes SiLi) conviennent bien et permettent d'enregistrer tout le spectre avec une résolution d'une centaine d'eV. Mais l'angle solide de collection est petit et l'efficacité de collection dépasse difficilement 10^{-2} . La principale difficulté à ces énergies reste l'obtention d'une sonde fine. La limite de 1 μm atteinte par Horowitz et Howell en 1972, avec des miroirs en incidence rasante [HOROWITZ 1972, 1978], n'a pas été dépassée.

Pour les énergies inférieures à 600 eV, on sait réaliser des sondes plus fines avec des zones de Fresnel (0,1 μm). Les spectres sont cependant plus complexes et on se heurte au manque de résolution en énergie des détecteurs. Ceci et la possibilité de détecter d'autres particules explique sans doute l'absence de réalisation à ces longueurs d'onde.

b) Fluorescence visible

On peut sans doute étendre à la microscopie X les méthodes de détection par fluorescence visible ou U.V. de molécules de "colorants" qui sont pratiqués couramment en microscopie classique. L'utilisation d'une sonde focalisée permet alors de libérer totalement la résolution de la contrainte des grandes longueurs d'ondes d'émission. On peut espérer 0,1 μm ou mieux. Par rapport à la fluorescence X, le rayonnement émis peut être beaucoup plus facilement collecté par des optiques ; la sélection des longueurs d'ondes est plus facile car on ne recueille que les raies correspondant aux colorants introduits ; enfin le signal est relié à l'activité biologique.

L'idée de cette méthode a été suggérée par P.C. Cheng [communication particulière, Heidelberg, 1987]. Les calculs

d'efficacité restent à faire pour savoir si une telle méthode peut être plus efficace que la détection par absorption pour localiser des marqueurs immunologiques.

c) Photoémission

La spectroscopie des photoélectrons émis sous l'influence d'un faisceau de rayons X est une méthode d'analyse sensible à la structure électronique des atomes de la surface de la cible. En effet, comme nous aurons l'occasion de le rappeler par la suite, le libre parcours des photoélectrons de basse énergie (≤ 200 eV) est très faible : quelques centaines d'Angströms. En analyse globale, cette technique est très utilisée dans l'étude des surfaces. On privilégie généralement la résolution énergétique et la résolution angulaire et on néglige la résolution spatiale. Il s'agit essentiellement d'optimiser la collection pour atteindre la plus grande finesse d'analyse des niveaux électroniques.

L'utilisation d'une sonde X de petite dimension et le fait de répartir le temps d'analyse sur de nombreux pixels ne permet probablement pas l'utilisation de spectromètres à haute résolution angulaire et énergétique. Il faut donc accepter de perdre une part de l'information par exemple angulaire. C'est ce qui est fait dans le projet d'appareil étudié par Kirz, Rarback et al, pour le synchrotron de Brookhaven, où la sonde est focalisée par un réseau de Fresnel [ADE 1988]. D'autres systèmes sont développés à partir d'un objectif à multicouches [CERRINA 1988 et 1991].

Les applications potentielles de la photoémission résolue spatialement sont nombreuses en sciences des matériaux, dès qu'il s'agit de caractériser une surface hétérogène. On peut penser par exemple aux contrôles non destructifs de dopages sur des circuits intégrés, à l'étude de matériaux composites, etc... Dans le domaine biologique, il existe probablement des applications à l'étude des membranes et des récepteurs liés aux membranes. Griffith et al [GRIFFITH 1987, 1989] ont développé des techniques similaires dans le domaine UV.

3.3 DOMMAGES SUBIS PAR UN OBJET EXAMINE AUX RAYONS X

3.3.1 NOTION DE DOSE DE RAYONNEMENT

Dans la mesure où l'énergie des photons X mous est suffisante pour arracher des électrons aux atomes des matériaux qu'ils pénètrent, ils entrent dans la catégorie de rayonnement ionisants. On admet que les dommages biologiques subis par un objet soumis à un rayonnement ionisant est proportionnel à un coefficient d'efficacité biologique dépendant de la nature des particules, et à l'énergie déposée par unité de masse de la matière traversée. Cette dernière quantité est appelée la dose absorbée et s'exprime en Grays : $1 \text{ Gy} = 1 \text{ Joule/Kg}$. On utilise encore souvent le rad : $1 \text{ rad} = 10^{-2} \text{ Gy} = 10^{-5} \text{ J/g}$.

Le coefficient d'efficacité biologique des rayons mous ne semble pas avoir été déterminé de façon précise. J Kirz [KIRZ 1980] estime pour sa part qu'une valeur de 3.5 est raisonnable (la référence est 1 pour des électrons de 100 KeV ou des γ). On se contentera donc ici d'évaluer la dose absorbée sans introduire de coefficient, d'autant plus que les expériences récentes de microscopie X [GILBERT 1991, PINE 1991, RUDOLPH 1991, BENNETT 1991] laissent supposer qu'il pourrait être inférieur aux prévisions.

Les effets des rayonnements ionisants ont été étudiés expérimentalement soit sur des organismes supérieurs (animaux de laboratoire), soit sur des cultures cellulaires ; c'est à ce dernier cas que nous nous référons. Lorsque l'irradiation est légère, il n'y a pas d'effet directement perceptible, mais un certain nombre des cellules irradiées, soit sont incapables de se reproduire, soit se reproduisent apparemment normalement mais ont une descendance qui s'éteint en quelques générations. Ce seuil survie d'une culture correspond à la dose pour laquelle les altérations du patrimoine génétique deviennent, par leur nombre et leur importance, irrécupérables. On appelle dose léthale la dose pour laquelle le taux de survie d'une population en culture est de $1/2$. Cette dose est variable selon les types cellulaires. 1 Gy est une valeur moyenne et permet de fixer un ordre de grandeur.

Pour des expositions plus grandes, il y a une gradation dans les effets. D'abord, les cellules irradiées non seulement ne se reproduisent plus, mais elles perdent aussi leur activité biologique propre ; puis elles meurent à très brève échéance. On peut estimer que la mortalité immédiate intervient pour

des doses de l'ordre de 1 Mrad (10^4 Gy). Certaines cellules sont particulièrement résistantes, les spores par exemple. Pour des irradiations encore plus importantes, il peut enfin apparaître des altérations de forme et de structure, directement visibles pendant l'observation au microscope. Il se produit alors des modifications (de type réticulation ou dépolymérisation) des matériaux biologiques eux-mêmes. Le phénomène est en tout point semblable à celui qui est utilisé pour enregistrer des images dans les résines photosensibles. Les résines ont des sensibilités de l'ordre de 1 J/cm^2 , ce qui correspond à une dose absorbée de $\sim 10^7 \text{ Gy} = 10^3 \text{ Mrad}$.

Les mécanismes de ces dommages biologiques ne semblent pas entièrement élucidés. Il semble qu'il y ait d'abord production de radicaux libres, mais que ceux-ci ne soient pas directement actifs, du moins aux faibles concentrations. La dégradation passerait par un atome d'oxygène, provenant soit de l'oxygène libre dans le milieu cellulaire, soit de molécules d'eau. On a pu constater en effet que les dommages sont moins importants lorsque les cultures sont placées dans un milieu pauvre en oxygène. De même, des cellules lyophilisées supportent mieux l'irradiation. Notons enfin que l'effet de doses fractionnées est normalement cumulatif.

3.3.2 LIMITATION DE LA SENSIBILITE DE DETECTION PAR LA DOSE ABSORBEE

Nous appelons toujours N_0 l'illumination, exprimée en nombre de photons par pixel, reçue par l'objet pendant le temps d'enregistrement d'une image. L'énergie déposée dans un élément d'épaisseur Δe de l'objet est donc :

$$E = h\nu \frac{-dN_0}{de} \Delta e = h\nu \mu N_0 \Delta e \quad (3.34)$$

Nous notons r^2 la surface du pixel ; r est la résolution. La dose absorbée dans le pixel est alors :

$$\mathcal{D} = \frac{\mu N_0}{\rho r^2} \quad h\nu = \frac{4\pi \beta}{\lambda \rho r^2} N_0 h\nu \quad (3.35)$$

Nous avons montré (§ 3.2.4) que pour une structure binaire, l'épaisseur limite détectable dépendait du nombre de photons reçus par pixel. Réciproquement, l'épaisseur de la structure étant connue, on peut calculer le nombre de photons nécessaire pour en faire une image observable, et de là, déterminer la dose d'irradiation à laquelle l'objet a été soumis

pendant l'opération.

Partant de l'équation 3.27, on obtient facilement l'expression suivante de la dose nécessaire à l'observation en **contraste d'amplitude** :

$$D_a = \frac{25 \lambda}{4\pi \rho r^2 e^2} \frac{\beta}{\Delta\beta^2} \quad h\nu = \frac{25 \hbar c}{2 \rho r^2 e^2} \frac{\beta}{\Delta\beta^2} \quad (3.36)$$

En unités pratiques, on exprime ρ en g/cm^3 , r et e en nm ; la dose exprimée en Grays est donnée par :

$$D_a = 4 \cdot 10^8 \frac{1}{\rho r^2 e^2} \frac{\beta}{\Delta\beta^2} \quad (3.37)$$

En **contraste de phase** sans atténuation et avec un déphasage de $\pi/2$, on obtient de même :

$$D_p = 4 \cdot 10^8 \frac{1}{\rho r^2 e^2} \frac{\beta}{\Delta\delta^2} \quad (3.38)$$

et en utilisant le déphasage optimal :

$$D_o = 4 \cdot 10^8 \frac{1}{\rho r^2 e^2} \frac{\beta}{\Delta\beta^2 + \Delta\delta^2} \quad (3.39)$$

Les résultats de ces calculs sont portés sur les figures 3.9 et suivantes, pour les mêmes couples de matériaux que précédemment. On a supposé une résolution de 100 nm et calculé la dose correspondant à la détection limite d'une structure de 100 nm d'épaisseur. On constate d'abord que le contraste de phase permet généralement de gagner un ordre de grandeur sur la dose. Le contraste de phase est spécialement intéressant aux longueurs d'onde juste supérieures au seuil du carbone pour lesquelles les matériaux organiques sont très peu absorbants.

Les valeurs calculées précédemment supposent un instrument et un détecteur parfait. Dans la réalité, elles sont à multiplier par un facteur important (plusieurs ordres de grandeur) pour tenir compte de la collection du système optique, de l'efficacité du détecteur et de la réduction de modulation par la FTM de l'optique. On aboutit donc très vite et quelque soit le type de contraste à des doses supérieures à 1 Mrad ($=10^4$ Gy) qui limitent généralement la survie de l'objet à l'enregistrement d'une seule image. Il ne faut pas non plus oublier qu'un microscopiste cherche d'abord à recueillir la meilleure image possible. Sur une préparation, beaucoup de temps est consacré à la recherche du meilleur champ et à la

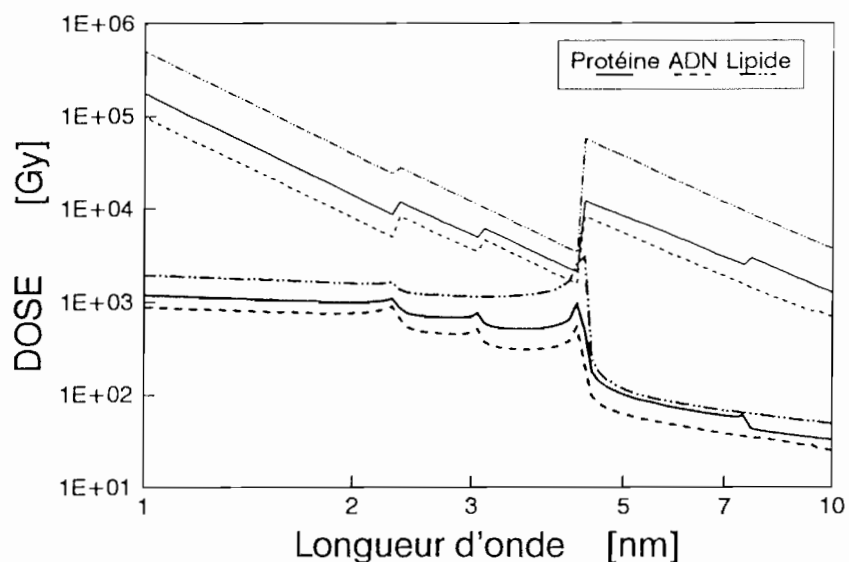


Figure 3.9

Dose d'exposition minimale pour détecter une structure de 100 nm d'épaisseur, en contraste d'absorption (traits maigres) et de phase (traits gras).

Objet déshydraté : contraste matériau / vide

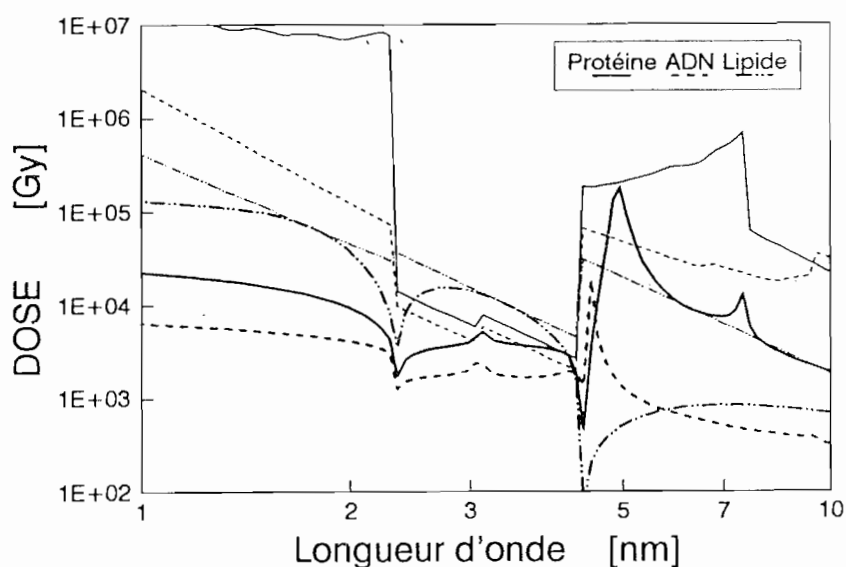


Figure 3.10

Dose d'exposition minimale pour détecter une structure de 100 nm d'épaisseur, en contraste d'absorption (traits maigres) et de phase (traits gras).

Objet hydraté : contraste matériau / eau

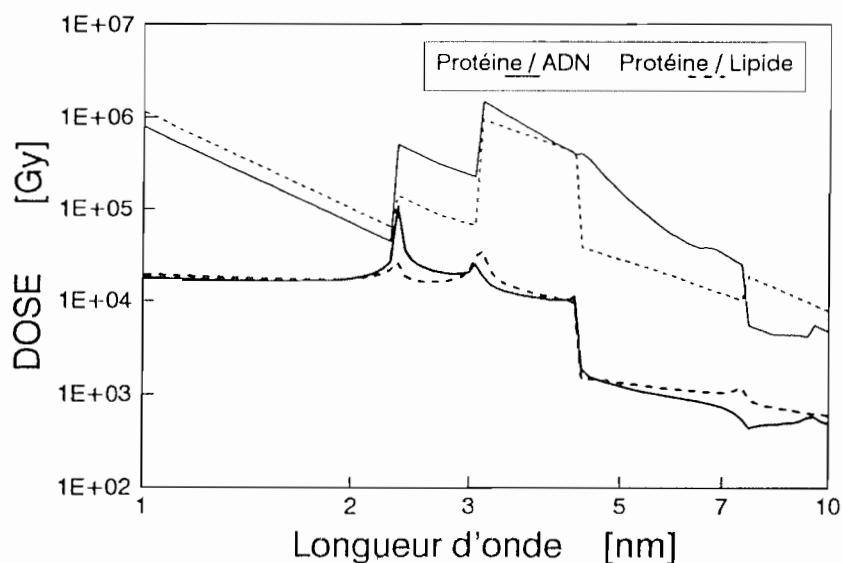


Figure 3.11

Dose d'exposition minimale pour détecter une structure de 100 nm d'épaisseur, en contraste d'absorption (traits maigres) et de phase (traits gras).

Contraste interne à l'objet : contraste matériau / protéine

mise au point. On peut alors passer au stade des altérations de structure.

Pour que l'objet soit encore utilisable, après ces étapes préliminaires, il est nécessaire d'employer quelques artifices. On évite autant que possible d'utiliser les rayons X pour les réglages, en équipant les instruments de viseurs optiques. Toutefois, cela ne peut jamais complètement éviter les ajustement sous faisceau. A cette règle, il existe cependant une exception : l'holographie de Gabor. Nous verrons en effet (chapitres 8 et 9) que l'holographie de Gabor ne demande aucun réglage lors de l'enregistrement en rayons X. Cet avantage combiné au fait que l'on peut facilement accéder au signal de phase, compense et au delà l'inconvénient de la moindre efficacité des détecteurs.

Si, malgré ces précautions, une détérioration de l'objet pendant l'observation reste à redouter, il faudra accepter de soumettre l'objet à une forme ou une autre de préparation pour minimiser les effets structuraux de l'irradiation.

3.4 PREPARATION DES OBJETS

La préparation d'un objet pour la microscopie est l'ensemble des opérations qu'il faut faire subir à un specimen pour pouvoir l'observer. C'est une étape essentielle pour le microscopiste, car elle conditionne ce qu'il pourra voir. Un processus de préparation est constitué d'une suite d'opérations parmi les suivantes :

- culture sur support adapté,
- fixation,
- congélation,
- déshydratation,
- inclusion,
- sectionnement ou dissociation,
- coloration (nous prenons le terme coloration de façon générique, comme inclusion ciblée de molécules ou d'antigènes actifs sur le contraste).

En microscopie, et sur l'ensemble des techniques disponibles, il est très rare de pouvoir se passer complètement de préparation, si ce n'est pour de rapides contrôles. En microscopie électronique, par exemple, la préparation est indispensable pour générer un contraste observable et assurer le maintien de l'intégrité morphologique de l'objet pendant l'irradiation. Il arrive également que l'on cherche à observer l'activité de récepteurs biochimiques qui ne pourront être localisés que par leur affinité pour un colorant spécifique ou pour une molécule marquée.

Le cas de la microscopie X n'échappe pas à cette règle générale avec, cependant, la particularité suivante : le contraste dépend suffisamment de la composition chimique pour qu'à certaines longueurs d'onde on puisse facilement distinguer la plupart des organites cellulaires sur des cellules isolées en milieu aqueux et n'ayant subi aucune autre forme de préparation.

De fait, de nombreux auteurs ont souligné que, entre le seuil d'absorption de l'oxygène (23 Å) et celui du carbone (44 Å), l'absorption de l'eau est très faible vis-à-vis de celle de la matière organique. C'est ce qu'on appelle habituellement la "fenêtre de l'eau". Le contraste y est alors à peu près indépendant du contenu en eau, et dépend pour la plus grande part du contenu en matière sèche de l'objet. Les limites de détection et les contrastes que nous avons calculés précédemment ne prennent en compte que le contraste naturel d'un objet

non préparé. En examinant les figures 3.5 3.8 et 3.11, on s'aperçoit qu'il existe également un contraste naturel, plus faible, entre les différents constituants cellulaires. De plus, l'emploi du contraste de phase permet d'étendre le domaine spectral d'observation tout en diminuant la dose absorbée par les objets.

Comme la microscopie optique, mais avec une résolution nettement supérieure, la microscopie X peut donc permettre l'examen d'objets vivants [on en trouvera plusieurs exemples dans X-ray Microscopy II et X-ray microscopy III]. Il serait souvent plus exact de parler de "conditions proches de l'état vivant", car nous avons vu plus haut que la dose de rayonnement absorbée durant une observation peut rapidement excéder la dose létale pour peu que la résolution cherchée soit élevée. Rappelons que l'on peut chercher à minimiser les effets du rayonnement sur un objet vivant en ralentissant son métabolisme et en le plaçant dans un milieu pauvre en oxygène.

Ceci peut constituer la préparation minimale dans le cas d'un objet bien contrasté naturellement, qui est observé dans la fenêtre de l'eau ou en contraste de phase. Dans tous les autres cas, on sera obligé de préparer l'objet pour augmenter son contraste ou pour éviter des bouleversements morphologiques sur les objets. On peut se demander si de devoir faire subir une préparation à l'objet réduit l'intérêt de la microscopie X vis-à-vis des méthodes existantes. Nous ne le pensons pas pour plusieurs raisons :

- D'abord parce que les différentes formes de préparation n'ont pas toutes le même effet traumatisant pour les organismes observés. Les expériences manquent encore pour savoir ce qu'il est possible de réaliser, mais en procédant par analogie avec ce qui est fait dans d'autres domaines, on peut imaginer que certains colorants puissent agir *in vivo* et renforcer suffisamment le contraste (en particulier aux longueurs d'onde de faible absorption) pour réduire significativement les doses nécessaires.

- Deuxième raison : préparer et colorer les objets ne signifie pas nécessairement observer la même chose qu'en employant les méthodes de microscopie classique et spécialement la microscopie électronique. Avec celle-ci, nous relèverons des différences qui permettent d'escompter une certaine complémentarité entre les deux méthodes :

- ▷ En microscopie électronique, l'échantillon doit être sous vide. En microscopie X, par contre, on peut tolérer faci-

lement des épaisseurs d'air de plusieurs mm ; en outre, on sait fabriquer des fenêtres transparentes capables de résister à une différence de pression d'une atmosphère.

▷ Les sections efficaces d'interaction sont très différentes. En microscopie électronique, on ne peut observer des objets biologiques épais (i.e. $\sim 1 \mu\text{m}$), qu'avec des microscopes à très haute tension (1 MeV). Sinon, même s'il s'agit de cellules isolées, on est obligé d'utiliser la technique des coupes ultra-fines. Au contraire, l'examen des courbes d'absorption montre qu'en rayons X, des épaisseurs de 1 à quelques microns sont parfaitement admissibles, ce qui permet d'observer des cellules entières.

▷ Enfin, en microscopie électronique, les échantillons se comportent en objet de phase. On les observe généralement par une méthode de strioscopie à fond clair (diaphragme de contraste indispensable). La coloration par des métaux lourds, qui permet d'augmenter localement la diffusion, est pratiquement indispensable pour observer les matériaux biologiques. Le phénomène de diffusion des électrons ne repose que sur un seul paramètre, la densité électronique locale et, par conséquent, il n'est pas possible de distinguer ainsi deux "colorants" différents. On le peut cependant, en utilisant la technique d'analyse des pertes d'énergie électroniques (EELS). Avec les rayons X, on dispose directement d'un paramètre supplémentaire pour faire varier le contraste : la longueur d'onde. On peut dire que l'on dispose d'un effet de "couleur" analogue à ce que l'on connaît en microscopie optique. Comme en microscopie optique, il doit être possible de marquer l'objet avec des colorants de natures chimiques différentes et de l'observer à plusieurs longueurs d'onde, pour mettre en évidence, par les variations relatives du contraste, des fonctions biologiques différentes sur un même objet.

Pour réaliser ces "colorations", on peut penser utiliser des méthodes semblables à celles qui sont employées en microscopie optique : coloration par réaction chimique, biochimique ou immunologique. Toutefois, alors que des effets optiques sont perceptibles même pour des concentrations faibles de colorant, les concentrations "en atomes" colorants nécessaires pour faire varier significativement le contraste peuvent être assez importantes, de l'ordre de quelques pour cent. Le problème est particulièrement aigu dans le cas du marquage immunologique. Il s'agit d'utiliser la spécificité de certains récepteurs cellulaires pour une molécule particulière, en général une protéine. On peut localiser ces récepteurs en attachant à cette protéine une molécule de colorant pour la mi-

croscopie optique ou des atomes lourds pour la microscopie électronique, tout en conservant la spécificité de réaction.

Peut-on agir de même en microscopie X ? On peut se demander combien d'atomes lourds il faut attacher à la protéine pour la rendre visible. La figure 3-12 donne, d'un point de vue purement théorique, le contraste qu'on peut espérer entre protéine non marquée et protéine marquée. On a supposé avoir fixé un atome d'iode à une molécule de masse moléculaire 2000. Ceci montre bien que les dopages, aussi bien que les concentrations de colorants, devront être très élevés, trop élevés peut-être pour être réalisables.

D'un point de vue général, nous pensons que ce problème de la préparation des objets en vue d'augmenter le contraste et de diminuer les irradiations n'a pas encore été suffisamment pris en considération. Il est vrai que les dispositifs permettant de faire des images dans l'ensemble du spectre X mou ne sont pas nombreux et que les colorations par métaux

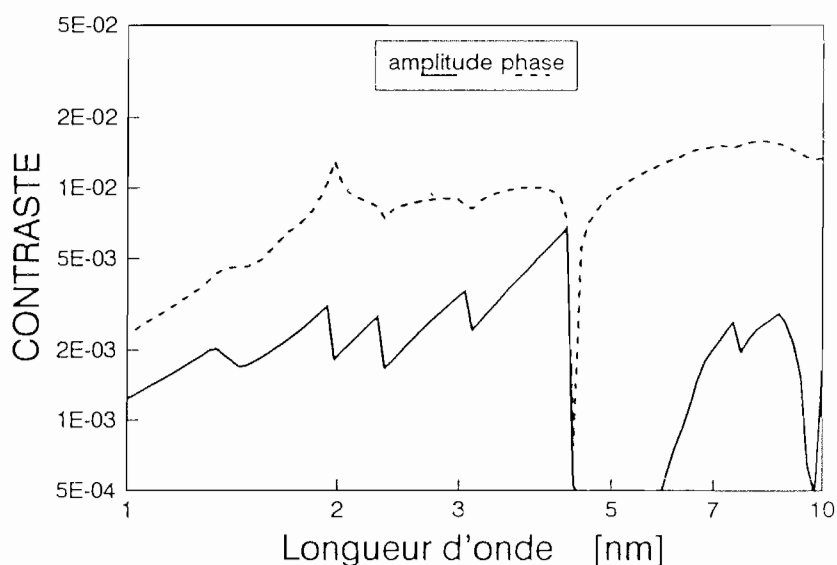


Figure 3.12

Contraste théorique d'une structure de 100 nm d'épaisseur composée d'une protéine et d'une protéine marquée par de l'iode à raison d'une molécule d'iode pour 2500 unités de masse atomique. Contraste d'amplitude en traits pleins ; contraste de phase en traits interrompus. Les discontinuités de la courbe d'absorption sont dues aux inversions de contraste.

lourds de la microscopie électronique peuvent, dans un premier temps, suffire [SHEN 1990]. L'observation à plusieurs longueurs d'onde d'un objet préparé nous semble également un enjeu d'importance

3.5 MICROANALYSE

Nous avons constamment noté, au cours de ce chapitre, l'influence de la composition chimique sur le contraste ou le signal recueilli. On peut se demander maintenant si ces variations permettent de dépasser le stade qualitatif et si oui, comment et avec quelle précision on peut mesurer la composition chimique. Parmi les différents modes d'imagerie étudiés, nous en retiendrons deux qui sont les plus susceptibles d'applications : la détection de la fluorescence X et la variation de l'absorption X au voisinage des seuils.

Dans ce qui suit, nous établirons d'abord les relations entre la masse locale de l'élément à détecter d'une part et, d'autre part, le signal de fluorescence ou le saut de transmission. Nous chercherons ensuite à définir les limites de détections, ainsi que les doses reçues par l'échantillon. Ces équations établies, nous pourrons les discuter simultanément et ainsi comparer entre elles les deux méthodes.

3.5.1 MICROANALYSE DE FLUORESCENCE X

Nous avons déjà exposé (§ 3.3.5) le principe de la détection du rayonnement de fluorescence. Rappelons simplement que le détecteur est chargé d'analyser en énergie le rayonnement de fluorescence ; c'est typiquement un détecteur solide. L'angle solide Ω sous lequel il collecte les photons de fluorescence est faible. La résolution spatiale est définie par la dimension du faisceau sonde et l'image est obtenue par balayage de l'objet (ce mode de formation d'image sera décrit au § 4.4.2-b, fig. 4.16).

Considérons un pixel de surface r^2 contenant une masse m d'un élément à détecter. Soit N_0 le nombre de photons X délivrés à ce pixel par le faisceau sonde pendant le temps d'une mesure. On cherche à détecter cet élément par l'intermédiaire d'une raie de fluorescence particulière sur laquelle est réglé l'analyseur.

Le nombre d'ionisations créées par la sonde au niveau

haut de la transition concernée s'exprime par :

$$N_i = N_0 \frac{\sigma_i}{r^2} \frac{N}{A} m \quad (3.40)$$

σ_i est la section efficace atomique d'ionisation du niveau d'énergie considéré, A la masse atomique de l'élément recherché.

Si on connaît la probabilité de fluorescence ω sur la transition recherchée, et l'angle solide de collection Ω , on peut calculer le nombre de photons de fluorescence reçus par le détecteur. En remarquant que la fluorescence est émise dans 4π , on obtient

$$N_d = N_i \omega \frac{\Omega}{4\pi} = N_0 \frac{\sigma_i}{r^2} \frac{N}{A} \frac{\Omega}{4\pi} \frac{m}{r^2} \quad (3.41)$$

Le résultat de la mesure de N_d permet de connaître la masse de l'élément cherché par unité de surface de l'objet $\mathfrak{M} = m/r^2$. Pour cela, il faut connaître le nombre de photons incidents sur l'objet, en effectuant par exemple une mesure du nombre de photons transmis par l'objet, et en appliquant les corrections nécessaires. D'autres corrections sont également nécessaires pour compenser les réabsorptions et fluorescences secondaires (effets de matrices).

Pour évaluer la limite de détection, J. Kirz admet encore une fois que le signal produit par une masse Δm est détectable lorsqu'il est au moins cinq fois supérieur au bruit de détection. En fait, si le détecteur est parfait, le signal est détectable dès qu'un seul photon atteint le détecteur ($S/B = 1$). L'emploi du critère de Rose, a ici la signification supplémentaire que la masse détectée Δm est également mesurable (quantifiable). Nous conservons néanmoins cette expression et considérons que pour mesurer une masse par unité de surface $\Delta \mathfrak{M}$, il faut un nombre de photons tel que :

$$N_0 > \frac{25}{N} \frac{A}{\sigma_i \omega} \frac{4\pi}{\Omega} \frac{1}{\Delta \mathfrak{M}} \quad (3.42)$$

Pour donner un ordre de grandeur, nous considérons un taux de collection

$$\Omega/4\pi = 10^{-2}$$

La relation entre la limite de détection et le nombre de photons nécessaire sur l'objet est alors

$$N_{0\min} = 4 \cdot 10^{-21} \frac{A}{\sigma_i \omega} \frac{1}{\Delta m} \quad (3.43)$$

Les courbes de la figure 3.13 donnent, en fonction de l'énergie du faisceau d'excitation, la valeur du coefficient $\sigma\omega/A$ pour les niveaux K de quelques éléments [KIRZ 1980].

On peut encore évaluer la dose absorbée par l'objet en fonction de la limite de détection imposée Δm . En reprenant l'équation (3.35) sous la forme :

$$D = N_0 \frac{\mu/\rho \, h\nu}{r^2} \quad (3.44)$$

où μ/ρ est le coefficient massique d'absorption moyen, on obtient la relation entre la dose minimale et la masse Δm de l'élément étudié présente dans la cellule d'analyse :

$$D = 4 \cdot 10^{-21} \mu/\rho \frac{A}{\sigma\omega} \frac{h\nu}{\Delta m} \quad (3.45)$$

avec les unités suivantes :

μ/ρ en $\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$; $A/\sigma\omega$ en g cm^{-2} ; $h\nu$ en eV ; Δm en g ;
 D en rad

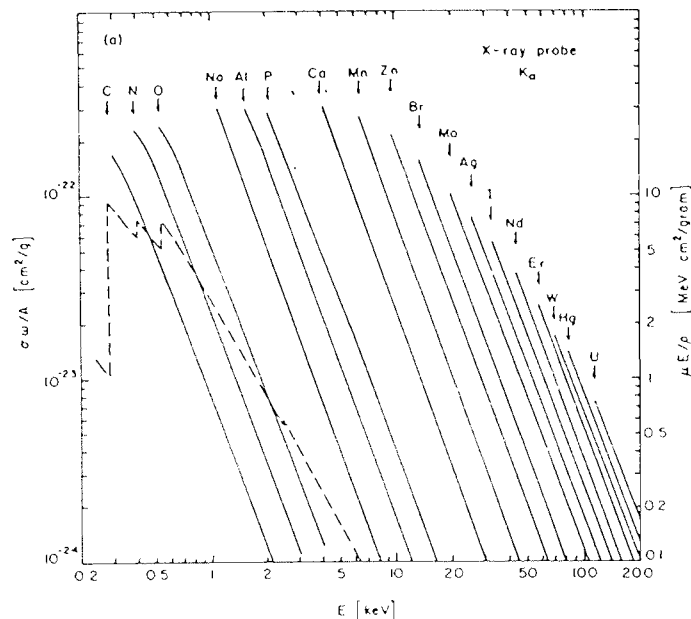


Figure 3.13

$\sigma\omega/A$ en fonction de l'énergie du faisceau X pour la raie K_α de fluorescence de divers éléments. Au dessous des énergies de seuil marquées par les flèches $\sigma = 0$ [extrait de KIRZ 1980].

Nous laissons momentanément la discussion de ces résultats, car auparavant nous allons établir les relations similaires dans le cas de la microanalyse d'absorption.

3.5.2 MICROANALYSE D'ABSORPTION

Le principe de la microanalyse d'absorption est extrêmement simple. Il s'agit de mesurer le saut d'absorption à une longueur d'onde de seuil d'un élément donné. En pratique, on fera deux mesures - deux images - à deux longueurs d'onde très proches situées de part et d'autre du seuil*. Contrairement à la précédente, c'est donc une méthode différentielle. Des exemples d'application en X durs figurent à l'annexe III.

De nouveau, nous calculons le nombre de photons reçus par le détecteur lorsqu'une masse $\mathfrak{M}_e$ de l'élément chimique considéré est présente par unité de surface de l'objet. On suppose que le pixel objet est soumis à la même irradiation globale N_0 photons, c'est-à-dire $N_0/2$ photons à λ_1 , et $N_0/2$ photons à λ_2 .

Le nombre de photons reçus par le détecteur à λ_1 et λ_2 peut s'écrire

$$\begin{aligned} \lambda_1 \quad : N_1 &= T(\lambda_1) N_0/2 \exp\left(-\frac{\mu_e(\lambda_1)}{\rho_e}\right)_2 \mathfrak{M}_e \\ \lambda_2 \quad : N_2 &= T(\lambda_2) N_0/2 \exp\left(-\frac{\mu_e(\lambda_2)}{\rho_e}\right)_2 \mathfrak{M}_e \end{aligned} \quad (3.46)$$

où l'on a distingué l'absorption par l'élément étudié caractérisé par le coefficient d'absorption μ_e/ρ_e de celle de la matrice (ensemble de tous les autres éléments) qui est elle-même caractérisée par la transmittance $T(\lambda) = \exp - \left(\sum_{i \neq e} \mu_i / \rho_i \mathfrak{M}_i \right)$ (cf. eq. 2.21).

* Avant le rayonnement synchrotron, il était pratiquement impossible d'obtenir deux longueurs d'ondes proches d'un seuil. C'est Yves Farge qui en 1977 a suscité la première expérience de type à DCI [POLACK 1977].

Si λ_1 et λ_2 sont suffisamment proches, on peut considérer que la transmittance de la matrice $T(\lambda)$ reste constante $T(\lambda_1) = T(\lambda_2) = T$ et dans ce cas

$$\mathfrak{M}_e = \frac{1}{\Delta(\mu/\rho)_e} \text{Log} (N_2/N_1) \quad (3.47)$$

On a noté $\Delta(\mu/\rho)_e$ la quantité $(\mu_e(\lambda_1) - \mu_e(\lambda_2))/\rho_e$ ou saut du coefficient d'absorption au seuil. C'est une valeur tabulée

Au cas où on ne peut écrire rigoureusement $T(\lambda_1) = T(\lambda_2)$ des corrections interviennent [BIGLER 1986]. De même, N_0 n'intervient pas, mais le nombre de photons a été supposé strictement identique dans les deux mesures. Le cas contraire impose évidemment d'autres corrections.

On évalue la limite de détection de la même façon que précédemment dans le cas de la fluorescence. On déduit les fluctuations statistiques sur la masse mesurée, des fluctuations sur les mesures de N_1 et N_2

$$\sigma(\mathfrak{M}) = \frac{1}{\Delta(\mu/\rho)_e} \left[\frac{\sigma(N_1)}{N_1} + \frac{\sigma(N_2)}{N_2} \right] \quad (3.48)$$

Puisqu'il s'agit de la détection d'une très faible masse surfacique, on peut considérer que $N_1 = N_2 = N = T N_0/2$ et par suite si η est la détectivité quantique équivalente du détecteur

$$\frac{N_2}{\sigma(\Delta N_2)} = \frac{N_1}{\sigma(N_1)} = \sqrt{\eta N} \quad (3.49)$$

Si nous considérons encore qu'une masse surfacique $\Delta\mathfrak{M}$ est juste détectable si le rapport signal sur bruit de la mesure vérifie $\Delta\mathfrak{M}/\sigma\mathfrak{M} > 5$ on a

$$\Delta\mathfrak{M} = \frac{10}{\sqrt{\eta T N_0/2} \cdot \Delta(\mu/\rho)_e} \quad (3.50)$$

On peut exprimer ce résultat sous la forme du nombre minimum de photons requis pour détecter une masse $\Delta\mathfrak{M}$ ou de la dose absorbée. Que la détection de l'image soit faite par un microscope à conversion d'image ou par un microscope à réseau de Fresnel, l'efficacité de détection est de quelques pour cent. Il est donc raisonnable de considérer que $\eta T \sim 10^{-2}$. On a alors

$$N_{0_{\min}} = 2 \times 10^2 \left[\frac{1}{\Delta \mathfrak{M} \Delta(\mu/\rho)_e} \right]^2 \quad (3.51)$$

et

$$\mathfrak{D} = 2 \times 10^2 \frac{\mu/\rho \ h\nu}{\Delta(\mu/\rho)_e} \frac{r^2}{\Delta \mathfrak{M}^2} \quad (3.52)$$

3.5.3 COMPARAISON ENTRE LES DEUX METHODES DE MICROANALYSE

En fonction des éléments chimiques, les sensibilités des deux méthodes varient comme $N\sigma\omega/A$ pour la fluorescence X et comme $\Delta(\mu/\rho)$ pour l'absorption X. Le coefficient $\sigma\omega/A$ est plus élevé pour les raies de fluorescence K, et il est maximum pour une énergie de photons ~ 5 KeV correspondant à $Z \sim 20$. Le coefficient $\Delta(\mu/\rho)$ qui intervient en microanalyse d'absorption décroît rapidement avec Z pour un seuil donné. Entre seuil K et L, il est préférable lorsque c'est possible, de choisir le seuil ; en effet $\Delta(\mu/\rho)$ décroît rapidement lorsque l'énergie de photon croît.

Un autre point de comparaison est que le nombre de photons nécessaire croît beaucoup plus vite avec la sensibilité de mesure ($1/\Delta \mathfrak{M}$) pour l'absorption que pour la fluorescence :

$N_0 \propto \left(\frac{1}{\Delta \mathfrak{M}} \right)^2$ pour l'absorption (éq. 3.51), au lieu de $\left(\frac{1}{\Delta \mathfrak{M}} \right)$ pour l'analyse de fluorescence (éq. 3.43). Cependant, la faible efficacité du processus de fluorescence et de sa détection ne rendent la méthode intéressante que pour les faibles concentrations. On s'en rendra mieux compte sur un exemple.

Nous supposons que nous cherchons à détecter la présence de calcium dans un échantillon où sa masse surfacique atteint 10^{-7} g/cm² (si le calcium est localisé dans une structure de 0,2 μ m d'épaisseur, cela représente une concentration de $5 \cdot 10^{-3}$ environ).

Si nous détectons par fluorescence, on utilisera de préférence la raie K_α et une excitation de 5 KeV pour laquelle le coefficient $\frac{\sigma\omega}{A}$ vaut environ 2×10^{-22} cm²/g. Le nombre de photons minimum pour détecter en fluorescence sera alors $N_{0_F} \simeq 2 \times 10^8$ photons/pixel.

Pour détecter le même objet par absorption, on choisira plutôt de travailler au voisinage du seuil L du calcium ($\lambda = 3,5$ nm), où le saut du coefficient d'absorption massique est $\Delta(\mu/\rho)_{Ca} = 4 \times 10^4$ cm²/g. Dans ce cas, le nombre de pho-

tons nécessaire est

$$N_{0_A} = 1.2 \times 10^7 \text{ photons/pixel}$$

ce qui montre bien que pour des concentrations $\geq 10^{-3}$ l'analyse d'absorption présente un certain avantage exprimé en terme de nombre de photons requis.

Si maintenant, nous nous intéressons à la dose absorbée par l'objet, il faut tenir compte du fait que les énergies de photons sont très différentes et qu'à nombre de photons identique la dose varie comme $E \mu(E)$ et décroît rapidement avec l'énergie de photon. Dans le cas présent, les doses sont sensiblement identiques, mais considérables, de l'ordre de 1 rad/cm^2 (10^8 rad pour un pixel de $1 \mu\text{m}^2$). La discussion générale de ce problème n'est pas simple. A titre indicatif, nous donnons simplement sur la figure 3.14, les courbes publiées par J. Kirz qui permettent de donner un ordre de grandeur [KIRZ 1980].

De façon qualitative, les domaines d'application de chacune des méthodes sont les suivants :

- Microanalyse X de fluorescence

Elle est surtout intéressante pour **les faibles et très faibles concentrations** réparties sur une grande surface. Elle est **d'autant plus efficace que les éléments détectés ont une masse atomique élevée** et que les énergies de photons employées sont plus grandes. Rappelons que pour faire de l'analyse de fluorescence X on a le plus souvent besoin d'une sonde et que, à ces énergies, i) on ne sait pas focaliser les rayons X à mieux de $1 \mu\text{m}$ de résolution, ii) l'efficacité de cette collection dépend beaucoup du diamètre de la tache. Ceci explique que l'analyse de fluorescence X ait surtout été appliquée à l'étude de traces dans des matériaux homogènes.

- Microanalyse d'absorption X

Le microanalyse d'absorption est surtout intéressante pour **localiser des éléments concentrés** dans une petite structure de l'objet. Elle est **d'autant plus efficace que l'on peut utiliser un seuil à plus basse énergie**. Dans tous les cas, les doses auxquelles l'objet sera soumis resteront très élevées, mais c'est le lot commun de, pratiquement, toute méthode d'analyse (figure 3.14). Cela signifie clairement qu'il ne sera possible d'analyser que des objets spécialement fixes et préparés.

- Comparaison avec les microanalyses utilisant des particules chargées

Des microanalyses de mêmes types peuvent être également réalisées avec des particules chargées. Pour la fluorescence X, on peut utiliser des protons (PIXE) ou des électrons (microsondes électroniques). Dans ces deux cas, la résolution est limitée par la diffusion des photoélectrons dans la cible ($\sim 1 \mu\text{m}$) et les doses absorbées sont grandes. Avec les électrons on peut réaliser un équivalent de l'analyse d'absorption aux seuils, l'analyse des pertes d'énergie électroniques aux seuils (EELS). Parce que l'on détecte des électrons transmis, la résolution est celle d'un microscope électronique. Les doses nécessaires restent faibles pour les seuils à basse énergie (éléments légers).

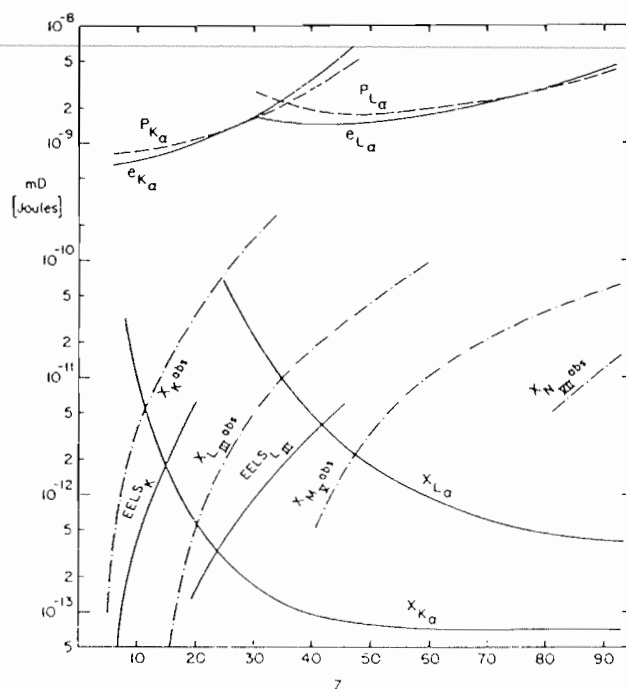


Figure 3.14

Comparaison du produit $m \varnothing$ = masse détectée $\times$ dose absorbée pour quelques méthodes de microanalyse [Extrait de KIRZ 1980]. La fluorescence X est notée X_K ou X_L , les autres méthodes de fluorescence sont notées selon les particules utilisées électrons ou protons. Les courbes d'absorption X ($X_K \text{ abs}$ et $X_L \text{ abs}$) sont établies pour une masse surfacique de 10^{-7} g/cm^2 . Les courbes EELS correspondent à l'analyse des pertes d'énergie d'électrons.

3.6 CONCLUSION

En conclusion de ce chapitre, nous constatons que l'intérêt de la microscopie X ne se borne pas à sa capacité, au demeurant remarquable, à produire des images à haute résolution d'objets biologiques vivants. Toute une gamme d'applications sont envisageables, parce que le faisceau transmis est modulé en amplitude et phase ; les effets sont différents selon la longueur d'onde ("couleur"). La préparation des objets ne doit pas être seulement conçue comme un mal nécessaire, mais plutôt comme un moyen d'exploration supplémentaire. Avec le développement de la microscopie X, on commence à voir apparaître des réalisations qui correspondent aux diverses formes d'observation que nous avons citées. Il est particulièrement intéressant de constater que le dernier congrès de microscopie X a, pour la première fois, donné lieu à plusieurs communications sur les problèmes de dose absorbée et de préparation des objets [X-ray Microscopy III].

Pour notre part, les méthodes que nous avons cherché à développer s'inscrivent dans cette logique. La microscopie de contact par conversion d'image (partie II), bien qu'elle ne permette d'observer les objets qu'en contraste d'absorption, autorise un large choix de longueurs d'onde et permet, en particulier, de faire de la microanalyse d'absorption. La microscopie holographique, quant à elle, enregistre la phase et l'amplitude de l'onde transmise par l'objet et permet donc d'observer en contraste optimal.

CHAPITRE 4

L'OPTIQUE X

L'ambition de ce chapitre est de présenter un tableau général de l'évolution des techniques en matière d'optique des rayons X, plus spécialement dans le domaine des X mous.

Cette notion d'optique X couvre un domaine très vaste : au difficile problème de la focalisation s'ajoutent en effet ceux de la production des rayons X et de leur détection efficace. Comme en optique classique, ces divers éléments permettent de développer une optique instrumentale spécifique aux rayons X.

Ce chapitre est divisé en quatre sections. Dans la première, consacrée aux sources de rayons X, nous décrivons les principaux types d'émission : bombardement électronique, rayonnement synchrotron, émission de plasma, en situant leurs propriétés essentielles par rapport à une utilisation en microscopie X. Une deuxième section résumera rapidement les caractéristiques des principaux détecteurs. Plus d'importance sera consacrée aux moyens permettant de focaliser les rayons X : miroir et réseau, dont les qualités comme les défauts ont une importance extrême lorsqu'il s'agit de définir un dispositif de microscopie X. Pour les applications instrumentales développées dans la section 4, nous nous restreindrons aux diverses techniques de microscopie X.

4.1 SOURCES DE RAYONS X MOUS

Les processus qui conduisent à la production de rayons X se répartissent en deux classes. Dans la première, le photon X résulte de la désexcitation radiative d'un atome ionisé en couche interne. Dans ce cas, la source émet un spectre de raies correspondant aux transitions possibles d'un électron externe vers le niveau vacant. Ce type d'émission prédomine dans les sources classiques où une cible solide de faible Z est soumise à un bombardement électronique et dans les sources à plasma.

Des rayons X sont également émis lorsqu'une particule chargée (généralement un électron) est soumise à une accélération. Le spectre est alors continu. A cette classe de processus se rattachent le rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) des sources classiques à bombardement électronique, et le rayonnement synchrotron.

Pour comparer entre elles ces différentes sources, il est important de choisir la grandeur photométrique qui intervient dans le calcul du nombre de photons transmis par un microscope X. Nous pouvons supposer que la résolution du système optique est proche de la limite par la diffraction. Sa résolution r , et son ouverture α , sont alors liées par $r \sim \lambda/2\alpha$. L'étendue géométrique acceptée ne dépend donc que du nombre de points dans le champ, N , et de la longueur d'onde : $\epsilon = N \lambda^2$. En mode image, le nombre de point ne dépasse guère 1000×1000 . On arrive ainsi à une étendue dont l'ordre de grandeur est $\sim 1 \mu\text{m}^2 \text{ sr}$ ($= 1 \text{ mm}^2 \text{ mrad}^2$, en unités pratiques pour le rayonnement synchrotron). En mode balayage, $N = 1$, l'étendue n'est plus que $10^{-6} \mu\text{m}^2 \text{ sr}$. Ces étendues sont petites devant celles des sources de rayons X. C'est alors la luminance, nombre de photons émis dans l'unité d'étendue géométrique, qui permet de calculer le flux admis dans un instrument. Nous caractériserons donc les différentes sources de rayons X utilisées en microscopie, par leur luminance (spectrale).

4.1.1 RAYONNEMENT SYNCHROTRON

Lorsqu'une particule chargée, se déplaçant à une vitesse relativiste, est soumise à un champ magnétique, elle reçoit une accélération transversale et, de ce fait, rayonne. Dans le référentiel lié à la particule, ce rayonnement se calcule à partir de la formule de LARMOR. Ce même rayonnement observé dans le référentiel du laboratoire est concentré dans un cône très étroit autour de la direction du mouvement et la demi-

divergence angulaire est

$$\Delta\theta \sim \frac{1}{\gamma} \quad (4.1)$$

γ est le facteur relativiste, rapport de l'énergie de la particule E à son énergie au repos $m_0 c^2$

$$\gamma = E/m_0 c^2 = 1957 \cdot E[\text{GeV}] \quad (4.2)$$

La relation (4.1) permet de déduire l'essentiel des propriétés du rayonnement synchrotron.

a) Rayonnement dans un champ uniforme

Pour calculer le spectre de la source, nous partirons de la structure temporelle de l'émission. Si e est la charge de la particule, B la composante transverse du champ, le rayon de courbure de la trajectoire est

$$\rho = \frac{m_0 c}{eB} \gamma \quad (4.3)$$

et la fréquence propre de rotation sur la trajectoire est :

$$\nu_p = \frac{e B}{2\pi \gamma m_0} \quad (4.4)$$

L'observateur du laboratoire ne reçoit qu'une impulsion émise sur la fraction $2 \Delta\theta$ de la trajectoire. L'électron ayant une vitesse proche de celle des photons émis la durée de cette impulsion est réduite du facteur de correction relativiste

$[1 - 1/\gamma^2]^{-1/2} - 1 = 1/2\gamma^2$, et est donc :

$$\Delta t = \frac{2\rho \Delta\theta}{2 c \gamma^2} = \frac{m_0}{\gamma^2 eB} \quad (4.5)$$

La source rayonne donc des harmoniques très élevés de ν_p ($\nu_p \Delta t \sim 10^9$) ; elle fournit un spectre continu de l'infrarouge aux rayons X. Ce rayonnement est émis dans une nappe d'ouverture $\sim 1/\gamma$ centrée sur le plan de l'orbite.

Le calcul que nous venons d'esquisser peut être effectué complètement [e.g. KRINSKY 1983]. Il permet de connaître, pour

les deux polarisations, l'intensité émise par la source à une longueur d'onde λ , dans une direction faisant un angle ψ avec le plan de la trajectoire.

Nous donnons ci-dessous l'expression exacte de cette intensité, pour les deux composantes de polarisation, en exprimant les différents paramètres dans des unités pratiques :

Energie des électrons : E en GeV

Courant électronique : I_e en A

Intensité émise : $I_{\parallel}$ et $I_{\perp}$, en photons $s^{-1} \text{ mrad}^{-2}$
pour une bande passante $\Delta\lambda/\lambda = 1\%$

• La composante polarisée dans le plan de l'orbite est :

$$I_{\parallel}(\lambda, \psi) = 1.33 \times 10^{14} E^2 I_e \left[\frac{\lambda_c}{\lambda} (1 + \gamma^2 \psi^2) K_{2/3}(Y) \right]^2 \quad (4.6)$$

• la composante perpendiculaire au plan de l'orbite :

$$I_{\perp}(\lambda, \psi) = 1.33 \times 10^{14} E^2 I_e (1 + \gamma^2 \psi^2) \left[\gamma \psi \frac{\lambda_c}{\lambda} K_{1/3}(Y) \right]^2 \quad (4.7)$$

dans ces expressions les fonctions $K_{1/3}$ et $K_{2/3}$ sont des fonctions de Bessel modifiées d'ordre fractionnaire. Leur argument, y , est donné par l'expression :

$$y = \frac{\lambda_c}{2\lambda} (1 + \gamma^2 \psi^2)^{3/2}$$

Le paramètre λ_c est la longueur d'onde critique qui caractérise le spectre émis ; son expression (à rapprocher de Δt , éq. 4.5) est :

$$\lambda_c = \frac{4\pi}{3} \frac{\rho}{\gamma^3} = \frac{4\pi}{3} \frac{m_0 c}{\gamma^2 eB} \quad (4.8)$$

en unités pratiques

$$\lambda_c [\text{\AA}] = \frac{18.6}{E^2 [\text{GeV}] B [\text{T}]}$$

L'intensité spectrale est maximale sur l'axe et ne dépend que de la longueur d'onde critique par l'intermédiaire d'une fonction G , $G(y) = (y K_{2/3}(y/2))^2$ (fig. 4.1) :

$$I(\lambda, 0) = 1.33 \times 10^{14} E^2 I_e G(\lambda_c/\lambda) \quad (4.9)$$

Il est important de pouvoir disposer d'une longueur d'onde critique proche des plus courtes longueurs d'onde d'utilisation. En pratique $\lambda_c/4 < \lambda$.

Ordre de grandeur de l'intensité spectrale

pour super ACO : $E = 0,8 \text{ GeV}$;
 $I_e = 300 \text{ mA}$
 $\lambda = \lambda_c = 1,85 \text{ nm}$

$I(\lambda, 0) = 3,7 \cdot 10^{13} \text{ photons s}^{-1} \text{ mrad}^{-2}$ dans 1% de bande passante

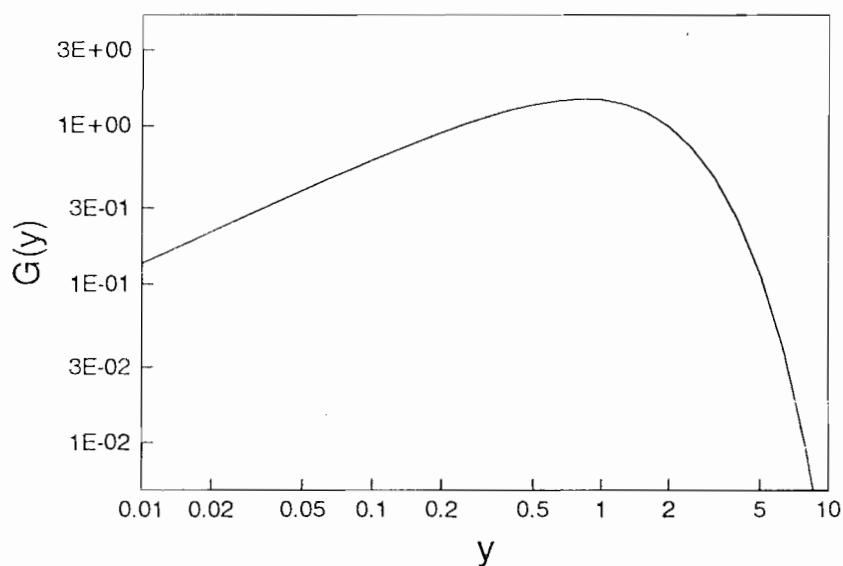


Figure 4.1

Fonction $G(y)$ qui décrit la distribution spectrale de luminance du rayonnement synchrotron, en fonction du paramètre sans dimension $y = \lambda_c/\lambda$.

b) Emission dans un champ périodique

On appelle onduleur un dispositif dans lequel le faisceau d'électrons est contraint par un champ magnétique à osciller autour de sa trajectoire moyenne. Le rayonnement émis par un tel dispositif a des propriétés de collimation différentes de celui émis dans un champ uniforme.

Nous considérons un onduleur plan dans lequel le champ magnétique a pour expression

$$B = B_0 \cos (2\pi y/\ell_0) \quad (4.12)$$

La trajectoire d'un électron est alors sensiblement sinusoidale, l'angle de déviation maximum étant

$$\delta = \frac{e B_0 \ell_0}{2\pi \gamma m_0 c} \quad (4.13)$$

On définit le paramètre de déviation $K = \gamma \delta$ comme le rapport de l'angle maximum de déviation à la demi-largeur synchrotron ($1/\gamma$). En unités pratiques :

$$K = \gamma \delta = 0,934 \ell_0 [\text{cm}] \cdot B_0 [\text{T}] \quad (4.14)$$

L'onde rayonnée par un électron oscillant autour de l'axe de l'onduleur est en phase avec le mouvement. Observée sur l'axe, sa longueur d'onde est

$$\lambda_1 = \frac{\ell_0}{2\gamma^2} (1 + K^2/2) \quad (4.15)$$

Le dernier terme de (4.15) traduit l'allongement de la trajectoire sous l'influence du champ B. Le facteur $1/2\gamma^2$ est l'effet relativiste. Le spectre d'émission se déduit encore de la structure temporelle de l'impulsion lumineuse reçue par l'observateur, et selon la valeur du paramètre K différents comportements sont observés.

1) $K \ll 1$

L'observateur placé sur l'axe reste constamment au centre du cône d'émission. Si N est le nombre de périodes du champ magnétique, il reçoit un train de N ondes de longueur d'onde λ_1 : l'onduleur rayonne une raie unique de largeur spectrale

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda_1} = \frac{1}{N}$$

et

$$\lambda_1 \simeq \lambda_0 = \frac{\ell_0}{2\gamma^2} \quad (4.16)$$

2) $K \gg 1$

L'observateur placé sur l'axe voit maintenant un train de $2N$ impulsions brèves de rayonnement émis par chacun des $2N$ pôles de l'onduleur. Leur largeur correspond à la longueur d'onde critique donnée par l'équation 4.7,

$$\lambda_c = \frac{4\pi m_0 c}{3 \gamma^2 e B_0}$$

et, en utilisant la valeur de K fournie par 4.13 et 4.14

$$\lambda_c = \frac{2 \ell_0}{3 K \gamma^2} = \frac{2 \lambda_0}{3 K} \quad (4.17)$$

Dans le cas d'un onduleur parfait et pour une observation sur l'axe, les impulsions provenant des différents pôles sont en phase pour tous les harmoniques de la longueur d'onde fondamentale λ_1 . On aura un spectre d'harmoniques à l'intérieur d'une enveloppe de type rayonnement synchrotron. La longueur d'onde de l'harmonique p est :

$$\lambda_p = \lambda_0 \frac{(1 + K^2/2)}{p} \quad (4.18)$$

et sa largeur spectrale $\frac{\Delta\lambda}{\lambda_p} = \frac{1}{N p}$

L'intensité crête de chaque harmonique se calcule par les expressions d'émission dans un champ uniforme correspondant à la longueur d'onde critique λ_c de l'onduleur. Par commodité nous notons $I_{RS}(\lambda/\lambda_c)$ l'intensité émise dans un champ uniforme (cf. eq. 4.6, 4.7 et 4.9). L'intensité crête de l'harmonique p s'exprime alors par :

$$I_p = 4 N^2 I_{RS}(\lambda/\lambda_c) \quad (4.19)$$

Bien entendu, la conditions d'accord de phase changent avec l'angle d'observation : à une direction hors axe correspond un spectre d'harmonique décalé.

- Si l'onduleur n'est pas parfait, la mise en phase des impulsions n'est plus exacte. L'effet est d'autant plus sensible que l'harmonique est élevé. A cet effet, il faut ajouter pour les sources réelles l'effet de la dispersion des trajectoires qui brouille la sélection angulaire. A la limite, l'intensité

résultante est la somme des intensités des différentes sources

$$\begin{aligned} I_p &\longrightarrow 2N I_{RS} (\lambda/\lambda_1) \\ \frac{\Delta\lambda}{\lambda_p} &\longrightarrow \lambda/p \quad (\text{spectre continu}) \end{aligned} \quad (4.20)$$

Ce mode de fonctionnement est généralement appelé "régime Wiggler".

La figure (4.2) montre les spectres observables pour différentes valeurs de K .

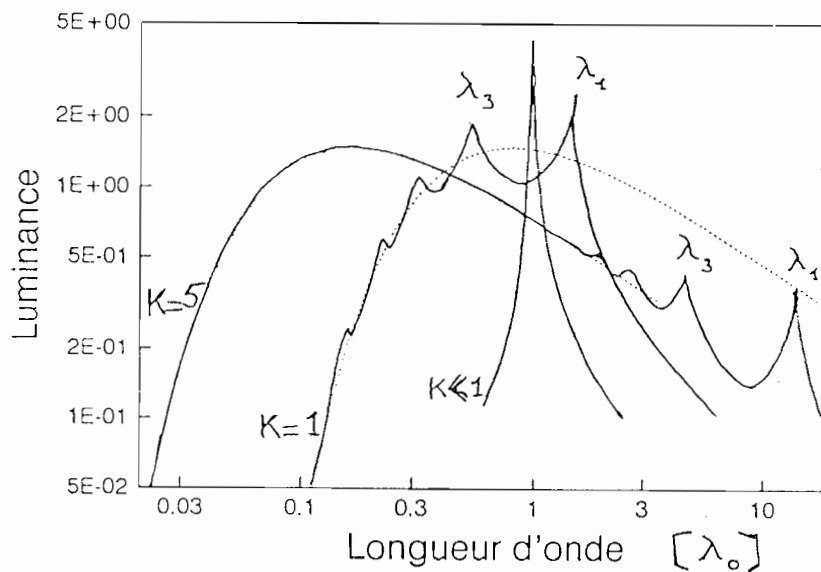


Figure 4.2

Forme du spectre de rayonnement émis par un onduleur, en fonction du paramètre de modulation K . Plus on travaille à une longueur d'onde inférieure à la longueur d'onde fondamentale λ_0 , plus il faut utiliser un K élevé.

Si on ne tient pas compte des diverses causes d'élargissement spectral, l'intensité rayonnée est calculable [THIRY 1983]. En pratique, ces expressions ne sont utilisables que pour les tout premiers harmoniques. Au delà, il faut au moins tenir compte de l'étendue du faisceau électronique (émittance en "langage machine") [JACOBSEN 1988-c, RARBACK 1988-b]. Pour les harmoniques d'ordre élevé, on aura une très bonne approximation en supposant le spectre continu

$$I_{\text{ond}}(\lambda, \varphi, \psi) = 2N I_{\text{RS}}(\lambda_c(\psi)/\lambda, \varphi) \quad (4.21)$$

où $I_{\text{RS}}(\lambda_c/\lambda, \varphi)$ est donné, selon la polarisation par les équations (4.6) ou (4.7) et la longueur d'onde critique par :

$$\lambda_c(\psi) = \frac{2}{3} \frac{\ell_0}{K\gamma^2} \left(1 - \frac{\gamma^2 \psi^2}{K^2} \right)^{-1/2} \quad (4.22)$$

Cette expression tient compte de la variation de la courbure de la trajectoire au point d'émission, selon l'angle d'observation ψ dans le plan de la trajectoire.

c) Machines de rayonnement synchrotron

Parce que la masse des particules intervient dans la détermination de la longueur d'onde critique, les machines conçues pour la production de rayonnement synchrotron utilisent soit des électrons, soit des positons (nous l'avons implicitement supposé dans les valeurs numériques précédentes).

Ces particules sont maintenues sur des orbites fermées à l'intérieur d'une chambre à vide annulaire (pression résiduelle $\sim 10^{-10}$ mb), par l'intermédiaire d'aimants de déviation et de lentilles magnétiques quadrupolaires et hexapolaires. Les machines modernes ménagent entre ces éléments un certain nombre de "sections droites". Dans l'une d'elles, une cavité radiofréquence (RF) fournit une impulsion qui, à chaque traversée, compense l'énergie rayonnée sur un tour. De cette façon les électrons sont groupés en paquets dont l'intervalle de passage est un multiple de la période RF (~ 10 ns). La durée de l'impulsion dépend des conditions de fonctionnement (autour de 100 ps sur Super ACO). Deux autres sections droites sont occupées par des dispositifs qui permettent d'injecter des particules préaccélérées dans la machine.

Le rayonnement est émis dans les aimants de déviation, où les particules sont soumises à un champ magnétique uniforme et

décrivent des trajectoires circulaires comme nous l'avons montré précédemment. On peut également insérer des onduleurs et des "wigglers" dans les sections droites disponibles.

La structure spatiale de l'émission d'une machine réelle est légèrement différente de celle qui est calculée pour un seul électron. Il faut en effet tenir compte de l'étendue géométrique des trajectoires électroniques au point d'émission. Les faisceaux électroniques stables sont des faisceaux gaussiens caractérisés par les écarts quadratiques moyens σ_x et σ_z de la distribution de position :

$$P(x, z) = \exp \left[-\frac{x^2}{2 \sigma_x^2} - \frac{z^2}{2 \sigma_z^2} \right] \quad (4.10)$$

De même, σ'_x et σ'_z caractérisent la distribution angulaire des trajectoires.

Par rapport à l'intensité théorique rayonnée par un seul électron, l'intensité réelle fait intervenir la convolution :

$$I(\theta, \psi) = I_{\text{e l.}}(\theta, \psi) * \exp \left[-\frac{\theta^2}{2 \sigma'^2_x} - \frac{\psi^2}{2 \sigma'^2_z} \right] \quad (4.11)$$

Nous avons remarqué dès le début de ce paragraphe 4.1 que la grandeur photométrique qui permet de calculer le flux admis dans un instrument, et par suite de comparer les sources entre elles, est la luminance. Ceci reste encore vrai du rayonnement synchrotron dont l'étendue d'émission dans une direction est généralement de l'ordre 1 mm mrad. La luminance fait intervenir la dimension de la source électronique et se calcule par :

$$L(\theta, \psi, x, z) = \frac{I(\theta, \psi)}{2\pi \sigma_x \sigma_z} \exp \left[-\frac{x^2}{2 \sigma_x^2} - \frac{z^2}{2 \sigma_z^2} \right] \quad (4.12)$$

Remarque : Dans bien des cas, la divergence du faisceau électronique σ' est très inférieure à la divergence naturelle synchrotron $1/\gamma$. On peut alors négliger la convolution de l'équation 4.11.

d) Cohérence

Les propriétés de cohérence d'un faisceau de rayonnement synchrotron sont entièrement contenues dans les caractéristiques de luminance spectrale que nous venons d'établir.

1) Cohérence temporelle

La cohérence temporelle est liée à la longueur du train d'onde ou, ce qui revient au même, à la largeur spectrale. Les sources de rayonnement synchrotron sont donc généralement incohérentes temporellement. Même dans le cas d'un onduleur dans le régime $K \ll 1$, la cohérence temporelle est faible $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{1}{N}$, avec $N \sim 20$.

Avec les onduleurs de LURE, les longueurs d'onde qui peuvent être obtenues en régime onduleur $K \ll 1$ sont beaucoup plus grandes, ~ 100 nm, que celles qui nous intéressent. Toutefois, la cohérence temporelle peut être facilement obtenue derrière un monochromateur.

2) Cohérence spatiale

Dans le développement précédent, nous avons implicitement supposé l'incohérence spatiale de la source en écrivant l'intensité rayonnée comme le produit de celle qui est émise par un seul électron par le nombre d'électrons. En effet, la dispersion des trajectoires et celle des énergies cinétiques font qu'il n'y a pas de relation de phase stable entre les mouvements des divers électrons. Il s'ensuit que les différents points de la source rayonnent de façon incohérente.

La source est cependant cohérente si sa dimension physique est petite devant la tache de diffraction d'un faisceau de même ouverture, c'est-à-dire

$$\sigma' \sim 1/\gamma < \lambda/\sigma \quad (4.23)$$

Sur les machines de LURE avec $\sigma \sim 0,5$ mm et $\gamma \simeq 10^3$, cela n'est possible que pour des longueurs d'ondes supérieures à ~ 100 nm. On peut cependant obtenir une cohérence spatiale suffisante pour réaliser des interférences en n'utilisant qu'une faible étendue géométrique de la source $S \Omega < \lambda^2$. C'est encore la luminance spectrale qui caractérise le flux disponible en fonction de la cohérence requise. Nous reviendrons sur ce point dans les chapitres consacrés à l'holographie.

e) Propriétés des sources utilisées à LURE

Pour les expériences qui sont rapportées dans ce mémoire trois sources ont été principalement utilisées. Une source aimant (A8) et la source onduleur d'ACO ; la source onduleur U7 de Super-ACO. Les caractéristiques de ces différentes sources figurent dans la table ci-dessous (table 4.1) et leurs luminances spectrales sont portées sur la figure 4.3.

	ACO		Super-ACO	
	Aimant	Onduleur	Aimant	Onduleur
Energie [GeV]		0,54		0,8
Courant max [A]		0,15		0,4
λ critique [nm]	3,9		1,85	
Caractéristiques de l'onduleur				
période [cm]		7,8		13
Nb. périodes		17		20
Champ max. [T]		0,35		0,45
K max.		2,5		5
λ fondamental [nm]				
à $K \ll 1$		35		32,5
à k max.		145	K=3	180
			K=5	440
λ critique [nm]	k=2.5	18	K=3	11,8
			K=5	7,0
Caractéristiques des faisceaux				
σ_x [mm]		1,5	0,2	0,48
σ_z [mm]		1,5	0,15	0,2
σ_x' [mrad]		0,2	0,4	0,07
σ_z' [mrad]		0,1	0,02	0,02
$1/\gamma$ [mrad]		0,95		0,64
K_{max}/γ [mrad]		2,4		3,2

Table 4.1

Caractéristiques des sources de rayons X mous de LURE

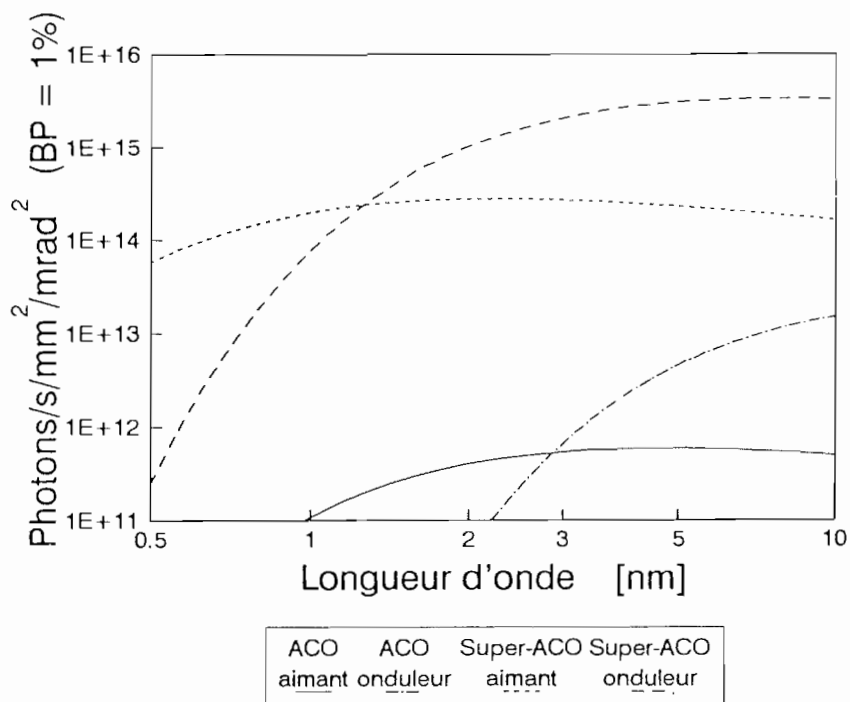


figure 4.3

Luminances spectrales des sources de rayons X mous de LURE

4.1.2 SOURCES A BOMBARDEMENT ELECTRONIQUE

Avant le rayonnement synchrotron, le bombardement d'une cible solide par un faisceau d'électrons est resté pendant près de 100 ans la seule façon pratique de produire des rayons X. Ces sources, de dimensions modestes à l'échelle du laboratoire, demeurent les sources classiques de rayons X, en cristallographie comme dans le domaine médical.

Lorsqu'un faisceau d'électrons de quelques dizaines de kV est focalisé sur une cible solide, des rayons X sont produits selon deux processus :

a) Rayonnement de freinage (Bremsstrahlung)

Par interaction avec les noyaux atomiques chargés positivement, les électrons sont décélérés. Il en résulte une émission X à spectre continu, assez proche du rayonnement synchrotron, à ceci près que l'accélération est essentiellement axiale et les vitesses non relativistes. Pour cette raison, l'intensité émise présente un minimum dans l'axe d'incidence des électrons. En première approximation, l'intensité spectrale

s'exprime simplement en fonction de l'énergie du photon E par

$$I_b(E) \propto K Z (E_0 - E) \quad (4.24)$$

où E_0 est l'énergie des électrons incidents,
 Z le numéro atomique de la cible.

Le rendement global (toutes longueurs d'ondes confondues) de conversion énergétique est faible, de l'ordre de 10^{-3} .

$$\eta_c \simeq k Z E_0 \quad \text{avec} \quad k \sim 10^{-9} \text{eV}^{-1} \quad (4.25)$$

b) Emission de fluorescence

Les atomes ionisés par le faisceau d'électrons peuvent retourner à l'état fondamental en cédant leur énergie à un photon de fluorescence de longueur d'onde caractéristique (cf. chap. 2). La probabilité de ce type d'émission dépend à la fois du rendement d'ionisation et du rendement de fluorescence de la cible. Le rendement quantique (photons émis/électron incident) peut être estimé entre 10^{-3} , pour les matériaux de Z élevé, et 10^{-4} , pour ceux de Z faible. Le rendement énergétique global reste du même ordre que celui du rayonnement de freinage, mais l'émission est concentrée dans une raie spectrale étroite [cf. COSSLETT 1960, pp. 226-232].

Suivant les caractéristiques du faisceau électronique, on pourra privilégier l'un ou l'autre type d'émission. Pour obtenir un spectre continu, on utilisera un matériau cible de fort Z (souvent W) et l'énergie d'excitation sera choisie proche de celle du photon de fluorescence $E_0 \sim E_f$. On aura au contraire un bon contraste de la raie de fluorescence en opérant avec $E_0 \sim 3 E_f$.

c) Luminance maximale d'une source classique

Le seul paramètre libre pour optimiser la luminance spectrale d'une source classique est la densité de courant sur la cible. On ne peut en effet modifier l'angle solide d'émission et, pour un matériau donné, l'énergie du faisceau d'électron doit être fixée à environ $3 E_f$ ce qui impose le rendement quantique.

Cosslett et Nixon, dans une étude très complète de l'optimisation d'une source X classique [COSSLETT 1960, pp. 217-223], montrent que la plus forte densité de courant est obtenue

nue en focalisant en une petite tache les électrons provenant d'une source aussi étendue que possible. La densité de courant croît en raison inverse de la dimension de la tache image. La valeur maximale est atteinte pour un diamètre de tache d'environ $1\text{ }\mu\text{m}$ lorsque l'aberration sphérique de l'optique électronique contraint à limiter l'ouverture. On peut alors atteindre une densité de courant de l'ordre de 10^2 à 10^3 A/mm^2 . En fait, une telle densité de courant excède généralement les possibilités de dissipation thermique de la cible ($\sim 0,1\text{ W }\mu\text{m}^{-2}$). De fait, 10 à 10^2 A.mm^{-2} semblent être des valeurs extrêmes pour la densité de courant. En admettant un rendement quantique de 10^{-3} (à $\lambda \sim 1\text{ }\text{\AA}$), on obtient une valeur maximale de la luminance de l'ordre de $10^{16}\text{ photons mm}^{-2}\text{ sr}^{-1}\text{ s}^{-1}$, ce qui, compte tenu de la largeur d'une raie caractéristique $\Delta\lambda/\lambda \sim 10^{-3}$ et en exprimant la luminance spectrale dans les mêmes unités que celles que nous avons utilisées pour le rayonnement synchrotron, conduit pour la luminance spectrale maximale à l'estimation suivante :

$$L_{\text{max}} \approx 10^{11}\text{ photons s}^{-1}\text{ mm}^{-2}\text{ mrad}^{-2}\text{ dans B.P.} = 1\% \quad (4.26)$$

Une telle source est toutefois très brillante puisque sa brillance spectrale de l'ordre $10^{17}\text{ photons s}^{-1}\text{ mm}^{-2}$ dans B.P. = 1 %, est proche de celle d'un onduleur. C'est la différence des angles solides d'émission associée au fait que l'on ne sait pas réaliser des optiques X de grande ouverture qui sépare les deux types de sources.

Notons également que l'efficacité décroît aux grandes longueurs d'onde. Pour une raie d'émission dans les X mous, $C_{K\alpha} \approx 44\text{ }\text{\AA}$ par exemple, un calcul semblable au précédent conduit à des valeurs de luminance inférieures de 1 à 2 ordres de grandeur.

4.1.3 SOURCES X A PLASMA

Un plasma dont la densité et la température sont suffisants émet des rayons X par les mêmes mécanismes qu'une source classique : Bremsstrahlung et émission sur des transitions caractéristiques. Les plasmas peuvent être obtenus de différentes façons : décharges dans un gaz, implosion de cibles solides, impacts laser, cette dernière méthode paraissant la plus étudiée. Dans tous les cas, il s'agit de sources pulsées émettant une impulsion X de forte intensité pendant un temps très bref : quelques nanosecondes.

Il faut faire la distinction entre deux sources X à plasmas : les sources de rayonnement spontané et les sources de rayonnement stimulé qui sont très fréquemment appelées improprement : "lasers à rayons X".

a) Sources plasmas de rayonnement spontané

Dans la plupart des cas, les plasmas émettent un spectre composé d'un grand nombre de raies, correspondant aux niveaux excités des divers atomes ionisés présents dans le plasma, superposés à un fond continu de Bremsstrahlung provenant de l'interaction des électrons libres du plasma avec les noyaux atomiques. Le spectre est fortement dépendant de la densité et de la température du plasma et, lorsque le plasma est créé par une impulsion très brève et énergétique, son émission est concentrée dans quelques raies.

Pour la microscopie, l'intérêt de ces sources se justifie par la brièveté de l'impulsion, dans la mesure où l'on sait produire suffisamment de photons utiles pour former une image. Ces expositions ultra-courtes ont un double avantage :

- i) elles figent les mouvements d'un objet vivant dans son milieu de conservation ;
- ii) elles autorisent à dépasser le niveau d'irradiation auquel apparaissent les dommages. Ainsi, même si le microorganisme ne survit pas à l'exposition, l'image est enregistrée avant que puissent apparaître des dommages structuraux.

Des plasmas de ce type peuvent encore être produits par des moyens qui restent à l'échelle du laboratoire :

- Par l'impact d'une impulsion laser. L'énergie nécessaire dépend de la durée de l'impulsion. Pour la raie C_{IV} (4,0 nm), une impulsion de 8 J en 40 ns, produit une luminance voisine de 10^{10} photons $\text{mm}^{-2}\text{mrad}^{-2}$ [DAIDO 1991], alors qu'une impulsion de 200 mJ mais délivrée en 200 ps produit encore environ 10^9 photons $\text{mm}^{-2}\text{mrad}^{-2}$ [KUHNE 1991].

- Des plasmas similaires peuvent encore être créés par une décharge électrique dans un gaz avec des luminances par impulsion similaires (raie N_{VII} à 2,5 nm [NEFF 1988, HOLTZ 1991]).

Ces sources permettent de faire des images contact sur résines photosensibles en une seule impulsion [STEAD 1988, FORD 1991]. On commence aussi à les employer dans des instru-

ments de dimensions réduites dans le but de réaliser des "microscopes de laboratoire" [SCHMAHL 1991, SHULZ 1991].

b) Sources plasmas de rayonnement stimulé (laser X ?)

Pour obtenir une émission stimulée dans le domaine des X-UV ou des X mous, il faut d'abord réaliser une inversion de population entre deux niveaux dont la différence d'énergie soit suffisante. Des ions multichargés permettent d'obtenir une durée de vie suffisante du niveau supérieur ; leur structure atomique est semblable à celle de l'atome neutre isoélectronique, mais l'énergie des niveaux est beaucoup plus élevée et les transitions correspondantes sont décalées du visible à l'UV ou au domaine X.

De tels ions ne peuvent être produits que par la focalisation de lasers intenses. De plus, le chauffage et le refroidissement rapide de ces plasmas ne leur permet pas d'atteindre l'équilibre thermodynamique. Ceci peut aboutir à des inversions de population spontanées (ie, sans pompage auxiliaire) dans certaines conditions de préparation des plasmas. On observe alors une émission stimulée qui se traduit expérimentalement par une variation exponentielle de l'énergie rayonnée dans les raies stimulées avec la longueur de la colonne de plasma dans la direction d'observation. Actuellement, des gains de quelques unités par cm ont pu être mesurés pour diverses transitions de longueur d'onde comprises entre 8 et 20 nm environ.

Malgré ces progrès, le véritable laser X n'est pas encore en vue. Pour créer un plasma de longueur suffisante, on focalise généralement deux faisceaux laser selon une ligne de part et d'autre d'une mince feuille du matériau cible, mais les puissances crêtes nécessaires pour obtenir un gain sont considérables (plusieurs TW) et les rendements décroissent aux courtes longueurs d'onde. On a mesuré par exemple des gains $G \sim 1 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{TW}^{-1}$ pour l'excitation collisionnelle de la transition de Se^{24+} à 20 nm de longueur d'onde ; luminance rapportée $5 \cdot 10^{13} \text{ photons mm}^{-2} \text{ mrad}^{-2}$ dans B.P. = 0,02% [cf. JAMELOT 1987, TREBES 1988]. Les rendements sont un peu meilleurs lorsque l'inversion de population est obtenue par recombinaison à partir d'atomes totalement ionisés $G \sim 4 \text{ cm}^{-1} \text{ TW}^{-1}$ à $\lambda = 105 \text{ \AA}$ avec Al^{10+} [JAMELOT 1987]. De ce fait, la longueur des colonnes de plasmas n'est guère supérieure à quelques centimètres et cela malgré l'emploi des lasers les plus puissants du monde, développés pour l'étude de la fusion thermonucléaire [par

ex. NOVA au Lawrence Livermore Laboratory]

Enfin, les sources actuelles sont seulement superradiantes et amplifient, sur un seul passage, le rayonnement spontané. Il est très difficile de construire pour les rayons X une cavité optique à miroirs pour allonger le trajet dans le milieu amplificateur comme on fait ordinairement dans les lasers visibles. A 100 Å déjà, les meilleurs miroirs multicouches n'ont pas une réflectivité en incidence normale égale à 50 %. D'autre part, la durée de vie très brève de l'inversion de population, de quelques ns (excitation collisionnelle), ne permet pas de multiplier les passages. D'autres problèmes apparaissent lorsqu'on essaie de fermer une cavité comme l'homogénéité optique (indice, absorption et gain) du plasma. Il y a donc encore beaucoup de chemin à parcourir avant que des "lasers X" puissent réellement concurrencer les sources de rayonnement synchrotron pour des applications comme l'holographie X.

4.2 DETECTEURS

Nous considérerons séparément deux classes de détecteurs de rayons X, les détecteurs de flux qui mesurent le nombre total de photons reçus à leur surface, et les détecteurs d'images qui permettent une certaine résolution spatiale.

4.2.1 DETECTEURS DE FLUX

La plupart des détecteurs de flux fonctionnent en comptage des événements produits par l'absorption d'un photon X. Dans cette interaction d'un photon X avec le milieu constituant le détecteur (gaz, semiconducteur, photocathode, ...) des charges sont produites, puis amplifiées par divers mécanismes, de façon à produire un événement détectable sur une électrode de mesure. Trois paramètres principaux caractérisent ces détecteurs : le rendement quantique, le gain et le taux de comptage. Ce dernier est en effet limité par le fait que deux événements trop rapprochés dans le temps sont confondus par le détecteur. Pour certains détecteurs enfin, la mesure de l'amplitude de chaque impulsion permet une certaine résolution en énergie.

Détecteur	Domaine d'énergie [keV]	Résolution en énergie $\Delta E/E$	Temps mort [μs]	Taux de comptage maxi. [s^{-1}]	Efficacité
Ionisation d'un gaz compteur Geiger compteur proportionnel chambre à ionisation (mode courant)	3 - 50	—	200	10^4	dépend de l'énergie - du gaz - de la pression
	0,2 - 50	0,15	0,2	10^5	$\sim 100\%$ si $E < 3keV$
	0,2 - 50	—	—	10^{11}	
Scintillateur NaI:Tl	3 - 10 000	0,4	0,25	10^6	$\sim 100\%$ des photons absorbés
Diode à semiconducteur Si:Li Ge		ΔE			dépend de l'épaisseur des couches actives et inactives >80% : $3keV < E < 20keV$
	0,5 - 60 1 - 10 000	~ 170 eV	4 - 30 4 - 30	$5 \cdot 10^4$ $5 \cdot 10^4$	

Table 4.2

Propriétés des détecteurs de flux les plus usuels du domaine X
[D'après Thompson, X-ray data booklet §6]

On trouvera à la table 4.2 les caractéristiques de quelques-uns de ces détecteurs. Il est bon de souligner que le rendement quantique de certains d'entre eux (compteurs proportionnels) approche 100 % dans les X mous.

4.2.2 DETECTEURS D'IMAGES

a) par comptage

Avec un dispositif de comptage, il est encore possible d'obtenir une résolution spatiale si on sait déterminer l'origine spatiale de chaque événement. Diverses techniques sont applicables mais se traduisent toutes par une forte réduction du taux de comptage (généralement comme le nombre de pixels). Les résolutions sont faibles : $\sim 0,1$ mm.

b) par conversion d'image

Pour détecter des images intenses, il est possible de réaliser une conversion $X \rightarrow$ visible, ce qui permet alors d'utiliser des détecteurs d'images classiques (vidicons, matrices de diodes, etc..). Parce qu'on utilise des photons visibles la résolution de ce type de détecteur ne peut guère être meilleure que $1 \mu\text{m}$. Dans le domaine des rayons X de quelques Kev où une résolution de quelques microns peut être considérée comme bonne, nous avons nous-mêmes obtenu une bonne efficacité de détection en incluant un scintillateur dans des fibres optiques (cf Annexe III) [BIGLER 1985]

On peut également effectuer une conversion indirecte $X \rightarrow$ électron $\rightarrow$ photon visible autorisant l'insertion d'un élément amplificateur comme une galette de microcanaux. Rendements quantiques et résolutions varient fortement d'un dispositif à l'autre en fonction de la longueur d'onde et du type de conversion opérée. Des résolutions inférieures à $1 \mu\text{m}$ sont possibles avec quelques pour cent d'efficacité ; à $10 \mu\text{m}$ de résolution les efficacités peuvent atteindre 30 %. Nous examinerons aux chapitres suivants quelques détecteurs de ce type.

c) matériaux photosensibles

Dans certains matériaux, l'absorption de rayons X entraîne une modification locale des propriétés physico-chimiques. Ces modifications peuvent être "révélées" chimiquement ou physiquement pour produire une image observable.

L'émulsion photographique argentique est le plus commun de ces détecteurs. La résolution est limitée au "grain de l'émulsion" et peut atteindre 1 μm . Notons que ces images sont alors observées au microscope optique. A ces résolutions, la profondeur de foyer est faible ; on doit donc utiliser des émulsions minces, de quelques microns d'épaisseur. Aux courtes longueurs d'onde, la faiblesse de l'absorption réduit considérablement l'efficacité ; dans les X mous au contraire, celle-ci peut atteindre ou dépasser 20 % [NIEMANN 1980].

Une deuxième classe de matériaux photosensibles regroupe un grand nombre de matériaux organiques photosensibles. Ce sont généralement des polymères ou des mélanges de polymère et de photosensibilisateur ; on les désigne habituellement sous les noms de photopolymères ou de résines photosensibles. Le principe de base est le suivant : aux longueurs d'ondes X, l'énergie libérée par l'absorption d'un photon est susceptible de rompre certaines liaisons chimiques. Selon le type et la composition des résines, il peut se produire soit une dépolymérisation locale, soit au contraire, grâce à cet apport initial d'énergie, une polymérisation locale. Le plus souvent, la résine est alors révélée par un solvant qui attaque la résine à une vitesse variable avec le degré de polymérisation, et laisse apparaître une image en relief. L'examen au microscope électronique (à balayage ou en transmission après ombrage) permet d'atteindre une résolution très élevée (jusqu'à $r = 10$ nm pour le polyméthacrylate de méthyl [PMMA]). L'efficacité de détection peut approcher 1, en termes de photons absorbés dans une cellule de résolution élémentaire en volume ($\varphi \sim r^3$) [SPILLER 1983, p. 1119]. En raison de leur faible coefficient d'absorption, les résines sont composées essentiellement d'éléments légers, les sensibilités sont assez faibles, même en X mous, lorsqu'on les exprime en termes d'énergie incidente par unité de surface.

D'une façon générale, la réponse des matériaux photosensibles est non linéaire. Il existe des phénomènes de seuil et de saturation pour les résines, de saturation seulement pour les émulsions photographiques utilisées en rayons X. En raison du seuil de la caractéristique et de la raideur de sa partie binaire, on pense souvent que les résines ont nécessairement

un comportement binaire. Ce comportement binaire, s'il est souhaitable pour la réalisation de circuits intégrés par microlithographie, est préjudiciable à la réalisation d'images. Il peut en fait être évité si on soumet les résines avant leur utilisation à une préexposition uniforme. On décale alors la caractéristique jusqu'au pied de la partie linéaire et on gagne également en sensibilité. Pour l'homogénéité de cette opération, et la réduction du bruit de photons associé, il est pratique de pouvoir opérer dans l'UV proche.

Dans tous les cas, les détecteurs photochimiques présentent un effet de saturation. Ainsi que nous le verrons par la suite, c'est leur principal défaut, qui interdit d'améliorer le rapport signal/bruit par une augmentation des temps de pose.

4.3 FOCALISATION DES RAYONS X

Dans tout le domaine X, le fait que l'indice de réfraction demeure toujours très voisin de l'unité (ou plus exactement que δ et β aient le même ordre de grandeur) interdit la construction de tout système dioptrique. Pour focaliser les rayons X, il faut donc utiliser soit des miroirs, soit des réseaux.

4.3.1 MIROIRS

a) Réflectivité

Nous avons déjà indiqué (au chapitre 2) que les rayons X pouvaient être réfléchis avec une bonne efficacité aux très grands angles d'incidence. En effet, la partie réelle de l'indice étant inférieure à un, on se trouve alors dans une situation proche, aux questions d'absorption près, de la réflexion totale. Lorsqu'on conçoit un système catoptrique pour les rayons X, il est important de savoir prédire cette réflectivité à partir de l'indice complexe, lorsque celui-ci est connu [HENKE 1981].

La réflectivité à l'incidence i_1 se calcule classiquement par les formules de FRESNEL [BORN et WOLF]

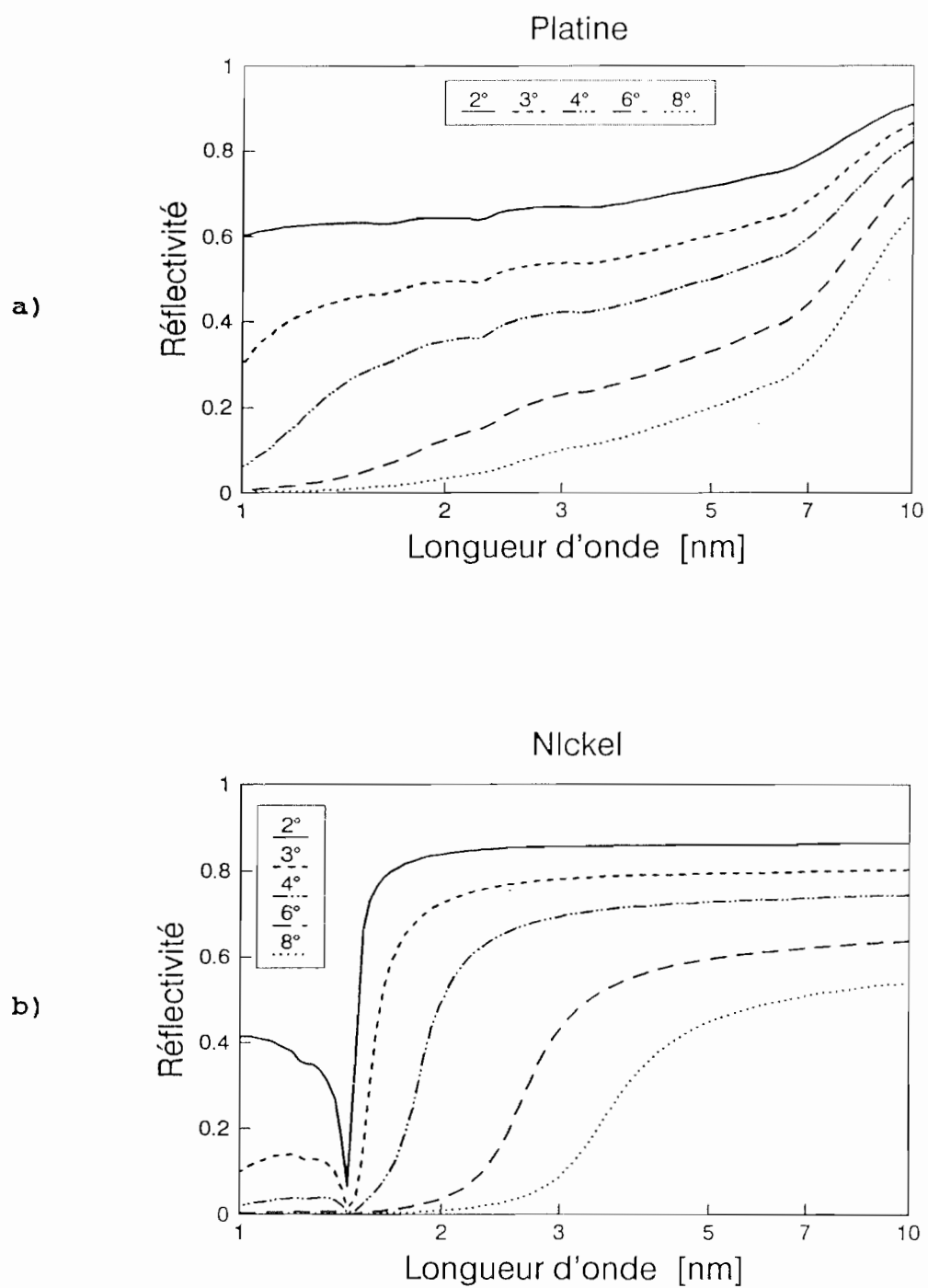


Figure 4.4

Réflectivité du platine (fig. a) et du nickel (fig. b) pour quelques angles d'incidence rasante.

$$R_{\perp} = \left| \frac{n_1 \cos i_1 - n_2 \cos i_2}{n_1 \cos i_1 + n_2 \cos i_2} \right|^2 \quad (4.27)$$

$$R_{//} = \left| \frac{\cos i_1/n_1 - \cos i_2/n_2}{\cos i_1/n_1 + \cos i_2/n_2} \right|^2$$

où n_1 et n_2 sont les indices de réfraction du milieu extérieur et du miroir, i_1 et i_2 sont les angles d'incidence du rayonnement dans ces deux milieux. En rayons X l'indice n_2 est complexe et l'onde qui se propage dans le miroir est inhomogène car très rapidement atténuée. Les formules de Fresnel ainsi que la relation de Snell et Descartes restent cependant valables à condition d'effectuer les calculs avec les valeurs complexes. On trouvera à l'annexe I, la manière pratique d'effectuer ce calcul lorsque le milieu extérieur a pour indice 1 (vide ou air).

La figure 4.4.a présente le résultat de ce calcul pour une surface de platine, qui est l'un des matériaux les plus utilisés à ces longueurs d'onde. Pour conserver une réflectivité supérieure à 40 % sur l'ensemble du spectre, on constate qu'il faut utiliser une incidence très rasante ($\sim 4^\circ$) ; on remarquera que la différence entre les deux polarisations est extrêmement faible.

Pour les longueurs d'onde supérieures à 1,5 nm, un miroir de Nickel présente une réflectivité excellente (figure 4.4.b). La coupure à 1,45 nm (seuil L du Nickel) est caractéristique de l'influence du seuil d'absorption sur la réflectivité.

b) Miroirs en incidence rasante

L'obligation d'utiliser une incidence rasante ($\theta \sim 4^\circ$) complique considérablement la réalisation des miroirs, pour deux raisons :

- i) la surface de miroir nécessaire est augmentée de $1/\sin\theta$,
- ii) les surfaces stigmatiques (quadratiques de révolution dont les foyers sont situés aux points optiquement conjugués) sont très éloignés de la sphère et donc difficiles à fabriquer.

Si on cherche à réaliser un condenseur, on peut généralement se contenter d'approximer la surface stigmatique par une

surface torique possédant les mêmes courbures principales au centre que la surface idéale, ce qui corrige l'astigmatisme principal. Cette surface symétrique par rapport à son centre est plus facile à réaliser ; par contre, du fait de cette même symétrie elle introduit un défaut de coma d'autant plus important que le montage est asymétrique (grandissement $\neq 1$).

De ce fait, les miroirs toriques ne sont guère utiles que pour réaliser le transport de lumière dans les lignes de rayonnement synchrotron qui ne demandent généralement que peu d'ouverture.

Pour faire de véritables images, il faut non seulement obtenir le stigmatisme sur l'axe mais également sur un minimum de champ. On doit pour cela utiliser des combinaisons de miroirs. Nous citerons ici les deux combinaisons les plus utilisées.

Optiques de Kirkpatrick et Baez [KIRKPATRICK 1948]

Ce type d'optique est composé de deux miroirs cylindriques (ou même sphériques) orthogonaux (figure 4.5). Ce dispositif compense assez bien astigmatisme et coma, mais son champ reste très faible. Il est utilisé en X durs pour faire des microsondes de fluorescence (résolution quelques μm) [WU 1991]. Quatre miroirs permettent d'augmenter le champ [F. BRIDOU 1989, résultats non publiés].

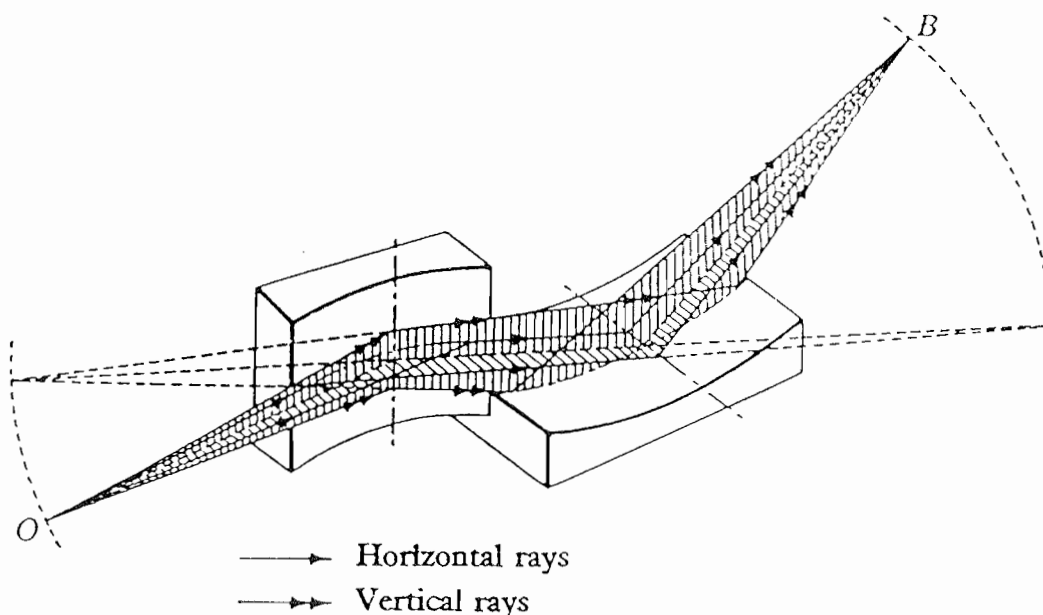


Figure 4.5

Objectif de Kirkpatrick et Baez [extrait de COSSLETT 1960]

Objectifs de Wolter [WOLTER 1952]

Wolter a montré que l'association de deux quadriques de révolution, dont les méridiennes sont des coniques confocales, pouvait être raisonnablement corrigée des aberrations dans un champ voisin de l'axe. Il en est ainsi de l'association ellipsoïde hyperboloïde présentée figure 4.6. D'autres configurations sont possibles selon l'ordre et le type de quadriques de révolution utilisées. Dans certaines réalisations, les surfaces peuvent éventuellement être approchées par des tores, plus faciles à fabriquer mais qui conduisent à des optiques de moindres performances.

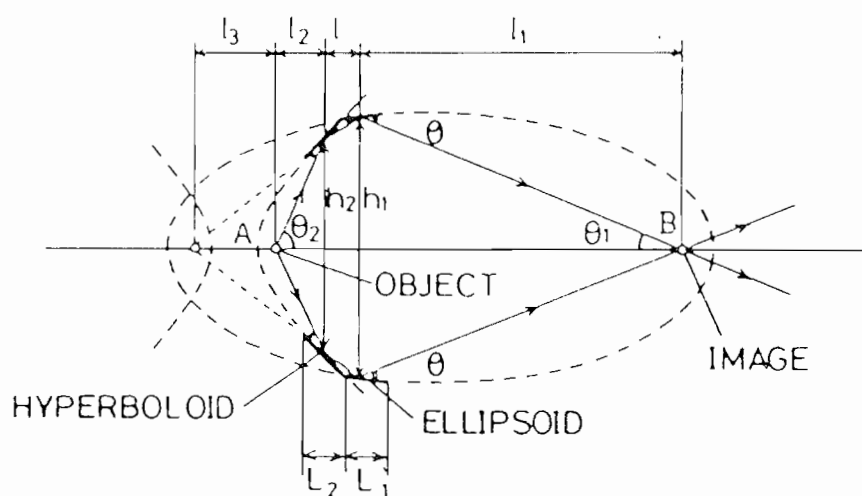


Figure 4.6

Objectif de Wolter de type I [extrait de AOKI 1988]

La réalisation d'optiques de Wolters est une tâche difficile et sa réalisation est délicate pour les raisons suivantes :

- i) Les surfaces asphériques ne peuvent pas être obtenues par rodage comme les surfaces sphériques. Les tolérances de fabrication sont de plus très sévères.
- ii) Le centrage des deux miroirs, c'est à dire la confusion des axes, doit être réalisé avec une excellente précision. La difficulté est encore accentué par le fait que les deux sections de quadriques sont tout à fait hors-

axe. Les tolérances sur le positionnement axial, confusion des foyers des coniques, sont également très sévères [SAHA 1990]. Pour cette raison, les deux surfaces sont parfois usinées sur un même bloc [AOKI 1988]

- iii) Parce que les miroirs X n'ont de réflectivité appréciable que pour des angles d'incidence très rasants, l'ouverture utile est très réduite. Dans le meilleur des cas, on peut utiliser une pupille annulaire complète, mais l'obstruction centrale est très importante. Les performances de ce type d'optiques sont le plus souvent limitées autour de $1\text{ }\mu\text{m}$, bien que certains auteurs pensent pouvoir atteindre $0,1\text{ }\mu\text{m}$ dans un avenir proche [AOKI 1988].

Remarquons que les multicouches que nous allons maintenant décrire pourraient contribuer à l'amélioration de ces optiques en réduisant les angles d'incidence. Ce problème difficile ne semble pas avoir été étudié.

c) Les multicouches

Alors que la réflectivité à une interface entre milieux continus n'atteint de valeur importante qu'aux grands angles d'incidence, l'utilisation de structures en couches périodiques d'épaisseurs voisines de la longueur d'onde permet d'atteindre des incidences quasi normales. En X dur, la longueur d'onde est suffisamment faible pour utiliser la périodicité de réseaux cristallins. On peut ainsi réaliser des Optiques de Bragg avec des cristaux plans ou courbes. Dans le domaine des X mous, la longueur d'onde est généralement trop grande pour pouvoir utiliser des cristaux naturels, et lorsque ceux-ci existent, ils sont le plus souvent instables sous le rayonnement.

C'est à E. Spiller [SPILLER 1972] qu'on doit l'idée de reproduire, par dépôt sous vide, un empilement de multiples couches alternativement transparentes et absorbantes avec une périodicité de $\lambda/2$. On réalise ainsi artificiellement un cristal synthétique, équivalent inorganique donc de stabilité accrue, des empilements de couches de Langmuir Blodgett.

L'optimisation théorique et la réalisation de ces structures multicouches est un sujet trop complexe pour être développé ici ; nous renvoyons le lecteur intéressé aux quelques références suivantes [SPILLER 1983, BARBEE 1984, KEARNEY 1991, CHAUVINEAU 1988]. Nous nous contenterons donc de quelques remarques d'ordre pratique du point de vue de l'utilisateur.

Si les matériaux étaient idéalement transparents et absorbants, on devrait utiliser pour faire des réflecteurs de Bragg, des couches très minces du matériau absorbant et les couches du matériau transparent auraient une épaisseur proche de $\lambda/4$. La largeur relative de la bande spectrale réfléchie serait $\Delta\lambda/\lambda = 1/N$, N étant le nombre de couches. La réflectivité pourrait approcher 100 %. Il n'en est pas ainsi dans la pratique. Pour optimiser une multicouche, on doit déterminer les épaisseurs de chaque couche à partir des constantes optiques des matériaux, de la même façon qu'on calcule les multicouches diélectriques en optique visible. La réflectivité sature généralement pour un petit nombre de couches, au-delà elle se dégrade lentement par les effets de rugosité des interfaces et d'inhomogénéité. Les bandes passantes sont donc assez larges. On peut aussi montrer que l'empilement optimal d'un petit nombre de couches n'est pas strictement périodique, "effet de substrat". Il faut donc mesurer et contrôler l'épaisseur au cours du dépôt.

Pour réaliser une multicouche à une longueur d'onde donnée, deux conditions sont à remplir :

- i) Trouver un couple de matériaux dont les absorptions diffèrent suffisamment et qui soient compatibles entre eux. Il ne faut pas en effet que les matériaux aient tendance à diffuser l'un dans l'autre et à former des alliages. La rugosité des interfaces est également importante. Certains matériaux forment des interfaces dont la rugosité est particulièrement faible, ce qui permet d'augmenter le nombre de couches, donc la réflectivité. Les couples W-C ou Mo-Si au voisinage de $\lambda = 10$ nm, sont parmi les matériaux les plus utilisés. Le bore, Ag-B par exemple, pourrait être utile dans l'intervalle 6 - 10 nm [KEARNEY 1991]. On ne peut malheureusement pas couvrir tout le spectre. En particulier, il est difficile de trouver des matériaux transparents au voisinage du seuil K du Carbone (4,4 nm). On ne connaît ainsi aucun couple de matériaux pour fabriquer des multicouches utilisables dans la "fenêtre de l'eau".
- ii) Les matériaux étant déterminés, il faut encore que les couches soient physiquement réalisables. Une couche ne saurait bien entendu être plus mince que les dimensions atomiques ; quelques couches atomiques sont nécessaires pour que le dépôt soit homogène. En incidence normale, la limite inférieure en longueur d'onde est voisine de 15 Å. On peut bien entendu franchir cette limite en utilisant

des incidences obliques (l'absorption rend difficile l'emploi des harmoniques supérieurs). Le gain n'est significatif que pour des angles importants, ce qui, nous l'avons vu, augmente notablement les problèmes de réalisation des surfaces optiques.

Objectifs à multicouches

Pour les longueurs d'onde de 10nm ou supérieures, la réflectivité de 20% à 30% qu'apportent les traitements multicouches permettent de concevoir des objectifs catoptriques. Spiller, le premier, a proposé d'employer un objectif de type Cassegrain renversé, appelé objectif de Schwarzschild dans le domaine de la microscopie X, pour réaliser un microscope à balayage [HAELBICH 1980]. Celui-ci est composé de deux surfaces sphériques concentriques, comme indiqué sur la figure 4.7. Lorsqu'elle est parfaitement alignée, cette combinaison est aplanétique, ce qui permet une certaine tolérance d'alignement à l'utilisation. Les difficultés de réalisation et de centrage commencent actuellement à être maîtrisées et des résolutions inférieures à 1 μm ont été annoncées [UNDERWOOD 1991].

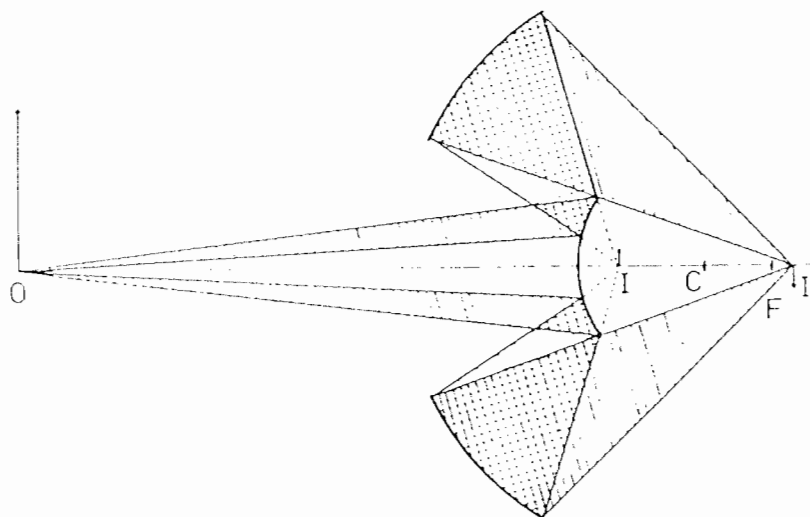


Figure 4.7

Objectif de Schwartzschild [extrait de HAE LBICH 1980]

4.3.2 RESEAUX

Pour focaliser les rayons X, on peut encore utiliser la diffraction par des réseaux. Dans ce paragraphe, nous traiterons essentiellement de deux types de réseaux les plus couramment utilisés en rayons X.

- Les réseaux zonés de Fresnel. Ces réseaux fonctionnant en transmission sont essentiellement utilisés dans des dispositifs de microscopie.
- Les réseaux en réflexion rasante qui sont utilisés pour leurs propriétés dispersives dans des monochromateurs. Auparavant, nous consacrerons un alinéa aux conditions de stigmatisme des réseaux et à leur réalisation.

a) Généralités sur les réseaux en rayons X

Pour focaliser en P_2 une onde issue du point P_1 (figure 4.8), on doit disposer sur son trajet un élément optique capable de modifier sa phase, de façon que l'amplitude complexe initialement sous la forme $A_1 = A_0 \exp(-i k_1 \overline{P_1 M})$ devienne

$$A_2 = A_0 \exp(-i k_2 \cdot \overline{P_2 M}) \quad (4.29)$$

Cet élément optique est donc caractérisé par la transmittance complexe

$$t_o = \exp \left[-i \left((k_1 \cdot \overline{P_1 M} - k_2 \cdot \overline{P_2 M}) \right) \right] = e^{-i \varphi(M)} \quad (4.29)$$

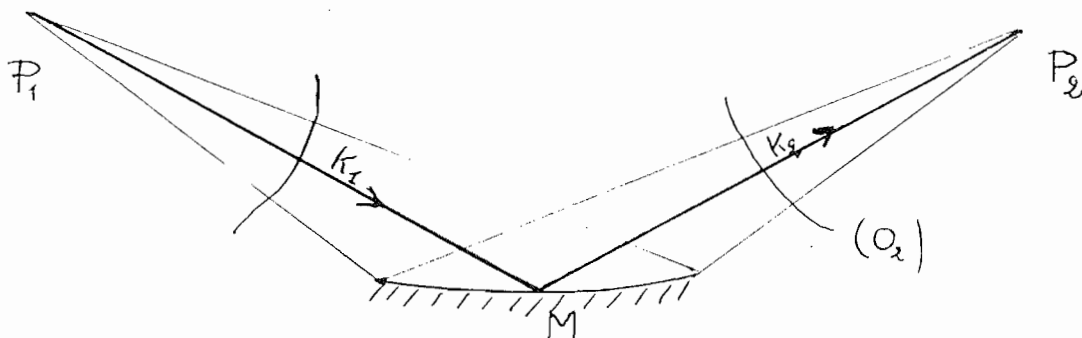


Figure 4.8

Notation employée pour l'étude des réseaux

En optique du visible, on peut directement agir sur la phase sans introduire d'absorption avec une lentille d'indice n et d'épaisseur

$$e(M) = \frac{1}{1-n} (\overline{P_1 M} + \overline{P_2 M}) + \text{cte} \quad (4.30)$$

En rayons X, R.O. Tatchyn a envisagé d'utiliser la périodicité de $e^{-i \varphi(M)}$ pour n'employer que de très faibles épaisseurs [TAYCHYN 1984]. Ce réseau de phase idéal n'est malheureusement pas réalisable pour deux raisons :

- i) Les parties réelles et imaginaires de l'indice sont généralement trop proches pour qu'on puisse négliger l'absorption (sauf aux plus courtes longueurs d'onde) ;
- ii) Les moyens technologiques dont on peut disposer ne permettent pas de réaliser les profils requis (Kinoforms).

On doit donc se contenter d'approximations.

Réseau sinusoïdal

Si nous nous restreignons à des transmittances réelles positives, il est possible d'envisager un réseau dont la transmission varie comme la partie réelle du facteur de phase $e^{-i \varphi(M)}$.

$$t_1 = \frac{1}{2} (1 + \cos \varphi(M)) = 1/2 + t_0/4 + t_0^*/4 \quad (4.31)$$

Au lieu d'une onde émergente unique, on obtient trois ondes diffractées :

- une onde semblable à l'onde incidente : ordre 0
- une onde utile focalisée en P_2 : ordre 1
- une onde conjuguée (correspondant à l'onde qui serait produite par la lentille de puissance opposée $t = e^{+i \varphi(M)}$) : ordre -1.

Par ce biais, nous obtenons effectivement la focalisation voulue mais au prix d'une efficacité (en intensité) réduite à 6,25 %.

Fabrication d'un réseau sinusoïdal

L'équation de la transmittance t_1 peut encore s'écrire

$$t_1 = \left| \frac{1 + e^{i \varphi(M)}}{2} \right|^2 \quad (4.32)$$

La transmittance t_1 peut donc être interprétée comme l'interférogramme de deux ondes (O_3) et (O_4) présentant entre elles la différence de phase que (O_1) et (O_2) :

$$|\varphi(M)| = |\varphi_3(M) - \varphi_4(M)| = \left| k_1 \overline{P_1 M} - k_2 \overline{P_2 M} \right| \quad (4.33)$$

On peut donc enregistrer le réseau sous la forme d'un hologramme : réseau holographique. La relation 4.34 est la condition de stigmatisme de ce réseau. Les deux ondes de construction (O_3) et (O_4) peuvent être les deux ondes (O_1) et (O_2) dont nous sommes partis ; on peut encore utiliser l'onde conjuguée (O_1^*) et l'onde conjuguée (O_2^*) ; on peut encore choisir n'importe quel couple d'onde (O_3) et (O_4) satisfaisant à l'équation 4.33, à une longueur d'onde quelconque. Notons que la phase dépend du vecteur d'onde $\vec{k}$, le stigmatisme ne peut donc être assuré que pour une seule longueur d'onde. Pour d'autres, il y aura à la fois déplacement du point de focalisation (dispersion) et apparition d'aberrations. De façon très générale, la forme de la surface d'onde est donnée par distribution de phase sur la surface du réseau de l'onde sortante.

$$\varphi_2(\lambda, M) = \varphi_1(\lambda, M) + p[\varphi_3(\lambda_0, M) - \varphi_4(\lambda_0, M)] \quad (4.34)$$

où p est l'ordre de diffraction du réseau, λ la longueur d'onde d'utilisation et λ_0 celle de construction.

La technique de fabrication d'un réseau pour les X consiste à impressionner une résine photosensible selon le motif défini précédemment, par holographie ou tout autre moyen, puis à transférer ce motif sur un substrat convenable généralement par attaque chimique. On conçoit qu'il soit difficile dans ces conditions d'obtenir des profils de motifs autres que binaires, à cause de la non linéarité des processus mis en jeu.

Réseau binaire d'amplitude

Un réseau binaire d'amplitude résulte du transfert du motif sinusoïdal en un motif alternativement transparent au-dessous d'un certain seuil, opaque au-dessus. C'est le cas des

réseaux en transmission obtenus par masquage et gravure d'une couche absorbante.

La fonction de transmittance se développe alors selon une série de Fourier dont les coefficients dépendent du rapport cyclique (défini comme précédemment (eq. 3.10) par le rapport largeur de "blanc" / largeur de "noir"). Il apparaît des ordres supérieurs de diffraction, mais dans l'ordre 1 la forme de la surface d'onde n'est pas modifiée. Lorsque le rapport cyclique est 1, les termes d'ordres pair sont nuls et l'efficacité dans l'ordre 1 est maximale et égale à 10%.

Réseau binaire de phase

On peut dans certains cas s'arranger pour que les ondes transmises par chaque partie d'un motif binaire subissent une variation relative de phase égale à π . Pour un réseau en transmission, il faudra utiliser un matériau peu absorbant et régler l'épaisseur du motif à $e = \lambda/2\delta$. Pour un réseau par réflexion fonctionnant à l'incidence θ , on choisira la profondeur de gravure égale $\lambda/4 \cos\theta$. Dans ce cas, l'ordre 0 est éliminé et l'efficacité considérablement accrue ($\times 4$). Notons cependant, dans le cas d'un réseau en transmission, que la subsistance d'une absorption, même faible, conduit à s'écarter du rapport cyclique de 1 et réduit quelque peu l'efficacité pratique [KIRZ 1974].

b) Réseaux zonés de Fresnel

Pour remplacer une lentille, il est particulièrement intéressant d'employer un réseau en transmission de révolution, focalisant sur l'axe. Ce réseau peut être engendré par la figure d'interférence entre une onde plane et une onde sphérique. Après binarisation, il se présente sous forme de zones alternativement opaques ou transparentes dont les rayons limites sont donnés par

$$r_n^2 = n f \lambda + n^2 \lambda^2 / 4 \quad (4.36)$$

où n est le rang de la zone (demi-période), λ la longueur d'onde et f la distance focale de l'ordre 1. Ce réseau zoné se comporte dans l'ordre p comme une lentille de focale f/p . Si N est le nombre de zones, on peut caractériser le réseau zoné par la largeur de sa dernière zone

$$\Delta r_N = \lambda f/2 r_N \quad (4.37)$$

Son ouverture dans l'ordre p est alors

$$\sin \alpha_p = \frac{r_N}{f_p} = \frac{p \lambda}{2 \Delta r_N} \quad (4.38)$$

et sa résolution

$$\rho_p = \frac{\lambda}{2 \sin \alpha_p} = \frac{\Delta r_N}{p} \quad (4.39)$$

On considère en pratique que la résolution d'un réseau zoné est celle de son premier ordre, c'est-à-dire égale à la largeur de la plus petite zone que l'on sache tracer ; c'est une limite propre à la technologie du tracé. On peut bien entendu tenter de gagner en résolution en utilisant un foyer d'ordre supérieur. A l'ordre trois toutefois, la perte d'efficacité est déjà importante ($\times 1/9$) et l'influence des défauts de tracé est fortement augmentée.

Dans la pratique, on utilise le plus souvent un réseau zoné dont la partie centrale est obturée, et on lui associe le diaphragme complémentaire au voisinage de son plan focal ; cela permet d'éviter le recouvrement d'ordre sur le champ utile (quelques dizaines de microns). Bien qu'elle renforce les anneaux autour de la tache de diffraction, cette obturation centrale est souvent improprement appelée, "apodisation", alors qu'elle a l'effet inverse.

Fabrication des réseaux zonés

Les réseaux zonés sont réalisés par microlithographie. Un matériau absorbant (Or), ou éventuellement déphasant et absorbant (nickel), est déposé en couche d'épaisseur convenable sur un substrat mince transparent. Cette couche est recouverte d'une résine photo- ou électro-sensible qui est insolée selon le motif à reproduire. La résine développée sert de masque pour la gravure du réseau.

Deux techniques principales sont utilisées pour produire le motif sur résine :

i) Le tracé par faisceau d'électrons

Un faisceau d'électrons, piloté par ordinateur, insole point par point la résine - méthode développée par J. Kirz

(Stony Brook) et D. Kern (IBM) [RARBACH 1984, VLADIMIRSKY 1989, ANDERSON 1991]). Cette technique est limitée par la précision d'adressage du faisceau, car l'erreur de positionnement absolu de chaque zone ne doit pas excéder une fraction de sa largeur $\sim \Delta r/4$. Une méthode similaire développée à King's College (Londres), utilise au lieu de la résine, la couche contamination carbonée qui se forme, en atmosphère contrôlée, au point d'impact du faisceau d'électrons [MICHETTE 1984, CHARALAMBOUS 1991]. 1

ii) Tracé holographique [SCHMAHL 1979, 1984]

On peut encore réaliser le masque par voie holographique. Jusqu'à présent, on n'a encore jamais réalisé de réseau zoné holographique directement à la longueur d'onde d'utilisation. Si la construction est effectuée à une longueur d'onde λ_0 beaucoup plus grande (visible ou UV), il faut tenir compte des aberrations du changement de longueurs d'onde. Supposons en effet que le réseau ait été enregistré à λ_0 avec une onde plane et une onde sphérique, et que nous l'éclairions avec une onde plane. A l'ordre 4 en r , la distribution de phase de l'onde sortante (équ. 4.34) est

$$\varphi_2(\lambda, r) \simeq 2\pi \frac{r^2}{2f_0\lambda_0} \left[1 - \frac{r^2}{4f_0^2} \right] \quad (4.40)$$

Au deuxième ordre en r , nous obtenons la phase d'une onde sphérique focalisée à $f = f_0 \lambda_0 / \lambda$, mais le terme d'ordre 4 n'est pas celui d'une onde sphérique qui devrait être $-2\pi \frac{r^4}{8f^3}$. Entre ces deux ondes, il existe un écart aberrant

$$\Delta = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\Delta\varphi}{\lambda_0} = - \frac{r^4}{8f^3} \left[(\lambda_0/\lambda)^2 - 1 \right] \quad (4.41)$$

C'est un terme d'aberration sphérique très important puisque généralement $\lambda_0/\lambda > 50$. Pour l'éviter, on est conduit à faire interférer des ondes la forme

$$\varphi(\lambda_0, r) = \frac{r^2}{2\lambda_0 f_0} \left(1 + \frac{r^2}{4f_0^2} \left(\frac{\lambda}{\lambda_0} \right)^2 \right) \quad (4.42)$$

Nous retrouverons ce profil de phase quasi-parabolique lorsque nous traiterons de l'holographie de Gabor.

iii) Copie de réseaux zonés

Lorsqu'un réseau zoné a été réalisé, on peut l'utiliser comme masque pour produire des réseaux fils par lithographie de contact. On a également cherché à obtenir les réseaux zonés de fréquences harmoniques en enregistrant les interférences produites par deux ordres diffractés [YUN 1988, JACOBSEN 1991]

Limites actuelles de la technologie

Quelle que soit la méthode de tracé, les largeurs de la zone externe restent d'un même ordre de grandeur : $0,05 \mu\text{m}$. Les publications récentes donnent un certain avantage au tracé électronique ($\Delta r_N \sim 30$ à 40 nm) [ANDERSON 1991]. Toutefois, la méthode holographique reste encore supérieure au faisceau d'électrons lorsqu'il s'agit de réaliser les réseaux de Fresnel de grand diamètre ($\sim 5 \text{ mm}$) qui sont utilisés comme condenseurs dans les systèmes optiques. La dimension des traits ne suffit pas à caractériser la qualité d'un réseau zoné où la précision de tracé intervient aussi pour une grande part. Actuellement, les meilleures images montrent une résolution qui peut être estimée autour de 50 nm . On peut d'ailleurs se demander quel gain en résolution on peut encore espérer. En effet, les épaisseurs nécessaires de matériaux absorbants (ou déphasants) approchent le plus souvent $1 \mu\text{m}$. Le très grand rapport hauteur/largeur des structures à réaliser agit au détriment de la précision de fabrication. On est aussi très loin du modèle plan de la théorie. Les tentatives pour prendre en compte les effets d'épaisseur [MICHETTE 1986-a] montrent, comme on peut s'y attendre, une perte importante d'efficacité pour les zones externes, c'est-à-dire une baisse de la FTM aux fréquences les plus élevées.

Sur le plan de l'efficacité enfin, les réalisations de réseaux zonés d'amplitude sont également un peu en-deçà de la théorie. Pour les réseaux zonés de phase, les matériaux disponibles (Ni, Ge) permettent d'approcher les 15% d'efficacité de diffraction [THIEME 1991, ANDERSON 1991] aux longueurs d'onde de la "fenêtre de l'eau". Aux plus courtes longueurs d'onde, on devrait pouvoir atteindre des efficacités encore meilleures. Notons cependant que le développement de la technologie des réseaux zonés de phase se limite encore à la fabrication de réseaux de faible résolution utilisables comme condenseurs. Indiquons également que pour les longueurs d'onde les plus courtes où l'efficacité des réseaux en transmission s'effondre, il est intéressant d'utiliser des réseaux de Fresnel en

réflexion. Pour ne pas être trop limité en ouverture par une réflexion rasante, le réseau peut être gravé dans une multicouche ou dans un cristal dont on utilise la réflectivité à l'angle de Bragg (réseaux de Bragg-Fresnel) [ARISTOV 1988]. Ce type de réseau fonctionne en réseau de phase.

c) Réseaux pour monochromateurs

Dans la plupart des dispositifs de microscopie X, on a besoin de sélectionner une bande spectrale étroite. C'est particulièrement vrai lorsqu'on emploie des optiques à réseaux de Fresnel ou lorsqu'on fait de la microscopie holographique. La largeur spectrale maximale est alors directement reliée au nombre de zones ou au nombre de franges dans l'hologramme d'un point :

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} \geq N \quad (4.43)$$

Même lorsque la longueur d'onde n'intervient pas dans la limite de résolution, en microscopie de contact par exemple, une certaine finesse spectrale ($\lambda/\Delta\lambda \sim 50-100$) est utile pour conserver un contraste différentiel au voisinage des seuils. On peut alors utiliser des filtres composés d'un miroir, pour éliminer le rayonnement de courte longueur d'onde, et d'une feuille absorbante pour supprimer les plus longues. Un véritable monochromateur permet toutefois d'isoler une bande étroite et de faire varier la longueur d'onde. Pour cela, on fait appel à la dispersion des réseaux.

Monochromateur à réseau zoné

La dispersion des réseaux zonés est axiale $\Delta f/f = \Delta\lambda/\lambda$. Une source ponctuelle à grande distance (source synchrotron) et un trou au foyer permettent de sélectionner une longueur d'onde. Avec une source ponctuelle et un trou de rayon égal à la tache de diffraction, la bande passante relative est $1/N$, l'inverse du nombre de périodes du réseau zoné.

Dans la pratique, la source est le plus souvent très loin d'être ponctuelle. Si le diamètre, d , du trou de filtrage est égal à celui de l'image géométrique, la résolution dépend de celui-ci et du rayon r_N de la dernière zone par :

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} = \frac{r_N}{d} \quad (4.44)$$

Monochromateur en incidence rasante

Pour accorder continuellement la longueur d'onde, les dispositifs présentant une dispersion latérale sont plus pratiques. Ces réseaux sont caractérisés par leur fréquence spatiale au centre N , exprimée en nombre de traits par unité de longueur. La dispersion se déduit de la formule classique du réseau :

$$\sin i_1 + \sin i_2 = N p \lambda \quad (4.44)$$

$$\frac{di_2}{d\lambda} = \frac{N p}{\cos i_2} \quad (4.45)$$

p est l'ordre de diffraction, i_1 et i_2 les angles d'incidence et d'émergence. Les dispersions élevées nécessaires conduisent à de grands angles d'incidence. On utilise donc des réseaux par réflexion en incidence rasante.

Pour des raisons pratiques : la faible étendue géométrique des faisceaux synchrotron et la faible convergence des optiques qui imposent de très grands bras, on choisit généralement une disposition à déviation fixe et l'accord est obtenu par simple rotation du réseau autour de son centre (fig.4.9).

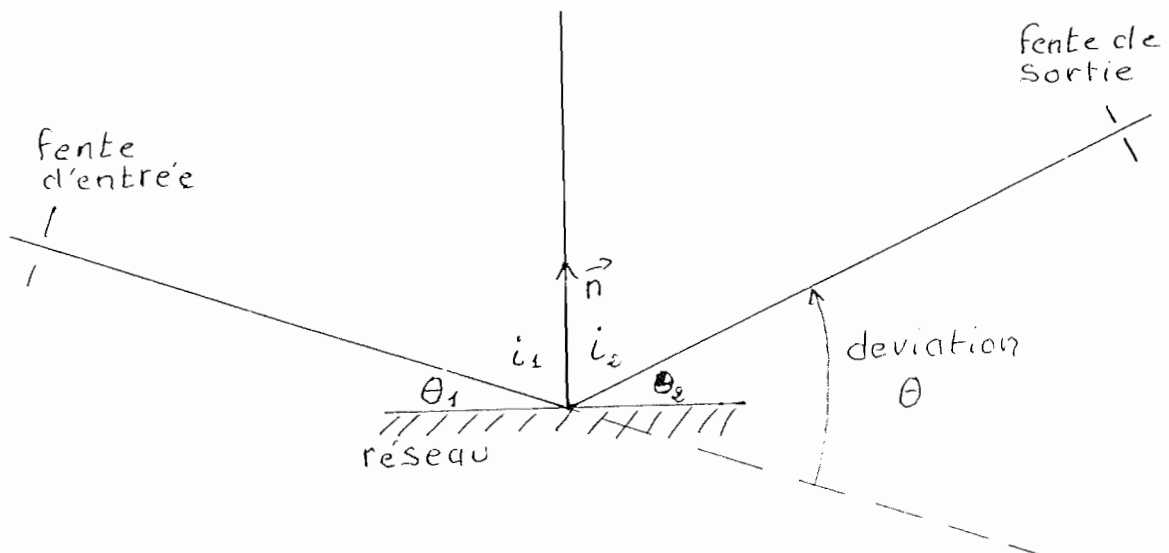


Figure 4.9

Notation utilisée pour le calcul des réseaux à déviation fixe

Avec les notations de la figure 4.9, on a en première approximation

$$\begin{aligned}\theta_1 &= \frac{\theta}{2} + \frac{N p \lambda}{\theta} \\ \theta_2 &= \frac{\theta}{2} - \frac{N p \lambda}{\theta}\end{aligned}\tag{4.47}$$

Optimisation

La résolution spectrale du monochromateur est également fonction des aberrations résiduelles du système optique. Pour des raisons de simplicité, on cherche le plus souvent à n'employer qu'un seul élément optique, le réseau, utilisé à la fois comme élément disperser et focalisant. Le réseau est alors le plus souvent construit holographiquement sur une surface torique, ce qui permet de compenser assez facilement l'astigmatisme dû à la forte incidence. On peut aussi utiliser d'autres configurations.

Nous n'examinerons pas ici le problème de l'optimisation. On trouvera à l'annexe III la procédure que nous avons suivie pour optimiser le réseau destiné à équiper la ligne de lumière que nous avons construite pour l'holographie X à Super-ACO, ainsi que les références relatives à cette question.

Efficacité

Les réseaux holographiques pour les X mous doivent fonctionner sous ultra-vide. Ils sont réalisés par gravure ionique et ont, pour cette raison, un profil binaire (réseaux lamellaires); ce sont donc des réseaux de phase. La profondeur de gravure optimale, h , est celle qui produit un déphasage de π entre deux demi-périodes.

$$h = \frac{\lambda}{2(\sin \theta_1 + \sin \theta_2)} \sim \frac{\lambda}{2\theta}\tag{4.48}$$

l'efficacité est alors proche de $0,4 R(\theta_1)$, où par $R(\theta_1)$, on désigne la réflectivité, sous l'incidence d'entrée, du matériau formant le réseau.

4.4 SYSTEMES OPTIQUES POUR LA MICROSCOPIE X

Les optiques que nous venons de décrire peuvent être utilisées pour construire un microscope à rayons X. Les propriétés de celui-ci seront alors essentiellement limitées par la qualité des éléments optiques employés. Le domaine spectral d'utilisation, la résolution ainsi que l'efficacité, c'est-à-dire également la dose reçue par l'objet pendant l'observation, dépendent ainsi beaucoup de la technologie des optiques.

On peut dans certains cas estimer préférable de se passer d'optiques X pour la formation d'image proprement dite. Les méthodes de formation d'image en projection de contact, ainsi que l'holographie X entrent dans cette catégorie à laquelle notre travail a été entièrement consacré. Cependant, pour donner une idée synthétique de l'évolution de la microscopie X, nous pensons utile d'exposer succinctement l'ensemble des différentes techniques.

4.4.1 FORMATION D'IMAGE SANS ELEMENT OPTIQUE

a) Méthodes de projection

Projection de contact

C'est la plus simple des techniques de projection et aussi la plus ancienne. Dans l'année qui suivit la découverte de rayons X par Röntgen, Burch et Ranwez réalisèrent des images de petits objets déposés sur des plaques photographiques [BURCH 1896, RANWEZ 1896]. Plus tard, Goby, en France, fut le premier à utiliser cette technique pour l'exploitation microscopique de la structure d'objets biologiques, plantes, insectes [GOBY 1913].

La technique en elle-même est la suivante : l'objet est pressé contre un détecteur et éclairé par une source de rayons X. On obtient ainsi une image au grandissement 1, qui doit ensuite être examinée avec un microscope d'un autre type (optique, électronique, force atomique ? ...)

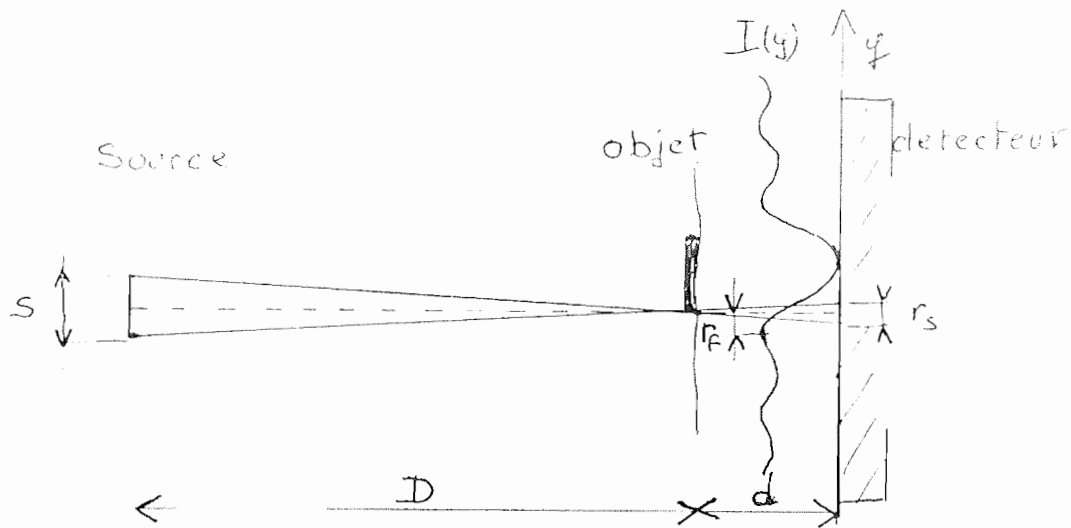


Figure 4.10

Limitation de la résolution en microscopie de contact

Plusieurs effets limitent la résolution (fig. 4.10) :

- i) Un effet de pénombre dû à la longueur de la source s limite la résolution à $r_s = s d/D$.
- ii) La diffraction (diffraction de Fresnel) produit également un élargissement de l'image d'un bord d'objet. La résolution limite est $r_f \approx \sqrt{\lambda d}$ [COSSLETT p. 54]
- iii) La résolution est enfin limitée par la résolution propre du détecteur r_d ou celle du dispositif de lecture. On peut estimer que la résolution ultime est voisine du libre parcours moyen des photoélectrons (~ 5 à 10 nm [cf. figure 5.16] ; cette discussion sera complétée au § 5.4.2).

En dernière analyse, c'est généralement le détecteur qui fixe les propriétés d'une telle microscopie. Dans les premiers temps, seule la plaque photographique était utilisable. Avec des émulsions minces et des grains très fins, on arrive à des résolutions voisines de $1 \mu\text{m}$. Nous indiquerons plus loin comment une numérisation de tels clichés permet de pratiquer une microanalyse d'absorption.

Plus récemment, l'usage de résines photosensibles a permis d'atteindre des résolutions bien plus élevées (10 nm

[SPILLER 1976]). Il faut alors se méfier des effets de pénombre (généralement négligeables avec le rayonnement synchrotron) et plus encore des effets de diffraction, ce qui exige un contact parfait entre objet et détecteur.

Nous avons nous-même réalisé des images sur résine PMMA avec le rayonnement de l'anneau ACO, dont nous donnons quelques exemples aux figures 4.11 et 4.12. Ces images sont le résultat de l'observation de la résine développée au microscope électronique à balayage.

Bien que très simple, cette méthode est, de toutes les méthodes de microscopie X, celle qui donne les résolutions les plus élevées. Toutefois, la dynamique d'exposition est très limitée par le caractère assez binaire des résines. Remarquons qu'aucune expérience de microscopie de contact n'a été menée pour évaluer l'influence d'une préexposition.

Un troisième type de détecteur utilise l'émission photo-électrique d'une cathode mince et homogène, pour convertir l'image X. Sur ce principe, nous avons développé un microscope qui permet de faire de la microscopie de contact en temps réel. Son étude fait l'objet de la deuxième partie de cette thèse.

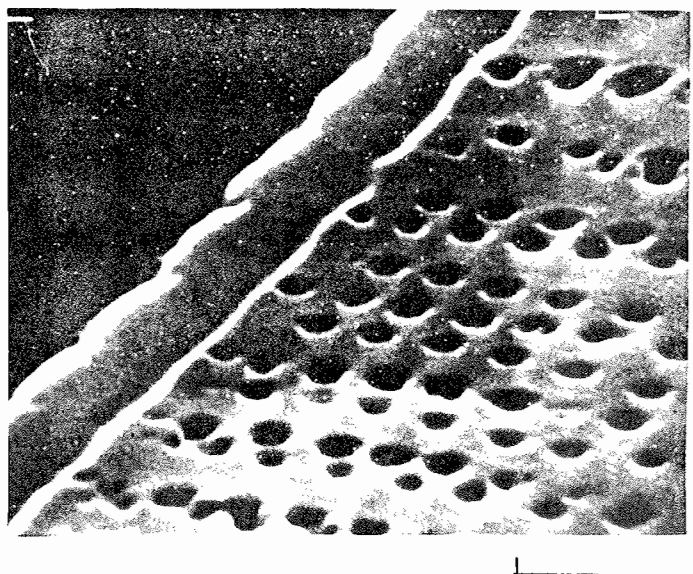


figure 4.11

1 μ m

Image d'une diatomée enregistrée sur résine PMMA avec le rayonnement polychromatique d'une source aimant d'ACO. Cette image permet de se rendre compte de la résolution élevée mais aussi de la faible dynamique de ce type de détecteur.

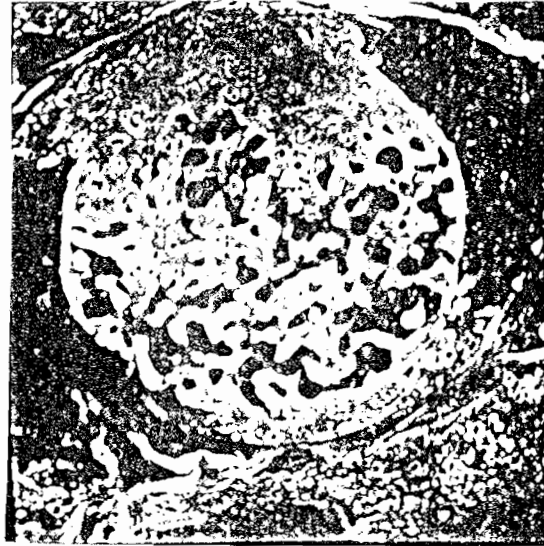


Figure 4.12

Cellule de l'extrémité d'une racine de jacinthe endymion en cours de division. L'objet est déshydraté mais les cellules sont entières et non colorées [préparation H. Couderc, laboratoire de physiologie végétale (Orsay)]. Les conditions d'enregistrement sont celles de figure 4.11. On remarque surtout le contraste avec lequel sont rendus les agrégats de chromatine du noyau et les membranes, et toujours la faible dynamique.

Projection ponctuelle

La méthode de projection de contact donne une image de taille identique à celle de l'objet. Si on veut un grandissement direct, on peut utiliser une source de petite dimension, la placer au voisinage de l'objet et observer à grande distance. Avec les notations de la figure 4.13, le grandissement est donné par $G = D/d$. La résolution du détecteur n'intervient généralement pas. La résolution rapportée à l'objet est fixée par les deux facteurs suivants :

- i) La diffraction de Fresnel produit, de la même façon que précédemment, un élargissement des bords caractérisé par $r_f \sim \sqrt{\lambda d}$.
- ii) La dimension s , de la source, crée un effet de pénombre qui limite la résolution à $r_s = s$.

Ce deuxième effet est généralement prépondérant.

de petite dimension (détecteur solide). L'image est obtenue par déplacement de la source. Les contraintes thermiques sont moins sévères que selon la technique de base. Ces mêmes auteurs, et indépendamment P.C. Cheng *et al.*, ont tout récemment proposé une autre variante qui consiste à utiliser une source fixe mais à tourner l'échantillon de façon à enregistrer une série de projections tomographiques [THOMAS 1991, CHENG 1991]. L'énergie importante du faisceau de sonde permet d'examiner des objets épais avec une résolution tomographique, limitée par la dimension du faisceau électronique, qui devrait atteindre 1 μm .

L'utilisation d'une source à bombardement électronique, a pour inconvénient essentiel de limiter le choix des longueurs d'onde. Avec une source de rayonnement synchrotron, la méthode ne paraît pas conserver d'intérêt. On serait obligé d'utiliser une optique pour former une source secondaire, et il est clair que, dans ce cas, la microscopie par balayage est préférable.

Microtomographie

Aux méthodes de projections se rattachent, comme nous venons de l'évoquer, les méthodes de microtomographie. Quand on dispose d'un échantillon épais, il est en effet possible d'en enregistrer plusieurs projections sous différentes incidences. En numérisant ces projections et en appliquant les mêmes algorithmes qui ont été développés pour les scanners médicaux à rayons X, on reconstruit des coupes tomographiques de l'objet ou des images tridimensionnelles.

En projection parallèle, la résolution ne saurait atteindre celle que l'on recherche pour la microscopie d'objets biologiques, à cause de la distance objet - détecteur. Une résolution de quelques microns semble déjà extrêmement prometteuse pour certaines applications [KINNEY 1989, BONSE 1991].

B) HOLOGRAPHIE

L'Holographie est une technique de formation d'image en deux temps :

- Dans un premier temps, on enregistre les interférences entre une surface d'onde de forme connue et l'onde provenant d'un objet.
- Dans un deuxième temps, on reconstruit une onde image semblable à l'onde objet.

Entre l'enregistrement et la reconstruction, on peut changer certains paramètres : longueur d'onde, forme de la surface d'onde de référence. On peut obtenir ainsi une image agrandie qui présente une résolution rapportée à l'objet $\sim 0,1 \mu\text{m}$

Bien que le principe soit très simple et que son utilisation ait été depuis longtemps envisagée [BAEZ 1952] (trois ans seulement après la publication de l'idée par D.Gabor [GABOR 1949]), les premières tentatives pour approcher une résolution de $1 \mu\text{m}$ sont récentes : S. Aoki et S. Kikuta avec des tubes à microfoyer [KIKUTA 1972, AOKI 1974] et avec le rayonnement synchrotron [AOKI 1972], puis M. Howells et col. avec la source onduleur de Brookhaven [HOWELLS 1984, 1986], et enfin J. Trebes avec la source à plasma laser du Lawrence Livermore Laboratory [TREBES 1988]. La résolution des franges ne descendit en dessous de $1 \mu\text{m}$ que lorsque les plaques photographiques furent remplacées par des résines photosensibles. Ces expériences furent réalisées presque simultanément par M. Howells et C. Jacobsen sur l'onduleur de Brookhaven [JACOBSEN 1988-a], D. Joyeux et nous-même sur celui d'ACO [JOYEUX 1988-a]. Les premières reconstructions avec une résolution de microscope ($\sim 0,5 \mu\text{m}$), suivirent rapidement [JACOBSEN 1988-b, JOYEUX 1988-b].

L'enregistrement d'un hologramme exige en effet de la source, une cohérence assez forte pour produire des franges d'interférence en nombre suffisant. Nous verrons (Chap. 8) que l'on peut obtenir artificiellement la cohérence, pourvu que la luminance spectrale de la source soit assez grande, en ne prélevant qu'une partie du rayonnement émis. Pratiquement seules les sources onduleurs de rayonnement synchrotron ont, pour le moment, les qualités requises.

Parmi les différents montages de microscopie holographique que l'on peut réaliser pour les rayons X, le montage de Gabor nous paraît le plus attractif. Son avantage est d'être extrêmement simple - pas d'optique entre source et détecteur - de demander très peu de cohérence, de pouvoir enregistrer un champ étendu en une seule pose et sans réglage (champ $> 2 \text{ mm}^2$, plus de 10^8 points enregistrés). Les propriétés de la microscopie par holographie de Gabor sont étudiées en détail aux chapitres 8 et 9.

4.4.2 - MICROSCOPES A RAYONS X MOUS

A partir du moment où l'on dispose d'éléments optiques de qualité convenable, on peut reproduire en rayons X les dispositifs de microscopie utilisés dans le visible. Nous distinguerons deux types fondamentaux de microscopes : les microscopes à formation d'image et les microscopes à balayage.

a) Microscopes à formation d'image

Un microscope à formation d'image comporte deux optiques principales : le condenseur, qui règle l'éclairement de l'objet, et l'objectif, qui collecte la lumière transmise et diffractée et forme une image agrandie de l'objet. Divers types d'éléments optiques, parmi ceux que nous avons présentés, ont été et sont encore utilisés (miroirs par exemple [AOKI 1988]). Toutefois, la qualité de l'objectif est essentielle et le seul microscope à formation d'image véritablement fonctionnel est le microscope à réseaux de Fresnel de Göttingen. Il est actuellement installé sur une source de type aimant de l'anneau BESSY à Berlin..

La figure 4.14 présente le schéma optique de ce microscope [THIEME, 1988]. Il utilise comme condenseur et comme objectif deux réseaux de Fresnel dont les caractéristiques figurent ci-dessous. Le condenseur est un réseau zoné d'assez grande dimension ($\varnothing = 9$ mm) mais de faible ouverture numérique. Il est utilisé à projeter l'image de la source sur l'objet (éclairage critique). Le diaphragme de champ qui lui est associé a un double usage. Il limite la lumière parasite dans l'instrument, mais il sélectionne aussi, sur le principe du monochromateur axial, une bande passante étroite dont la résolution est : $\lambda/\Delta\lambda = D/2d$ (éq. 4.44); D est le diamètre du condenseur, d le diamètre du champ. Avec un champ image de dimension ~ 20 μm on arrive facilement à une résolution spectrale de 250 suffisante pour le bon fonctionnement de l'objectif de 250 zones, ouvert à $f/12$ qui est chargé de former une image agrandie ($\sim \times 500$) de l'objet sur un film photographique ou sur un intensificateur d'image. Pour éviter les recouvrements d'ordres au centre du champ, la partie centrale de ces réseaux de Fresnel est obturée par un cache absorbant (§ 4.3.2-b)

Avec ce microscope G. Schmahl et ses collaborateurs ont obtenu une résolution de l'ordre de 60 nm, ce qui compte tenu de l'obturation centrale est très proche de la limite de dif-

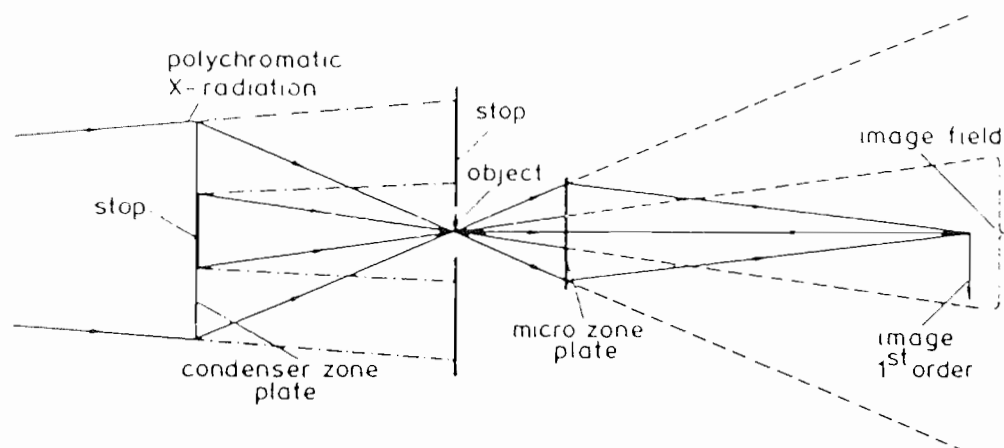


Figure 4.14

Schéma optique du microscope à formation d'image de Göttingen [THIEME 1988].

	Réseau condenseur		Réseau objectif	
Paramètres de construction				
diamètre externe	9 mm		55,6 μm	
nombre de zones	38 000		251	
largeur de dernière zone	0,15 μm		0,055 μm	
résolution	3-5 μm		0,06 μm	
matériau	Ge		Ni	
Paramètres optiques				
longueur d'onde [nm]	2,4	4,5	2,4	4,5
focale [mm]	570	304	1,3	0,69
ouverture D/f	1:63	1:34	1:23	1:12
efficacité ordre 1	11%	8%	5%	3%

Table 4.3

Caractéristiques des optiques du microscope de Göttingen
[D'après SCHMAHL 1984, BÖGLI 1988, HILKENBACH 1988]

fraction. L'efficacité globale de l'instrument reste faible $\sim 1\%$ de collection à $\lambda = 4,4$ nm et décroît rapidement quand on utilise des longueurs d'onde plus courtes. Toutefois l'utilisation de nouveaux matériaux (nickel à la place de l'or) tend à augmenter l'efficacité de diffraction et à accroître le domaine spectral utile à l'ensemble de la fenêtre de l'eau.

Contraste de phase

Le système optique que nous venons de décrire permet d'observer les objets en contraste d'absorption. Une variante du schéma optique permet également le contraste de phase [SCHMAHL 1988]. Elle met à profit la différence d'ouverture entre le condenseur et l'objectif pour déphaser préférentiellement la lumière non diffractée (figure 4.15). Ce dispositif ne permet pas d'obtenir un contraste de phase de qualité équivalente à ce que l'on peut faire en éclairage cohérent. Les images réalisées montrent cependant un contraste différent du contraste d'amplitude.

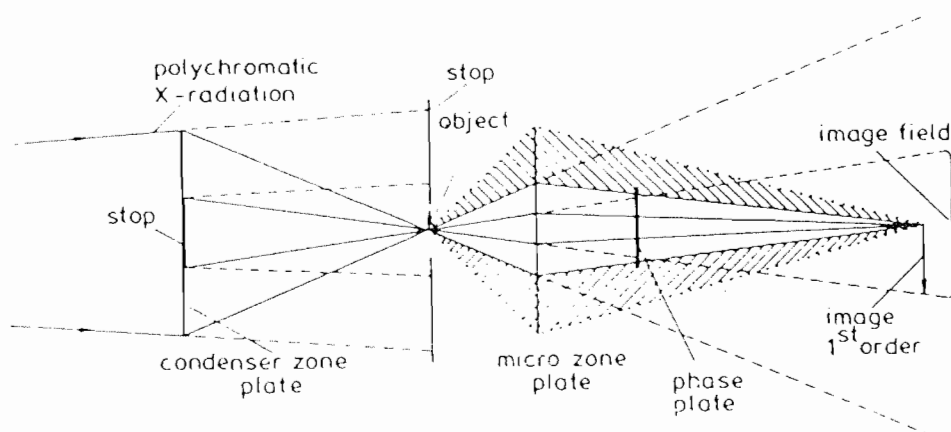


figure 4.15

Contraste de phase du microscope de Göttingen [SCHMAHL 1988].

b) Microscopes à Balayage

1 - Mode transmission

Lorsqu'on dispose d'une optique corrigée pour un point on peut l'utiliser pour former une microsonde. Il suffit alors de déplacer l'objet et la source relativement l'un à l'autre pour recueillir séquentiellement une image sur un simple détecteur de flux. La méthode présente un avantage significatif pour les objets fragiles : tous les photons qui atteignent l'objet participent au signal. Son principal désavantage est de n'utiliser qu'une très faible partie de l'étendue géométrique de la source, même d'une source synchrotron à onduleur. On cherche en effet, à ce que l'optique soit limitée en résolution par la diffraction. L'étendue acceptée est alors limitée à l'étendue cohérente $\sim \lambda^2/4$; elle est beaucoup plus petite que celle d'un montage holographique de Gabor. Ces microscopes ne sont actuellement concevables qu'avec une source à onduleur. Malgré cela, les temps d'enregistrement d'une seule image sont longs (plusieurs minutes pour 500×500 points).

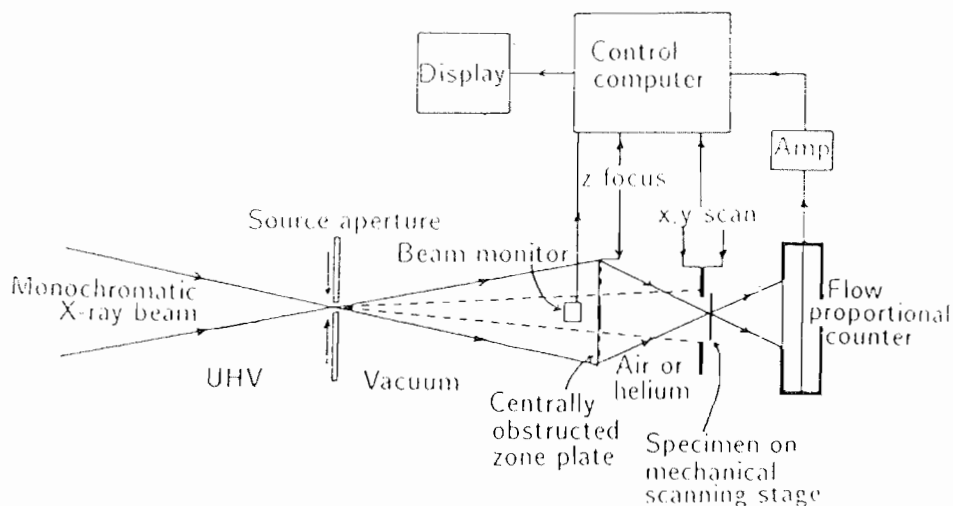


Figure 4.16

Schéma de principe d'un microscope X à balayage et réseau de Fresnel [extrait de MICHETTE 1986-b].

Nous présentons à la figure 4.16 le schéma fonctionnel typique d'un microscope X à balayage à réseau de Fresnel. Le premier microscope de ce type, le microscope de Stony Brook, a été conçu avant même que des onduleurs ne soient utilisables [KIRZ 1980, RARBACK 1984, 1988-a]. Son élément essentiel est un réseau de Fresnel, fabriqué par faisceau d'électrons, dont la largeur de trait au bord est 30 nm. Le rayonnement ayant traversé l'objet est détecté par un compteur proportionnel, ce qui assure un rendement proche de 90%. L'image est obtenue par déplacement de l'objet. La qualité du balayage est contrôlée par des interféromètres. La résolution des images obtenues avec cet instrument est tout à fait comparable à celle du microscope à formation d'image.

Il y a actuellement plusieurs microscopes X à balayage en développement dans différents centres de rayonnement synchrotron [MORRISON 1991, NIEMANN 1991, WATANABE 1991, UNDERWOOD 1991, ADE 1991]. Tous n'utilisent pas des réseaux de Fresnel ; certains instruments, destinés à fonctionner à des longueurs d'ondes élevées en mode de photoémission, emploient des objectifs de Schwartzschild. C'est en effet l'avantage des microscopes à balayage que de pas être simplement limités à l'observation en transmission, mais de pouvoir également fonctionner selon les autres modes que nous avons décrit au chapitre 3, en particulier par détection des particules secondaires (§ 3.2.5).

2 - Microanalyse d'absorption

Les microscopes à balayage permettent de localiser un élément chimique particulier par la méthode d'absorption différentielle. Pour dresser de telles cartes d'absorption, les images enregistrées de part et d'autre d'un seuil d'absorption doivent être très exactement superposables. Cela conduit à limiter quelque peu la résolution.

Peu de résultats de microanalyse ont été publiés jusqu'à présent [KENNEY 1985, MORRISON 1988, JONES 1991]. Le Calcium semble avoir été l'élément le plus étudié probablement parce que cet élément important dans l'activité biologique est relativement lourd et qu'il peut être présent à des concentrations élevées. De plus, son seuil L à 3,5 nm est situé au milieu de la fenêtre de l'eau qui est le domaine de fonctionnement habituel de la plupart des microscopes X.

3 - Contraste de phase

Il n'est pas facile d'obtenir un contraste de phase dans un microscope à balayage parce que la lumière directement transmise et la lumière diffractée occupent pratiquement le même angle solide. On peut toutefois produire un contraste de type différentiel par lequel on met en évidence les pentes du profil de phase de l'objet. R. Burge et son équipe de King's College, pensent pouvoir détecter le léger basculement de l'onde sortante au moyen d'un simple détecteur à quadrants. [BURGE communication personnelle]. Pour notre part, nous suggérons un véritable montage de contraste interférentiel-différentiel, en dédoublant la source primaire du microscope à balayage. Cela doit pouvoir se faire par un simple miroir en incidence rasante, ou mieux, par un système de double miroir (miroirs de Fresnel). Dans ce dernier cas, la distance à la source règle la séparation tandis que l'angle d'incidence de l'ensemble permet d'ajuster le déphasage entre les deux voies.

4 - Microanalyse de Photoémission

Lorsqu'on dispose d'une sonde fine de rayons X, on peut également détecter l'émission de particules secondaires. Les photoélectrons sont particulièrement intéressants, parce que leur distribution d'énergie reflète la structure électronique de la cible au voisinage de sa surface. Cette technique est très largement utilisée en faisceau large, pour l'étude des matériaux, en particulier des semiconducteurs.

L'adjonction d'un analyseur d'électrons à un microscope X à balayage, a de nombreuses applications qui ne relèvent pas nécessairement de la très haute résolution (§ 3.2.5). Des résolutions entre 0,5 et 0,1 μm sont plus que convenables pour la plupart des applications projetées, études de circuits semiconducteurs par exemple. La figure 4.17 montre le schéma adopté par H. Ade et al. (Université de Stony Brook), qui utilisent une zone de fresnel et un analyseur à miroir cylindrique sur le même axe [ADE 1988, 1991]. Pour cette application on peut aussi comme dans le projet MAXIMUM (Université du Wisconsin), employer un objectif de Schwartzschild [CERRINA 1988, UNDERWOOD 1991]. A cause des multicouches, ce dispositif fonctionne à une longueur d'onde assez grande 16 nm, ce qui ne semble pas présenter d'inconvénient majeur dans la mesure où l'analyse repose essentiellement sur l'observation du spectre des électrons émis.

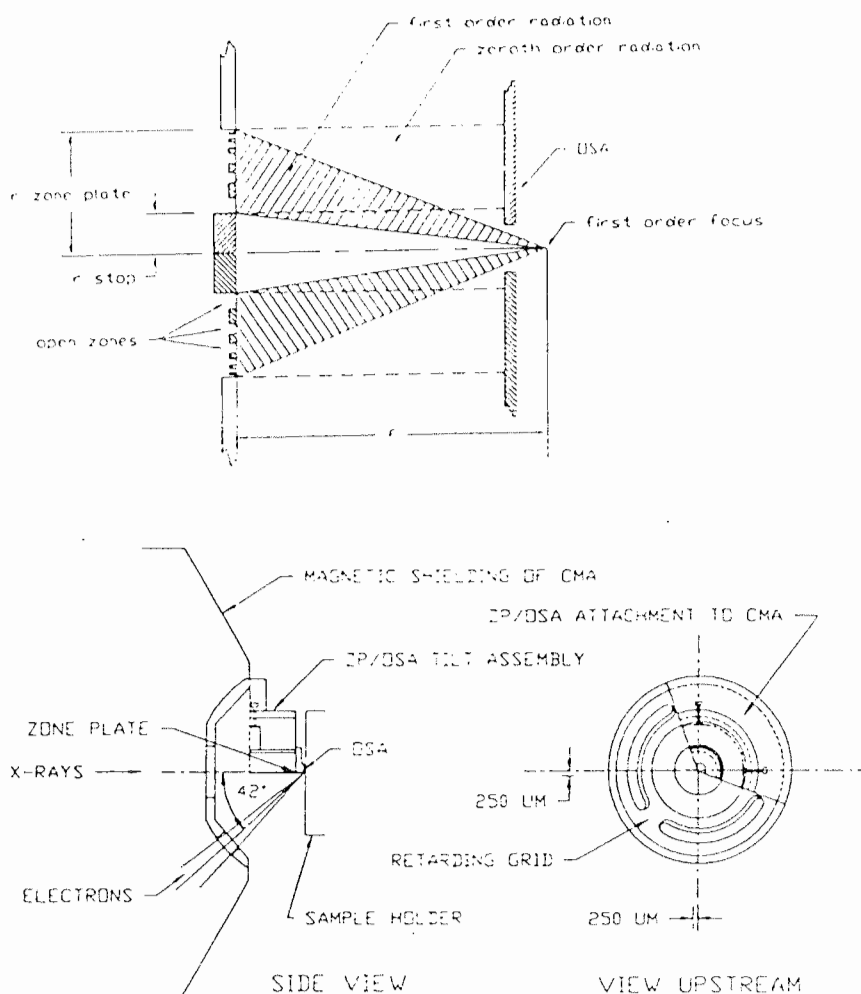


Figure 4.17

Schéma du microscope réalisé par l'équipe de J. Kirz à Stony Brook, pour la microanalyse de photoémission [ADE 1988]. CMA = analyseur à miroir cylindrique ; OSA = diaphragme d'élimination des ordres parasites. Le réseau de Fresnel et son diaphragme obstruent 130° de l'ouverture de l'analyseur (contrairement à l'usage français, la vue de droite est placée à droite).

PARTIE II

MICROSCOPIE DE CONTACT

PAR

CONVERSION D'IMAGE

INTRODUCTION

A LA

DEUXIEME PARTIE

Le microscope à conversion d'image a été conçu en 1980 pour faire de la microanalyse à très haute résolution. On redécouvrait alors, grâce au rayonnement synchrotron, des techniques de microanalyse qui avaient été étudiées vingt ans auparavant avec des sources classiques [COSSLET, 1960]. En focalisant sur un sténopé de $1\text{ }\mu\text{m}$ un faisceau de rayons X de plusieurs KeV, Horowitz et Howell avaient obtenu par balayage, des images élémentaires en fluorescence X [HOROWITZ 1972]. Pour la microanalyse d'absorption, le rayonnement synchrotron présentait un avantage décisif : il était facile de le monochromatiser et d'obtenir une bande passante étroite et accordable.

La microanalyse d'absorption consiste, nous l'avons dit, à comparer deux images faites à deux longueurs d'onde encadrant un seuil d'absorption. La masse par unité de surface de l'élément chimique recherché est proportionnelle à la différence des logarithmes des intensités mesurées (cf. éq. 3.45). Pour faire ces images, on peut employer n'importe quelle méthode d'imagerie, à la condition toutefois que les images obtenues soient exactement superposables, faute de quoi on fait apparaître la dérivée de la partie commune aux deux images, un effet que nous avons étudié avec E. Bigler [BIGLER 1985, 1986].

La microradiographie de contact est la façon la plus simple de procéder. Nous l'avons employée, dans le domaine des rayons X de 5 à 10 KeV, à localiser des éléments de transition dans des objets géologiques [POLACK 1977, 1978, STEINBERG 1978, 1984, BIGLER 1982, 1983, 1984, 1986]. Le détecteur était une plaque photographique haute résolution (Kodak HR) qui était ensuite numérisée par un microdensitomètre. Cette méthode permet d'enregistrer un très grand champ, mais ne permet pas de résolutions élevées, essentiellement à cause de la granularité de la plaque photographique. Toutefois avec ces émulsions très fines, on pouvait encore obtenir des mesures quantitatives en utilisant la plus petite ouverture d'analyse du microdensitomètre : $5 \times 5 \mu\text{m}$.

Ces caractéristiques étaient très bien adaptées à la mesure des concentrations de Fe, Mn, Ni, dans les nodules polymétalliques des grands fonds océaniques, étudiés et préparés en lames minces de $\sim 100 \mu\text{m}$ par M. Steinberg et son équipe (Laboratoire de Géochimie des Roches Sédimentaires, ORSAY). Sur ces objets, en effet, les structures à analyser ont des dimensions de l'ordre de 20 à $100 \mu\text{m}$, à l'intérieur de champs de plusieurs mm^2 . On trouvera les comptes-rendus de ces expériences dans les publications rassemblées à l'annexe III.

Lorsqu'on cherche à étudier des objets biologiques, qui contiennent des éléments plus légers, on doit employer des longueurs d'onde plus grandes, ce qui a aussi l'avantage d'augmenter l'amplitude des sauts du coefficient d'absorption au passage des seuils. La résolution des plaques photographiques ne convient plus à l'observation de tels objets. Il faut donc utiliser une autre méthode d'imagerie, ou changer de détecteur. Les progrès accomplis sur la fabrication des réseaux de Fresnel ont permis plus récemment, de faire des images élémentaires avec des microscopes à balayage (§4.4.2-b2) - les microscopes plein champ conviennent moins bien parce que le changement de longueur d'onde provoque un changement de la longueur focale de la zone de Fresnel, et par suite, une variation du grandissement $\Delta G/G = \Delta \lambda / \lambda$ -. La microscopie à balayage présente toutefois l'inconvénient de n'utiliser qu'une étendue géométrique de source très faible (étendue cohérente). Elle n'est applicable en pratique, que depuis quelques années, avec les onduleurs.

La microscopie de contact, par contre est parfaitement envisageable avec une source synchrotron du type aimant de courbure. La seule question est d'employer un détecteur de résolution suffisante. On peut tout d'abord songer à employer

des résines photosensibles, mais, si la résolution convient, nous avons déjà signalé comme il est difficile d'en tirer des mesures quantitatives. On peut encore employer un détecteur à conversion d'image, où les rayons X sont convertis en des particules moins énergétiques, plus faciles à focaliser et à détecter : conversion X - visible, ou conversion X - électrons. Cette détection permet aussi d'observer l'image en temps réel.

La conversion X - visible ne permet pas d'atteindre une résolution très élevée. Elle est en particulier limitée par la diffusion dans le matériau scintillateur. La résolution est au mieux 0,5 μm . La conversion X - visible présente malgré cela un certain intérêt dans le domaine des X de plusieurs KeV. L'inclusion du scintillateur dans des fibres optiques permet alors d'atteindre une excellente efficacité tout en conservant une résolution comprise entre 5 et 10 μm [BIGLER 1985, 1986 : Annexe III].

La conversion X - électrons possède au contraire les propriétés souhaitables pour la microscopie de contact dans le domaine des X mous. La faculté de focaliser les photoélectrons émis permet d'obtenir une résolution élevée. Leur détection après grandissement de l'image est facile : on peut employer un scintillateur intensifié ou non, ou un détecteur d'image du type réseau de diodes ou CCD. C'est ce procédé de détection d'image que nous étudions dans les trois chapitres suivants qui constituent la deuxième partie de ce mémoire.

CHAPITRE 5

DETECTION D'IMAGES DE CONTACT PAR CONVERSION PHOTOELECTRIQUE

La microradiographie, qui consiste à projeter une "ombre" de l'objet sur un détecteur, est la méthode la plus simple et la plus ancienne pour faire de la microscopie en rayons X. Ne pas utiliser de composants optiques pour former l'image n'interdit pas nécessairement d'atteindre une bonne résolution, mais élimine cependant deux problèmes relatifs aux optiques pour les rayons X : la difficulté de fabrication (elles ne sont pas commercialisées), et le chromatisme. En fait, lorsqu'on cherche une bonne résolution à l'échelle microscopique, il y a deux manières de procéder. Soit utiliser une source très ponctuelle, mettre l'objet à proximité et faire une projection conique sur un détecteur éloigné. On réalise ainsi une image agrandie, mais cela demande une source aussi petite que la résolution que l'on souhaite obtenir. En projection ponctuelle la qualité d'image dépend essentiellement des propriétés de la source (§ 4.4.1 a)

L'autre possibilité consiste à placer le détecteur au contact de l'objet. Il n'y a pas alors de grandissement. Les propriétés de la source interviennent assez peu, si ce n'est son intensité, et la qualité des images dépend essentiellement des propriétés du détecteur. Il n'est naturellement pas question d'employer les plaques photographiques dont la résolution n'est pas suffisante pour nos applications. On peut cependant utiliser des polymères sensibles aux rayons X. Ces résines photosensibles permettent effectivement des résolutions très

élevées, jusqu'à 10 nm. Toutefois, sans parler des effets non-linéaires qui sont probablement évitables, on doit leur reprocher leur faible dynamique, et aussi de devoir être révélées avant lecture. Comme les plaques photographiques, les résines doivent être révélées, par immersion dans un solvant, avant l'observation au microscope électronique.

L'instrument que nous avons développé, évite ces problèmes en utilisant pour détecteur une photocathode qui convertit l'image de photons X transmis par l'objet, en une image d'électrons. Cette image électronique est agrandie par des optiques électromagnétiques et est observée en temps réel.

5.1 RAPPEL DES PROPRIETES DE L'IMAGERIE DE CONTACT

De façon évidente, lorsque objet et détecteur sont en contact parfait, la résolution est limitée à celle du détecteur. On doit cependant considérer que le contact parfait est non seulement impossible, mais encore qu'il n'est généralement pas souhaitable. On veut en effet observer des objets présentant une certaine épaisseur et les manipuler commodément en utilisant des supports minces (membranes). Deux effets peuvent alors dégrader la résolution : la diffraction et l'effet de pénombre dû à la dimension de la source.

a) Effet de la diffraction

Nous considérons un objet mince à la distance, d , du détecteur. Il est possible d'étudier complètement la propagation de l'onde transmise par l'objet sur la distance d . Toutefois ce calcul assez complexe n'apporte rien à la compréhension des phénomènes et il suffit pour obtenir les ordres de grandeur qui caractérisent l'effet de diffraction, de considérer un objet simple, un bord d'écran par exemple. Dans ce cas, le phénomène est bien connu : on observe des franges de Fresnel dans la partie claire du champ. La dimension du phénomène peut être caractérisé par la position du premier maximum par rapport à l'ombre géométrique :

$$r_f \sim \sqrt{\lambda d} \quad (5.1)$$

Cette grandeur peut être tenue pour une estimation valable de la résolution.

En pratique, cela signifie que pour atteindre une résolution r , il est possible de travailler jusqu'à une distance $d_{\text{max}} = \text{épaisseur de l'objet} + \text{distance objet - détecteur}$, telle que :

$$d_{\text{max}} = r^2 / \lambda \quad (5.2)$$

pour $\lambda = 4 \text{ nm}$ et $r = 0,1 \text{ }\mu\text{m}$, on trouve $d_{\text{max}} = 2,5 \text{ }\mu\text{m}$. cette grandeur reste raisonnable puisqu'une cellule entière mesure généralement entre 2 et 3 μm d'épaisseur.

b) Effet de pénombre

Si la source est étendue spatialement, l'image de l'objet est brouillée par la superposition des images projetées par chacun des points de la source. Nous appelons s le diamètre de la source, D la distance source - objet; l'image d'un point est une tache de rayon

$$r_f = \frac{s d}{2 D} \quad (5.3)$$

Cet effet de pénombre est négligeable lorsqu'on travaille avec une source synchrotron située à une dizaine de mètres, et dont le diamètre n'est que de quelques millimètres. Cependant, pour obtenir une bonne luminosité de l'image, on préfère en pratique focaliser ce rayonnement sur l'objet à l'aide d'un miroir. L'ouverture α de l'optique ne doit pas alors excéder une valeur maximale dépendant de la résolution à atteindre:

$$\alpha < \frac{r}{d} \quad (5.4)$$

Par exemple : 0,1 μm de résolution avec une épaisseur d'objet de 2,5 μm obligent à limiter la demi-ouverture à $\alpha_{\text{max}} = 0,04 \text{ rad} \approx 2^\circ$. Comme on cherche normalement à éclairer un champ suffisant ($\sim 100 \text{ }\mu\text{m}$), une ouverture de 2° qui correspondrait à une étendue de faisceau $\sim 16 \text{ }\mu\text{m}^2 \text{ sr}$, bien supérieure à celle d'une source synchrotron, ne pourra pas être atteinte. Dans ces conditions on n'aura pas à se préoccuper de l'effet de pénombre. La grande acceptance de la méthode serait par contre utile si, pour équiper un instrument de laboratoire, on utilisait une source de rayons X à émission de plasma dont les luminances sont plus faibles.

5.2 PRINCIPE ET PROPRIETES FONDAMENTALES DE LA CONVERSION PHOTOELECTRIQUE

La figure 5.1 présente le principe d'un dispositif d'imagerie X par conversion photoélectrique. Un faisceau de rayons X projette l'image contact d'un objet sur une photocathode ; les électrons photoémis sont collectés et focalisés par une optique électronique pour donner en temps réel une image agrandie de l'objet. Le principe de ce dispositif a été décrit pour la première fois par Huang et Möllenstedt [HUANG, 1957], mais n'a jamais été développé par manque de source de rayons X convenable.

La figure 5.2 montre une distribution typique de l'énergie des photoélectrons émis sous l'action de rayons X d'énergie comprise entre 1 et 10 keV. On y voit les raies étroites d'émission photoélectrique primaire et Auger et la traine de perte d'énergie qui les suit. Ces raies sont bien séparées de la distribution des électrons secondaires, qui résultent des multiples interactions des photoélectrons primaires avec les électrons du solide. L'énergie maximum des secondaires est de l'ordre de 10 à 20 eV. Lorsque le solide est isotrope, ce qui est en général le cas des photocathodes préparées par évaporation, la distribution des photoélectrons internes est aussi isotrope, et la distribution angulaire de la photoémission suit la loi de Lambert.

Pour faire l'image de la répartition de l'intensité de photoémission à la surface de la cathode il faut collecter les électrons émis dans un angle solide aussi grand que possible de façon à les faire rentrer dans la faible ouverture des optiques électroniques. Ceci se fait simplement en accélérant les électrons sortant de la cathode, dans un champ électrique normal à celle-ci. Si φ_0 est l'énergie d'émission des électrons (en électrons-volts), leur vitesse initiale est $\sqrt{\frac{2e}{m} \varphi_0}$. Sous l'action d'un champ appliqué par une électrode au potentiel V ($V \gg \varphi_0$), leur vitesse axiale devient $\sim \sqrt{\frac{2e}{m} V}$, mais leur vitesse transversale n'est pas modifiée et reste, si α_0 est l'angle d'émission, $\sqrt{\frac{2e}{m} \varphi_0} \sin \alpha_0$. On réduit ainsi l'ouverture d'un facteur

$$\frac{\sin \alpha_0}{\sin \alpha'} \simeq \frac{\sin \alpha_0}{\operatorname{tg} \alpha'} = \sqrt{\frac{V}{\varphi_0}} \quad (5.5)$$

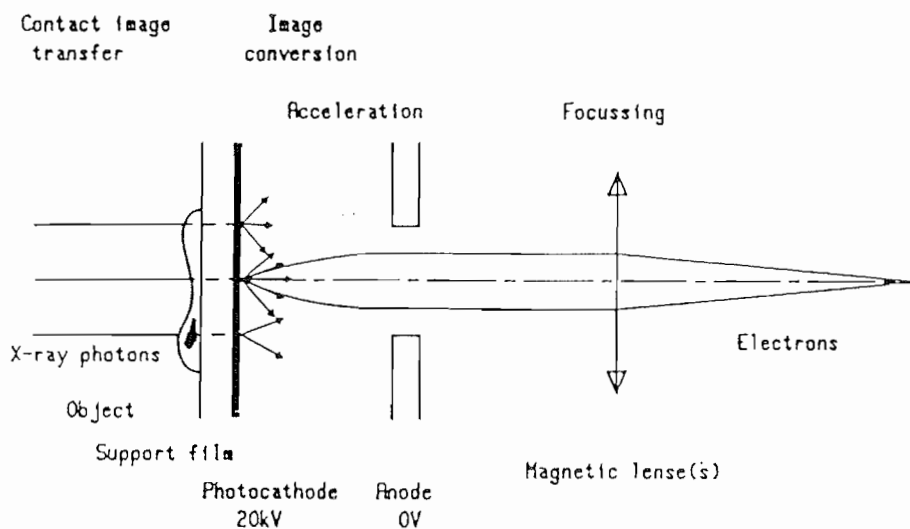


Figure 5.1

Principe du microscope X à conversion d'image

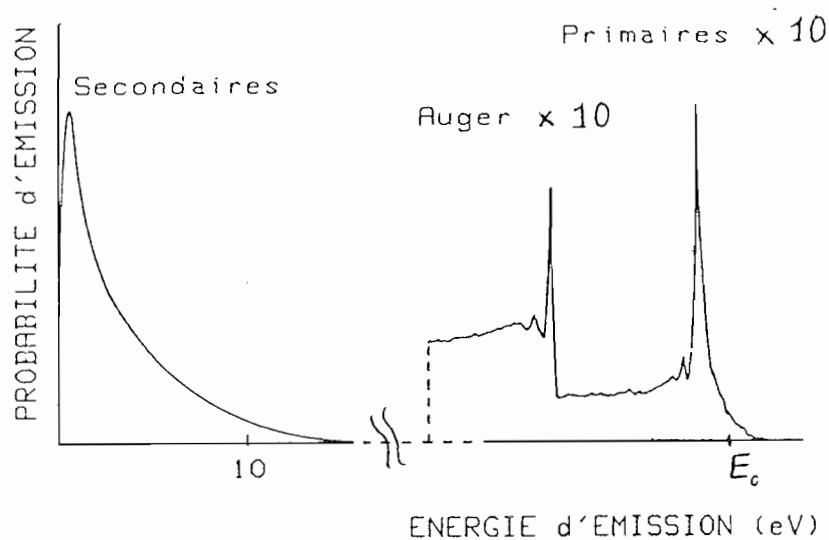


Figure 5.2

Spectre d'énergie caractéristique, des photoélectrons émis d'un solide sous bombardement de photons (E_0 = énergie des photons X incidents).

On voit que cette réduction d'ouverture est d'autant plus importante que l'énergie d'émission est plus faible. Cela signifie que les photoélectrons primaires et Auger seront pratiquement éliminés par la faible ouverture d'une optique électronique ($\sim 10^{-2}$) et qu'on ne pourra faire des images qu'avec les électrons de plus faible énergie. Fort heureusement les électrons secondaires constituent l'essentiel du courant de photoémission (Elisenko et col. [ELISEENKO, 1968] indiquent 75 % pour Au et plus de 99 % pour les halogénures alcalins CsI, KCl...).

Il est clair que, plus la distribution d'énergie des secondaires sera étroite et plus la collection des électrons sera efficace. De plus, ainsi que nous le montrerons au paragraphe 5.3, les exigences de résolution conduiront le plus souvent à limiter fortement l'ouverture et la dispersion énergétique. La théorie de la photoémission secondaire développée par Henke et al., [HENKE 1977] indique que la largeur de cette distribution d'énergie est directement liée au travail de sortie du matériau. On utilisera donc de préférence des matériaux présentant un faible travail de sortie : oxydes et surtout halogénures alcalins.

On montrera par la suite (§ 5.4) que le mécanisme de l'émission secondaire peut être essentiellement décrit comme un phénomène de transport d'énergie : l'énergie perdue par les photons X absorbés dans la photocathode, est transportée par les électrons excités vers la surface, d'où une partie sera émise dans le vide. On peut alors prévoir que le rendement de photoémission (électrons émis/photon incident) sera de la forme :

$$R = E \mu(E) e_p \quad (5.6)$$

où : E = énergie des photons

μ = coefficient linéaire d'absorption

e_p = épaisseur active de la cathode.

e_p est une grandeur caractéristique de la photocathode et ne dépend pas de E . Remarquons dès à présent que la dépendance énergétique en $E \mu(E)$ implique une variation relativement régulière de l'efficacité des photocathodes, à l'exception évidente des seuils des éléments entrant dans sa composition. Il en résulte qu'un petit nombre de matériaux photoémissoirs permet de très bien couvrir le spectre des X mous. De plus, la distribution énergétique des électrons secondaires est pratiquement indépendante de l'énergie des photons X. Ces propriétés associées, et le choix d'une méthode de contact pour former l'image X permettent d'assurer une qualité d'image prati-

quement identique à toutes les longueurs d'onde sans modification de réglages optiques.

C'est une caractéristique particulièrement favorable à la microanalyse d'absorption et la sélection du contraste par la longueur d'onde. Toutefois l'utilisation d'une méthode de microscopie X à l'examen d'objets biologiques exige également un pouvoir résolvant élevé (limite de résolution $\delta \leq 0,1 \mu\text{m}$) et une efficacité quantique suffisante pour ne pas exposer les objets à des doses excessives de rayonnement. Dans le cas d'un microscope à conversion d'image, efficacité et résolution dépendent à la fois de caractéristiques intrinsèques aux photocathodes et de la façon dont sont collectés les électrons.

5.3 LIMITATIONS LIEES A LA COLLECTION DES ELECTRONS

Nous examinons dans ce paragraphe de quelle façon l'optique de collection intervient pour limiter la qualité des images tant sur le plan de la résolution que de la luminosité.

Jusqu'à présent nous n'avons pas fait d'hypothèses sur la nature du champ de collection. Celui-ci est imposé en grande partie par la forme de la cathode. Dans les systèmes classiques de conversion d'image, intensificateur pour vision de nuit, jumelles IR, on privilégie les qualités de champ et on utilise des cathodes sphériques. Dans un convertisseur d'image pour la microscopie X une cathode sphérique paraît de réalisation très délicate. En effet, ainsi que nous l'avons observé plus haut, la qualité des images obtenues par projection de contact dépend très fortement de la distance objet cathode. Cela impose à l'échantillon (nous nommerons échantillon l'ensemble de l'objet et de son support) de se présenter sous la forme d'une feuille mince (épaisseur inférieure à $1\mu\text{m}$).

On utilisera donc une cathode plane obtenue par évaporation du matériau photoémissif sur une membrane tendue. Ceci impose que le champ de collection soit uniforme, sinon en totalité du moins dans sa partie proche de la cathode, et, ainsi que nous allons maintenant l'établir, suffit à déterminer les propriétés de l'imagerie.

5.3.1 ABERRATION SPHEROCHROMATIQUE ENGENDREE PAR UN CHAMP D'ACCELERATION UNIFORME ; CAS MONOCINETIQUE

Les trajectoires électroniques dans un champ possédant la symétrie de révolution, peuvent être calculées par l'une des méthodes que nous décrivons au chapitre suivant. Elles dérivent de l'équation du mouvement en coordonnées cylindriques, d'une particule de charge $-e$ et de masse m :

$$\frac{e}{m} \frac{d^2 \vec{M}}{dt^2} = \overrightarrow{\text{grad } V(M)} = \frac{\partial V(r,z)}{\partial z} \vec{k} + \frac{\partial V(r,z)}{\partial r} \vec{u} \quad (5.7)$$

dans laquelle $M(r,z)$ est un point de la trajectoire tel que $\vec{OM} = z\vec{k} + r\vec{u}$, ($\vec{k}$ et $\vec{u}$ étant les vecteurs unités, respectivement dans la direction axiale et transversale du champ) et où $V(r,z)$ est le potentiel au point M . Parce que dans la suite, nous ne nous intéresserons pas au temps de transit des électrons mais uniquement à la forme des trajectoires, nous choisirons des unités de temps telles que $e/m = 1$.

Toutefois, dans le cas d'un champ d'accélération uniforme de longueur D et d'intensité E , défini par :

$$\frac{\partial V}{\partial z} = E = \frac{V}{D} \quad \frac{\partial V}{\partial r} = 0 \quad (5.8)$$

Les trajectoires sont simplement des paraboles d'axe parallèle à celui du champ, et il est plus simple de calculer les propriétés d'imagerie de façon géométrique plutôt que d'entreprendre le calcul explicite des trajectoires.

Nous supposons que le champ électrique E est uniforme sur une distance D , définie par exemple par l'intervalle entre un plan de cathode et un plan d'anode, et nous considérons un électron émis d'un point $A_0^{(0)}$ sur la cathode, avec une énergie cinétique initiale φ_0 et dans une direction faisant un angle α_0 avec la normale.

Cet électron suit la trajectoire parabolique, représentée sur la figure 5.3, dont le sommet est en S . Cet électron sort du champ d'accélération au point A'' où il semble provenir de l'image virtuelle A' dont nous nous proposons de trouver la position. L'équation du mouvement (5.7) a pour intégrale première :

$$\left(\frac{d\vec{M}}{dt} \right)^2 = 2 \Phi(r,z) \quad (5.9)$$

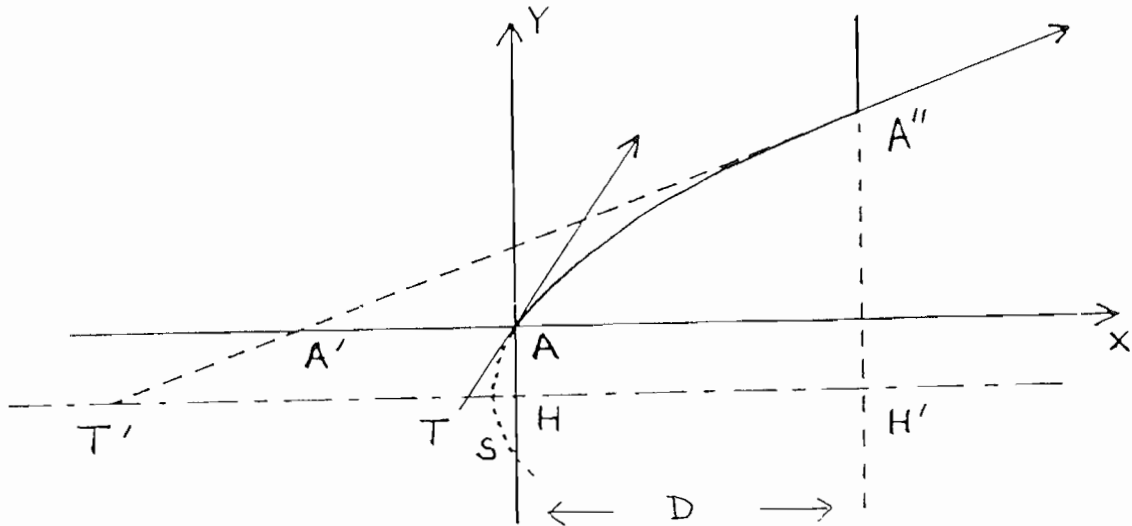


Figure 5.3

Trajectoires d'un électron dans un champ de collection uniforme ; détermination de l'image d'un point.

$\Phi(r,z)$ est l'énergie cinétique totale au point M de la trajectoire : $\Phi(r,z) = \varphi_0 + V(r,z)$

En rappelant que seule la vitesse axiale est affectée par un champ uniforme, on en déduit l'angle de la trajectoire avec l'axe Oz en tout point :

$$\sin \alpha = \sqrt{\frac{\varphi_0}{\varphi_0 + E z}} \sin \alpha_0 \quad (*) \quad (5.10)$$

La position du point S $\begin{pmatrix} -s \\ -h \end{pmatrix}$ se calcule aisément en remarquant que si on prolonge le mouvement à gauche du plan de cathode, au point S correspond une vitesse axiale nulle donc

$$\varphi_0 \cos^2 \alpha_0 - E s = 0 \quad (5.11)$$

* La relation (5.10) n'est autre que la relation de Lagrange, $n y \sin u = \text{Cste}$, dans le cas où l'indice est $n = \sqrt{\Phi}$, et où le grandissement est 1.

En utilisant les propriétés de la sous-tangente à une parabole : $TS = SH$; $T'S = SH'$, on obtient les coordonnées

$$S = \begin{pmatrix} -s = -\frac{\varphi_0 \cos^2 \alpha_0 D}{V} \\ -h = -2 s \operatorname{tg} \alpha_0 \end{pmatrix} \quad (5.12)$$

Le cône des trajectoires des électrons émis du point A sous l'angle α_0 avec l'énergie φ_0 , a pour sommet A' qui est l'image du point A pour ces paramètres d'émission, et :

$$AA' = -D - 2s \left[1 - \frac{\operatorname{tg} \alpha_0}{\operatorname{tg} \alpha'} \right]$$

Si le potentiel de sortie $V = ED$ est élevé, alors $\sin \alpha' \ll 1$ et on peut simplifier (5.10) en

$$\alpha' = \operatorname{tg} \alpha' = \sqrt{\frac{\varphi_0}{V}} \sin \alpha_0 \quad (5.13)$$

d'où :

$$AA' = -D \left(1 + 2 \frac{\varphi_0}{V} \cos^2 \alpha_0 \left[1 - \frac{1}{\sqrt{\varphi_0/V} \cos \alpha} \right] \right) \quad (5.14)$$

Il n'y a pas stigmatisme, puisque la position du point image dépend des paramètres d'émission. Il reste cependant très proche du point image marginal correspondant à $\alpha_0 = \pi/2$, qui est situé à la distance D en arrière de la cathode. L'image ainsi formée est entachée d'une aberration dépendant de la quantité $\sqrt{\varphi_0} \cos \alpha$ (énergie cinétique axiale à l'émission) et appelée pour cette raison aberration sphérochromatique, car elle dépend de façon non séparable de l'ouverture (aberration sphérique) et de l'énergie d'émission (aberration chromatique). Le grandissement de cette image est égal à 1 puisqu'il n'y a pas de déplacement transversal.

Évaluée par rapport au plan de l'image marginale, *

* Contrairement à l'habitude, on préfère évaluer l'aberration par rapport au plan de l'image marginale (ouverture d'émission maximale $\alpha_0 = \pi/2$) qui est achromatique, plutôt que par rapport au plan de l'image paraxiale, qui lui, est entaché de chromatisme.

l'aberration longitudinale s'exprime par :

$$\ell = 2 D \sqrt{\frac{\varphi_0}{V}} \cos \alpha_0 - 2 D \frac{\varphi_0}{V} \cos^2 \alpha_0 \quad (5.15)$$

où interviennent deux quantités dont la grandeur diffère du facteur $\sqrt{\frac{\varphi_0}{V}}$. Dans les conditions usuelles φ_0 est inférieur à 10 eV et la tension d'accélération V est de plusieurs dizaines de kV. On remplit donc aisément la condition :

$$\sqrt{\frac{\varphi_0}{V}} \ll 1 \quad (5.16)$$

qui permet de simplifier ℓ sous la forme

$$\ell = 2 D \sqrt{\frac{\varphi_0}{V}} \cos \alpha_0 \quad (5.17)$$

On peut estimer l'importance de cette aberration par le rayon de la tache image dans le plan paraxial, correspondant à $\alpha_0 = 0$ et tel que $z = -D + \ell$

$$y = \ell \alpha' = 2D \frac{\varphi_0}{V} \sin \alpha_0 \cos \alpha_0 \quad (5.18)$$

ou, en faisant apparaître l'intensité du champ accélérateur,

$$y = \frac{\varphi_0}{E} \sin 2\alpha_0 \quad (5.19)$$

Sous cette forme, l'aberration est clairement indépendante de l'énergie finale des électrons. Elle ne dépend que des paramètres d'émission et de l'intensité du champ de collection E . En particulier, cette valeur est atteinte dès que la condition 5.16 est remplie. Pour minimiser l'aberration produite, on réalisera donc les champs les plus élevés possible (de 50 à 100 kV/cm). Avec $E = 50$ kV/cm, 90 % de l'aberration est produite dans les 10 premiers microns d'accélération avant que le potentiel n'atteigne 500 V. A une si faible distance du plan objet, il est impossible d'espérer réaliser un champ correcteur diminuant la convergence des rayons les plus ouverts. On peut en outre montrer (cf. GRIVET p.69) que l'aberration sphérique d'un système optique électronique de révolution est toujours négative (dans nos conventions), quel que soit le signe de sa convergence, c'est-à-dire que les rayons marginaux sont toujours focalisés en arrière des rayons paraxiaux. On devra donc composer avec cette aberration sphérique. Au besoin, on pourra en limiter l'influence en réduisant artificiellement

l'ouverture ou la distribution énergétique des électrons. Ce sera bien sûr au détriment de l'efficacité de collection.

Pour faire ces calculs de résolution et d'efficacité de collection, nous aurons besoin de prendre en compte les distributions angulaire et énergétique de la probabilité d'émission. On doit à Henke un modèle du phénomène de photoémission secondaire qui, pour les métaux, a l'avantage d'être très simple ; il ne dépend que d'un seul paramètre, le travail de sortie, w , de la photocathode. Il est très bien vérifié par l'expérience [HENKE, 1977].

Selon ce modèle, dont nous reparlerons plus en détail au § 5.4, et pour un métal dont le travail de sortie est w , les probabilités d'émission normalisées, s'expriment indépendamment en fonction de l'énergie et de l'angle d'émission par :

$$\left\{ \begin{array}{l} N(\varphi) = \frac{6w^2 \varphi}{(w+\varphi)^4} \quad ; \quad \int_0^\infty N(\varphi) d\varphi = 1 \\ I(\alpha_0) = 2 \sin \alpha_0 \cos \alpha_0 \quad ; \quad \int_0^{\pi/2} I(\alpha_0) d\alpha_0 = 1 \quad (\text{loi de Lambert}) \end{array} \right. \quad (5.20)$$

de sorte que la probabilité d'émission avec une énergie $\in [\varphi, \varphi+d\varphi]$ et un angle $\in [\alpha_0, \alpha_0+d\alpha_0]$ est $N(\varphi) I(\alpha_0) d\varphi d\alpha_0$. Pour les isolants et surtout pour les semiconducteurs Henke [HENKE 1979] donne des expressions un peu différentes qui pourront être utilisées si nécessaire.

5.3.2 CALCUL APPROCHE DE LA RESOLUTION PAR LE CERCLE DE MOINDRE DIFFUSION

a) influence de l'ouverture et de la distribution énergétique dans le cas monocinétique

Nous ferons d'abord ce calcul plus ou moins classique qui a l'avantage de montrer qualitativement l'influence des divers paramètres. Nous réservons à plus tard (§ 5.3.3) d'exprimer la résolution par des critères plus affinés comme la fonction de transfert de modulation.

L'expression (5.15) donne la position de l'image correspondant aux paramètres d'émission α_0 et φ_0 . A énergie d'émission fixée φ_0 , il est assez facile d'évaluer la dimension de la tache d'aberration en étudiant la caustique, c'est-à-dire la surface enveloppe de la congruence des rayons, au voisinage

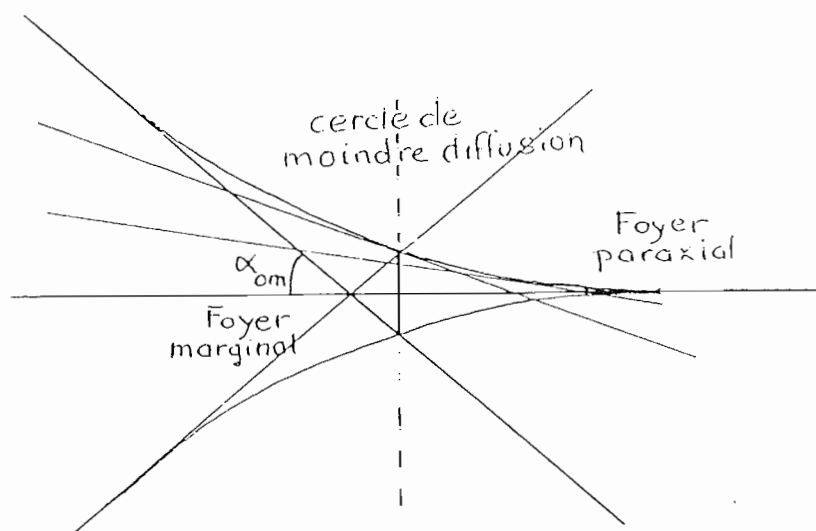


Figure 5.4

Forme de la surface caustique et position du cercle de moindre diffusion

de laquelle l'éclairement est donc maximal [SŁODZIAN, 1980].

Observée dans un plan d'abscisse z comptée à partir du foyer marginal commun (en l'absence de diaphragmation), l'aberration transverse est :

$$y(\alpha_0, \varphi_0) = \left(z - 2 D \sqrt{\varphi_0/V} \cos \alpha_0 \right) \sqrt{\varphi_0/V} \sin \alpha_0 \quad (5.21)$$

et la caustique définie par $\frac{dy}{d\alpha} = 0$, $\frac{dz}{d\alpha} = 0$ et (5.18), est représentée paramétriquement par :

$$\begin{cases} z = 2 D \sqrt{\frac{\varphi_0}{V}} \frac{\cos^2 \alpha_0 - \sin^2 \alpha_0}{\cos \alpha_0} \\ y = 2 D \frac{\varphi_0}{V} \frac{\sin^3 \alpha_0}{\cos \alpha_0} \end{cases} \quad (5.22)$$

Le diamètre de la tache image dépend de l'abscisse z du plan d'observation. La tache image de plus petit diamètre est appelée cercle de moindre diffusion et se trouve dans le plan $z = z_d$ de l'intersection de la caustique avec le rayon marginal. En effet pour $z < z_d$ la caustique a un diamètre plus important et pour $z > z_d$ les rayons de grande ouverture forment un halo autour de la caustique. Le rayon marginal est le dernier rayon transmis à travers le diaphragme d'ouverture dont le rayon angulaire dans l'espace image est β . Dans l'espace

objet, il est caractérisé par un angle α_{0m} , qui est l'angle maximal d'émission pour lequel un électron est transmis. α_{0m} dépend de l'énergie φ_0 d'émission par la relation :

$$\sin \alpha_{0m} = \text{Min} \left(1, \beta \sqrt{\frac{V}{\varphi_0}} \right) = \text{Min} \left(1, \sqrt{\frac{\varphi_{0m}}{\varphi_0}} \right) \quad (5.23)$$

dans laquelle nous faisons apparaître la quantité $\varphi_{0m} = \beta^2 V$. φ_{0m} est l'énergie cinétique radiale maximale d'émission correspondant à l'ouverture de filtrage β .

Le calcul montre [SLODZIAN, 1980] que le cercle de moindre diffusion se situe environ au tiers du segment [foyer marginal - foyer paraxial] et que son rayon s'exprime par :

$$\begin{aligned} Y_d &= 2D \frac{\varphi_0}{V} R(\alpha_{0m}) \sin \alpha_{0m} (1 - \cos \alpha_{0m}) \\ &= \frac{R(\alpha_{0m})}{E} \sqrt{\varphi_{0m}} (\sqrt{\varphi_0} - \sqrt{\varphi_0 - \varphi_{0m}}) \end{aligned} \quad (5.24)$$

où $R(\alpha_{0m})$ est une fonction qui varie très peu et croît de 0,25 à 0,30 lorsque α_{0m} décrit l'intervalle $[0, \frac{\pi}{2}]$. Les résultats de ce calcul sont portés sur la figure 5.5.

Réduire l'ouverture de collection a en même temps un effet sur le flux. Si on admet, avec HENKE, une émission selon la loi de Lambert (eq. 5.20), le facteur de collection est :

$$\tau = \frac{\int_0^{\alpha_{0m}} \cos \alpha \cdot 2\pi \sin \alpha \, d\alpha}{\int_0^{\pi/2} \cos \alpha \cdot 2\pi \sin \alpha \, d\alpha} = \sin^2 \alpha_{0m} = \frac{\varphi_{0m}}{\varphi_0} \quad (5.25)$$

La figure 5.6 exprime en fonction de ce nouveau paramètre le compromis flux résolution. L'échelle de droite évalue la résolution en μm pour les paramètres suivants $\varphi_0 = 2\text{eV}$; $E = 50 \text{ KV/cm}$

b) Cas polycinétique

L'analyse du problème est encore plus complexe dans le cas réel où les électrons émis par la cathode ont une distribution continue de vitesse, $N(\varphi)$ (eq. 5.20).

Commençons par examiner qualitativement les phénomènes (figure 5.7) :

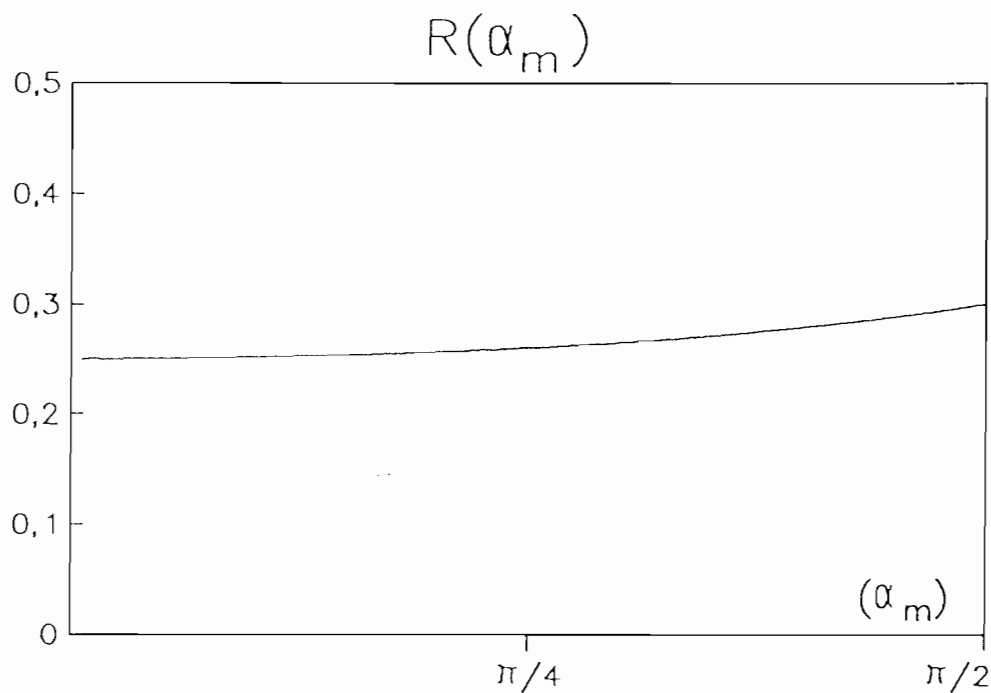


Figure 5.5

Variation de la fonction R avec l'angle d'émission du rayon marginal α_{0m} .

rayon Y_D du cercle de moindre diffusion

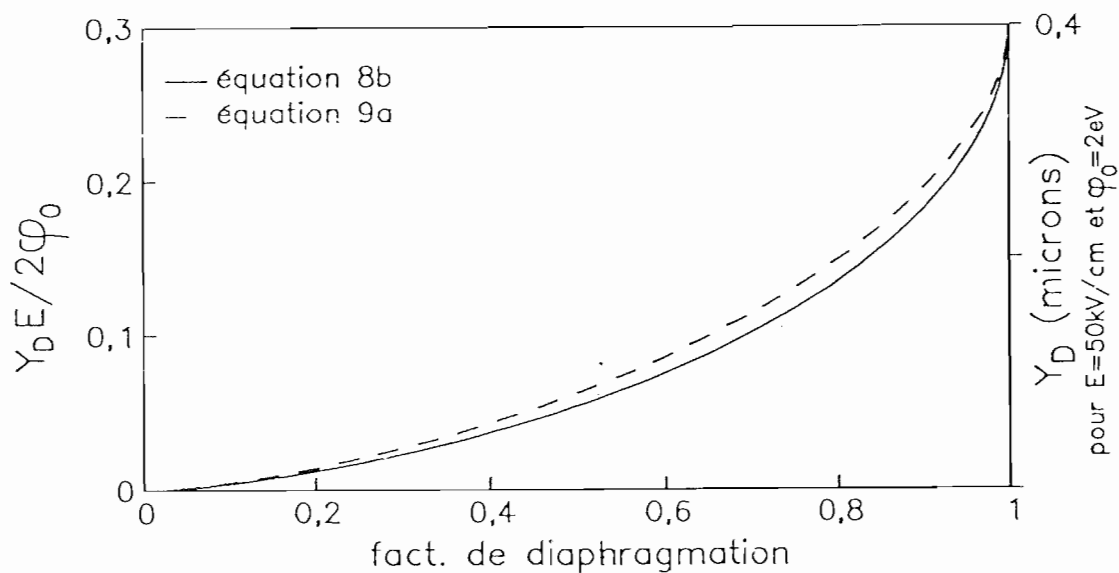


Figure 5.6

Variation du rayon du cercle de moindre diffusion en fonction du facteur de diaphragmation $\tau = \frac{\varphi_{0m}}{\varphi_0}$.

La courbe en trait plein résulte du calcul exact ; la courbe en trait interrompu, de l'approximation $R = 0,3$ dans l'équation (5.3)

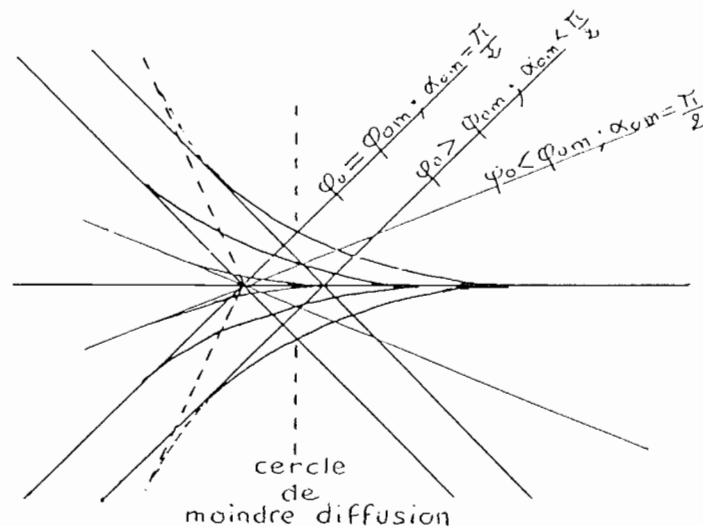


Figure 5.7

Position du cercle de moindre diffusion dans le cas polychromatique.

- à chaque énergie φ_0 correspond une surface caustique ; l'énergie φ_{0m} est le cas limite où les électrons émis remplissent la pupille $\alpha_{0m} = \pi/2$.

- pour $\varphi_0 < \varphi_{0m}$ la caustique tout entière est extérieure à la caustique φ_{0m} . La pupille n'est pas remplie et le cône des rayons est intérieur au cône des rayons d'énergie φ_{0m} .

- pour $\varphi_0 > \varphi_{0m}$ la pupille diaphragme les rayons tels que $\varphi_0 \sin^2 \alpha_0 > \varphi_{0m}$: la caustique est incomplète et une fraction $\tau(\varphi_0) = \frac{\varphi_{0m}}{\varphi_0}$ des électrons est transmise.

Si le spectre d'énergie est limité à une borne supérieure φ_M , (ou dans le cas d'une émission limitée à une bande spectrale $[\varphi_m, \varphi_M]$ avec $\varphi_m < \varphi_{0m}$), la figure 5.7 montre clairement que le cercle de moindre diffusion se trouve à l'intersection des rayons marginaux correspondants aux énergies φ_{0m} et φ_M . En pratique, si l'énergie n'est pas limitée on choisit φ_M tel que le nombre d'électrons négligés soit suffisamment faible.

Le résultat du calcul de la position axiale z_d et du rayon y_d du cercle de moindre diffusion est [SŁODZIAN, 1980] :

$$\begin{cases} z_d = D \sqrt{\frac{\varphi_M}{V}} \cos \alpha_M = D \sqrt{\frac{\varphi_M - \varphi_{0m}}{V}} \\ y_d = D \frac{\sqrt{\varphi_M \varphi_{0m}}}{V} \cos \alpha_M = \frac{\sqrt{\varphi_{0m}} \sqrt{\varphi_M - \varphi_{0m}}}{E} \end{cases} \quad (5.26)$$

où α_M est l'angle de collection correspondant à l'énergie maximale φ_M :

$$\sin \alpha_M = \sqrt{\frac{\varphi_{0m}}{\varphi_M}} \quad (5.27)$$

L'expression (5.26) est connue sous le nom de formule de Recknagel [cf. GRIVET p. 316].

Si on limite la bande passante énergétique à $[\varphi_m, \varphi_M]$ et $\varphi_m > \varphi_{0m}$ on montrera aisément :

$$\begin{cases} z_d = D \left(\sqrt{\frac{\varphi_M - \varphi_{0m}}{V}} + \sqrt{\frac{\varphi_m - \varphi_{0m}}{V}} \right) \\ y_d = \frac{\sqrt{\varphi_{0m}}}{E} \left(\sqrt{\varphi_M - \varphi_{0m}} - \sqrt{\varphi_m - \varphi_{0m}} \right) \end{cases} \quad (5.28)$$

c) Influence des limitations en énergie et en ouverture

Nous étudions ici l'influence des limitations imposées par l'appareillage : i) en ouverture par le diamètre du diaphragme d'ouverture imposant une énergie radiale maximale φ_{0m} et, ii) en énergie par l'effet d'un système dispersif. Nous nous limiterons ici à l'étude d'un filtrage passe bas avec une énergie de coupure φ_M .

Ces limites instrumentales déterminent d'une part, comme nous venons de le voir, la résolution et d'autre part l'efficacité de collection des électrons. Dans le cas d'une photocathode émettant un spectre continu d'électrons secondaires la distribution d'énergie est donnée par les formules de Henke. Pour simplifier, on étendra au cas général la formule valable pour des conducteurs (eq. 5.20). Nous justifierons cette affirmation au § 5.4.1 ; notons que la quantité w représente alors la largeur à mi-hauteur du profil d'émission. Le rendement de collection se calcule de la façon suivante :

$$T = \int_0^{\varphi_M} N(\varphi) \tau(\varphi) d\varphi \text{ avec } \begin{cases} \tau(\varphi) = 1 & \text{si } \varphi < \varphi_{0m} \\ \tau(\varphi) = \frac{\varphi_{0m}}{\varphi} & \text{si } \varphi > \varphi_{0m} \end{cases} \quad (5.29)$$

on obtient alors :

$$\begin{cases} T = 1 - \frac{w^2}{(w + \varphi_{0m})^2} - \frac{2w^2 \varphi_{0m}}{(w + \varphi_M)^3} & \text{si } \varphi_M > \varphi_{0m} \\ T = 1 - \frac{w^2 (w + 3 \varphi_M)}{(w + \varphi_M)^3} & \text{si } \varphi_M < \varphi_{0m} \end{cases} \quad (5.30)$$

La figure 5.8 présente cette discussion du compromis efficacité / résolution en fonction de paramètres indépendants de la cathode et du champ d'accélération. Les énergies sont rapportées au travail de sortie de la cathode w et les résolutions à la résolution $\rho_0 = w/E$ que l'on obtiendrait pour une émission monocinétique d'énergie égale à l'énergie moyenne w . On a tracé en traits mixtes les courbes d'égale efficacité de collection et en traits pleins les courbes d'égale résolution (ordre de grandeur de ρ_0 pour $w=2\text{eV}$ (CsI) $E=50\text{ KV/cm}$, $\rho_0=0,4\text{ }\mu\text{m}$).

Lorsque $\varphi_M \gg \varphi_{0m}$ la résolution est calculée par 5.25 ; lorsque $\varphi_M < \varphi_{0m}$, la diaphragmation (hyperboles en traits pleins) en ouverture ne joue plus et le cercle de moindre diffusion est celui d'une émission monochromatique d'énergie φ_M non diaphragmée :

$$Y_d = \frac{0,6 \varphi_M}{E} \quad (5.31)$$

Ces courbes ne se raccordent pas. En effet lorsque φ_M tend vers φ_{0m} , l'intersection des rayons marginaux correspondant aux énergies φ_M et φ_{0m} devient intérieure à la caustique d'énergie φ_M . Le cercle de moindre diffusion est alors situé à l'intersection du rayon marginal d'énergie φ_{0m} avec la caustique φ_M elle-même. Dans cette région le rayon du cercle de moindre diffusion est donné par les courbes en traits interrompus dont l'équation paramétrique est :

$$\left\{ \begin{array}{l} Y_0 = 2 D \sqrt{\varphi_M \varphi_{0m}} \frac{1-2t^2}{\sqrt{1-t^2}} \\ \text{avec} \\ \frac{t^3}{1-2t^2} = \sqrt{\frac{\varphi_{0m}}{\varphi_M}} \end{array} \right. \quad (5.32)$$

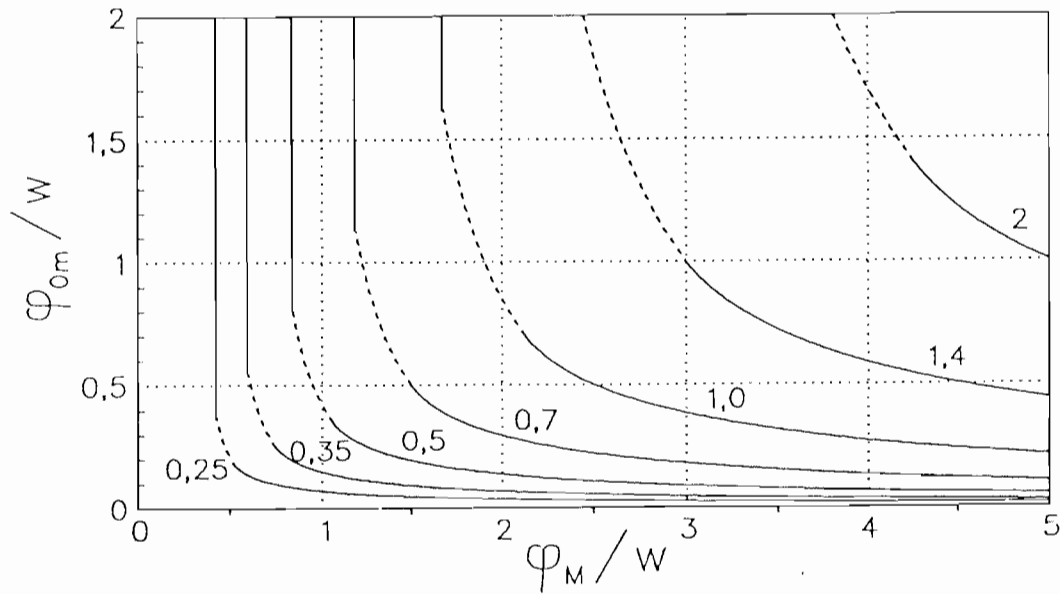
d) Discussion

La figure 5.8 montre qu'à énergie maximum fixée une diaphragmation permet de descendre en résolution (comme $\sqrt{\varphi_{0m}}$) mais que l'efficacité de collection décroît très rapidement. On obtient le même type d'évolution pour un filtrage passe bas des énergies, à supposer qu'un tel filtrage soit réalisable. Il apparaît surtout que le meilleur compromis résolution / efficacité se situe dans la région $\varphi_{0m} < \varphi_M < 2\varphi_{0m}$. Selon le critère du cercle de moindre diffusion, on peut estimer que pour $\varphi_M = w/2$ ($\approx 1\text{eV}$ dans le 1er cas de CsI : $w = 2\text{eV}$) et φ_{0m} voisin de $w/3$ ($0,6\text{ eV}$) on doit pouvoir atteindre une résolution voisine de $w/4E$ ($0,1\text{ }\mu\text{m}$ dans notre exemple) avec une efficacité de collection supérieure à 20 %.

Notons enfin les limites d'un critère qui ne tient compte que des rayons les plus externes, quelque soit l'éclairement qu'ils engendrent. Il a donc une nette tendance à sous-estimer la résolution. En particulier, son application brutale ne permet pas de définir la résolution lorsque le système optique ne limite pas l'énergie ($\varphi_M = \infty$). Telle quelle, la méthode permet cependant une bonne approche du problème, mais pour estimer valablement les limites de résolution, on est contraint, comme nous le faisons maintenant, de calculer explicitement la réponse percussionnelle ou sa transformée de Fourier, la fonction de transfert de modulation (FTM).

courbes d'égale résolution

(au sens du cercle de moindre diffusion)



courbes d'égale transmittance

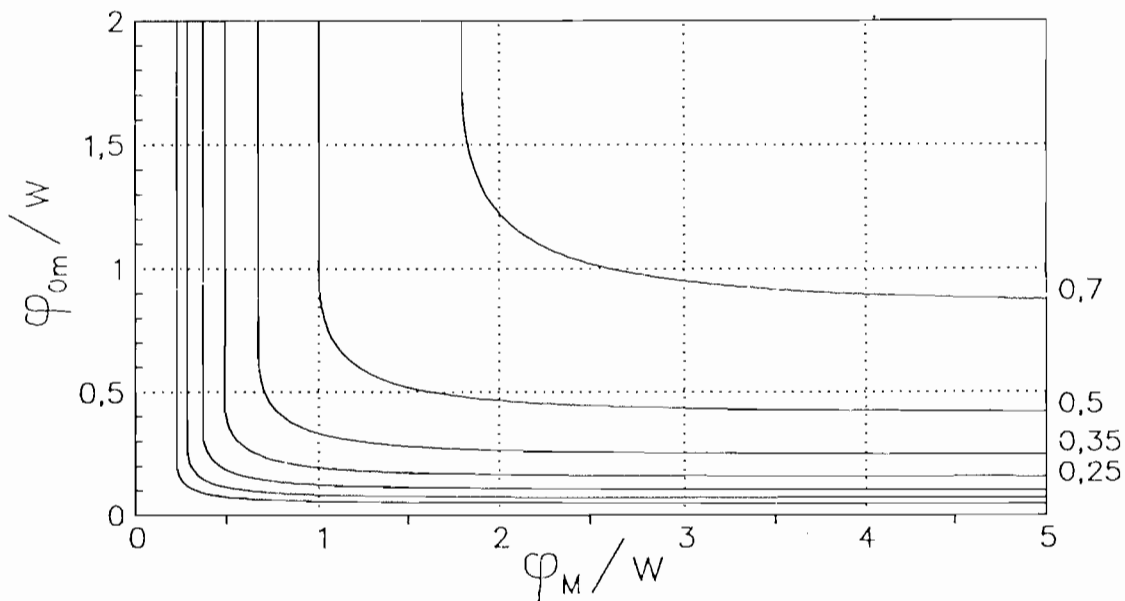


Figure 5.8

Optimisation du filtrage à partir du cercle de moindre diffusion

Partie supérieure : rayon du cercle de moindre diffusion y_d en fonction du filtrage en énergie, en abscisse, et du filtrage en ouverture, en ordonnée. y_d est portée le long de chaque courbe, en unité $\rho_o = w/E$.

Partie inférieure : facteur de collection, T , en fonction des mêmes paramètres. T varie de 0,7 entre chaque courbe. La valeur de T est portée en marge pour les 4 premières courbes.

5.3.3 ETUDE DU COMPROMIS EFFICACITE DE COLLECTION / RESOLUTION PAR LA FTM

La discussion que nous venons de faire donne qualitativement le comportement de la tache image en fonction des filtres. Nous allons maintenant effectuer une estimation plus précise de la résolution, en faisant appel à des concepts couramment utilisés en optique du visible : la réponse percussionnelle et la fonction de transfert de modulation.

a) Calcul de la réponse percussionnelle

L'éclairement dans la tache image d'une source ponctuelle (Réponse percussionnelle) peut être calculé à partir de l'équation des rayons aberrants (5.21) et des distributions angulaires et énergétiques de l'émission.

A partir de (5.21) qui donne l'ordonnée $y_z(\alpha_0, \varphi)$ de l'intersection du rayon (α_0, φ) avec un plan image d'abscisse z , on obtient la densité de rayons entre y et $y + dy$, $P_z(y) dy$, en sommant, parmi toutes les trajectoires possibles, sur celles qui vérifient $y_z(\alpha_0, \varphi) \in [y, y+dy]$.

Dans le cas d'un système non diaphragmé, on obtient :

$$P_z(y) = \int_0^\infty \int_0^{\pi/2} N(\varphi) \sin 2\alpha \delta(y - y_z(\alpha_0, \varphi)) d\varphi d\alpha_0 \quad (5.33)$$

Si maintenant l'objectif est diaphragmé, toutes les trajectoires ne sont pas autorisées, mais seulement celles qui vérifient $\alpha_0 < \alpha_{0m}(\varphi)$, avec, comme plus haut,

$$\sin \alpha_{0m}(\varphi) = \beta \sqrt{V/\varphi} \quad (5.34)$$

On peut aussi tenir compte d'un filtrage en énergie de photoélectron transmettant une bande d'énergie $[\varphi_0, \varphi_1]$.

d'où, pour le système diaphragmé :

$$P_z(y) = \int_{\varphi_0}^{\varphi_1} \int_0^{\alpha_{0m}(\varphi)} N(\varphi) \sin 2\alpha \delta(y - y_z(\alpha, \varphi)) d\alpha d\varphi \quad (5.35)$$

La fonction d'éclairement ou réponse percussionnelle s'obtient à partir de la densité de trajectoires entre r et $r+dr$ en divisant par l'élément d'aire. On notera que pour cette fonction radiale on doit sommer les valeurs correspondant à $y = r$ et $y = -r$, d'où :

$$F_z(r) = \frac{1}{2\pi r} \int_{\varphi_0}^{\varphi_1} \int_0^{\alpha_{0m}(\varphi)} N(\varphi) \sin 2\alpha \times \quad (5.36)$$

$$\times [\delta(r - y_z(\alpha, \varphi)) + \delta(r + y_z(\alpha, \varphi))] d\alpha d\varphi$$

La présence de distributions dans les expressions (5.35) et (5.36) ne permet pas d'évaluer directement la réponse percussionnelle.

On peut montrer que la réponse percussionnelle présente une singularité à l'origine qui ne doit pas surprendre dans ce cas d'aberration purement géométrique. Elle interdit pourtant de définir une largeur à mi-hauteur et d'appliquer des critères simples de résolution. Il faut donc faire intervenir des critères basés sur des intégrales de $F_z(r)$. On peut, au choix, utiliser les concepts d'énergie encerclée ou de Fonction de Transfert de Modulation.

Nous nous baserons sur ce dernier critère.

b) Fonction de transfert de modulation

On définit la FTM comme transformée de Fourier à deux dimensions de la réponse percussionnelle.

$$\tilde{F}_z(\vec{\nu}) = \int F_z(\vec{M}) e^{2i\pi \vec{\nu} \cdot \vec{M}} d\vec{M} \quad (5.37)$$

Elle exprime le facteur de contraste avec lequel est rendue une modulation sinusoïdale de fréquence et orientation donnée. A partir de la FTM, on peut plus facilement définir un critère de résolution significatif, dans la mesure où cette fonction décroît régulièrement avec la fréquence. Nous avons choisi d'estimer la résolution par l'inverse de la fréquence à laquelle la FTM atteint une valeur de seuil fixée par exemple 20 % de contraste. Encore une fois il ne s'agit pas de critère absolu (le seuil de visibilité dépend fortement d'autres paramètres en particulier de la lumière parasite). Il est cependant plus facile à appliquer dans un cas concret où on cherche à optimiser l'image d'un objet dont le contenu en fréquence est déterminé.

Dans le cas où $F_z(r)$ possède la symétrie de révolution il est de même pour la FTM qui est définie par une transformée de Hankel.

$$\begin{aligned}\tilde{F}_z(\nu) &= \int_0^\infty F_z(r) \int_0^{2\pi} e^{2i\pi\nu r \cos \theta} 2\pi r d\theta dr \\ &= 2\pi \int_0^\infty F_z(r) J_0(2\pi\nu r) r dr\end{aligned}\quad (5.38)$$

En introduisant la valeur de $F_z(r)$ calculée et en tenant compte de la symétrie de la fonction de Bessel J_0 :

$$J_0(r) = J_0(-r)$$

on obtient :

$$\tilde{F}_z(\nu) = \int_{\varphi_0}^{\varphi_1} \int_0^{\alpha_{0m}(\varphi)} N(\varphi) \sin 2\alpha J_0(2\pi\nu Y_z(\alpha, \varphi)) d\alpha d\varphi \quad (5.39)$$

Cette équation s'intègre numériquement pour donner les courbes que nous discutons maintenant.

c) Discussion du compromis efficacité / résolution à partir des courbes de FTM

Les courbes de FTM dépendent d'un paramètre de mise au point z et des paramètres de filtrage. Elles ont été calculées, comme nous l'avions fait pour le cercle de moindre diffusion, pour un double filtrage passe bas en ouverture et en énergie caractérisé par :

$$\begin{aligned}0 < \varphi_0 < \varphi_M \\ 0 < \varphi_0 \sin \alpha_0 < \varphi_{0m}\end{aligned}\quad (5.40)$$

Rappelons que si le diaphragme d'ouverture est placé dans l'espace image d'une lentille où le grandissement transversal est G_y , et qu'il limite l'ouverture à la valeur angulaire β , l'énergie caractéristique du filtrage est :

$$\varphi_{0m} = \nu \left(\frac{\beta}{G_y} \right)^2 \quad (5.41)$$

La figure 5.9 montre l'allure de quelques courbes de FTM. La forme de ces courbes est caractéristique d'une forte aberration géométrique. Elles présentent une décroissance rapide aux basses fréquences, puis une décroissance beaucoup plus lente pour les fréquences moyennes et élevées. Le contraste dans ce domaine de fréquence dépend fortement du filtrage. On notera que la courbe 3 correspondant à des valeurs proches de φ_{0m} et de φ_M présente de très légères oscillations de pente.

Celles-ci ne proviennent pas de la méthode ou de la précision du calcul numérique, mais ont pour origine les discontinuités de la réponse percussionnelle provoquées par le filtrage.

Pour reprendre la discussion du compromis efficacité / résolution à partir des courbes de FTM, il faut définir une fonction de mérite. On utilise habituellement la notion de fréquence de coupure, à partir de laquelle le contraste peut être tenu pour nul. Ici, la présence d'un plateau de la FTM aux hautes fréquences rend ce critère inapplicable. Nous avons choisi, somme toute arbitrairement, de définir la résolution à partir de la fréquence $\nu_{0,2}$ au delà de laquelle le contraste devient inférieur à 20% :

$$r_{0,2} = \frac{1}{2 \nu_{0,2}} \quad (5.42)$$

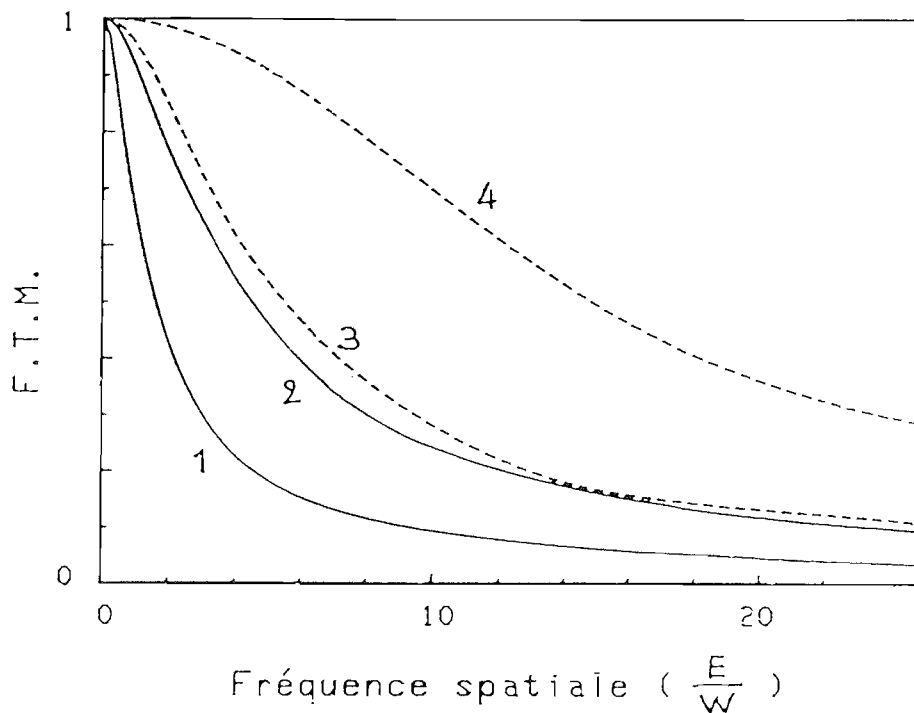


Figure 5.9

Quatre courbes de FTM, pour le meilleur plan de mise au point, calculées avec les paramètres suivants :

1	$\varphi_M = 5 w$	$\varphi_{0m} = w/4$
2	$\varphi_M = 5 w$	$\varphi_{0m} = w/32$
3	$\varphi_M = w/4$	$\varphi_{0m} = w/4$
4	$\varphi_M = w/4$	$\varphi_{0m} = w/64$

Les courbes d'égale résolution selon ce critère sont tracées sur la figure 5.10 en fonction des paramètres de filtrage normalisés au travail de sortie de la photocathode (φ_M/w et φ_{0m}/w), comme sur la figure 5.8. La résolution y est aussi exprimée dans l'unité $\rho_0 = w/E$, qui dépend du matériau de cathode. Rappelons que pour $W = 2$ eV, $E = 50$ kV/cm, $\rho_0 = 0,4$ μm . On y a également rappelé les courbes d'égal facteur de transmission.

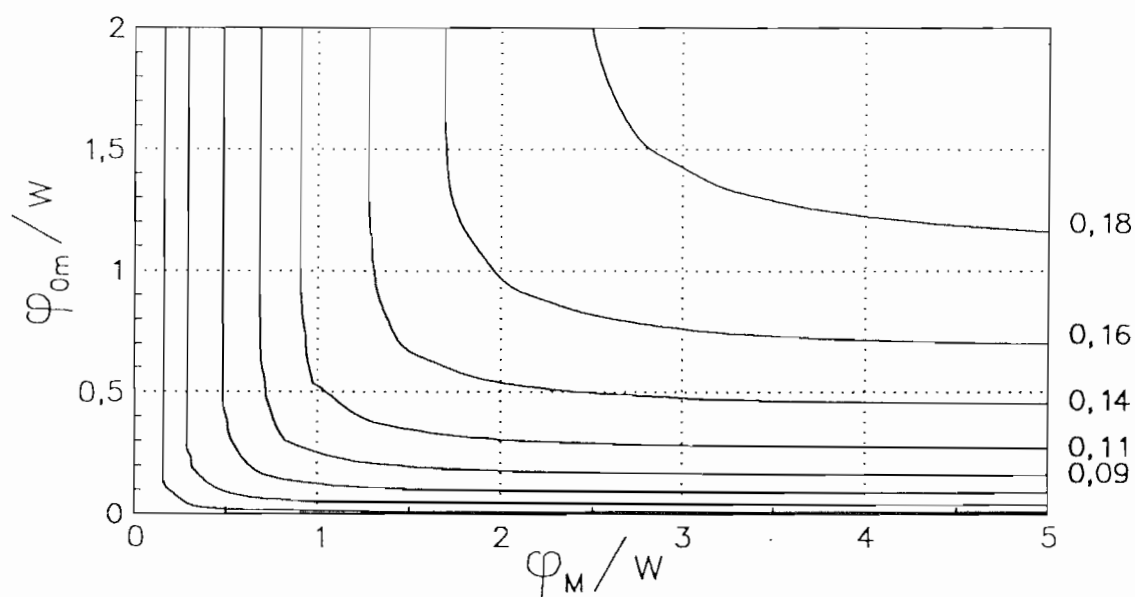
Ce qui ressort d'abord de ces courbes, c'est qu'il y a un écart d'un facteur très important (proche de 10 pour $\varphi_M = 5w$) entre les résolutions estimées par l'une et l'autre méthode. La FTM tient compte, en effet de la probabilité des divers rayons, alors que le cercle de moindre diffusion ne tient compte que du rayon le plus extrême. On constate d'ailleurs que, dans la région $\varphi_M \gg \varphi_{0m}$, les courbes $r_{0,2} = \text{Cste}$ sont plates, contrairement à celles du cercle de moindre diffusion, parce que l'influence des quelques électrons de fortes énergies transmis par le diaphragme devient négligeable. Ainsi, avec une cathode de CsI, un simple filtrage d'ouverture caractérisé par $\varphi_{0m} \sim w/2$ doit permettre d'atteindre une résolution proche de $0,05$ μm tout en conservant une efficacité voisine de 50%.

On ne doit pas être surpris de l'irrégularité des courbes dans la région $\varphi_M \approx \varphi_{0m}$: elle ne provient pas de la précision du calcul, mais de la définition de $r_{0,2}$. En effet la définition que nous en avons donné considère implicitement que le plan de meilleure mise au point est celui qui maximise la fréquence $\nu_{0,2}$ pour laquelle la FTM vaut $0,2$. Pour certains paramètres de filtrage, les faibles oscillations de la FTM conduisent à une légère instabilité du critère de résolution, sans signification pratique.

En conclusion de cette étude de la résolution, associer un filtrage en énergie à un filtrage en ouverture permet, à résolution constante, un certain gain en efficacité de collection. La meilleure efficacité est obtenue pour le seul filtrage en énergie, $\varphi_M \leq \varphi_{0m}$; toutefois filtrer seulement en énergie n'est pas réalisable parce que la dimension de la pupille intervient pour limiter la résolution du filtre. Dans le cas d'un filtrage double en énergie et en ouverture, il reste un gain dans le domaine $\varphi_M \lesssim \varphi_{0m}$. Ce gain est limité à un facteur 2 environ pour les plus fortes diaphragmations. La résolution reste principalement gouvernée par le facteur $\rho_0 = w/E$, dans lequel la nature de la photocathode joue le plus grand rôle.

courbes d'égale résolution

(au sens de la FTM)



courbes d'égale transmittance

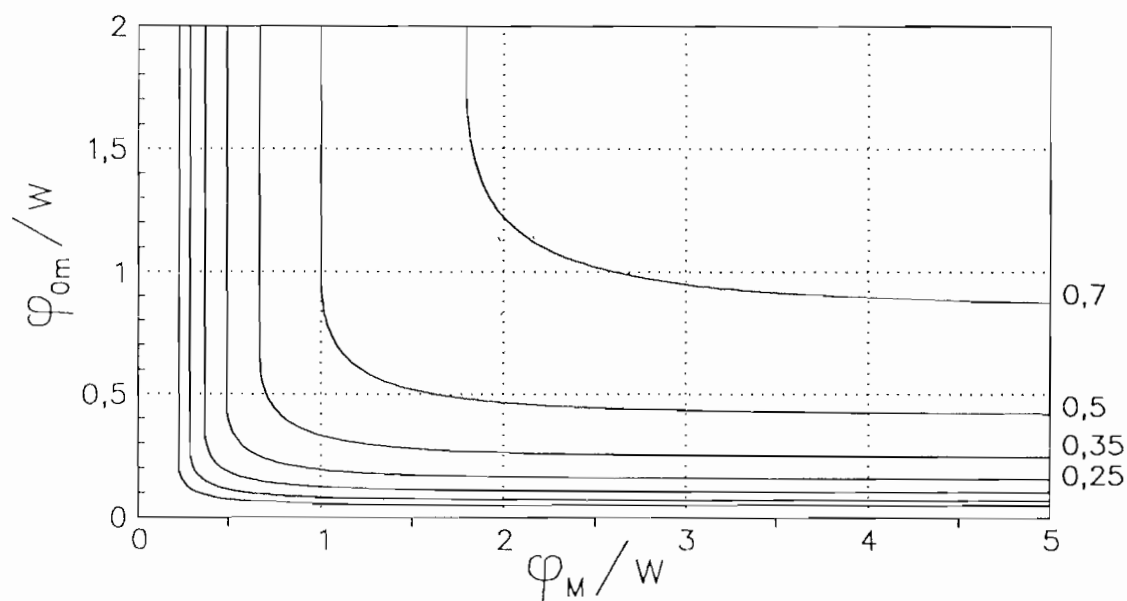


Figure 5.10

Optimisation du filtrage à partir de la FTM.

- Partie supérieure : résolution $r_{0,2} = 1/2\nu_{0,2}$ en fonction du filtrage en énergie en abscisse, du filtrage en ouverture en ordonnée. La résolution est donnée dans la marge droite en unité $\rho_o = w/E$ pour les 5 premières courbes. Les 3 suivantes correspondent à 0,07 ; 0,04 et 0,02 ρ_o (pour CsI, $\rho_o \simeq 0,4 \mu m$).
- Partie inférieure : facteur de collection, T , en fonction des mêmes paramètres. T varie de $\times 0,7$ entre chaque courbe.

5.4 LIMITATIONS INTRINSEQUES A LA CONVERSION DES RAYONS X EN ELECTRONS SECONDAIRES

5.4.1 THEORIE ELEMENTAIRE DE LA PHOTOEMISSION SECONDAIRE

Comme dans tout processus de conversion d'image, le mécanisme même de la conversion $X \rightarrow$ électrons (secondaires) limite la qualité des images. Ces limitations portent d'une part sur la résolution, par l'effet de la diffusion des particules secondaires dans la photocathode même, et d'autre part, sur le rendement de conversion, par le biais des caractéristiques propres des matériaux et des contraintes imposées par les exigences de résolution.

Contrairement à l'émission secondaire induite par des électrons, la photoémission secondaire sous l'effet de rayons X a été très peu étudié. Il y a quelques années, le développement de systèmes d'imagerie X par conversion (streak cameras) a conduit Henke et ses collaborateurs [HENKE, 1977, 1979, 1981] à développer, et vérifier expérimentalement, un modèle phénoménologique simple, en partie basé sur les modèles d'émission secondaire sous bombardement électronique. Il n'est pas dans notre propos de traiter ce sujet extensivement mais de rassembler ici les éléments qui permettent de discuter les limitations propres des cathodes dans le processus d'imagerie que nous décrivons.

L'émission d'électrons de faible énergie sous l'effet de rayons X est un phénomène complexe dans lequel on peut distinguer trois étapes :

1) L'absorption d'un photon X par un atome qui libère un photoélectron primaire, puis se désexcite en émettant soit un rayonnement de fluorescence, soit le plus souvent, par l'émission d'un électron Auger. Nous confondrons ces deux émissions sous le terme générique d'électrons primaires. Pratiquement toute l'énergie apportée par les rayons X au niveau de la surface émissive est transférée aux électrons primaires à l'intérieur de la cathode : la fraction qui s'échappe avec les primaires et le rayonnement de fluorescence émis reste très faible sauf au voisinage des seuils d'absorption. Nous noterons $f(E)$ ce facteur de conversion énergétique (*dans tout ce paragraphe 5.4, nous noterons E l'énergie des photons X*).

2) L'énergie des électrons primaires est totalement transférée aux électrons secondaires, essentiellement par promotion d'électrons de valence dans la bande de conduction (ou pour les métaux, par promotion d'électrons proches du niveau de Fermi) et par interactions électrons-phonons.

3) Les électrons secondaires diffusent sur une profondeur λ_s = profondeur moyenne d'échappement des secondaires. Ceux qui atteignent la surface avec une énergie suffisante pour franchir la barrière de potentiel de surface peuvent être émis dans le vide. D'un point de vue statistique on évalue avec Henke [HENKE 1981] le nombre de secondaires excités sur une profondeur λ_s par unité de surface émissive par :

$$N \simeq I f(E) E \mu(E) \lambda_s / \bar{E}_s \quad (5.43)$$

où $\bar{E}_s$ est l'énergie moyenne des secondaires à l'intérieur de la photocathode, et I , l'éclairement X au niveau de la surface émissive, $\mu(E)$ le coefficient d'absorption de la cathode à l'énergie E des photons.

a) Cas d'une cathode épaisse en réflexion

En supposant que le nombre d'électrons émis est directement proportionnel au nombre de secondaires excités dans le volume d'échappement, on peut alors estimer le rendement de photoémission d'une cathode d'épaisseur $t > \lambda_s$ utilisée en réflexion.

$$R_s = \frac{\text{nombre de secondaires émis}}{\text{nombre de photons incidents}} \propto f(E) E \mu(E) \lambda_s / \bar{E}_s \quad (5.44)$$

Les mesures effectuées par Henke montrent que la distribution d'énergie des secondaires est une caractéristique du matériau. Elle est quasiment indépendante de l'énergie des photons incidents (figures 5.11 et 5.12). Henke donne également des expressions $N(\varphi)$ valables pour les semiconducteurs et les isolants [HENKE 1977], mais celles-ci sont moins bien vérifiées par les expériences. En pratique l'emploi de la seule expression $N(\varphi)$ de l'équation 5.20, qui n'est valable théoriquement que pour les métaux, dans laquelle on attribue au paramètre w la valeur de la largeur à mi-hauteur du profil d'émission (Δ sur les fig. 5.11 et 5.12), réalise une approximation très suffisante de la distribution réelle. Ceci justifie le calcul de la FTM effectué précédemment.

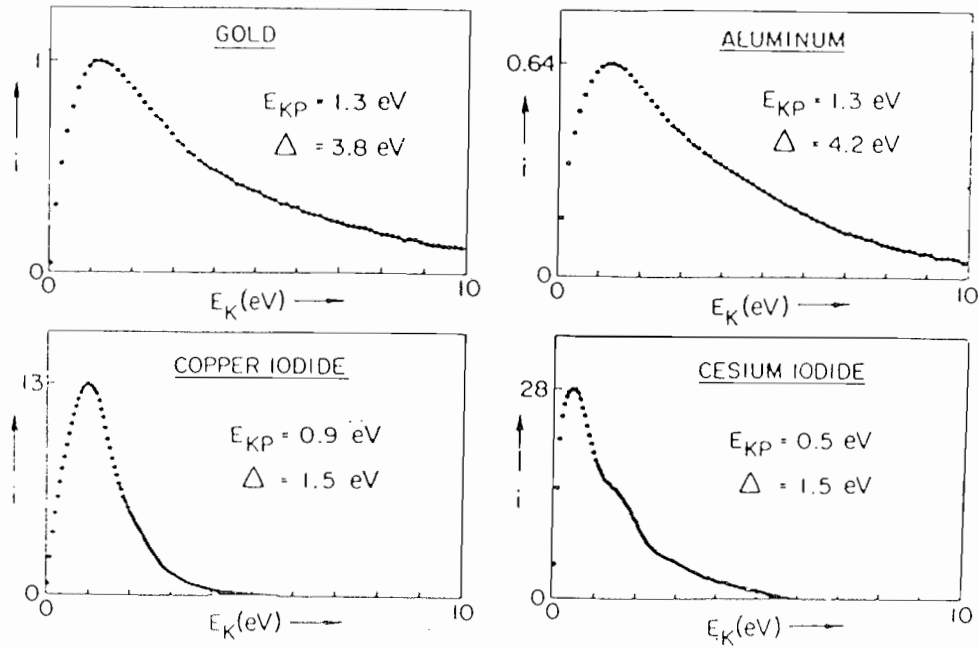


Figure 5.11

Distributions énergétiques de photoélectrons excités par la raie C- k_α , $E = 277$ eV [extrait de HENKE, 1981].

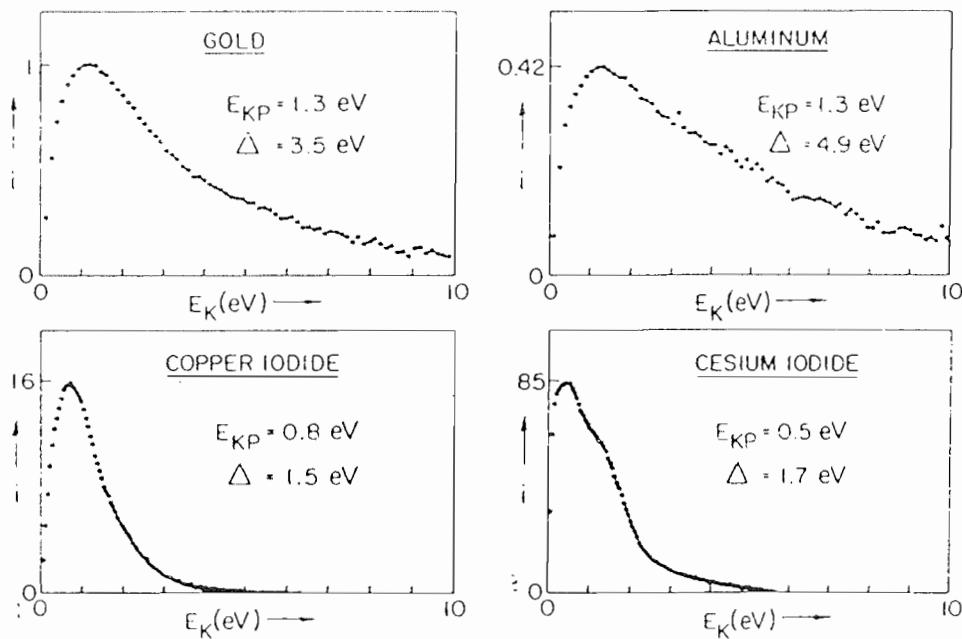


Figure 5.12

Distributions énergétiques de photoélectrons excités par la raie Cu- k_α , $E = 8080$ eV, pour les mêmes matériaux qu'à la figure 5.12 [extrait de HENKE, 1981].

Puisque $N(\varphi)$, distribution externe des énergies des photoélectrons secondaires, apparaît être indépendante de l'énergie des photons excitateurs, on peut admettre la même indépendance pour leur distribution interne d'énergie. Par suite, l'énergie moyenne interne de ces photoélectrons secondaires, $\bar{E}_s$ est une constante du matériau. On peut alors écrire R_s sous la forme :

$$R_s = K f(E) E \mu(E) \lambda_s \quad (5.45)$$

La profondeur d'échappement des secondaires λ_s étant bien sûr indépendante de l'énergie des photons, on trouve une dépendance énergétique en $E \mu(E)$ qui correspond bien aux valeurs mesurées (Fig. 5.13).

b) Cas d'une cathode mince en transmission

Pour établir le rendement d'émission secondaire R_t d'une photocathode mince utilisée en transmission, Henke prend en compte les interactions électron-électron et électron-phonon que peut subir un électron secondaire pendant sa diffusion à l'intérieur de la photocathode. La perte d'énergie occasionnée par une collision électron-électron élimine l'électron exité du groupe de ceux qui peuvent échapper, celle qui est produite par une collision électron-phonon étant considérée comme négligeable [HENKE 1981].

Toutefois les résultats de ce modèle plus réaliste sont très peu différents du modèle simpliste, à une dimension, que nous donnons ici selon lequel les électrons sont absorbés uniformément au cours de leur trajet vers la surface avec une section efficace $\nu = 1 / \lambda_s$.

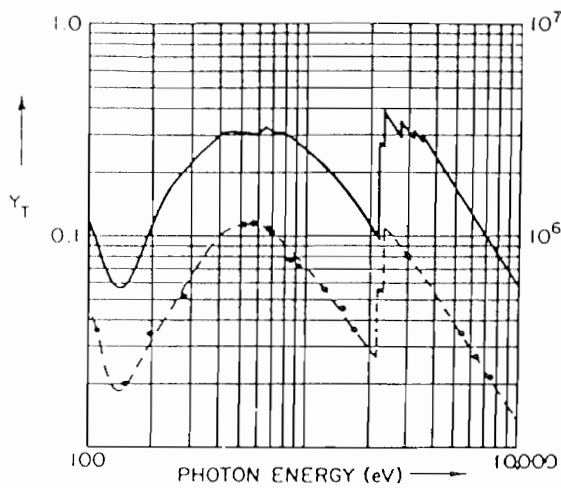
Dans ce cas la contribution à la photoémission d'une couche d'épaisseur dx située à la profondeur x à l'intérieur de la cathode sera :

$$dR_t = K f E \mu(E) e^{-\mu x} e^{-\nu(t-x)} dx \quad (5.46)$$

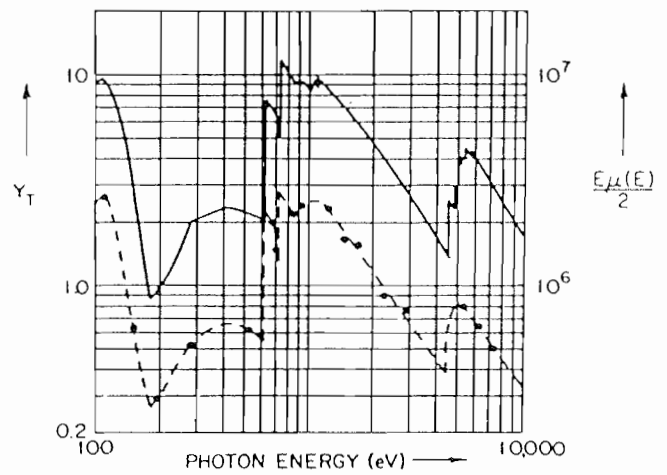
d'où

$$R_t = K f \frac{E \mu(E)}{\nu - \mu} [e^{-\mu t} - e^{-\nu t}] \quad (5.47)$$

Ce rendement est maximum pour la valeur suivante de l'épaisseur :



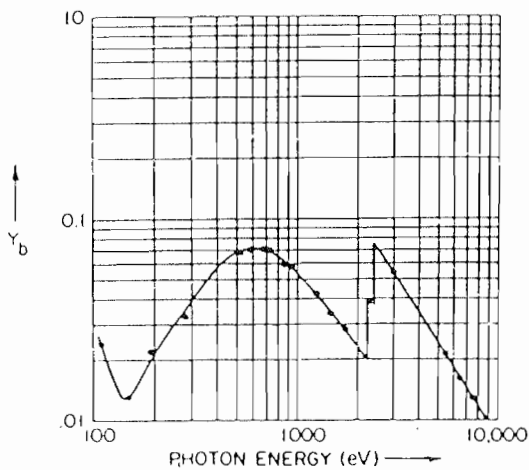
a) Au, épaisseur 300 Å



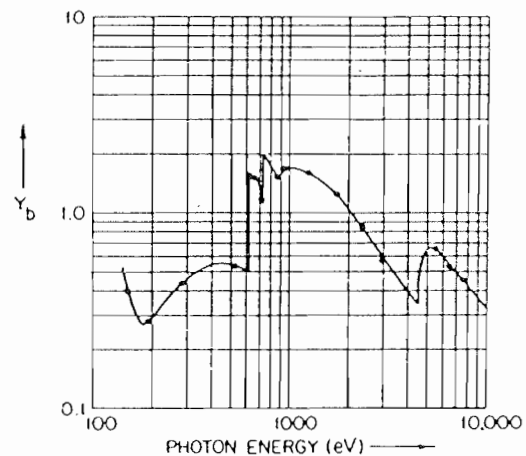
b) CsI, épaisseur 3000 Å

Figure 5.13

Rendement total de photoémission mesuré en réflexion, comparé à $E\mu(E)$ (courbe en trait plein) [extrait de HENKE, 1981].



a) Au, épaisseur 230 Å



b) CsI, épaisseur 1020 Å

Figure 5.14

Rendement total de photoémission mesuré en transmission [extrait de HENKE, 1981].

$$t_{opt} = \frac{1}{\nu - \mu} \text{Log}(\nu/\mu) \sim \lambda_s \text{Log}(\lambda_x/\lambda_s) \quad (5.48)$$

où l'on définit le libre parcours des X de la même façon que pour électrons $\lambda_x = 1/\mu$.

Pour cette épaisseur le rendement est très légèrement inférieur à celui du même matériau utilisé en réflexion, de la quantité :

$$R_t = R_s \times e^{-t_{opt}/\lambda_x} \quad (5.49)$$

La figure 5.15 illustre la variation du rendement en transmission de l'or et du CsI en fonction de l'épaisseur pour diverses valeurs de l'énergie des photons d'après les mesures de Henke [HENKE 1981]. D'après ces valeurs Henke estime la valeur du libre parcours moyen des électrons secondaires à environ :

$$\lambda_s = 250 \text{ Å dans CsI}$$

$$\lambda_s = 40 \text{ Å dans l'or}$$

La figure 5.14 présente les résultats de mesure du rendement en transmission de ces deux mêmes matériaux. La perte de rendement par rapport à la réflexion (fig. 5.13) est assez faible, mais d'autant plus marquée que l'épaisseur diffère de l'épaisseur optimale.

5.4.2 LIMITES DE LA QUALITE DES IMAGES OBTENUES PAR CONVERSION X - ELECTRON

a) Limitation de la résolution par la diffusion des photoélectrons

Dans le modèle développé précédemment, nous avons supposé le libre parcours moyen des électrons primaires négligeable devant celui des secondaires, ce qui est raisonnable, ainsi que le montre la figure (5.16) où l'on voit que le libre parcours moyen des électrons de plusieurs centaines d'eV reste bien inférieur à celui des électrons de très faible énergie. Quoi qu'il en soit, remarquons que la valeur de λ_s qui exprime l'extension en profondeur du phénomène de diffusion est déterminée expérimentalement et inclut également de ce fait, la contribution des électrons primaires à la diffusion de l'énergie déposée par les rayons X.

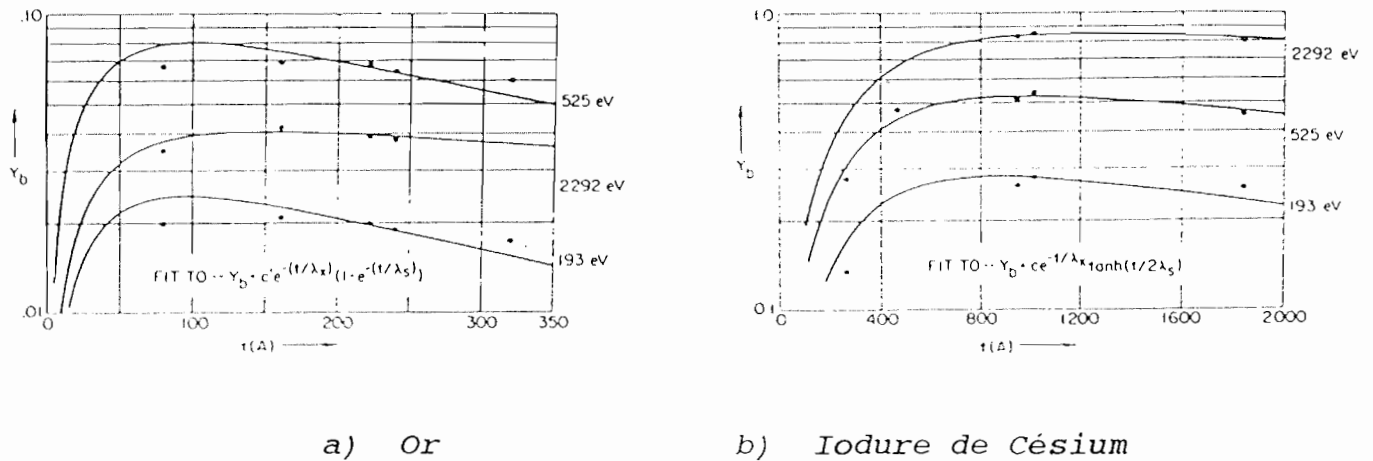


Figure 5.15

Rendement total de photoémission mesuré en Transmission en fonction de l'épaisseur de la cathode [extrait de HENKE, 1981]. Le modèle auquel Henke compare ses mesures, est un peu plus complexe que le nôtre, mais ne conduit pas à une différence significative si $\lambda_s \ll \lambda_x$.

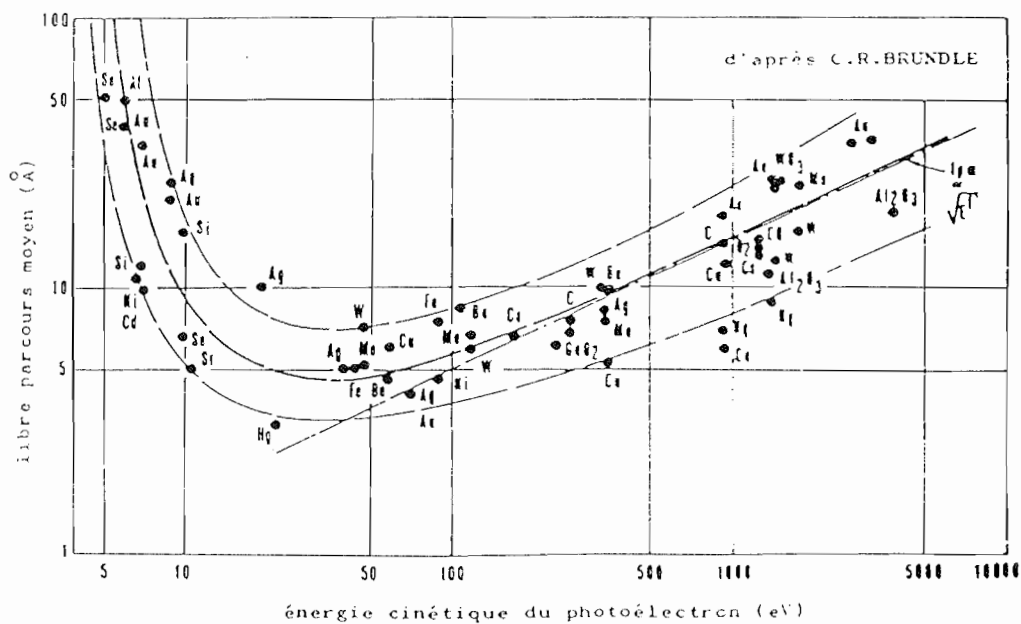


Figure 5.16

Courbe "quasi-universelle" du libre parcours moyen des photoélectrons dans les métaux, en fonction de leur énergie [Tiré de THIRY 1981]. Dans les isolants, les électrons dont l'énergie est inférieure à la largeur de bande interdite peuvent avoir des libres parcours beaucoup plus grands (cf. tab. 5.1).

Cette diffusion joue également dans le sens transversal. Dans le cas d'une photocathode homogène, la diffusion de l'énergie sera isotrope et le libre parcours transversal identique au libre parcours longitudinal λ_s déterminé expérimentalement.

L'absorption d'un photon X dans l'épaisseur active de la cathode se traduira donc par une tache d'émission dont le rayon moyen peut être estimé à :

$$r_d \simeq \lambda_s \quad (5.50)$$

Notons cependant que dans le cas de photocathodes isolantes où la probabilité de diffusion élastique par collision électron-phonon est importante, la fraction d'électrons secondaires d'énergie élevée qui atteint la surface sous un angle supérieur à l'angle limite et est réfléchi à l'intérieur de la photocathode, peut induire une légère augmentation de la diffusion transversale. D'autre part, l'influence du réseau cristallin doit induire une certaine anisotropie tant de l'émission externe que de la diffusion interne.

b) Efficacité quantique de la détection photoélectrique

Le rendement de conversion que nous avons calculé au paragraphe précédent est un rendement global qui exprime la luminosité de l'image convertie. Pour les applications quantitatives (comme la microanalyse) où la précision des mesures est déjà limitée par le bruit de photon, il importe d'avoir une efficacité quantique de détection (DQE) aussi élevée que possible.

Nous avons montré (§ 5.4.1) que dans un processus de conversion d'image où η est la probabilité de conversion d'une particule incidente et $\bar{n}$ le nombre moyen de particules émergentes par particule incidente convertie alors

$$DQE = \eta \frac{\bar{n}}{1 + \bar{n}} \quad (5.51)$$

Dans le cas d'une cathode en transmission, η est la probabilité pour un photon X incident d'être absorbé dans la couche active

$$\eta = f(E) \lambda_s \mu(E) e^{-\mu t} \quad (5.52)$$

$$\eta \simeq \lambda_s \mu = \lambda_s / \lambda_x \quad ; \quad \text{si } t = t_{opt} \quad (5.53)$$

on a alors $\bar{n} = R/\eta = Ke$ pour le processus de conversion lui-même. Lorsqu'on tient également compte de l'efficacité de collection T de l'optique électronique, l'efficacité quantique de l'ensemble du processus de détection est exprimé par :

$$DQE = \eta \frac{\bar{n}T}{1 + \bar{n}T} \quad (5.54)$$

La table 5.1 établit la valeur de ces divers paramètres à partir des données de Henke [HENKE 1981], pour Au et CsI (matériaux pour lesquels λ_s est connu).

libres parcours			rendements			DQE en % pour T=		
E(e v)	λ_x (Å)	λ_s (Å)	R	η	$\bar{n}$	0,5	0,1	0,05
Au	193	397	0,035	0,1	0,35	1,5	0,35	0,17
	525	440	40	0,12	0,09	1,3	3,7	1,1
	2292	1409	0,055	0,028	2	2,8	0,47	0,14
CsI	193	3620	0,3	0,066	4,5	4,5	2,2	1,1
	525	5290	250	0,6	0,047	12,7	4,1	2,6
	1000	1290	2,5	0,19	13	17	10,7	7,5
	2292	13470	0,9	0,018	50	1,8	1,5	1,3

Table 5.1

Paramètres des cathodes en or et en iodure de césium.

(Pour établir cette table, on a ignoré le facteur $f(E)$ dans le calcul de η (eq. 5.48), ce qui explique probablement la valeur un peu faible de $\bar{n}$ au voisinage des seuils, mais ne change pas sensiblement le DQE.)

Ces résultats ne recoupent pas totalement les mesures effectuées avant Henke par Gaines et Hansen [GAINES, 1976] et Eliseenko et Col. [ELISEENKO, 1968]. Eliseenko et col. en particulier ont cherché à mesurer directement η pour des énergies de photons supérieures à 1 KeV par le taux d'impulsion dans leur détecteur d'électrons secondaires. Par rapport à celles de Henke les mesures de Eliseenko montrent une dépendance énergétique semblable mais paraissent surévaluées en moyenne d'un facteur 3 qui pourrait provenir d'une erreur systématique

dans la calibration des sources X. Rappelons ici que cette calibration est la principale difficulté des mesures absolues en rayons X, qui de ce fait, doivent toujours être considérées avec précautions. De ce point de vue les protocoles expérimentaux de Henke nous paraissent un gage de fiabilité.

5.4.3 CHOIX D'UNE PHOTOCATHODE

Au premier abord l'examen de la table 5.1 montre que, malgré un gain important en luminosité (rendement total) à certaines longueurs d'onde, l'emploi d'un isolant comme CsI à la place de l'or ne permet pas d'atteindre des rendements de détection sensiblement plus élevés dans le domaine d'énergie de rayons X qui nous intéresse plus spécialement (200 - 500 eV).

Cette interprétation doit être tempérée par deux considérations :

1) la largeur de la courbe de distribution énergétique est très différente (typiquement 4 eV pour Au, 1,6 eV pour CsI) et implique des diaphragmations très différentes pour une même résolution. Si on se reporte à la figure 5.10 on peut estimer quel facteur de transmission permet d'obtenir respectivement 0,1 μm et 0,05 μm de résolution à 20 % de contraste. Les résultats sont ceux de la table 5.2 qui nous permettent d'évaluer le DQE et le facteur de luminosité $L=RT$, c'est à dire, le nombre d'électrons reçus par le détecteur pour un photon X incident sur la photocathode. Ils montrent clairement l'avantage du CsI.

Résolution r	Rendement de collection T		DQE en % à $\lambda = 20\text{\AA}$		L = RT à $\lambda = 20\text{\AA}$	
	CsI	Au	CsI	Au	CsI	Au
0,1 μm	0,4	0,1	3,9	0,35	0,24	0,012
0,05 μm	0,2	0,05	3,7	0,17	0,12	0,006

Table 5.2

Caractéristiques comparées des photocathodes en or et en CsI.

2) L'Iodure de Césium n'est probablement pas l'halogénure alcalin le mieux adapté aux longueurs d'onde comprises entre 20 et 50 Å, les plus souvent utilisées en microscopie X. A ces longueurs d'onde, l'absorption de CsI est faible et avec elle le facteur η . Elle ne redevient importante qu'en deçà des seuils L du Césium et de l'Iode vers 10 Å. A ces longueurs d'ondes, qui ne manquent d'ailleurs pas d'intérêt pour la microanalyse, il serait théoriquement possible d'atteindre la limite de résolution due à la diffusion des photoélectrons (250 Å) tout en conservant une efficacité supérieure à 5 %.

Ceci suggère d'utiliser pour les longueurs d'onde supérieures (20-50 Å) des halogénures alcalins de plus faible masse atomique : RbI, RbBr, KI qui de plus, ont une courbe de dispersion énergétique plus étroite que CsI ($w \simeq 0,8$ à $0,6$ eV) [HENKE, 1979]. On peut alors se demander si la faible dispersion énergétique ne permettrait pas de se passer de la complexité supplémentaire apportée par un filtrage en énergie. En l'absence de données plus complètes sur ces matériaux, ceci ne reste qu'une conjecture qu'il serait intéressant de vérifier par des mesures complémentaires.

CHAPITRE 6

REALISATION DU MICROSCOPE

6.1 INTRODUCTION

Après une analyse des performances d'un microscope à conversion d'image, restreinte aux propriétés théoriques des photocathodes et à celles d'un champ de collection uniforme, il faut maintenant faire intervenir l'ensemble de l'optique électronique nécessaire pour produire une image observable, suffisamment agrandie. Ces différents éléments d'optique électronique sont également susceptibles de limiter la qualité de l'image.

La réalisation de la lentille collectrice a une importance particulière. En effet, son anode doit être pourvue d'une ouverture pour collecter les électrons émis, qui fait apparaître des distorsions de trajectoire entre l'axe et les bords du champ. En d'autres termes, on observe des variations d'efficacité et des aberrations supplémentaires dont les plus gênantes sont l'astigmatisme et la courbure de champ. Cette lentille doit donc être étudiée et optimisée.

Nous avons aussi voulu nous donner la possibilité de réaliser le filtrage en énergie des électrons, dont nous avons étudié l'effet sur la résolution au § 5.3. Il fallait pour cela introduire dans le système optique électronique, un dispositif dispersif. Nous avons retenu le principe du filtre de Castaing et Henry pour une raison pratique : Lucien Henry lui-même nous a donné un prisme magnétique pour effectuer ces expériences. Le principe de ce filtre exige une position très précise du plan pupillaire par rapport au plan de l'image intermédiaire et, pour atteindre la résolution en énergie souhaitée, le grandissement pupillaire doit être faible. Ce sont des conditions contraignantes pour le transport des faisceaux. De plus, la réalisation mécanique de la colonne électronique

doit tenir compte d'une difficulté particulière liée à l'utilisation du rayonnement synchrotron : le rayonnement d'un anneau de stockage est, en effet, émis horizontalement. La colonne du microscope sera donc horizontale, ce qui complique d'autant le vide et l'alignement.

En dernier lieu, parce que l'efficacité est faible et le grandissement important, il sera nécessaire de focaliser au mieux le rayonnement de la source sur la région utile de l'objet.

6.2 LA LENTILLE A EMISSION

6.2.1 CHOIX DU TYPE DE LENTILLE

Le système très simple formé d'une cathode plane et d'une anode également plane et percée d'une ouverture, est une lentille de puissance négative qui produit une image au grandissement $2/3$ en arrière de la cathode [GRIVET]. Pour observer une image, on doit modifier cette lentille élémentaire pour lui donner la convergence d'un objectif, ou lui adjoindre une autre lentille. Plusieurs dispositions peuvent être adoptées.

1. On ajoute entre cathode et anode une électrode de Wehnelt (lentille à émission triode). Pour que la lentille à émission résultante soit convergente, il faut polariser le Wehnelt de façon à produire une région de champ faible entre cathode et Wehnelt et une région de champ fort entre Wehnelt et anode. Comme le champ électrique maximum est fixé par la qualité du vide à l'intérieur de l'instrument, cette solution conduit à des champs d'extraction plus faibles, donc à des résolutions moindres.

2. Une deuxième solution consiste à ajouter la convergence immédiatement derrière l'anode. La lentille ajoutée peut être une lentille électrostatique, par exemple une lentille unipotentielle (lentille à émission tétrode). On peut encore utiliser à cet endroit une lentille électromagnétique accolée à l'anode d'une lentille diode (la première pièce polaire de cette lentille peut au besoin servir d'anode [FERT et SIMON, 1956]).

Cette dernière solution a encore l'avantage de ne demander qu'une seule tension d'alimentation fixe. C'est cette disposition qui a été retenue.

6.2.2 CALCUL ET OPTIMISATION D'UNE LENTILLE A EMISSION DIODE

Pour minimiser les aberrations de champ d'une lentille à émission diode, il est courant de donner à la surface de la cathode une forme sphérique (tubes images). La cathode du microscope à conversion d'image doit être déposée sur un support extrêmement mince $\sim 0,1 \mu\text{m}$. Il est donc totalement exclu de lui donner une forme autre que plane. Dans ce cas, l'optimisation ne peut venir que du choix judicieux de la forme des électrodes.

a) Principe de l'optimisation

Le tracé de rayons dans une optique électrostatique est une opération relativement complexe. Il faut d'abord calculer la distribution du potentiel à l'intérieur de la lentille en résolvant l'équation de Laplace $\Delta V = 0$. On suppose en effet que les courants électroniques à l'intérieur de la lentille sont suffisamment faibles pour pouvoir négliger la charge d'espace. Ceci fait, on calcule les trajectoires par intégration numérique pour diverses conditions initiales : rayon de champ et ouverture (i.e. énergie latérale d'émission).

La difficulté de l'optimisation vient du fait qu'une modification de forme ou de position d'une électrode oblige à reprendre complètement le calcul du potentiel. On peut cependant accélérer l'optimisation par le moyen suivant : on introduit des électrodes fictives supplémentaires. On calcule les différentes distributions de potentiel qui s'établissent lorsqu'une seule électrode est excitée, les autres étant maintenues au potentiel de masse. Les distributions de potentiels correspondant à des excitations variables des électrodes s'obtiennent par sommation linéaire des différentes solutions partielles (théorème de superposition). On peut donc optimiser cette distribution d'électrodes fictives. Bien entendu, il est souhaitable de minimiser le nombre d'électrodes et de potentiels. On trace donc la carte des équipotentiels, ce qui permet de définir la forme et la position d'un petit nombre d'électrodes qui approchent au mieux la distribution calculée. A partir de cette nouvelle disposition, on peut achever le processus d'optimisation.

b) Principe du calcul du potentiel

Le calcul du potentiel à l'intérieur d'une lentille électrostatique lorsque les potentiels des électrodes sont fixés, se rattache à la classe très générale des problèmes de résolu-

tion d'équations différentielles aux dérivées partielles avec conditions aux limites, pour lesquelles il existe différentes méthodes de résolution numériques bien étudiées [MUNRO, 1973, BONJOUR, 1980]. Nous avons choisi d'utiliser la méthode des différences finies, assez facile à mettre en oeuvre sur un mini-calculateur. Lorsqu'on se restreint à des problèmes présentant une symétrie de révolution axiale, on est ramené à un problème plan, et on doit résoudre l'équation :

$$\Delta V = \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial V}{\partial r} = 0 \quad (6.1)$$

à l'intérieur d'un contour fermé sur lequel le potentiel est connu. La méthode des différences finies consiste à diviser l'intérieur de ce contour selon un maillage régulier aux noeuds duquel le potentiel est calculé.

A chacun de ces noeuds (i, j) l'équation de Laplace est exprimée en fonction du potentiel de ce noeud et de ses quatre plus proches voisins

$$V_{i,j} - \frac{1}{4} (V_{i-1,j} + V_{i+1,j} + \left(1 - \frac{1}{2j}\right) V_{i,j-1} + \left(1 + \frac{1}{2j}\right) V_{i,j+1}) = 0 \quad (6.2)$$

L'équation précédente est valable hors de l'axe ($j \neq 0$). Sur l'axe elle doit être remplacée par :

$$V_{i,0} - \frac{1}{4} (V_{i-1,j} + V_{i+1,j} + 2 V_{i,j+1}) = 0 \quad (6.3)$$

On est finalement conduit à résoudre un système d'équations linéaires de grande dimension

$$M V = F \quad (6.4)$$

où V est le vecteur des potentiels en tout point du maillage, M la matrice des coefficients des équations (6.2) et (6.3) et F le vecteur des conditions aux limites.

Ce système est résolu par itération à partir d'une distribution quelconque de potentiel $V^{(0)}$ donnée a priori. La loi d'itération la plus simple est la suivante :

$$V^{(n+1)} = [I - M] V^{(n)} + F \quad (6.5)$$

Elle découle tout simplement de la résolution noeud par noeud

de l'équation (6.2). Si la suite $V^{(n)}$ est convergente, sa limite $V^{(\infty)}$ est solution de (6.4). Pour étudier la convergence, nous considérons la suite des erreurs résiduelles à chaque pas

$$\phi^{(n)} = V^{(n)} - V^{(\infty)} \quad (6.6)$$

qui vérifie

$$\phi^{(n+1)} = D \phi^{(n)} \quad ; \quad D = I - M \quad (6.7)$$

La forme des équations (6.2) et (6.3) permet d'affirmer que les valeurs propres de D sont toutes positives et inférieures à 1, car, pour chaque ligne de D ,

$$D_{p,q} > 0 \quad \text{et} \quad \sum_q D_{p,q} \leq 1.$$

La convergence du processus dépend de la décomposition de l'erreur d'estimation initiale $\phi^{(0)}$ sur la base, E_i , des vecteurs propres de D

$$\phi^{(0)} = \sum h_i E_i \implies \phi^{(n)} = \sum h_i \lambda_i^n E_i \quad (6.8)$$

La vitesse de convergence du processus est définie par

$$v(n) = \frac{\|V_{n+1} - V_n\|}{\|V_n - V_{n-1}\|} = \frac{\Delta_n}{\Delta_{n-1}} \quad (6.9)$$

et est calculable à chaque pas d'itération.

Cette vitesse de convergence est limitée à celle du mode propre de la décomposition de $\phi^{(0)}$ dont la valeur propre est la plus grande ($v(n) = \lambda$). Lorsque le maillage compte un grand nombre de points, cette valeur propre est généralement très proche de 1 et la convergence du processus très faible.

Pour améliorer la convergence, on emploie la méthode de surrelaxation, en modifiant le processus défini par l'équation (6.5) par l'introduction du coefficient de surrelaxation ω de la façon suivante :

$$V^{(n+1)} = [I - \omega M] V + \omega F \quad (6.10)$$

La relation sur les erreurs devient alors :

$$\phi^{(n+1)} = [I(1-\omega) + \omega D] \phi^{(n)} = D' \phi^{(n)} \quad (6.11)$$

Les vecteurs propres de D' sont les mêmes que ceux de D mais

les valeurs propres associées λ' sont modifiées et

$$\lambda'_i = 1 - \omega(1 - \lambda) \quad (6.12)$$

En choisissant une valeur élevée pour ω , on peut sensiblement réduire la valeur propre attachée à un mode particulier et par conséquent améliorer sa convergence. Ce faisant, on diminue aussi les faibles valeurs propres : une trop grande valeur de ω conduit à de grandes valeurs propres négatives (modes oscillants). A un moment donné de l'itération, la valeur optimale de ω dépend non seulement des valeurs propres des différents modes mais aussi de leurs amplitudes relatives. En suivant la variation de la vitesse de convergence au cours du processus, on peut identifier le mode limitant et y adapter le coefficient de surrelaxation ω . On est généralement conduit à commencer par $\omega \sim 1,5$ et à terminer avec $\omega \sim 1,9$. Le nombre d'itérations nécessaires dépend aussi sensiblement de la qualité de l'estimation initiale.

D'un point de vue pratique, la loi d'itération (6.11) demande le maintien de deux tableaux $V^{(2n)}$ et $V^{(2n+1)}$. Il est plus efficient de n'utiliser qu'un seul tableau V qui est mis à jour point par point. De la sorte, lorsque au cours de l'itération $n+1$, p points ont été actualisés, $V(q) = V^{(n+1)}(q)$ si $q \leq p$ et $V(q) = V^{(n)}(q)$ si $q > p$. La nouvelle valeur de $V(p)$, est calculée à partir des valeurs $V(q(i,j))$ des plus proches voisins de $p = q(i_0, j_0)$, prises dans le tableau V à cet instant du calcul. Le processus d'itération est alors mathématiquement défini par :

$$V^{(n+1)} = [I(1-\omega) + \omega D^+] V^{(n)} + \omega D^- V^{(n+1)} \quad (6.13)$$

où D^+ et D^- sont les matrices triangulaires supérieures et inférieures extraites de D . Dans le cas qui nous intéresse, les potentiels sont calculés à partir des quatre plus proches voisins et les $D_{p,q(i,j)}$ et $V_q^{(m)}(i,j)$ qui interviennent dans le calcul de $V_q^{(n+1)}(i_0, j_0)$ sont tels que

$$i + j + 2m = 2n + 1 + i_0 + j_0 \quad (6.14)$$

On peut montrer [KASPER, 1976], que les vecteurs propres Q_α du processus qui sont associés à la valeur propre α^2 , se déduisent des vecteurs propres E_λ de la matrice D par :

$$Q_\alpha(i,j) = \alpha^{i+j} E_\lambda(i,j), \quad (6.15)$$

et que la valeur propre α^2 est solution de l'équation

$$\alpha^2 + \omega - 1 - \lambda \omega \alpha = 0 \quad (6.16)$$

Si le mode limitant est connu, le coefficient de surrelaxation optimal est alors :

$$\omega_0 = \frac{2}{1 + \sqrt{1 - \lambda^2}} \quad (6.17)$$

et la vitesse de convergence

$$\alpha_0^2 = \omega_0 - 1 \quad (6.18)$$

Pour conduire le calcul, on opère comme précédemment et on règle le choix de ω sur la vitesse de convergence instantanée en utilisant (6.16) et (6.17).

c) Tracé de rayons

Les trajectoires électroniques dans une lentille électrostatique sont obtenues par intégration numérique de l'équation du mouvement. Etant donné la symétrie du problème, celle-ci est exprimée en coordonnées cylindriques.

Pour établir les équations du mouvement liant $\theta(z)$ et $r(z)$, on note $\vec{u}$, $\vec{v}$, $\vec{k}$ le repère tourné de θ , lié à la particule, tel que

$$\vec{M} = r \vec{u} + z \vec{k} \quad (6.19)$$

Pour simplifier les calculs, on utilise des unités telles que le rapport de la charge à la masse de l'électron $\frac{e}{m} = 1$. On note aussi $\Phi(z, r)$ le potentiel dans la lentille et ϕ_0 est l'énergie initiale de la particule, pour $\Phi=0$.

La conservation de l'énergie de la particule nous permet d'écrire une première équation :

$$2(\Phi + \phi_0) = \left| \frac{d\vec{M}}{dt} \right|^2 = \frac{dr}{dt}^2 + r^2 \frac{d\theta}{dt}^2 + \frac{dz}{dt}^2 \quad (6.20)$$

en faisant apparaître les dérivées en z : $\frac{dr}{dz} = r'$ et $\frac{d\theta}{dz} = \theta'$, on obtient une première relation sur la vitesse axiale :

$$W_z = \frac{1}{2} \left(\frac{dz}{dt} \right)^2 = \frac{\Phi + \phi_0}{1 + z'^2 + r^2 \theta'^2} \quad (6.21)$$

Dans notre système de coordonnées, l'équation fondamentale du mouvement $\frac{d^2 \mathbf{M}}{dt^2} = \overrightarrow{\text{grad } \Phi}$ conduit aux trois relations suivantes :

$$\frac{d^2 r}{dt^2} - r \frac{d\theta}{dt}^2 = \frac{\partial \Phi}{\partial r} \quad (6.22)$$

$$2 \frac{dr}{dt} \frac{d\theta}{dt} + r \frac{d^2 \theta}{dt^2} = 0 \quad (6.23)$$

$$\frac{d^2 z}{dt^2} = \frac{\partial \Phi}{\partial z} \quad (6.24)$$

Nous exprimons les dérivées temporelles $\frac{d^2 r}{dt^2}$ et $\frac{d^2 \theta}{dt^2}$ en fonction des dérivées temporelles de z et des dérivées, r' et θ' , r'' et θ'' , de r et θ par rapport à z et en utilisant la relation (6.24) on obtient :

$$\frac{d^2 r}{dt^2} = \frac{dz}{dt}^2 r'' + \frac{d^2 z}{dt^2} r' = 2 W_z r'' + \frac{\partial \Phi}{\partial z} r' \quad (6.25)$$

$$\frac{d^2 \theta}{dt^2} = \frac{dz}{dt}^2 \theta'' + \frac{d^2 z}{dt^2} \theta' = 2 W_z \theta'' + \frac{\partial \Phi}{\partial z} \theta' \quad (6.26)$$

avec (6.22) et (6.23) on obtient alors :

$$2 W_z (r'' - r \theta'^2) = \frac{\partial \Phi}{\partial r} - \frac{\partial \Phi}{\partial z} r' \quad (6.27)$$

$$2 W_z (r \theta'' + 2 r' \theta') = - r \frac{\partial \Phi}{\partial z} \quad (6.28)$$

On peut encore écrire ces équations sous une forme adaptée à l'intégration numérique :

$$r'' = r \theta'^2 + \left(\frac{\partial \Phi}{\partial r} - \frac{\partial \Phi}{\partial z} r' \right) \frac{1 + r'^2 + r^2 \theta'^2}{2 (\Phi + \varphi_0)} \quad (6.29)$$

$$\theta'' = - \frac{\theta'}{r} \left(2r' + r \frac{\partial \Phi}{\partial z} \frac{1 + r'^2 + r^2 \theta'^2}{2 (\Phi + \varphi_0)} \right) \quad (6.30)$$

Pour déterminer les trajectoires, ces équations sont intégrées numériquement par une méthode de Runge-Kutta à 3 points, chaque pas d'intégration correspondant à deux pas d'échantillonnage. La méthode est précise tant que la courbure de la trajectoire reste grande vis-à-vis du pas. On évite donc de

l'utiliser pour le tout premier pas du calcul. Dans cette région toutefois, le champ au voisinage de la cathode est très sensiblement uniforme et les trajectoires sont des paraboles, et sont facilement calculées comme telles.

Pour l'interprétation des diagrammes de points fournis par ces calculs, il est utile que les coordonnées des points images varient continuellement avec les paramètres d'émission. Or, le potentiel n'étant connu que sur les noeuds d'un maillage régulier, le champ $E(r,z)$ ne peut résulter que d'une interpolation en r . Cette interpolation doit être continue.

Une méthode très simple et très efficace pour s'en assurer consiste à partir du fait que dans un système à symétrie cylindrique, le potentiel est complètement déterminé par la distribution axiale

$$\Phi_0(z) = \Phi(z, 0)$$

et que

$$\Phi(z, r) = \Phi_0(z) - \Phi_0'' \frac{r^2}{4} + \Phi_0^{IV} \frac{r^4}{64} + O(r^6) \quad (6.31)$$

L'approximation au 4ème ordre en r est généralement suffisante. Cette approximation est l'équivalent, pour l'optique électronique, de l'approximation du 3ème ordre de l'optique visible.

d) Réduction des aberrations de champ de la lentille électrostatique

Dans la mesure où on se place délibérément dans l'optique du troisième ordre, on peut se contenter d'un petit nombre de trajectoires pour étudier les aberrations de champ. Quatre trajectoires pour chaque point du champ permettront de déterminer distorsion, courbure et astigmatisme, quatre autres sont nécessaires pour connaître la coma.

La courbure la plus faible a été trouvée pour la disposition d'électrodes indiquée sur la figure 6.1, et pour une polarisation de l'électrode intermédiaire de 19 kV quand l'anode est à 20 kV.

En pratique, le maintien au même potentiel (20 kV) des deux électrodes donne des résultats équivalents. Dans la lentille ainsi définie, l'image (virtuelle) se forme à 0,9 mm en arrière de la cathode avec un grandissement $G_y = 0,6$. On voit sur la figure 6.1, que, par rapport à la lentille élémentaire

à anode plane, la courbure sagittale a été presque complètement annulée. Le rayon de courbure de la surface tangentielle est toutefois 2,5 mm. Il en résulte que le champ pour 0,1 μm de résolution a un diamètre voisin de $\varnothing$ 300 μm ; au bord d'un champ de 1 mm de diamètre, la résolution n'est plus que 1 μm .

Le "cross-over" de cette lentille est également virtuel. Il se forme à 11 mm en arrière de la cathode. Pour effectuer le filtrage, il faut connaître, dans le plan pupillaire, la distance à l'axe ρ correspondant à une énergie radiale d'émission φ_{0m} . La relation est (cf équation 2.41) :

$$\rho = \frac{\Delta}{G_y} \sqrt{\frac{\varphi_t}{V}} \quad (6.32)$$

où Δ est la distance image pupille ; en unités pratiques :

$$\rho [\text{mm}] = 0,12 \sqrt{\varphi_{0m} [\text{eV}]} \quad (6.33)$$

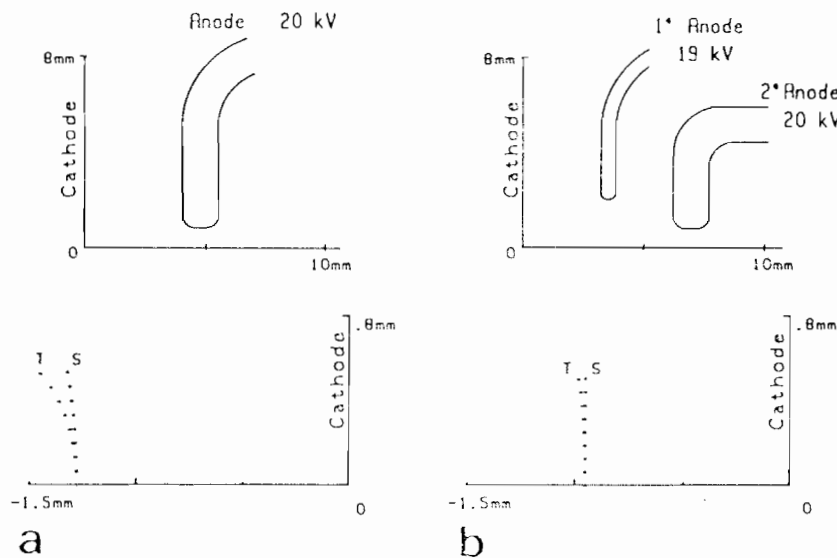


Figure 6.1

Courbure et astigmatisme pour deux configurations de la lentille à émission :

a) lentille diode simple ; b) lentille diode à anode double

Partie supérieure : disposition des électrodes (échelle $\times 3$).

Partie inférieure : position des surfaces focales sagittales (S) et tangentielles (T) par rapport au plan de cathode (échelle $\times 30$).

6.3 L'OPTIQUE MAGNETIQUE

6.3.1 DEFINITION DES ELEMENTS OPTIQUES

En dehors de la lentille à émission, le reste de l'optique électronique est essentiellement magnétique. La disposition des différentes lentilles doit tenir compte de plusieurs impératifs.

Tout d'abord, il faut réaliser les conjugaisons des plans objets et pupillaires avec les plans correspondants du dispositif de filtrage en énergie prévu. Il faut encore que le système optique calculé pour le dispositif de filtrage en place puisse également fonctionner lorsque celui-ci est absent ou escamoté pour les réglages.

La conception du système optique doit aussi prévoir la place nécessaire aux diaphragmes de filtrage et à leur centrage, ainsi que l'encombrement des dispositifs correcteurs : stigmatiseur et défecteurs. Sur ce dispositif expérimental, nous nous sommes encore imposé de pouvoir partager la chambre à vide en plusieurs segments correspondants aux divers éléments fonctionnels (émission, filtre d'énergie, observation). Chaque segment est séparé des autres par des microvannes de façon à pouvoir intervenir indépendamment sur chacun et à disposer d'un instrument aussi modulaire que possible.

La disposition qui est présentée sur la figure 6.2 est la version initiale de l'optique telle qu'elle a été d'abord réalisée. Les expériences menées par la suite nous ont amenés à corriger sensiblement cette optique, essentiellement en matière de corrections et d'alignements. De plus, les conditions expérimentales ne nous ont jamais permis de mettre en service le prisme magnétique. Néanmoins, l'ensemble de l'optique a été conçu autour de ce filtre et il est nécessaire de le décrire succinctement.

a) Le filtre de vitesse

Le dispositif de filtrage en énergie prévu était un filtre de Castaing et Henry. Ce dispositif est constitué (fig. 6.3) d'un prisme magnétique, dont la déviation est de 90° , et d'un miroir électrostatique. Le prisme est traversé deux fois,

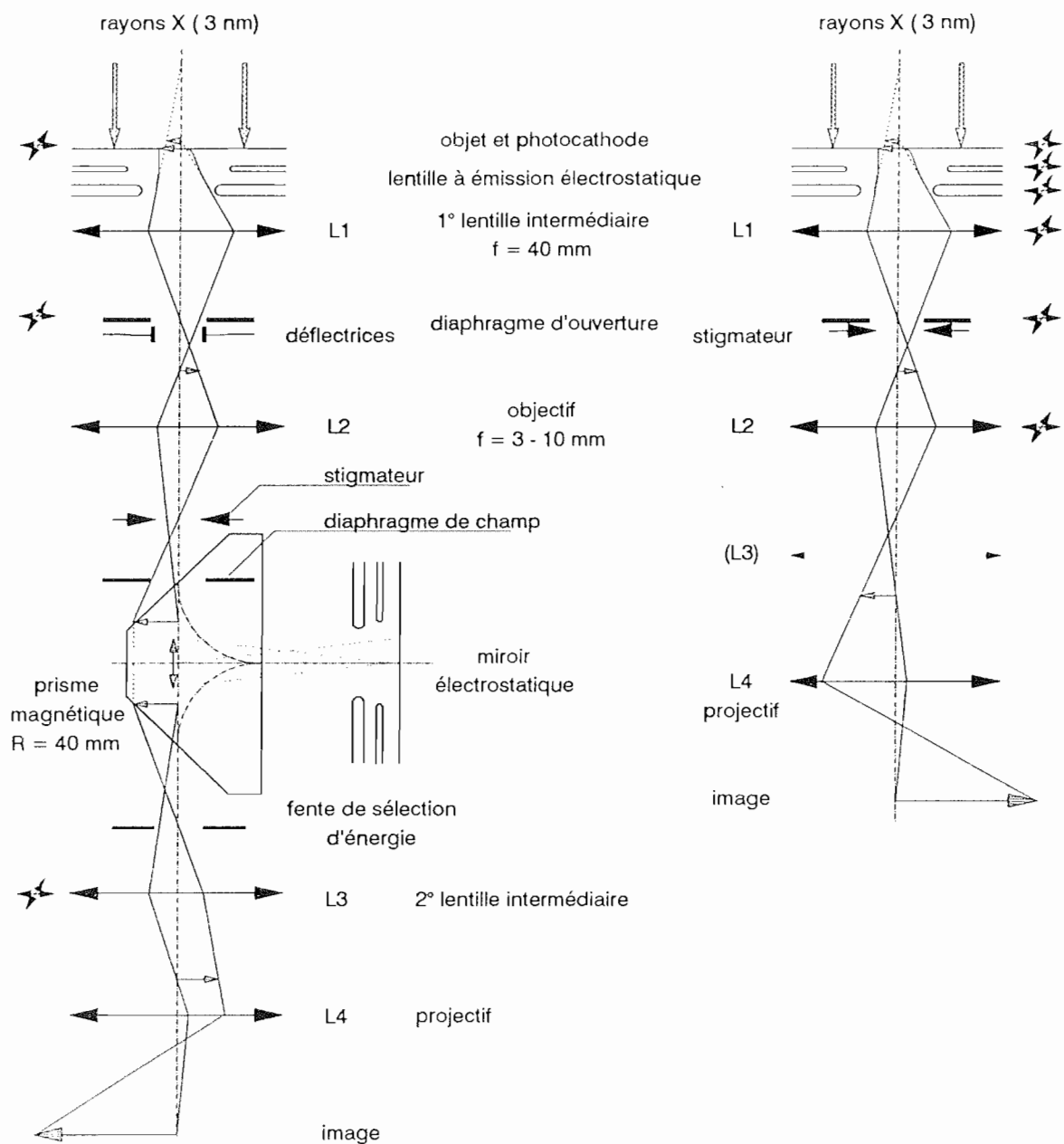


Figure 6.2

Schéma du microscope photoélectronique.

- A gauche, la configuration initiale selon laquelle les éléments optiques ont été définis.
- A droite, la configuration qui a été utilisée en définitive pour réaliser des images, sans le filtre de Castaing et Henry, et après modification du centrage et du stigmatiseur.

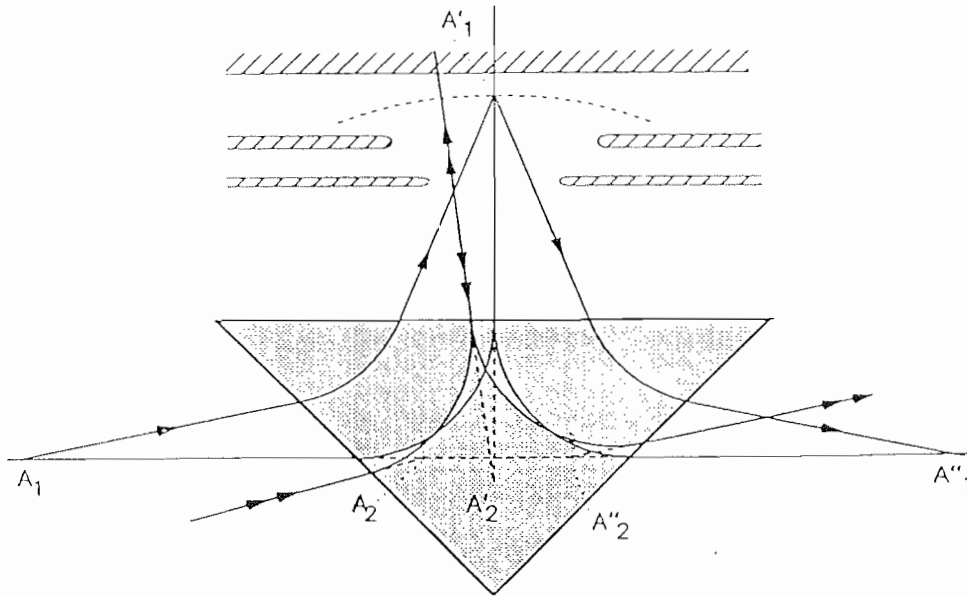


Figure 6.3

Points stigmatiques du filtre de Castaing et Henry

avant et après réflexion sur le miroir. La déflexion totale pour l'énergie nominale est ainsi annulée.

Un prisme magnétique à champ uniforme est une optique fortement astigmatique dont les éléments cardinaux dans les deux sections principales sont complètement différents. L. Henry [HENRY, 1964] a montré que si on donne à la face d'entrée une inclinaison ϵ par rapport à l'axe d'incidence, il existe deux couples de points stigmatiques dont la position dépend de ϵ , l'un réel A_1, A'_1 , l'autre virtuel A_2, A'_2 à l'intérieur du prisme. Ces points sont stigmatiques mais les images sont anamorphosées car les grandissements selon les directions principales sont différents.

En imposant au miroir d'avoir son sommet en A'_1 et son centre de courbure en A'_2 , le faisceau d'énergie moyenne a une image exactement symétrique par rapport à l'axe du prisme, du faisceau entrant. Les points A'_1 et A''_1 , A_2 et A''_2 sont conjugués stigmatiquement et l'anamorphose est compensée. L. Henry mon-

tre également que les plans A_2 et A_2'' sont achromatiques, ce seront donc les plans images. Dans le plan A_1 et A_1'' la dispersion est au contraire doublée, ce seront les plans pupillaires.

L'optique électronique a été conçue pour un filtre de rayon 40 mm mis à notre disposition par L. Henry. L'angle d'attaque est $\epsilon = 45^\circ$ et les positions des points stigmatiques qui en résultent:

$$\begin{aligned} OA_1 &= -120 \text{ mm} & OA_1' &= 90 \text{ mm} \\ OA_2 &= -21 \text{ mm} & OA_2' &= -9 \text{ mm}. \end{aligned}$$

Sa dispersion est de $10 \text{ } \mu\text{m/Volt}$ pour une tension d'accélération de 20 kV.

b) L'ensemble Objectif

Cet ensemble de lentilles magnétiques doit d'abord conjuguer la pupille et l'image données par la lentille à émission sur les points stigmatiques du prisme. Le grandissement pupillaire doit de plus être compatible avec le filtrage en énergie considéré au chapitre précédent ($\sim 1 \text{ eV}$). Une réduction du diamètre pupillaire par un facteur 10 à 20 est donc souhaitable.

Ces conditions sont remplies par la combinaison d'une lentille faible avec un objectif. La première lentille < 1 de focale 40 mm accroît la distance pupille-image. Le grandissement dans l'image intermédiaire est $G_{y_1} = 2,2$ et le rayon de la pupille intermédiaire est relié à l'énergie latérale d'émission par

$$\rho_1 [\mu\text{m}] = 230 \sqrt{\varphi_{0m}} [\text{eV}] \quad (6.34)$$

La deuxième lentille L_2 est un objectif dont la longueur focale minimum est voisine de 2,6 mm (en pratique, $3 \text{ mm} < f_2 < 12 \text{ mm}$). Elle forme de l'objet une image agrandie au centre du prisme. Dans ce plan, le grandissement image G_{y_2} varie de 20 à 80. Cette lentille forme une image réduite de la pupille dans son plan focal image. Le grandissement pupillaire propre à cette lentille est lié au grandissement image par

$$G_{\rho_2} = \frac{3}{G_{y_2}} \quad (6.35)$$

ce qui conduit à $\rho_2 [\mu\text{m}] = 690 \frac{\sqrt{\varphi_t}}{G_{y_2}} [\text{eV}]$.

c) Filtrage d'ouverture

Il est pratique de réaliser le filtrage d'ouverture dans la pupille intermédiaire P_1 où le grandissement est fixe. On utilise en pratique des trous de $200 \mu\text{m}$, ce qui fixe $\varphi_t \sim 0,7 \text{ eV}$. Le diamètre de la pupille P_2 est alors $5 \mu\text{m}$ pour $G_y = 80$. La dispersion du prisme étant $10 \mu\text{m/V}$, la résolution du filtrage en énergie sera de l'ordre de 2 eV .

d) Deuxième groupe de lentilles

A la sortie du prisme, la position relative des plans objet et pupillaire, inverse de l'habituelle, ne permet pas l'utilisation d'un seul projectif. On constitue donc un autre groupe de lentilles comprenant une lentille intermédiaire L_3 travaillant à grandissement ~ 1 et un projectif L_4 qui permet d'atteindre un grandissement total de 300 à 2000.

e) Utilisation sans filtre

L'optique du microscope doit également pouvoir être utilisée sans filtrage de vitesse. Nous avons utilisé deux configurations. La solution normale consiste à désexciter légèrement L_1 pour rapprocher l'image intermédiaire de L_3 . Les grandissements sont toujours importants.

Une deuxième solution évite les problèmes d'alignement liés aux deux dernières lentilles. Celles-ci sont simplement enlevées et directement remplacées par la chambre d'observation. On obtient des grandissements compris entre 60 et 300. Cette configuration est très utile pour l'alignement et le réglage de l'ensemble objectif.

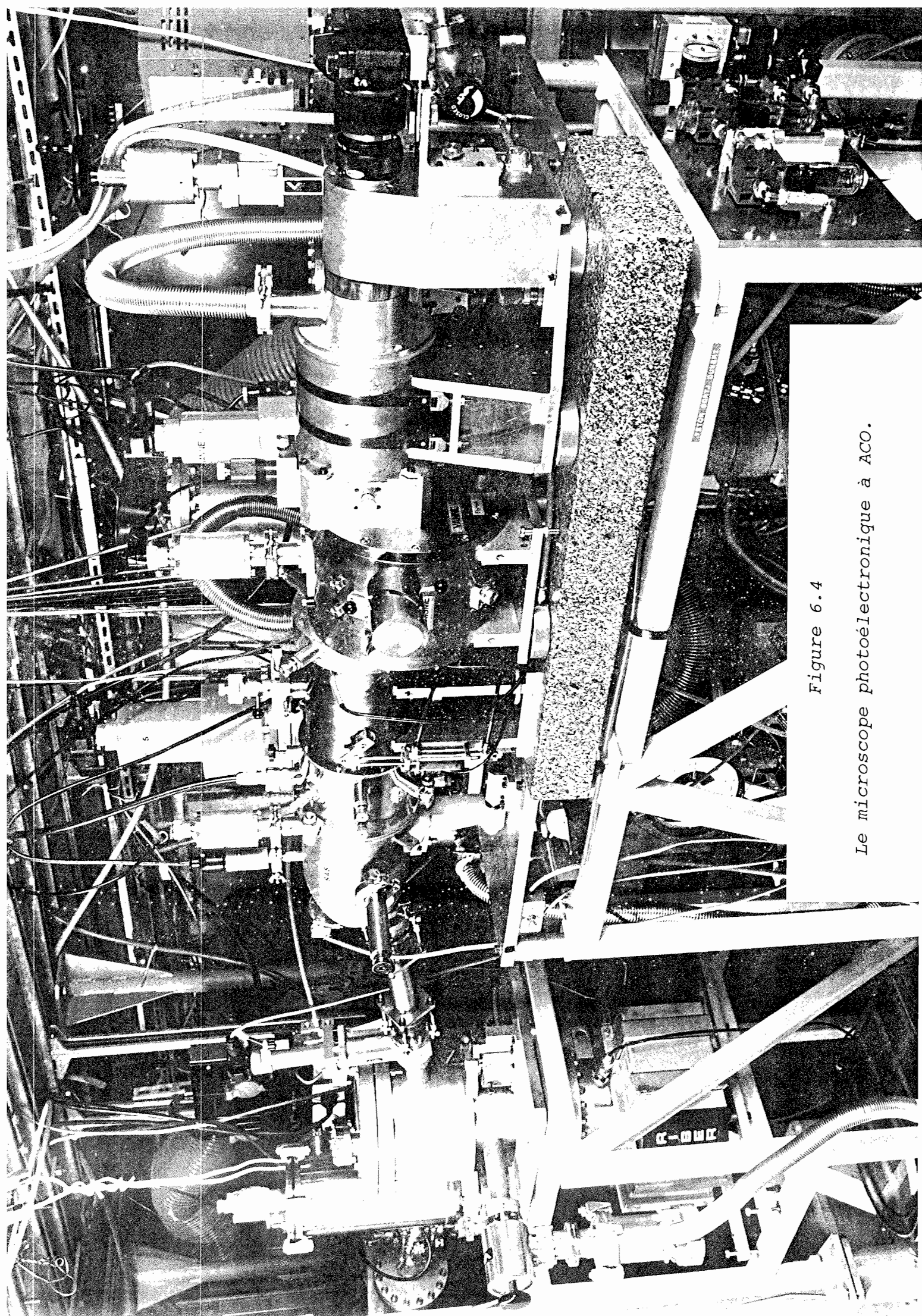


Figure 6.4
Le microscope photoélectronique à ACO.

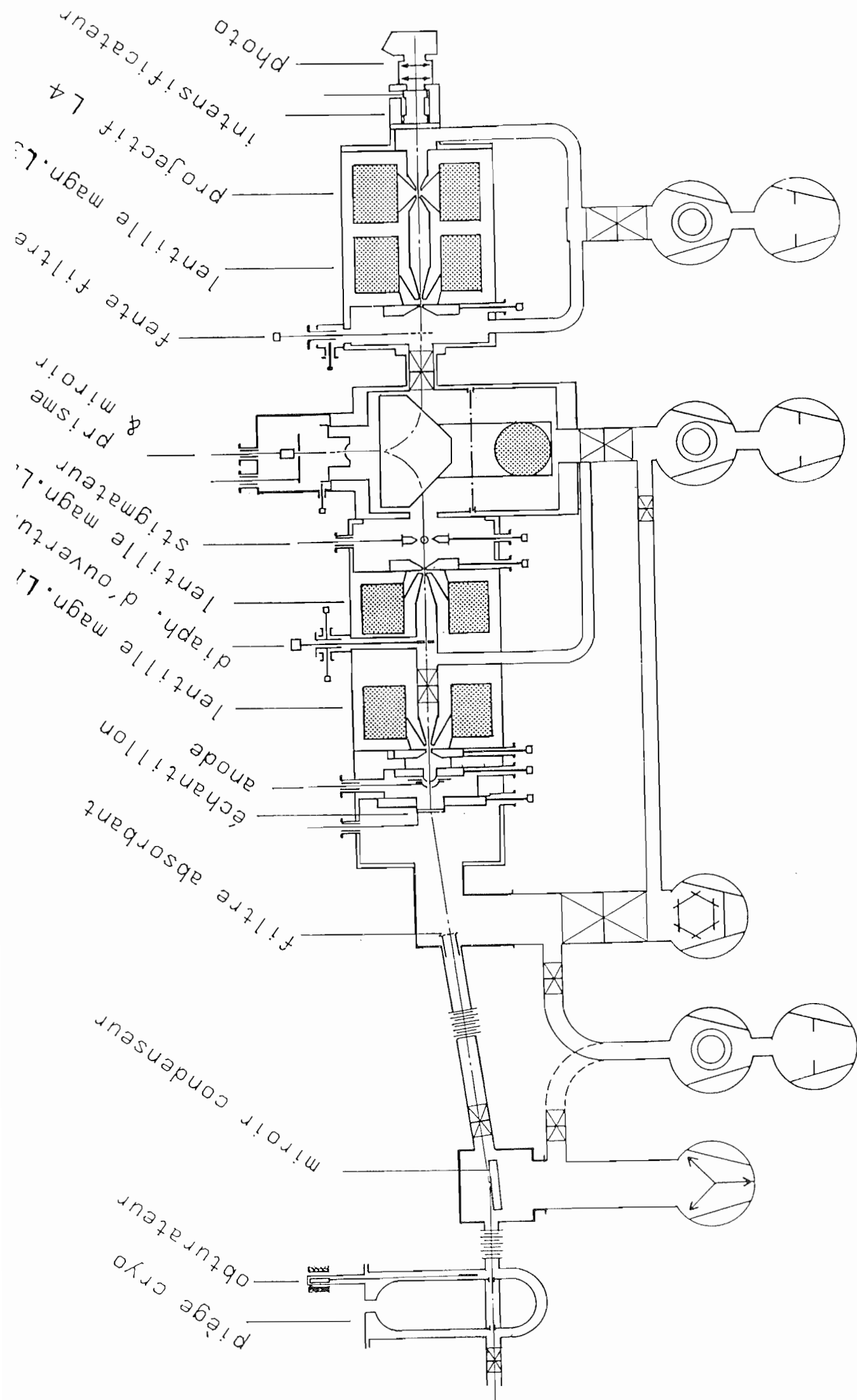


Figure 6.5

Schéma fonctionnel du microscope photoélectronique

6.3.2 REALISATION MECANIQUE DE LA COLONNE DE MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

Le microscope tel qu'il est présenté à la figure 6.4 est le résultat de plusieurs années de mise au point. Toutefois le schéma fonctionnel (figure 6.5) n'a pas reçu de modifications fondamentales.

a) La colonne initiale

L'utilisation du rayonnement synchrotron impose d'orienter la colonne de l'optique électronique horizontalement, car les miroirs dont on peut disposer aux longueurs d'onde qui sont intéressantes pour la microscopie X ($\lambda \lesssim 5 \text{ nm}$) ne peuvent pas produire une déviation de 90° .

Cette contrainte entraîne une certaine complexité de réalisation. En effet, contrairement à ce que l'on fait pour un microscope ordinaire à colonne verticale, où les éléments sont simplement empilés et maintenus par le vide ou les champs magnétiques, ici, tous les éléments doivent être assemblés rigidement et bridés pour l'étanchéité. Les alignements sont beaucoup plus difficiles puisque les lentilles ne peuvent pas coulisser les unes par rapport aux autres.

Une première précaution a été de réaliser un centrage mécanique aussi serré que possible des divers éléments de la colonne. Les trois segments principaux, le premier groupe de lentilles, le bloc prisme et le groupe d'observation, s'ajustent entre eux avec un jeu maximum de $10 \mu\text{m}$. Pour leur assemblage, ils sont déplacés sur un marbre en granit, ce qui permet de retrouver le parallélisme de l'axe après chaque démontage pour intervention. Le premier bloc, du support de l'objet jusqu'à la lentille L_2 , est fixé sur ce marbre. Les autres éléments optiques et dispositifs de pompage s'adaptent sur lui. Ils sont montés sur des patins à coussin d'air dont les surfaces portantes sont calculées pour donner un jeu de coulisement de quelques microns. Leur structure d'injection d'air par rainures et échappement radial, leur confère une très grande raideur et une grande stabilité. On peut ainsi ajuster sans efforts aux tolérances précitées des masses supérieures à 30 kg. L'alignement préalable des supports a permis de fixer une fois pour toutes le parallélisme de l'axe avec le marbre à $30''$ d'arc environ.

Nous avons calculé et dessiné les deux premières lentilles magnétiques, à l'aide des indications et des abaques de Durandea et Fert [DURANDEAU, 1957, DUGAS, 1961]. Elles ont été réalisées par l'atelier de mécanique de l'I.O.T.A. Elles sont usinées dans un fer ultrapur (Ferholzer) et protégées par une couche de $16\text{ }\mu\text{m}$ de nickel chimique (traitement Kanigen). La matière de ces lentilles ainsi que les procédures d'usinage et de traitement thermique nous ont été très aimablement fournis par la société Cameca.

Les deux autres lentilles magnétiques proviennent d'un ancien microscope électronique et ont subi peu de retouches. Seule la première pièce polaire de la lentille L_3 a été remplacée par une pièce polaire mobile.

b) Optiques correctrices

Devant l'impossibilité de réaliser le centrage de l'optique par déplacement des lentilles, et malgré les soins apportés à la construction, il a été nécessaire d'inclure dans la colonne des systèmes déviateurs. A l'origine, les moyens de centrage se limitaient à un jeu de bobines de déflexion magnétiques situées entre le diaphragme d'ouverture et la lentille L_2 , et à la pièce polaire mobile de la lentille L_3 . L'usage a très rapidement montré l'insuffisance de ce dispositif qui a dû être profondément modifié.

D'autre part, pour corriger les inévitables défauts de circularité des optiques, une colonne de microscope électronique comporte toujours un stigmatiseur. Ce stigmatiseur était initialement placé au foyer image de la lentille L_2 . Plus tard, lorsque nous modifierons la colonne du microscope pour améliorer les moyens de centrage, nous serons amenés à déplacer ce stigmatiseur à proximité du diaphragme d'ouverture (fig.6.2.b).

6.4 AUTRES ELEMENTS DU MICROSCOPE

Pour achever la description du microscope, nous donnons ici quelques indications sur la manière dont les fonctions annexes d'éclairage, d'observation et de mise sous vide sont réalisées.

6.4.1 ECLAIRAGE

Le microscope a été installé à ACO sur une ligne de lumière dont la longueur est 12 m. La "brillance" relativement limitée de l'Anneau ACO n'a pas autorisé l'usage d'un monochromateur. Le rayonnement provenant d'un aimant de courbure est collecté, sous une incidence rasante de 4° , par un miroir torique de ~ 1 m de focale qui accepte approximativement une ouverture de $1 \times 3 \text{ mrad}^2$ (fig. 6.5). La source synchrotron est ainsi focalisée en une tache de 0,3 mm de diamètre environ. Cependant, en raison de l'asymétrie importante du montage, cette image est affectée d'une forte aigrette de coma qui s'étend sur 1,5 mm environ quand le miroir condenseur est parfaitement réglé.

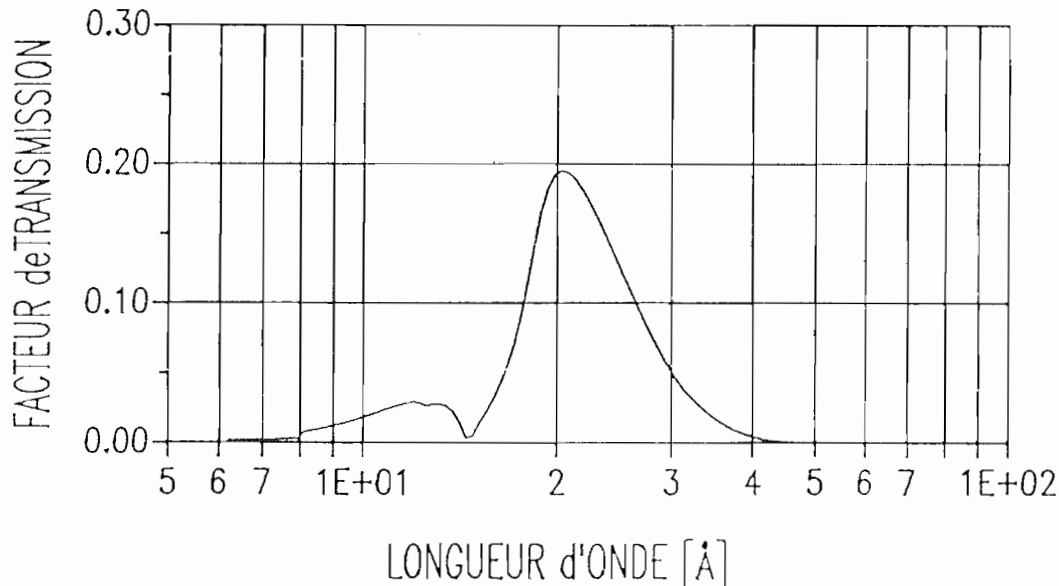


Figure 6.6

Facteur de transmission de l'optique d'éclairage.
 La feuille de $0,8 \mu\text{m}$ d'aluminium coupe les grandes longueurs d'onde ; la réflexion sur le miroir de nickel à 4° d'incidence rasante supprime les courtes longueurs d'onde.

Le miroir, en silice, est recouvert d'une couche réfléchissante de nickel. Sa réflectivité théorique à 4° d'incidence rasante reste supérieure à 50 % pratiquement jusqu'au seuil L du nickel, c'est-à-dire pour $\lambda \gtrsim 16 \text{ \AA}$. Les rayonnements visibles et UV lointains qui sont également réfléchis par le miroir sont éliminés par une feuille d'aluminium de $0,8 \text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur, située à l'entrée de la chambre objet. L'effet du filtre passe-bande ainsi constitué est montré à la figure 6.6.

Au total, l'éclairement au centre du champ objet est estimé à $E_o = 3 \cdot 10^{15} \text{ photons s}^{-1} \text{ mm}^{-2}$, pour un courant électronique de 100 mA à l'intérieur de l'anneau. En unité énergétique, cet éclairement correspond à $0,2 \text{ W/mm}^2$.

6.4.2 DETECTION

L'image est formée sur un écran scintillateur en ZnS dopé à l'argent de type P20. Ce matériau possède une excellente efficacité de conversion énergétique $\sim 20 \%$ [HERMANN et KRAHL, 1984]. Ce phosphore est déposé sur une plaque de fibres optiques American Optical de $5 \text{ }\mu\text{m}$ de pas. Sa résolution spatiale est estimée à 160 traits/mm. L'efficacité mesurée au LEP sur des écrans du même type que celui réalisé pour nous est voisin de 15 Lm/W pour une tension d'accélération de 16 kV. Couplage compris, cela équivaut à un rendement énergétique de 3 %, proche des valeurs d'efficacité données par Hermann et Krahl.

A partir de ces données, on peut estimer l'éclairement maximal de l'écran d'observation (objet parfaitement transparent). Si nous évaluons le rendement de conversion et de collection du microscope à $\eta_c \simeq 1 \%$, et pour un grandissement de l'image finale $G = 500$, l'éclairement électronique de l'écran est

$$E_e = \frac{\eta_c E_o}{G^2} = 1,2 \cdot 10^8 \text{ électrons s}^{-1} \text{ mm}^{-2} \quad (6.36)$$

A la sortie des fibres optiques, l'éclairement est estimé à

$$E_s = 6 \text{ Lm m}^{-2} \quad (6.37)$$

Les fibres optiques ayant une ouverture numérique proche de 1, la luminance de l'image visible est sensiblement

$$L_s = 1 \text{ cd m}^{-2} \quad (6.38)$$

Cette luminance, déjà très faible, est encore réduite dès que l'objet est un peu absorbant. On arrive alors à des niveaux où la qualité de perception des détails commence à être altérée. C'est pourquoi nous avons assez rapidement ajouté un amplificateur de luminance à ce dispositif d'observation. Il s'agit d'un tube amplificateur de type diode (Thomson TH 9473) dont le gain nominal est 25. Sa face d'entrée est une plaque de fibres optiques au pas de $10\text{ }\mu\text{m}$. Elle est directement couplée aux fibres de l'écran. La résolution des images après amplification est environ 70 traits/mm.

Pour enregistrer les images, nous utilisons un système de deux objectifs de photographie de grande ouverture (50 mm , $f/1,2$), montés en tandem pour donner sur le film photographique une image de l'écran au grandissement 1. Pour assurer l'uniformité du champ image, l'ouverture de ce système est volontairement limitée à $f/1,8$; son rendement de collection est donc voisin de 0,25. Le premier de ces objectifs reste solidaire de l'amplificateur et sert d'oculaire pour l'observation visuelle.

6.4.3 VIDE

Sur une installation de rayonnement synchrotron, on cherche à réaliser des vides très propres et généralement assez poussés. En effet, toute contamination par des traces d'hydrocarbures se traduit inévitablement par une condensation et une polymérisation sur les surfaces exposées aux rayonnements X et UV, et tout spécialement sur les optiques, dont la réflectivité peut être fortement dégradée.

Il est difficile de réaliser des vides très poussés dans une colonne de microscope électronique dont la conductance est toujours très faible. Il est plus difficile encore de ne pas introduire de traces d'hydrocarbures, car on doit réaliser de nombreux déplacements sous vide dont les étanchéités sont généralement assurées par des joints toriques. Des pressions inférieures à 10^{-5} mb ne sont d'ailleurs pas nécessaires à la circulation des électrons dans un microscope.

Au niveau de la lentille à émission, on a par contre constaté que le champ de 50 kV/cm n'était stable qu'à des pressions inférieures à 10^{-6} mb , sinon il se produit des décharges qui endommagent rapidement les cathodes et leurs supports.

Pour tenir compte de ces exigences, l'instrument est divisé en quatre segments pompés indépendamment, qu'un ensemble de vannes permettent d'isoler les uns des autres. Les deux segments arrière - L_2 et la chambre du prisme d'une part, L_3 , L_4 et la chambre d'observation d'autre part - sont évacués par des pompes turbomoléculaires. En fonctionnement, leur pression varie de quelque 10^{-6} à 10^{-5} mb. Le compartiment objet, et la lentille L_1 qui lui est attachée, n'a pas été pourvu d'un sas pour l'introduction des échantillons, dont la réalisation aurait été trop complexe. Pour changer l'objet, ce compartiment est isolé, remis à l'air, puis réévacué. Pour réduire au minimum le temps de pompage, il a été équipé d'une pompe cryogénique de 1500 l/s. Pour ce segment, le pompage cryogénique combine les avantages d'une bonne efficacité pour l'élimination de la vapeur d'eau, avec un piégeage efficace des vapeurs d'hydrocarbure susceptibles remonter de la colonne électronique. Les pompes cryogéniques ne peuvent être remises à l'air fréquemment, et le prévidage du compartiment objet est confié à une petite pompe turbomoléculaire. En fonctionnement, la pression de ce segment doit être inférieure à 10^{-6} mb.

L'enceinte du miroir de refocalisation reste en permanence sous vide ; elle est évacuée par une pompe ionique. En fonctionnement, on a constaté une remontée de pression due à la mauvaise qualité du vide dans une ligne de lumière dont la conductance est assez faible. Pour préserver le miroir, un diaphragme refroidi à l'azote liquide a été placé au point d'entrée. On atteint alors, en fonctionnement, des pressions inférieures à 10^{-7} mb.

Vannes et pompes sont commandées par l'intermédiaire d'une logique de sécurité. Elle interdit en particulier l'ouverture des vannes de segmentation tant que les pressions des compartiments voisins sont supérieures aux valeurs de consigne. La haute tension fournie à la cathode est également protégée par cette sécurité.

CHAPITRE 7

EXPERIENCES AVEC LE MICROSCOPE A CONVERSION ET DISCUSSION DES RESULTATS

7.1 MISE AU POINT DU SYSTEME OPTIQUE

7.1.1 PREMIERE SERIE D'EXPERIENCES

La faible luminance de la source UV montée en source auxiliaire n'a pas permis de réaliser un véritable test de l'optique avant le montage du microscope sur ACO. Dès les premières expériences avec le rayonnement synchrotron, le centrage du faisceau s'est révélé plus difficile que prévu. Les déviatrices magnétiques installées devant L_2 ne permettaient que de centrer l'image, et les excentremets pupillaires devenaient si importants qu'il était pratiquement impossible d'utiliser plus de deux lentilles.

On tenta d'abord de pallier ces défauts par l'installation d'un petit déviateur électrostatique en avant du plan du diaphragme d'ouverture. L'inconvénient de ce genre de dispositif est de ne pas corriger véritablement le défaut de centrage de l'axe optique, mais seulement d'en compenser les effets dans les plans de l'image et de la pupille. Cette correction dépend des excitations des lentilles ; elle est donc extrêmement instable et elle ne permet pas d'atteindre de forts grossissements. De plus, l'inclinaison des faisceaux dans les lentilles renforce l'astigmatisme et est la cause de distorsion très gênante pour l'observation.

Malgré cela, on a pu observer quelques images mais leur résolution est toujours restée médiocre, 1 à 2 μm au mieux.

7.1.2 MODIFICATION DU CENTRAGE

A la suite de cette première série d'expériences, il a été décidé de revoir entièrement les moyens de centrage. L'ancienne colonne avait clairement montré les inconvénients d'une correction de centrage extérieure aux lentilles. A défaut de pouvoir déplacer les lentilles elles-mêmes, nous avons rendu mobile une pièce polaire de chacune d'entre elles. On peut, en effet, compter sur la procédure de montage très ajustée pour l'alignement général de la colonne. Cependant, quelles que soient les précautions prises, il subsiste toujours de légers défauts dans le centrage relatif des pièces polaires. Ces défauts, ainsi que nous avons pu le constater par la suite, agissent très vite sur le désaxement et c'est effectivement sur eux qu'il est important de réagir.

De la même façon, un centrage de l'anode de la lentille à émission électrostatique permet l'alignement du faisceau primaire.

Pour réaliser ces fonctions, on a dû rajouter à proximité du dispositif de déplacement de l'échantillon des mécanismes similaires pour le centrage de l'anode de la lentille électrostatique et celui de la première pièce polaire de L_1 . La très faible distance entre ces éléments a demandé une complète réfection de l'ensemble support d'échantillon et lentille électrostatique, dont la complexité, est encore accrue par la prohibition de tout matériau magnétique. Le centrage, sur le même principe, de la lentille L_2 n'a pas soulevé de difficulté particulière, et les déflectrices désormais inutiles ont été supprimées.

Avec ce nouveau dispositif, il a été possible de définir une procédure fiable et reproductible d'alignement du microscope :

- i) Lentilles magnétiques coupées, on centre l'anode pour que le faisceau traverse l'ensemble de la colonne, et on maximise l'intensité de la tache formée sur l'écran.
- ii) On règle successivement le centrage des lentilles magnétiques en s'assurant que le faisceau électronique reste centré lorsqu'on fait varier le courant de lentille.
- iii) On vérifie le centrage du miroir condenseur, de façon à amener le centre de la zone éclairée au milieu du champ

de la lentille électrostatique, i.e. courbure de champ et distorsion réduites au minimum.

iiii) La procédure précédente est vérifiée et éventuellement reprise.

7.2 EXPERIENCES SUR LE MICROSCOPE MODIFIE

7.2.1 MISE AU POINT DE LA COLONNE MODIFIEE

Le microscope ainsi modifié s'est montré davantage conforme aux prévisions, mais, une fois le centrage obtenu, les défauts secondaires sont apparus.

On a d'abord constaté des défauts importants de la deuxième lentille intermédiaire L_3 . Ils proviennent de la conception même du bloc de lentilles $L_3 - L_4$. En effet, nous n'avons pas construit ce bloc de lentilles qui a été récupéré d'un ancien microscope, et nous nous sommes contentés d'y adapter une pièce polaire mobile pour la lentille L_3 . Contrairement à notre premier groupe de lentilles, les pièces polaires, sont rapportées à l'intérieur d'un alésage et bloquées entre des espaceurs amagnétiques. Cette technologie, parfaitement adaptée à des pièces polaires fixes dans la colonne verticale du microscope d'origine, s'est montrée très défectueuse dans notre appareil horizontal, car le déplacement du noyau, entraîné par le frottement de la pièce polaire mobile, produit des perturbations inacceptables du champ. Le plus souvent, nous avons désactivé L_3 et projeté l'image intermédiaire directement dans le plan focal de L_4 , ce qui, lorsque le prisme n'est pas en place, ne présente aucun inconvénient.

Plus grave a été la constatation d'un fort astigmatisme (de défocalisation cylindrique) dans le plan de l'image, que le stigmatiseur placé après L_2 était impuissant à réduire. Pour augmenter l'effet du stigmatiseur, nous l'avons d'abord déplacé à proximité du diaphragme d'ouverture, dans l'espace laissé libre par la suppression des déflectrices. A cet emplacement, le diamètre pupillaire étant plus grand, l'efficacité du stigmatiseur sur l'image est beaucoup plus importante. On s'est alors aperçu que l'astigmatisme affectait également l'imagerie pupillaire.

En effet, de même que pour le centrage, c'est dans le plan de la lentille qui produit le défaut qu'il faut agir, car

il s'agit d'un défaut de circularité du champ à l'intérieur de celle-ci. Nous avons donc tenté d'apporter une correction hexapolaire dans l'entrefer de L_1 , par le moyen de 6 petits plots de fer doux $\varnothing 2 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$, plus ou moins enfoncés dans l'entretoise amagnétique qui sépare les pièces polaires. Ce type de stigmatiseur est connu sous le nom de stigmatiseur de Hillier [GRIVET p. 433]. Il a pour principal défaut de demander le démontage de la lentille L_1 (et du porte-objet), pour chaque correction de réglage. Malgré cette difficulté, il a été possible de réduire l'astigmatisme de L_1 dans de grandes proportions.

Les défauts restants ont semblé être davantage liés à l'objet et en particulier dépendre du mode de préparation de l'objet et de la cathode, mais aussi de la région examinée sur un même objet. Ces défauts affectent également l'image pupillaire, comme le prouvent les difficultés à régler le diaphragme d'ouverture pour obtenir un contraste homogène dans le champ. Ces aberrations résiduelles pourraient provenir de champs magnétiques parasites au niveau de l'échantillon. En effet, pour des raisons pratiques de réalisation, la nouvelle chambre-objet a été réalisée entièrement en laiton doré, et non pas en fer doux. Elle n'assure donc pas le blindage peut-être nécessaire à ce niveau. Les aberrations résiduelles, du fait de leur irrégularité, paraissent cependant devoir être plutôt attribuées aux défauts de planéité de l'objet.

7.2.2 INFLUENCE SUR LES IMAGES DE LA PREPARATION DES CATHODES ET DE LEURS SUPPORTS

Pour ces expériences, de même que pour les expériences préliminaires, nous avons utilisé deux types de supports : des supports épais de $150 \mu\text{m}$ en silice qui ne permettent que des images en rayonnement UV (il suffit simplement de supprimer le filtre d'aluminium du dispositif d'éclairage), et des membranes minces en polyimide dont l'épaisseur était généralement voisine de $0,5 \mu\text{m}$.

Ces membranes sont fabriquées de la façon suivante : la résine polyimide (Pyralin 2550, Dupond de Nemours) est centrifugée sur un disque de verre de $150 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Elle est ensuite polymérisée par cuisson pendant 1 heure à 200°C . On ouvre alors dans la lame de verre une fenêtre de 2 mm de diamètre environ, par une attaque à l'acide fluorhydrique. L'attaque est arrêtée dès que la fenêtre est complètement dégagée, par un rinçage à l'eau distillée. Le montage d'attaque est

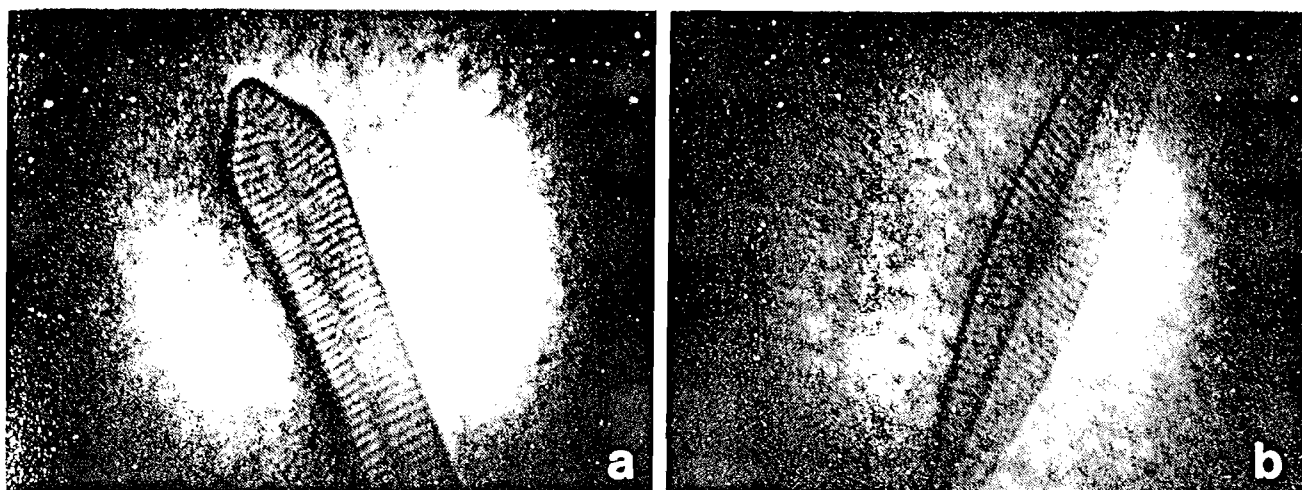
alors immergé totalement dans l'eau distillée et désassemblé, ce qui permet de sortir la membrane sans la déchirer. La membrane détendue par absorption d'eau est retendue par séchage à l'étuve.

Le contrôle de l'attaque chimique qui permet de dégager la membrane est assez délicat. Si on la laisse se poursuivre trop longtemps, l'acide s'infiltré entre le verre et la membrane et la décolle largement. Il est alors très difficile de retendre la membrane sans former de plis.

Avant leur utilisation, les membranes sont vérifiées au microscope, puis l'objet est déposé avec une goutte d'eau distillée dans la micro-cuvette formée par la membrane et la lame de verre. Après séchage de l'objet, la face externe de la membrane est recouverte d'une couche photoémissive par évaporation sous vide. Deux types de photocathodes ont été employées : l'or déposé sur une épaisseur de 200 Å environ, et surtout l'Iodure de Césium en couche de 1000 Å d'épaisseur environ. Ce dernier matériau s'est révélé supérieur à l'or, tant par son émissivité plus grande que par un meilleur contraste des images.

Il n'est pas facile de tirer des enseignements indiscutables des images obtenues avec ces différentes préparations. Comme nous l'avons déjà dit, il semble raisonnable d'attribuer les défauts des images au manque de planéité des cathodes. Lorsque les cathodes sont déposées sur des lames de silice polies, ces défauts n'apparaissent pas. Mais les supports en silice ne permettent de faire des images qu'en U.V. et la différence de résolution entre les images en U.V. et les images X ne permet pas réellement de conclure. D'autres arguments confortent malgré tout notre hypothèse :

- i) Après leur irradiation dans le microscope, les membranes perdent leur aspect de miroir et apparaissent détendues ou froissées.
- ii) Les défauts des images tendent à s'aggraver avec le temps passé sous faisceau, par exemple lorsqu'on essaie d'optimiser le réglage d'astigmatisme.
- iii) Les résultats les meilleurs ont été obtenus en renforçant chaque face de la membrane de polyimide par une couche mince de 500 à 1000 Å d'Aluminium également déposée sous vide par évaporation. Sur cette membrane renforcée, l'objet et la photocathode de 1000 Å de CsI étaient déposés de la façon indiquée précédemment.

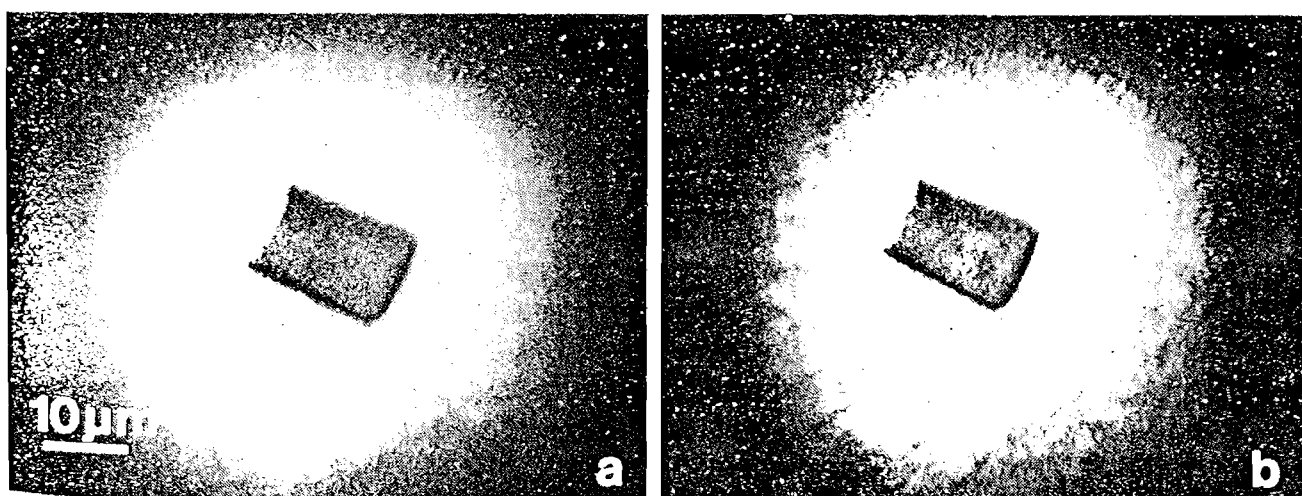


a

b

Figure 7.1

Image de diatomées, obtenues sur des photocathodes de CsI. Temps de pose 4s environ. Grandissement électronique $\times 300$. Période de la structure principale de chaque diatomée : image a) : $1,2\mu\text{m}$; image b) : $0,8\mu\text{m}$.



a

b

Figure 7.2

Deux images d'une même diatomée, prises à 15mn d'intervalle.
 a) Photocathode fraîchement exposée aux rayons X.
 b) Effet de grain après 15 minutes d'exposition continue aux rayons X.
 L'objet, apparemment sans structure, a une largeur de $10\mu\text{m}$

Ces "sandwiches", dont on peut supposer que la raideur et la conductivité thermique sont améliorées, ont fourni les meilleures images et les plus stables. Les figures 7.1 a et 7.1 b montrent quelques images de diatomées obtenues de cette façon; la résolution y est proche de $0,3 \mu\text{m}$.

Cependant, au démontage de ces cathodes, des défauts d'aspect étaient toujours visibles. Sur ces cathodes Al-CsI, nous avons également observé un effet de croissance de la granularité avec le temps d'irradiation. La figure 7.2 montre l'image d'une diatomée située dans une région encore inexplo- rée du porte-objet, quelques instants après que l'objet ait été découvert et centré dans le champ d'observation. Cet objet ne présente malheureusement pas de détails visibles, mais ses contours nets montrent que l'image est au point ; hors de l'objet, la cathode ne présente pratiquement pas de structures visibles. Les images des figures 7.2 a et 7.2 b ont été prises respectivement après 5 min. et 15 min. d'exposition continue au faisceau X. On y voit se développer une structure granu- laire qui reste incomplètement résolue et dont le contraste croît. L'origine de cette granularité n'est pas expliquée (recristallisation ou microfracturation du CsI, migration de Al ou contamination de la surface).

7.3 DISCUSSION DES RESULTATS

Avec $0,3 \mu\text{m}$ de pouvoir séparateur, la limite de résolu- tion atteinte est très supérieure à celle qui était espérée ($\leq 0,1 \mu\text{m}$). L'astigmatisme résiduel qui a été constaté a deux origines différentes sur lesquelles on doit agir pour amé- liorer ces résultats : la fabrication des cathodes et la structure de l'optique électronique.

7.3.1 LES PHOTOCATHODES

La technique actuelle des membranes de polyimide doit être abandonnée, même si une partie des problèmes vient peut- être de la région de longueur d'onde, inférieure au seuil K du Carbone, dans laquelle nous avons travaillé, région où l'ab- sorption du polyimide est très forte. Plus récemment, de nou- velles techniques de fabrication de membranes pour les X mous ont été développées. Celle des membranes du Nitrure de Sili- cium déposé sur Silicium, qui permet d'obtenir des fenêtres de plusieurs mm^2 pour 1000 à 2000 Å d'épaisseur paraît particu- lièrement prometteuse.

La couche émissive elle-même doit être optimisée en fonction de l'efficacité de conversion, de la dispersion énergétique et de l'uniformité d'émission. Si l'uniformité d'émission peut être évaluée avec le microscope, il n'en va pas de même de l'efficacité et de la dispersion énergétique. La recherche de photocathodes optimales et des moyens de les fabriquer est en soi une expérience totalement indépendante du microscope.

Pour le moment, nous nous sommes surtout fondés sur les travaux de Henke [HENKE, 1981]. Il est toutefois peu douteux que le mode de préparation des cathodes puisse avoir une influence sur leurs propriétés. On peut se demander, en particulier, si des cathodes en CsI, qui ont été remises à l'air après fabrication, présentent effectivement les caractéristiques attendues. Parmi les expériences possibles, il serait sans doute intéressant de chercher à diminuer le travail de sortie, sans trop diminuer l'absorption, pour réduire la dispersion énergétique. On peut songer à une photocathode à deux couches, une de forte efficacité de conversion, l'autre externe à faible travail de sortie.

7.3.2 L'OPTIQUE ELECTRONIQUE

Dans nos expériences, nous avons été tout d'abord gênés par l'astigmatisme de la première lentille. A posteriori, cela n'est pas vraiment surprenant. C'est en effet à ce niveau que l'ouverture des faisceaux est la plus grande et par conséquent que les images sont les plus sensibles au plus petit défaut de circularité du champ magnétique. D'autre part, en raison des conjugaisons à effectuer, cette lentille est une lentille faible, alors même qu'il est beaucoup plus difficile d'obtenir une bonne régularité de champ dans une lentille faible que dans une forte. Une lentille forte peut en effet être calculée pour qu'un début de saturation du circuit magnétique apparaisse au niveau des pièces polaires [DURANDEAU, 1957]. Ce début de saturation a un effet régularisant lorsque de légers défauts de forme ou de contact entre les pièces polaires et la carcasse créent un pincement local des lignes de champ. Rien de tel, bien entendu, sur une lentille faible qui doit être parfaite.

Si on tient à garder la configuration actuelle, il faut donc mettre un dispositif de correction dans l'entrefer de L_1 et le stigmatiseur de Hillier actuel devra être remplacé par un champ hexapolaire réglable de l'extérieur. Est-il cependant nécessaire de conserver le système optique tel que nous l'a-

vons imaginé ?

Dans la mesure où le premier prototype s'est révélé très difficile à régler, on peut se demander si le filtre de vitesse pourra jamais être utilisé et même s'il est utile. En effet, en se référant à la figure 5.10, on doit constater que le filtrage en énergie ne permet de gagner, à facteur de collection égal, qu'un facteur 2 sur la limite de résolution par rapport à un dispositif simplement filtré en ouverture. Ce gain justifie-t-il la complexité du système optique avec filtre ? Ne serait-il pas plus profitable de faire porter la recherche sur les photocathodes pour tenter de trouver une cathode présentant, en même temps qu'une bonne efficacité, une dispersion énergétique aussi réduite que possible ? Dans ce cas, le filtrage en énergie des images serait-il encore utile ? L'instrument en serait notablement simplifié et ne comporterait plus que deux lentilles magnétiques fortes, un objectif et un projectif.

7.4 DEVENIR DE L'EXPERIENCE

La fermeture d'ACO a interrompu ce travail à ce point des expériences et de nos interrogations. Dans notre plan de travail, il était prévu de chercher à réaliser des images d'un même objet à différentes longueurs d'onde. Nous ne l'avons pas fait, parce que cela nécessite la présence d'un monochromateur dans le dispositif d'éclairage et que la luminance de la source ACO était insuffisante. Sur Super-ACO, et en particulier avec les sources onduleurs, cela devient possible.

Cependant, la construction d'un monochromateur et son installation auprès d'une source de rayonnement synchrotron, avec la ligne de lumière destinée à son exploitation, est une opération lourde. Sa rentabilité exige le plus souvent des regroupements d'expériences par centres d'intérêt de façon à atteindre des taux d'exploitation raisonnables.

Il était pour nous logique de regrouper sur un même poste expérimental nos différentes expériences de microscopie X : microscopie par conversion d'image, holographie X et, éventuellement aussi, certaines expériences d'optique X comme la mesure d'indices par interférométrie. Sur cette nouvelle ligne de lumière, nous voulions pouvoir établir les conditions de cohérences nécessaires à des expériences d'holographie. Nous montrons au chapitre suivant que ceci impose une relation de dispersion bien particulière pour le monochroma-

teur. Cela impose aussi, pour des questions de flux, d'utiliser une source dont la luminance spectrale est la plus élevée possible, c'est-à-dire en fait un onduleur.

Super-ACO dispose actuellement de trois onduleurs dont les sorties sont partagées entre des expériences différentes. Nos besoins particuliers nous ont contraints à concevoir un réseau spécial à l'intérieur d'un monochromateur déjà existant sur la ligne de l'onduleur U7, et une ligne déviée, différente de la ligne existante, pour son utilisation. Pendant ce temps, le microscope à conversion a été laissé en suspens. Il serait maintenant possible de reprendre ce travail, mais la discussion du paragraphe précédent montre qu'il faut alors entreprendre la construction d'un prototype de nouvelle génération et, d'autre part, qu'il est indispensable de conduire des études séparées sur les couches photoémissives.

Il n'en reste pas moins que, par ses principes, un microscope à conversion d'image est bien adapté à des sources de plus grande étendue géométrique d'émission que les sources de rayonnement synchrotron. Il en est ainsi des sources à plasma laser de moyenne puissance. Il serait donc possible de construire sur ce principe un microscope de laboratoire.

La conversion d'image peut aussi être un moyen efficace de détecter une image en rayons X, sans être obligé d'utiliser une optique intermédiaire pour l'agrandir. Des publications récentes donnent deux applications possibles de cette idée.

Une première application a été proposée par une équipe japonaise de Hamamatsu. Elle consiste à utiliser la conversion d'image dans un microscope, en complément d'un objectif à miroir. Il est en effet difficile de fabriquer des optiques de ce type avec de courtes focales. Le grandissement nécessaire à une bonne observation contraint alors à des tirages exagérés. La conversion d'image permet de réaliser un montage compact, avec un objectif de faible grandissement primaire. L'optique électronique réalise un grandissement secondaire variable ("zooming tube") ce qui améliore le confort d'utilisation [KINOSHITA 1991]

On peut aussi songer à une détection par conversion d'image pour résoudre le difficile problème de l'alignement et du réglage d'un objectif de Schwarzschild directement en rayons X. Cette deuxième application a été envisagée très récemment par l'équipe de R. Watts et T. Lucatorto au National Institute of Standard and Technology [WATTS 1991]. Ces chercheurs se proposent en effet d'utiliser un tel objectif en X-UV, dans un

dispositif de photoréduction pour fabriquer des masques pour les circuits intégrés. Contrairement aux microscopes à balayage, évoqués au chapitre 4, un système de photoréduction utilise les propriétés de champ de l'objectif de Schwartzschild. Une détection à haute résolution de l'image réduite, in situ et en temps réel, pourrait permettre un alignement dans des conditions semblables au réglage des instruments d'optique du visible par la méthode du point lumineux.

CONCLUSION

DE LA DEUXIEME PARTIE

Un premier prototype du microscope X photoélectronique a été développé et mis au point. Il a fourni des images dont la résolution est environ $0,3 \mu\text{m}$. L'analyse des difficultés rencontrées pendant ce travail, ainsi qu'une étude plus fine des limites théoriques, nous conduisent aux conclusions suivantes :

1/ La résolution et l'efficacité de ce microscope dépendent de la nature des photocathodes et de la qualité de leurs supports. On doit rechercher des cathodes à très faible travail de sortie, mais celles-ci doivent être également stables sous un faisceau intense de rayons X. La planéité de la membrane support est essentielle à l'obtention d'images de qualité. Les déformations dues à la présence de l'objet ou à l'irradiation sont inacceptables. Dans ces deux domaines, des études complémentaires seraient nécessaires avant de poursuivre le développement du microscope.

2/ Le prototype actuel a été conçu pour pallier l'utilisation de photocathode à fort travail de sortie par un filtrage en énergie associé à la limitation d'ouverture. Avec l'expérience, il apparaît que le gain modeste (cf § 5.3) apporté en théorie par le filtrage en énergie est largement perdu, en pratique, par la complexité accrue de l'optique. Les difficultés de mise au point n'ont d'ailleurs pas permis de tester son efficacité. Nous considérons maintenant que la poursuite du

développement de la microscopie X par conversion d'image jusqu'à l'objectif attendu de $0,1\text{ }\mu\text{m}$ de résolution passe par la construction d'un nouveau prototype, de conception optique simplifiée et utilisant des cathodes à très faible travail de sortie.

3/ Après la fermeture de la source synchrotron ACO auprès de laquelle était étudié le microscope, la poursuite des expériences de microscopie X de l'IOTA et de LURE a demandé la construction d'une ligne de lumière spécialisée sur le nouvel anneau Super-ACO. Les sources onduleurs de Super-ACO possèdent une luminance spectrale très élevée qui permet d'obtenir une certaine cohérence et de faire de la microscopie X par holographie. La nouvelle ligne de lumière dévolue à la microscopie X a été étudiée pour permettre de faire également ces expériences dans les meilleures conditions.

Les résultats espérés de la microscopie X par holographie nous incitent davantage à développer cette technique plutôt qu'un nouveau microscope à conversion d'image. Cependant, on développe actuellement d'autres sources de rayons X que les sources de rayonnement synchrotron. Certaines sources à émission plasma ne nécessitent que des lasers de puissance modérée, et un microscope à conversion d'image est bien adapté à l'utilisation d'une telle source de luminance moyenne mais de grande étendue. On peut donc penser que le développement d'un instrument de ce type, amélioré par rapport à notre prototype, puisse conduire à un microscope X de laboratoire ayant des performances tout à fait satisfaisantes.

En dehors de cette application à la microscopie de contact, un microscope photoélectronique convertisseur d'image peut être utilisé comme détecteur de très haute résolution en temps réel. Le contrôle des objectifs pour la photoréduction en rayons X, en est un bon exemple.

PARTIE III

MICROSCOPIE X

PAR

HOLOGRAPHIE DE GABOR

INTRODUCTION

A LA

TROISIEME PARTIE

HISTORIQUE

Les premières tentatives pour faire de l'holographie avec des rayons X remontent à la période d'intense activité que connut la microscopie X au début des années 1950. A cette époque, on ne connaissait que les méthodes de projection, ou encore, les optiques à miroirs en incidence rasante, dont la résolution, malgré les efforts de quelques pionniers, ne dépassa jamais véritablement celle des microscopes optiques.

C'est précisément la mauvaise qualité des optiques électroniques de l'époque qui, en 1949, avait conduit Dennis Gabor à imaginer cette méthode de formation d'image par enregistrement et reconstruction de fronts d'onde, qui devait devenir l'holographie. En microscopie X, la même idée fut envisagée dès 1952 par A. V. Baez [BAEZ 1952], qui fut par ailleurs à l'origine de beaucoup d'idées fructueuses dans le domaine de la microscopie X. Malheureusement, l'holographie se révéla inopérante en microscopie électronique, parce que les sources n'étaient pas assez cohérentes. Elle ne réussit pas mieux en microscopie X, pour la même raison.

Ce n'est que depuis peu (~ 1984) que des dispositifs magnétiques particuliers, appelés onduleurs, sont installés sur

les anneaux synchrotrons. Ils permettent d'obtenir des faisceaux de rayons X collimatés de grande luminance, grâce auxquels, par des moyens que nous examinerons au chapitre 8, la cohérence nécessaire à l'enregistrement d'hologrammes peut être obtenue. C'est à cette époque et pour ces raisons que nous nous sommes intéressés à l'holographie X. L'onduleur d'ACO permettait d'enregistrer des hologrammes dans des conditions de cohérence presque uniques, bien que la chute rapide de l'intensité émise au dessous de $\lambda = 10$ nm, nous ait contraint à employer une longueur d'onde un peu grande.

Les hologrammes que nous avons alors enregistrés, avaient d'abord pour but de démontrer que l'holographie X (dans la configuration de Gabor) permettait effectivement d'atteindre les résolutions de microscope, c'est à dire $\lesssim 0,5 \mu\text{m}$, espérées par nos prédécesseurs [AOKI 1974, HOWELLS 1984]. La clef de cette réussite a été l'emploi de résines photosensibles et que l'intensité lumineuse disponible avec un onduleur a alors rendu possible. Sur ces résines, on a pu pour la première fois observer des périodes de frange inférieures au micron (expériences réalisées presque en même temps à ACO avec D. Joyeux, et par M. Howells et C. Jacobsen à Brookhaven SSRL en 1987 [JOYEUX 1988, JACOBSEN 1988]). Les montages d'enregistrement actuels de nos deux équipes, permettent d'obtenir des hologrammes de Gabor théoriquement résolus à mieux que $0,1 \mu\text{m}$. Toutefois l'obtention de "bonnes images" à partir de ces enregistrements reste un problème.

Des recherches plus récentes tentent de développer d'autres configurations d'enregistrement, particulièrement celle de pseudo-Fourier qui permet d'éviter certains inconvénients de celle de Gabor [McNULTY 1988, 1991, HADAD 1988, 1991]. Cette méthode, pourtant, ne permet pas de s'affranchir des éléments optiques car elle nécessite une référence ponctuelle (de la taille de la résolution).

OBJECTIFS ACTUELS

Même si la question des méthodes reste largement ouverte, la question n'est plus maintenant de savoir si l'holographie X est possible, mais si elle peut devenir une méthode de microscopie X au même titre que les microscopes à réseaux de Fresnel, c'est-à-dire, pour nous : **comment et avec quelle résolution, peut-on reconstruire des hologrammes (de Gabor) enregistrés en rayons X, et quelle peut être la qualité de ces images ?**

Pour aborder ce problème, deux approches sont actuellement envisageables. La première approche, soutenue par l'équipe américaine de M. Howells et C. Jacobsen à Brookhaven, fait appel à l'ordinateur pour reconstruire l'image, après qu'une autre méthode de microscopie a permis de numériser l'hologramme. Sur des objets bien contrastés et relativement isolés dans le champ, ils ont obtenu d'excellentes images avec une résolution de $0,1 \mu\text{m}$ [JACOBSEN 1990].

L'approche que nous soutenons, est celle de la reconstruction optique. Certes, la résolution d'une reconstruction optique est physiquement limitée par la longueur d'onde de la lumière utilisée et par les aberrations, mais d'une part, on peut choisir une longueur d'onde courte (UV) et compenser les aberrations, d'autre part nous semble-t-il, la reconstruction optique conduit à une mise en œuvre plus simple, au moins dans l'UV proche.

La justification des affirmations qui précèdent est l'un des objets de ce travail et sera largement développée au chapitre 9. Mais auparavant, au chapitre 8, nous poserons les problèmes de l'enregistrement. L'opportunité de conserver le montage de Gabor y sera discutée. Nous décrirons ensuite nos montages expérimentaux. Celui d'ACO d'abord, avec lequel nous avons réalisé une première série d'hologrammes, puis celui de Super-ACO qui n'a pas encore été utilisé. Il sera l'occasion d'examiner le problème du compromis éclairage / cohérence - résolution. Nous montrerons comment nous avons résolu ce problème d'optimisation en contruisant à Super-ACO notre nouvelle ligne de "lumière cohérente". Ses caractéristiques sont en effet capitales pour pouvoir prétendre à des résolutions de $0,1 \mu\text{m}$ ou moins.

CHAPITRE 8

ENREGISTREMENT D'HOLOGRAMMES EN RAYONS X

8.1 PRINCIPES DE L'HOLOGRAPHIE X

L'holographie n'est pas directement une technique de formation d'image, c'est avant tout une méthode qui permet d'enregistrer totalement l'onde diffusée ou transmise par un objet, en la faisant interférer avec une onde de référence. De cette façon, on code sa phase et son amplitude sous la forme d'un réseau de franges d'interférence, l'hologramme, qui peut être enregistré sur un détecteur seulement sensible à l'intensité. En faisant diffracter l'hologramme, on produit plusieurs ordres de diffraction et l'un d'eux reconstruit l'onde objet.

L'intérêt de l'holographie pour la microscopie X est qu'il n'est pas nécessaire pour reconstruire un hologramme d'utiliser une onde strictement identique à la référence d'enregistrement. Changer la longueur d'onde ou la courbure de l'onde de reconstruction produit au premier ordre les mêmes effets qu'une lentille placée dans le plan de l'hologramme. On peut ainsi réaliser une image agrandie. Toutefois, ces changements introduisent aussi certaines aberrations.

Pour la microscopie en rayons X, l'holographie a un avantage essentiel : on n'a pas besoin de former une image avant d'enregistrer un hologramme. Cet enregistrement peut donc se faire pratiquement sans optique. En revanche, la reconstruction peut se faire à une longueur d'onde différente où l'on sait produire des optiques de qualité pour traiter l'image. Bien entendu, il n'est pas possible de faire diffracter des franges dont la période est très inférieure à la longueur d'onde de reconstruction. En utilisant l'UV proche, on peut cependant atteindre une résolution de $0,1 \mu\text{m}$ suffisante pour de nombreuses applications. On peut envisager une résolu-

tion plus élevée, soit en effectuant la reconstruction optiquement dans l'UV lointain, soit en numérisant l'hologramme et en effectuant la reconstruction par calcul sur l'ordinateur. L'opération est alors beaucoup plus délicate.

8.2 ENREGISTREMENT D'HOLOGRAMMES AVEC DES RAYONS X

8.2.1 PROBLEME DE LA COHERENCE

Pour réaliser un hologramme, il faut d'abord un dispositif interférométrique pour produire l'onde objet et l'onde de référence, et il faut que ces deux ondes soient assez cohérentes dans le plan du détecteur pour produire des franges d'interférence. Or, nous l'avons souligné dans notre introduction, il n'existe pas actuellement de sources cohérentes de rayons X, mais seulement des sources de faible étendue et de très grande luminance.

Si on peut enregistrer des hologrammes avec des rayons X, c'est qu'il n'est pas nécessaire que les deux ondes soient parfaitement cohérentes, mais seulement qu'en un point du détecteur, deux rayons ayant suivi des voies différentes présentent entre eux un assez grand degré de cohérence partielle. Même si la source est spatialement incohérente, on peut obtenir la cohérence spatiale à l'intérieur d'un angle solide déterminé en diaphragmant simplement cette source (théorème de Zernike). On peut également obtenir la cohérence temporelle nécessaire en monochromatisant la source. La seule question est de savoir quel flux reste disponible après ces opérations.

8.2.2 MINIMISATION DES BESOINS EN COHERENCE : CHOIX DE LA METHODE DE GABOR

Tous les dispositifs holographiques ne sont pas équivalents du point de vue de la cohérence ; les caractéristiques peuvent différer considérablement, tant pour la différence de marche (cohérence temporelle) que pour la séparation entre les deux voies (cohérence spatiale). Le montage de Gabor en ligne est une manière de tirer parti d'une cohérence limitée pour enregistrer des hologrammes.

Le montage de Gabor est le plus simple qu'il soit possible de concevoir. On utilise le faisceau quasi parallèle issu d'une source éloignée de faible dimension. L'objet est pla-

cé dans ce faisceau et, à quelque distance, le détecteur. On enregistre sur celui-ci l'interférence entre l'onde diffractée par l'objet et la fraction de l'onde incidente transmise à travers l'objet (fig. 8.1).

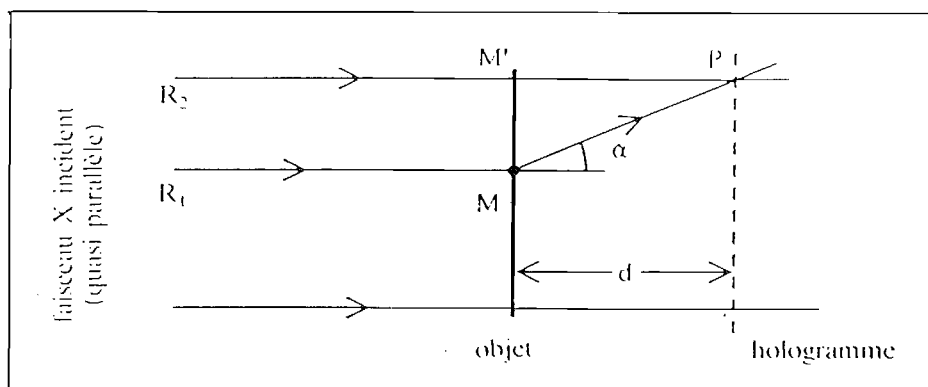


figure 8.1

La cohérence en holographie de GABOR.

Pour que ces interférences puissent être enregistrées, il faut que les rayons qui interfèrent présentent entre eux la cohérence nécessaire. Considérons le rayon diffracté par un point M de l'objet sous un angle α . Ce rayon interfère en P

sur le détecteur situé à la distance d de l'objet, avec un rayon M'P directement transmis par l'objet au point M', comme indiqué sur la figure (8.1). Ces deux rayons présentent entre eux une différence de marche $\Delta = \frac{d \alpha^2}{2}$. Si nous supposons que le spectre de la source a été limité à une bande étroite de largeur $\delta\lambda$, leur cohérence temporelle est

$$C_t(\alpha) = \text{Sinc}\left(\pi \frac{\delta\lambda \Delta}{\lambda^2}\right) = \text{Sinc}\left(\pi \frac{d \delta\lambda \alpha^2}{2 \lambda^2}\right) \quad (8.1)$$

Dans le plan de l'objet, ces deux mêmes rayons sont séparés d'une distance αd . Si nous supposons que la source a une dimension a et est placée à la distance D de l'objet, leur cohérence temporelle est

$$C_s(\alpha) = \text{Sinc} \left(\pi \frac{a d \alpha}{\lambda D} \right) \quad (8.2)$$

On voit donc que l'ouverture jusqu'à laquelle on peut enregistrer l'onde diffractée par un point est limitée par la cohérence. Pour atteindre une résolution donnée r , il faut que le contraste des franges reste assez élevé (supérieur à C_0) jusqu'à l'ouverture $\alpha_m = \frac{\lambda}{2r}$. Une condition suffisante de cohérence est alors

$$C_s C_t > C_0 \quad (8.3)$$

$$\text{avec } C_s = \text{Sinc} \left(\pi \frac{d}{2} \frac{a}{r D} \right) \quad (8.4)$$

$$C_t = \text{Sinc} \left(\pi \frac{d \delta \lambda}{8 r^2} \right) \quad (8.5)$$

(on sous-estime la cohérence temporelle en considérant que la largeur spectrale est égale en tout point de la fente à la largeur spectrale globale du monochromateur).

Cette cohérence peut être obtenue avec le rayonnement synchrotron sur des sources de type onduleur. Ces sources étant effectivement incohérentes, elle est obtenue dans la pratique en réduisant la bande spectrale de la source synchrotron au moyen d'un monochromateur dont la fente de sortie est la source secondaire du dispositif interférentiel. La cohérence spatiale est obtenue en réduisant la dimension de la fente de sortie et en travaillant à distance suffisante.

L'intérêt particulier du montage de Gabor pour l'holographie X tient à ce que la cohérence nécessaire ne dépend que de la résolution avec laquelle on souhaite enregistrer l'onde objet et de la distance objet-hologramme. Comme le dispositif travaille autour de la différence de marche nulle et avec une séparation minimale des rayons, ses besoins en cohérence sont minimaux, ce qui permet de préserver au mieux le flux lumineux émis par la source.

8.2.3 AVANTAGES ET INCONVENIENTS DU MONTAGE DE GABOR

L'holographie de Gabor ne se contente pas d'être peu exigeante en cohérence, elle présente également des propriétés particulièrement intéressantes pour l'utilisation avec les rayons X.

a) Simplicité instrumentale

Tout d'abord, le dispositif d'enregistrement est extrêmement simple à réaliser. L'objet et le détecteur peuvent être facilement maintenus pressés ensemble contre un espaceur, de sorte que les problèmes de vibration sont largement minimisés. De plus, il ne nécessite aucun élément optique après le monochromateur, l'onde incidente est donc parfaitement propre.

b) Grande dimension du champ

Un deuxième avantage de la méthode vient de ce que la cohérence n'a pas besoin d'être réalisée sur l'ensemble du champ objet, mais seulement localement dans un petit voisinage de rayon $\alpha_m d = \frac{\lambda d}{2r}$ autour de chaque point de l'objet. De fait, la position du point objet dans le champ n'intervient ni sur la condition de cohérence temporelle, ni sur celle de la cohérence spatiale que nous avons établies plus haut (éq. 8.4 et 8.5). Il en résulte qu'il est théoriquement possible d'enregistrer la totalité du champ éclairé par la source. En pratique, plusieurs mm^2 de champ peuvent être enregistrés en une seule exposition (actuellement environ 10 minutes de pose), c'est-à-dire la quasi-totalité d'une préparation biologique.

L'étendue géométrique de faisceau qui est ainsi utilisée est supérieure, de plusieurs ordres de grandeur, à l'étendue cohérente proprement dite, et se rapproche de celle qui est acceptée dans les dispositifs incohérents. De plus, l'enregistrement d'un champ aussi étendu permet d'éviter la recherche des champs utiles, longue et fastidieuse, qui grève habituellement le temps de faisceau synchrotron dévolu aux observations et provoque également une irradiation inutile de l'objet. Du point de vue d'un utilisateur, biologiste par exemple, l'enregistrement d'un hologramme devient alors ni plus ni moins qu'une forme particulière de préparation au cours de laquelle est fixée, sur la plaque holographique, la totalité de l'information disponible de l'objet.

En fait, la recherche des champs utiles est simplement différée à la reconstruction. Mais celle-ci peut être faite sans rayonnement synchrotron. Pour des résolutions modérées jusqu'à $0,1 \mu\text{m}$, nous montrerons qu'elle peut être effectuée optiquement dans l'UV proche au moyen d'un appareil de laboratoire assez proche d'un microscope confocal, c'est-à-dire sans contrainte de temps et dans un environnement plus confortable pour l'utilisateur que celui d'une ligne de rayonnement synchrotron. Ainsi, l'holographie de Gabor pourrait contribuer à

une bonne utilisation du rayonnement synchrotron pour la microscopie X.

A côté des avantages que nous venons de souligner, l'holographie de Gabor présente toutefois un certain nombre d'inconvénients dont il convient de voir s'ils sont acceptables et dans quelle mesure.

c) Détecteur

Tout d'abord, il faut utiliser un détecteur dont la résolution propre soit au moins égale à celle que l'on espère obtenir à la reconstruction. En effet, les rayons diffractés à l'angle α par une fréquence spatiale $\nu = \frac{\alpha}{\lambda}$ de l'objet, interfèrent avec les rayons parallèles à l'axe de la composante transmise, et produisent donc des franges de même fréquence spatiale ν . Les résines photosensibles ont cette résolution élevée et, de plus, ont un très faible bruit propre. C'est pourquoi elles sont largement utilisées en holographie.

On emploie en pratique des résines photosensibles du même type que celle qui ont été développées pour la fabrication de circuits intégrés. Certaines de ces résines, comme le PMMA, sont capables de résolutions voisines de 10 nm ; elles sont cependant assez peu sensibles. Lorsqu'on se contente de résolutions voisines de 100 nm, on peut utiliser des résines plus sensibles qui sont développées pour la microlithographie en rayons X. Il est à noter que, contrairement à la lithographie, on utilise ces résines en petits signaux et dans la partie linéaire de leur réponse. Dans ces conditions, et grâce à la technique de pré-exposition, leurs caractéristiques se trouvent améliorées [POLACK, 1989].

Il n'en reste pas moins que la faible efficacité du détecteur contribue à augmenter la dose reçue par l'objet. Cela peut inciter à étudier d'autres méthodes d'holographie comme la méthode de pseudo-Fourier, qui permettent d'utiliser des détecteurs beaucoup moins résolvants mais d'efficacité supérieure.

d) Image conjuguée

Lorsqu'on reconstruit un hologramme optiquement en le faisant diffracter, ou numériquement en simulant cette diffraction, on reconstruit trois ordres de diffraction, une par-

tie de l'onde de reconstruction, directement transmise (ordre 0), l'onde objet et l'onde conjuguée en phase de l'onde objet. Lorsqu'à l'enregistrement on a utilisé une onde de référence inclinée par rapport à l'onde objet, ces trois ordres sont angulairement séparés à la reconstruction. En holographie de Gabor, la référence et l'onde objet sont en ligne à l'enregistrement et, à la reconstruction, les trois ordres de diffraction se retrouvent alignés, bien que focalisés à des distances différentes de l'hologramme. Lorsqu'on est au point sur l'image reconstruite, on reçoit également une amplitude uniforme provenant de l'ordre 0 et l'image conjuguée défocalisée. En éclairage cohérent, ces ondes interfèrent, la qualité de l'image observée est dégradée. Pour cette raison, on préfère généralement faire des hologrammes à porteuse inclinée plutôt que des hologrammes de Gabor. Mais un montage à porteuse inclinée réclame une cohérence bien supérieure, notamment la cohérence spatiale, car les faisceaux sont largement séparés. Il n'est pas réalisable en pratique avec des rayons X, sinon sur un champ extrêmement réduit.

Pour se débarrasser de l'image conjuguée, les filtres optiques ou numériques sont inopérants. Cependant, l'intuition suggère, et la simulation sur ordinateur confirmera (§ 9.2.2), que la perturbation apportée par l'image conjuguée devient négligeable lorsque la défocalisation devient grande. Pour cela, nous montrerons que la distance d'enregistrement, d , doit être suffisamment grande, typiquement

$$\Delta_{max} = d\alpha_m^2/2 \geq 100 \lambda \quad (8.6)$$

e) absorption de l'objet

Signalons enfin que pour réaliser un véritable hologramme, il faut encore que la transmission de l'objet soit partout assez forte pour que l'onde transmise qui sert de référence soit dans tout le champ plus intense que l'onde diffractée (onde objet). Cette condition n'est pas trop difficile à réaliser dans les X mous, dans la mesure où l'absorption est généralement assez faible ainsi que les épaisseurs des objets. On doit malgré tout rester attentif à ce phénomène.

f) Conclusion de cette analyse et perspectives à long terme

Malgré certains inconvénients, et plus particulièrement celui de superposer, à la reconstruction, une image conjuguée à l'image réelle, la méthode de Gabor nous paraît

rester la plus adaptée aux sources de rayons X dont nous pouvons disposer. Le fait d'enregistrer un très grand champ et de le reconstituer plus tard à loisir paraît bien adapté à la fois aux demandes des microscopistes et aux contraintes qu'impose l'usage du rayonnement synchrotron.

Nous devons aussi souligner un avantage spécifique de l'holographie de Gabor qui reste peut-être encore quelque peu futuriste. En ne nécessitant aucune optique entre la source d'enregistrement et le détecteur, l'holographie de Gabor n'est pas limitée en résolution par la technologie des optiques. Avec les détecteurs existants, la résolution enregistrée n'est limitée que par la cohérence et le flux nécessaire, c'est-à-dire la luminance spectrale de la source. Celle-ci ne cessant d'augmenter, il n'est pas déraisonnable d'espérer passer sous 50 nm, l'actuelle limite de résolution des optiques diffractives, voire même atteindre 10 ou 20 nm. Notons que l'on commence alors à avoir une certaine résolution en profondeur. En effet, nous n'avons pas parlé d'image 3D pour l'holographie X, car c'est l'ouverture, α_m , de l'onde enregistrée qui fixe à la fois la résolution transversale $r_t = \lambda/(2\alpha_m)$ et la résolution longitudinale $r_\ell = \lambda/(2\alpha_m^2)$. La relation entre la résolution en profondeur et la résolution transversale est donc :

$$r_\ell = \frac{2 r_t^2}{\lambda} \quad (8.7)$$

A $\lambda = 4$ nm on trouve :

$$\begin{aligned} r_\ell &= 5 \text{ } \mu\text{m} & \text{pour } r_t &= 0,1 \text{ } \mu\text{m} \\ r_\ell &= 1,2 \text{ } \mu\text{m} & \text{pour } r_t &= 0,05 \text{ } \mu\text{m} \\ r_\ell &= 0,2 \text{ } \mu\text{m} & \text{pour } r_t &= 0,02 \text{ } \mu\text{m} \end{aligned}$$

Il n'y a donc pas de résolution en profondeur pour les résolutions considérées jusqu'ici, et peu d'espoirs à court terme puisqu'il faudrait atteindre une résolution proche de 10 nm.

8.2.4 AUTRES CONFIGURATIONS D'ENREGISTREMENT

Les inconvénients du montage de Gabor, surtout la superposition à l'image d'une image conjuguée, conduisent le plus souvent en optique du visible, à délaisser cette configuration d'enregistrement au profit du montage de Leith et Upatnieks à porteuse inclinée, ou d'autres techniques qui permettent de séparer spatialement les ordres diffractés par l'hologramme.

En rayons X, c'est la configuration de "pseudo-Fourier" qui semble actuellement présenter la meilleure alternative. Nous examinons ici les avantages et inconvénients de ces deux méthodes.

a) Holographie à porteuse inclinée

La méthode consiste à faire interférer l'onde transmise par l'objet avec une onde de référence inclinée par rapport à celle-ci. A la reconstruction les trois ordres sont séparés angulairement. Pour faire des hologrammes à porteuse inclinée on doit réaliser un interféromètre à deux voies : voie objet et voie référence. Si l'on emploie un interféromètre à division de front d'onde - on peut utiliser un simple miroir sous incidence rasante - les différences de marche et les séparations angulaires entre les rayons qui interfèrent, deviennent très vite considérables ainsi que les besoins en cohérence. Pour travailler au voisinage des différences de marche et de séparation nulles, on peut imaginer un interféromètre à division d'amplitude [SPILLER 1983]. Comme il n'existe pas de lames séparatrices pour ces longueurs d'onde, il faut utiliser un réseau et deux miroirs en incidence rasante (Mach-Zehnder).

Le montage devient donc très complexe. On supprime le problème de l'image jumelle, mais les détecteurs doivent rester au moins aussi résolvants et il y a des limitations de champ.

b) Holographie de "pseudo-Fourier"

La méthode de "pseudo-Fourier" consiste à utiliser une source de référence ponctuelle dans le plan de l'objet (fig. 8.2). Son avantage par rapport à l'holographie de Gabor est double. D'une part la source et l'objet étant vus du détecteur sous un très faible écart angulaire, les franges sont très espacées. Cela permet d'utiliser un détecteur de résolution plus faible et plus efficace ou du moins plus sensible que les résines, comme une barrette de photodiodes ; de surcroît ce type de détecteur fonctionne en temps réel. D'autre part il n'y a pas non plus recouvrement des ordres à la reconstruction (si l'hologramme est linéaire) mais deux images symétriques par rapport à l'image de la source.

La méthode de "pseudo-Fourier" a été expérimentée pour la première fois en rayons X par B. Reuter et H. Mahr, avec une source à microfoyer et un réseau de Fresnel pour former la référence [REUTER 1976]. Elle a été ensuite envisagée par M. Howells [HOWELLS 1984], puis Hadad et al. [HADAD 1988, 1991],

Kirz *et al.* qui ont également obtenu des reconstructions intéressantes [McNULTY 1990, 1991]. Eux aussi utilisent un réseau de Fresnel, à la fois pour former la source de référence (ordre 1 du réseau zoné) et comme séparatrice, l'ordre 0 servant à éclairer l'objet (fig. 8.2).

Du point de vue que nous avons développé plus haut, cette méthode a deux défauts. D'abord l'avantage de champ étendu est perdu car on est limité en champ (distance à la référence) par la fréquence de coupure du détecteur. On perd surtout en flux collecté parce que la cohérence doit être assurée sur toute la surface du réseau de Fresnel servant à l'éclairage. Cette surface est beaucoup plus grande que le champ objet. On peut enfin se demander quel avantage particulier peut présenter une telle méthode par rapport aux autres microscopes à réseaux de Fresnel. On ajoute aux difficultés de la microscopie directe les inconvénients propres à l'holographie : la nécessité de la reconstruction et le bruit cohérent. N'est-ce-pas sa simplicité et le fait de pas être tributaire d'optiques X et de la technologie qu'elles impliquent, qui rendent l'holographie de Gabor particulièrement attractive ?

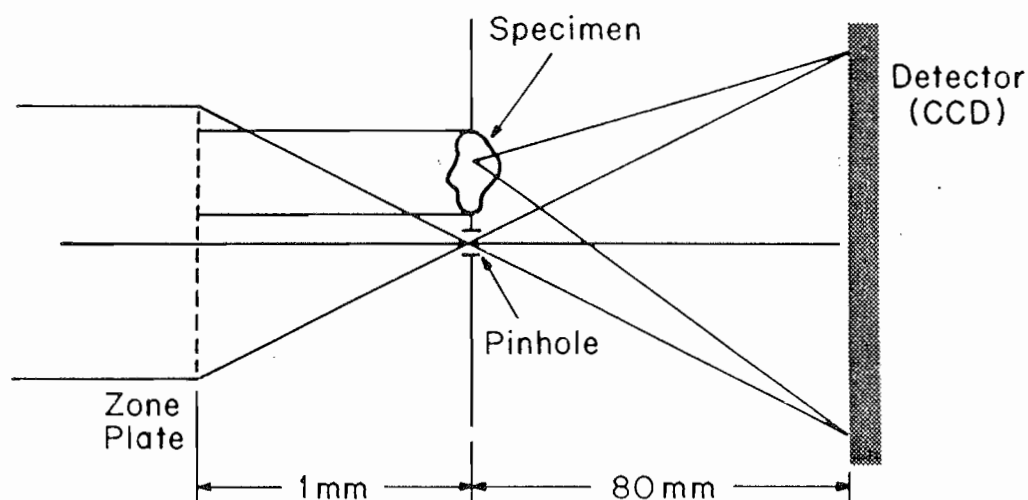


Figure 8.2

Montage de pseudo-Fourier utilisant un réseau de Fresnel pour former une référence ponctuelle et pour séparer les faisceaux [McNULTY 1990].

8.3 MONTAGES D'ENREGISTREMENT SUR LE SYNCHROTRON

Les seuls hologrammes que nous ayons enregistrés l'ont été sur l'onduleur d'ACO dans les derniers mois de son activité. Il s'agissait en fait d'une première expérience montrant la possibilité de faire des hologrammes aux longueurs d'onde X mous et de les reconstruire. Depuis, l'anneau ACO a été fermé et le nouvel anneau Super ACO mis en service, ce qui nous a obligés à concevoir et réaliser une nouvelle ligne de lumière pour la microscopie X ou, plus précisément, en fonction des contraintes de l'holographie X. De fait, ces contraintes nous ont obligés à calculer un réseau particulier pour le monochromateur. De plus, le temps nécessaire au développement d'un nouveau dispositif de reconstruction s'est également reporté sur l'enregistrement de nouveaux hologrammes. Ceux-ci en effet, doivent être enregistrés à la distance pour laquelle a été corrigé l'objectif de reconstruction (cf. 9.3.2) ; cette distance n'a été définie que très récemment.

8.3.1 LE MONTAGE D'ENREGISTREMENT A ACO

a) Dispositif expérimental

La figure (8.3) montre la disposition générale du montage d'enregistrement des hologrammes que nous avons réalisés pour les expériences de faisabilité entreprises sur ACO. Le seul ensemble optique du montage est celui du monochromateur. La source onduleur (non représentée) est focalisée sur sa fente d'entrée par un miroir torique. Ce monochromateur a été étudié principalement pour des expériences de photoémission et ne permet pas de descendre très bas en longueur d'onde ; son efficacité avec le réseau à 600 traits/mm que nous avons utilisé, chutait rapidement pour $\lambda < 10$ nm. Ce réseau produit, dans le plan de la fente de sortie une dispersion de 1mm/Å.

La fente de sortie sert de source secondaire pour le dispositif interférentiel situé à 8 m de ce point. Nous ne nous étendrons pas ici sur les problèmes de construction de la ligne de lumière qui conduit le rayonnement sous vide, depuis le monochromateur ($P < 10^{-8}$ hPa), jusqu'à la caméra holographique ($P \sim 10^{-6}$ hPa). Cette ligne traversait de part en part le "tunnel" de protection de l'accélérateur linéaire qui permet d'alimenter en particules l'ensemble des anneaux du site. On remarquera que la caméra holographique est supportée par une table antivibratoire et que l'ensemble est enfermé dans une

cabine dépoussiérée pour éviter toute détérioration des hologrammes. La caméra elle-même, n'est qu'un dispositif mécanique destiné à fixer sous vide à la distance choisie, l'objet et la plaque de résine.

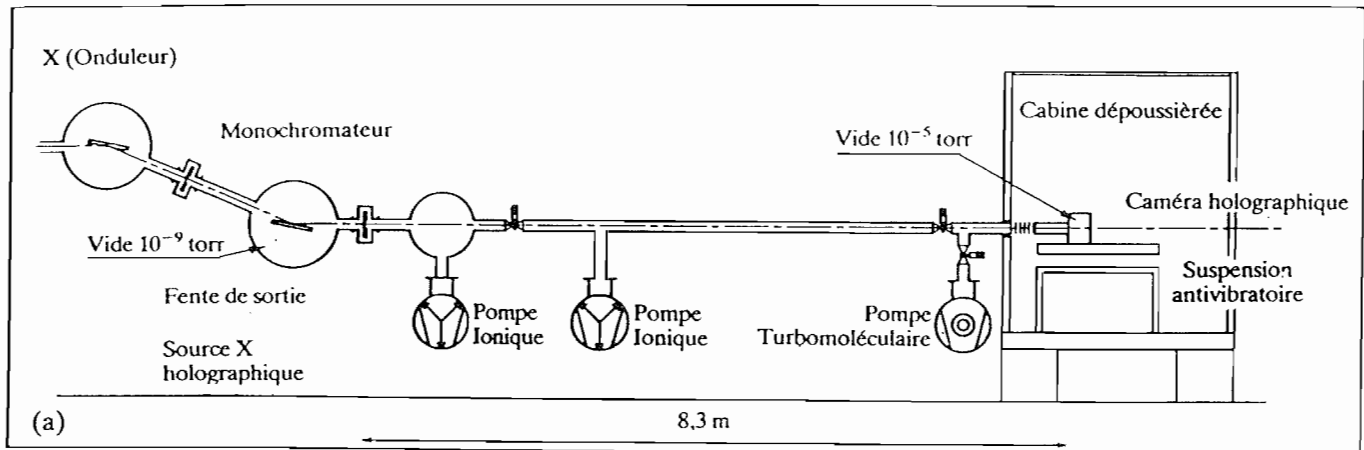


Figure 8.3

La ligne "Holographie X" à ACO

b) Expériences

Ce montage a été utilisé pendant trois semaines en Mars 1987. Les hologrammes obtenus à cette occasion nous ont permis d'étudier le problème de la reconstruction pratiquement jusqu'à maintenant. En raison de l'instrumentation disponible, ces hologrammes ont donc été faits à une longueur d'onde de 10 nm, un peu grande pour faire véritablement de la microscopie X, mais ce fait ne change en rien la nature des problèmes à résoudre.

1) Détecteur

Pour obtenir une résolution inférieure au micron, nous avons choisi d'effectuer les enregistrements sur une résine photosensible. Nous avons utilisé une résine spécialement étudiée pour les X (résine Olin Hunt WX 320 F ; cette résine expérimentale n'a jamais été commercialisée et est, malheureusement, désormais introuvable).

Une courbe expérimentale de la réponse de cette résine est donnée par la figure 8.4. Elle a été obtenue dans l'UV (raie du mercure à 365 nm), mais quelques mesures effectuées avec une source au carbone ($C_{K\alpha} = 4,4$ nm) et les expériences holographiques à 10 nm confirment sa validité. Les résines photosensibles ont un seuil d'exposition minimal en dessous duquel aucun signal n'est détectable. Pour éviter cet effet préjudiciable à une bonne reconstruction, les plaques de résines sont préexposées au niveau du seuil avant introduction dans la caméra holographique. Cette préexposition est faite en UV ($\lambda = 365$ nm) ce qui permet de bien contrôler son uniformité. Dans ces conditions la sensibilité est estimée à $50 \text{ nm} / (\text{mJ}/\text{cm}^2)$ et la dynamique est environ $8 \text{ mJ}/\text{cm}^2$.

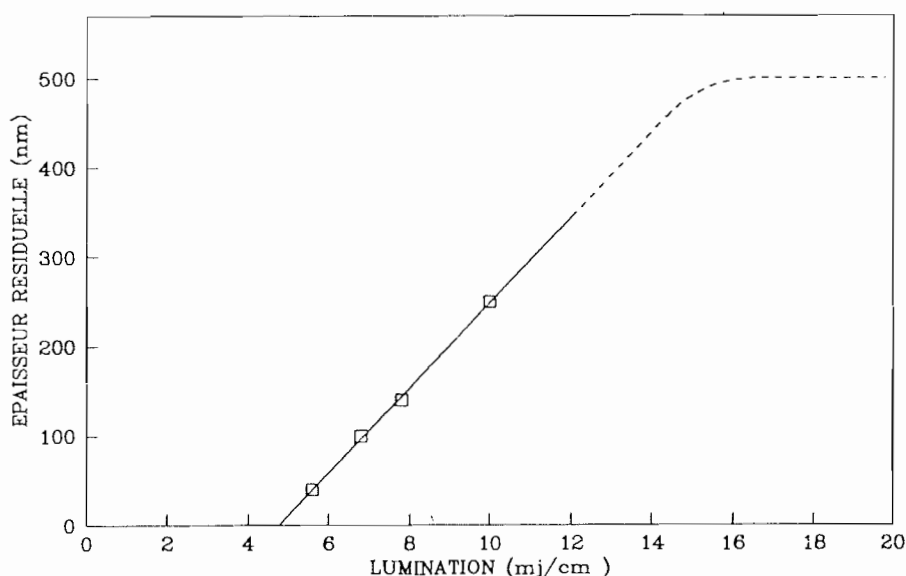


Figure 8.4

Courbe de réponse de la résine Olin Hunt WX 320 F, utilisée pour enregistrer les premiers hologrammes X. L'épaisseur résiduelle après développement varie de 0, résine totalement dissoute, à 500 nm (= épaisseur de la couche de résine déposée) si la résine est rendue totalement insoluble.

2) Paramètres expérimentaux

Même avec cette résine adaptée aux rayons X, la sensibilité reste assez faible pour que se pose un problème d'éclairage. Nous avons donc volontairement limité la résolution en adoptant une fente large à la sortie du monochromateur: $1 \text{ mm} \times$

0,5mm. La bande passante est alors $\sim 0,1$ nm. Un deuxième paramètre influe sur la résolution enregistrée : la distance d entre l'objet et l'hologramme. Une distance trop faible diminue le nombre de franges qui contribuent à l'hologramme de chaque point, et fait baisser la qualité de la reconstruction. Nous avons généralement utilisé $d = 5,3$ mm. Avec ces valeurs, et en considérant pour calculer la résolution, que les franges les plus fines doivent avoir un contraste minimal $C_0 = 0,6$, on trouve une résolution sur l'hologramme $r \sim 0,5$ μm , essentiellement limitée par la cohérence spatiale. L'hologramme limité à $0,5$ μm de résolution comporte 25 franges. Ce nombre est encore trop faible, au regard du critère donné par l'expression (8.6), pour assurer une bonne réjection de l'image conjuguée au moment de la reconstruction. Il faut dire que, au moment de ces expériences, l'importance de ce facteur n'avait pas été pleinement estimé et que les valeurs ci-dessus paraissaient présenter un bon compromis.

3) Résultats

Les expositions nécessaires ont varié de 10 minutes avec 100 mA de courant électronique dans ACO à 1 heure en fin de vie du faisceau. Ces conditions produisant une variation d'épaisseur de la résine développée de ~ 100 nm, on peut estimer l'illumination de la résine à quelques $2 \cdot 10^{-6}$ $\mu\text{J}/\mu\text{m}^2$, soit $\sim 2 \cdot 10^5$ photons/ μm^2 . On peut ainsi évaluer la luminance de la source secondaire à $\sim 2 \cdot 10^{11}$ photons $\text{s}^{-1} \text{mm}^{-2} \text{mrad}^{-2}$ (pour 100 mA de courant machine). Cette valeur s'accorde avec la luminance théorique de la source si on estime le facteur de transmission de l'optique du monochromateur à quelques pour cent.

Les figures 8.5 et 8.6b présentent deux exemples parmi les hologrammes réalisés. Ces photographies sont des images de la surface de résine en contraste de phase optique. L'objet dont l'hologramme est montré figure 8.5 était composé de deux fils de silice croisés ($\phi \sim 2$ μm). Ce type d'objet permet de contrôler rapidement si le montage présente les caractéristiques attendues de cohérence, en vérifiant que les franges de plus petites périodes, au bord de la figure de diffraction, présentent un contraste suffisant.

La figure 8.6b montre l'hologramme d'une diatomée du même type que celle qui est représentée sur la figure 8.6a telle qu'on peut l'observer au microscope électronique à balayage. Ces objets sont préparés selon le même procédé que celui utilisé en microscopie de contact par conversion. Les objets sont dispersés dans l'eau distillée puis déposés sur une membrane

aussi mince que possible de polyimide (~ 100 nm). L'objet est ensuite séché avant introduction dans la caméra. Sur l'hologramme obtenu la série de perforations larges de $0,8 \mu\text{m}$ de période bien visible sur l'image 8.6a, produit un réseau de franges équidistantes de même période encore très bien contrastées, qui permet d'estimer la résolution du processus d'enregistrement à mieux que $0,5 \mu\text{m}$. C'est sur cet hologramme que nous avons fait des reconstructions expérimentales.

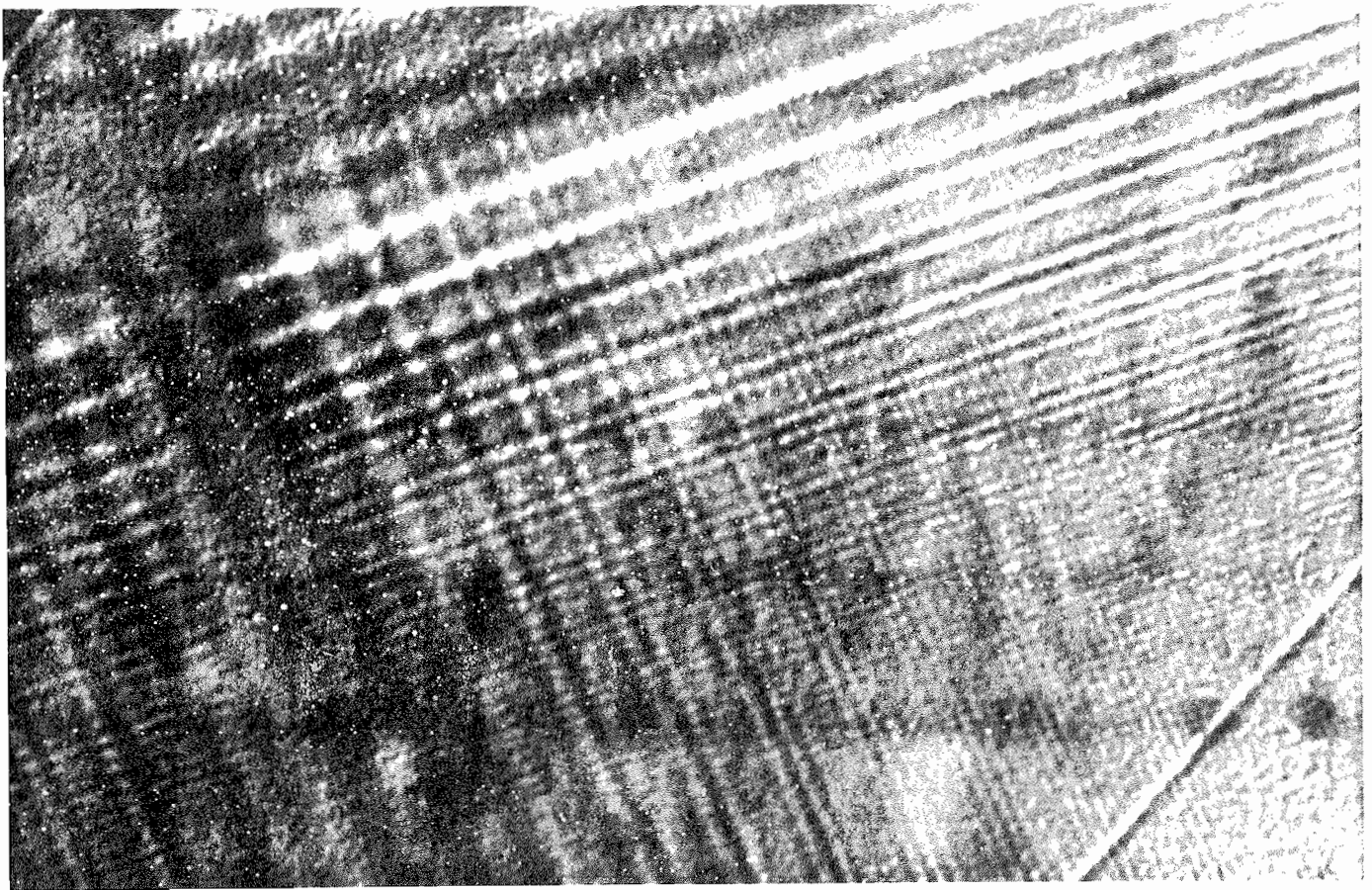


figure 8.5

Hologramme de deux fils de silice de $\sim 2 \mu$ de diamètre
L'étendue du champ de frange permet d'estimer la résolution enregistrée à $0,5 \mu\text{m}$

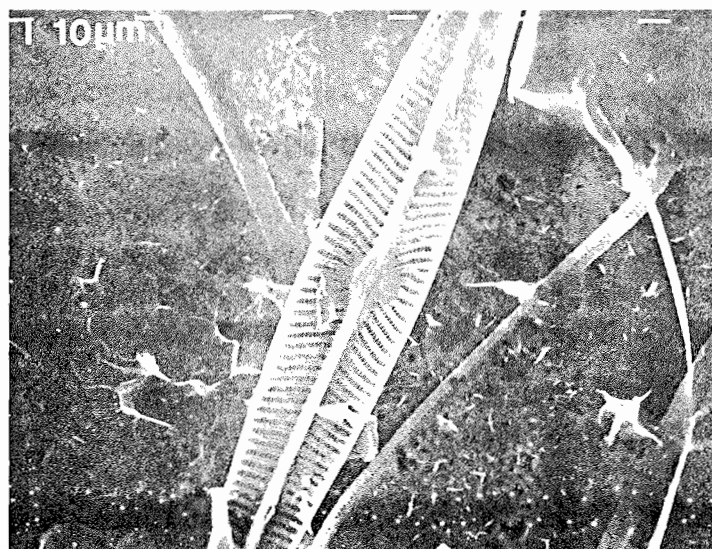


Figure 8.6

Une diatomée et son hologramme X à $\lambda = 10 \text{ nm}$

- a) La diatomée vue au microscope électronique à balayage.
- b) Hologramme d'une diatomée semblable. Les structures périodiques à $0,8 \mu\text{m}$ de pas visibles au microscope à balayage produisent un réseau de franges de même période, parfaitement visible aux extrémités de l'ombre de l'objet.

8.3.2 LA LIGNE "HOLOGRAPHIE X" DE SUPER-ACO

Obligés d'installer une nouvelle ligne de lumière à Super-ACO, nous avons cherché à l'optimiser. Cette optimisation devait tenir compte à la fois des contraintes de l'expérience d'holographie et des contraintes venant de l'environnement du synchrotron.

a) Dispersion optimale du monochromateur

Pour obtenir des images à haute résolution dans un temps raisonnable, il est important que le flux délivré par la ligne à l'expérience soit aussi grand que possible : on doit donc optimiser le monochromateur.

Puisque l'on utilise la fente de sortie du monochromateur comme source secondaire holographique, la dimension de cette fente détermine à la fois la cohérence spatiale (équ. 8.4) et la cohérence temporelle (équ. 8.5). La condition à satisfaire $C_s C_t > C_0 \sim 0,75$ peut être réalisée pour différentes valeurs de C_s et C_t . Le couple optimal est celui qui maximise l'intensité émise par la source secondaire.

Cette optimisation dépend légèrement de l'éclairement de la fente d'entrée, c'est-à-dire de la façon dont l'image de la source est formée à l'entrée du monochromateur. Sa condition est particulièrement facile à établir lorsque la source est ponctuelle dans la fente d'entrée - le spectre délivré par le monochromateur est alors rectangulaire. Dans ce cas, l'éclairement dans le plan de la fente de sortie est proportionnel à la dispersion réciproque K du réseau, et l'intensité rayonnée par la source secondaire est

$$I \propto K a^2 \propto \text{Sinc}^{-1}(C_s) \text{Sinc}^{-1}(C_t) \quad (8.8)$$

(en appelant Sinc^{-1} la fonction inverse de Sinc). L'optimisation est donc obtenue pour $C_s = C_t$, ce qui conduit pour la dispersion à la valeur optimale K_0 définie par

$$K_0 = \frac{4r}{D} \quad (8.9)$$

avec D = distance source - hologramme et r = résolution holographique escomptée. Lorsqu'on prend en considération la forme réelle de la source, c'est-à-dire gaussienne et limitée par la fente d'entrée adaptée, on trouve une valeur légèrement diffé-

rente de K , typiquement $0,5 K_0 < K < K_0$ [JOYEUX, 1989-a].

La dispersion optimale dépend de la résolution, et on aura tout intérêt à optimiser le monochromateur pour la résolution maximale escomptée du montage, ici : $r = 0,1 \mu\text{m}$. D'autre part, la relation (8.9) ne nous impose pas la distance de travail D . Une distance D trop faible conduit à une grande dispersion et à une dimension de fente très petite qui n'est pas favorable à la stabilité. Une trop grande distance D conduit à de très faibles dispersions et à un encombrement incompatible avec l'environnement du synchrotron. Une bonne valeur se situe vers $D = 10 \text{ m}$ et conduit pour $r = 0,1 \mu\text{m}$ à $K \sim 0,5 \text{ \AA/mm}$.

b) Les contraintes de l'environnement synchrotron

Sur Super-ACO, les expériences de microscopie X peuvent disposer d'une partie du temps de faisceau disponible sur la source onduleur de la section 7 (SU7). Cette source est également utilisée pour des expériences de photoémission. Elle est pour cela équipée d'une ligne de lumière comportant un monochromateur à déviation fixe, $\varnothing = 172^\circ$, de 10 m d'envergure, et équipé de réseaux toroïdaux de 600 à 1800 traits/mm.

Pour un fonctionnement commode de deux expériences très différentes sur une même source, il est important de pouvoir disposer de deux stations expérimentales recevant le faisceau alternativement. La distribution de la lumière à l'une ou l'autre expérience est obtenue par l'introduction dans le faisceau d'un simple miroir plan, ou son escamotage. Le débranchement peut être effectué à un endroit quelconque de la ligne, toutefois il est moins onéreux de disposer d'un monochromateur commun (figure 8.7).

Le monochromateur existant (il a été transféré d'ACO), a un bras de sortie de 7 m, et, même avec un réseau de fréquence 600 traits/mm, il a déjà une dispersion de sortie beaucoup plus grande que celle que nous souhaitons. Il faudrait alors réduire la distance de travail, D , à environ 1 m. On devrait aussi utiliser des fentes de sortie très étroites, environ $10 \mu\text{m}$, une dimension qui est inférieure aux aberrations du réseau et risque de produire des inhomogénéités du champ. Enfin, il ne peut être question de dévier la ligne de microscopie d'un angle supérieur à 8° sous peine de perdre beaucoup de flux à la réflexion sur le miroir. Les lignes sont alors extrêmement proches ($< 1 \text{ m}$).

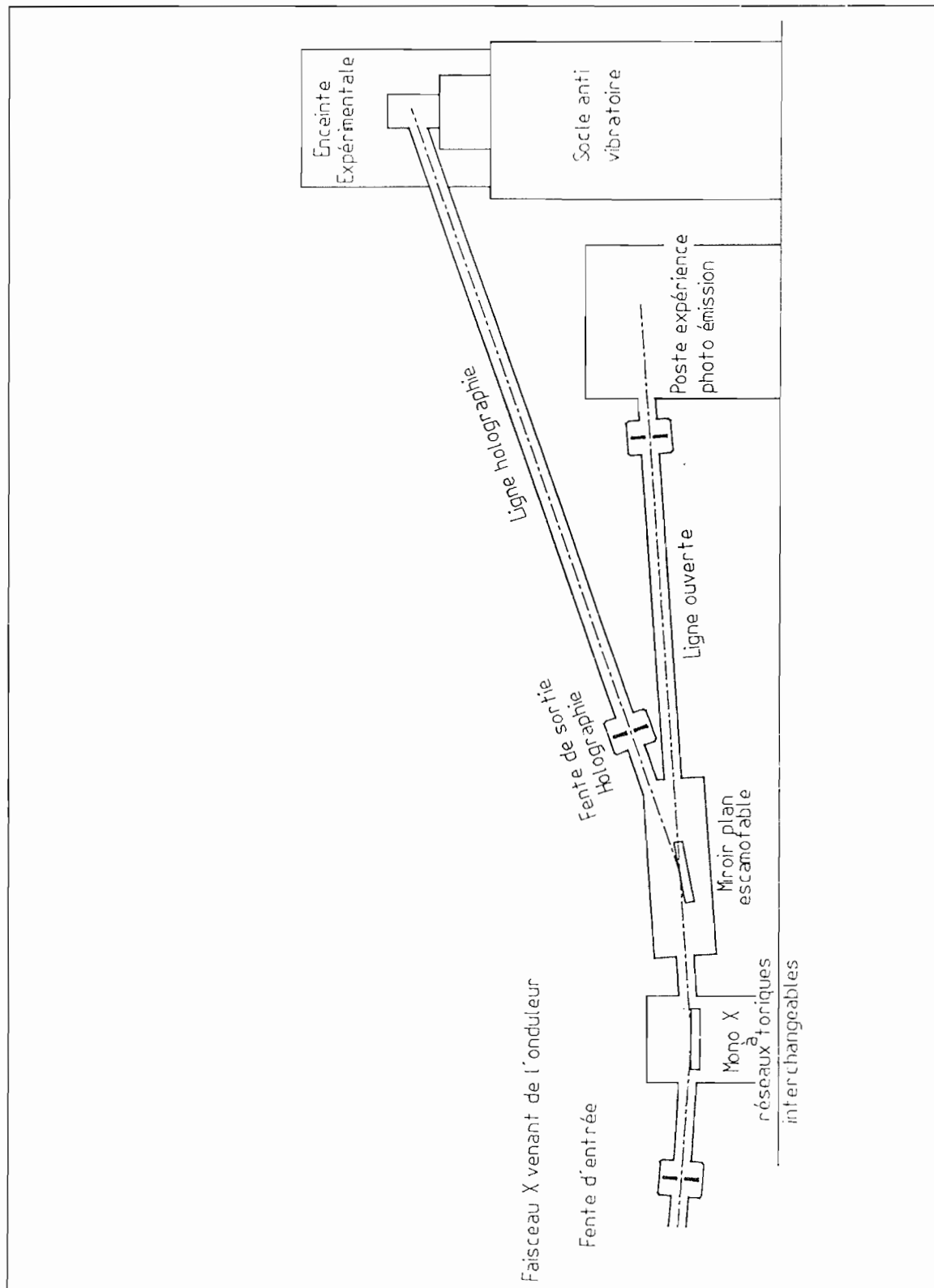


Figure 8.7

La ligne "Holographie X" de Super-ACO

Une meilleure implantation consiste à utiliser la mécanique du monochromateur existant, mais à l'équiper d'un réseau spécial, présentant la dispersion souhaitée. Le poste expérimental destiné à la microscopie peut alors être placé en retrait de l'expérience de photoémission et disposer de l'environnement nécessaire (atmosphère propre, support antivibratoire).

c) le réseau du monochromateur

Le réseau du monochromateur est un réseau holographique à support torique du même type que ceux qui y étaient déjà installés. La façon dont il a été calculé est exposée en détail à l'annexe II. Pour l'utilisateur, ses caractéristiques sont les suivantes :

Distance des fentes

fente d'entrée	$\ell_a = 2927 \text{ mm}$
fente de sortie	$\ell_b = 2500 \text{ mm}$

Nombre de traits $N = 500 \text{ traits/mm}$

Déviatiôn $\mathcal{D} : 172^\circ$

Ordre $p = +1.$

Dispersion moyenne $K = 0,45 \text{ Å/mm}$

On pourra remarquer que ce réseau ne présente pas les caractéristiques habituelles de ceux qui sont utilisés pour la spectrométrie. On utilise l'ordre +1, c'est-à-dire que l'on a le bras court et un angle rasant en sortie, le bras long et un angle d'incidence inférieur à $\mathcal{D}/2$ en entrée. On notera surtout le rapport des bras proche de 1, nécessaire pour obtenir la dispersion de sortie voulue avec un petit nombre de traits.

Cette solution originale présente une bonne qualité optique qui est mise en évidence par le tracé de rayon. La figure (8.8) donne les dimensions moyennes de la tache image σ_y et σ_z pour trois valeurs de la pupille: $100 \times 45 \text{ mm}$, $60 \times 20 \text{ mm}$ et $30 \times 10 \text{ mm}$. On notera également la grande plage d'utilisation en longueur d'onde qui résulte de la configuration adoptée.

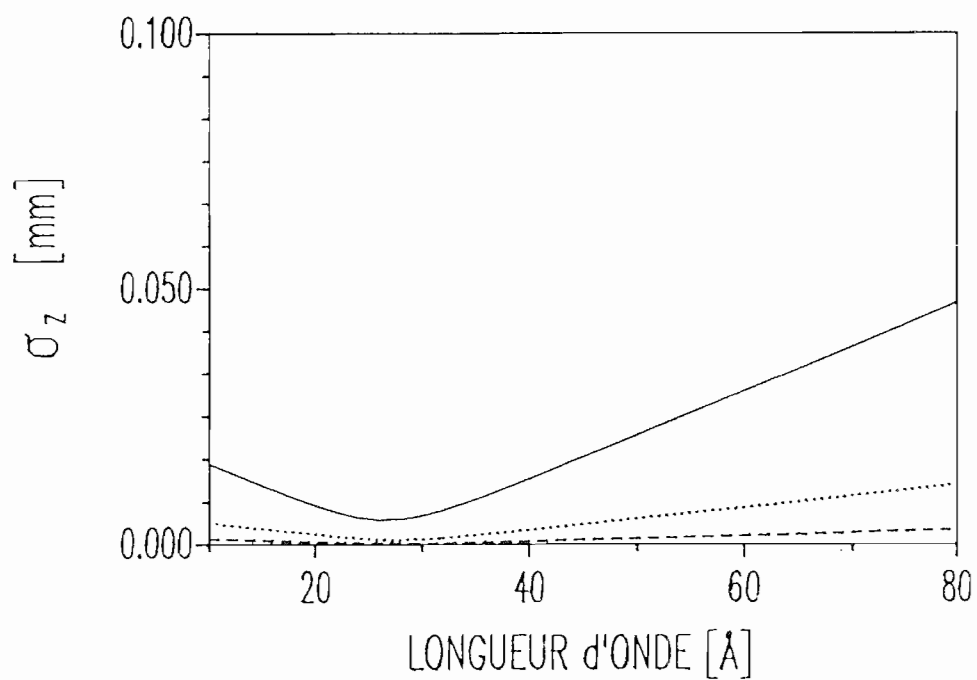
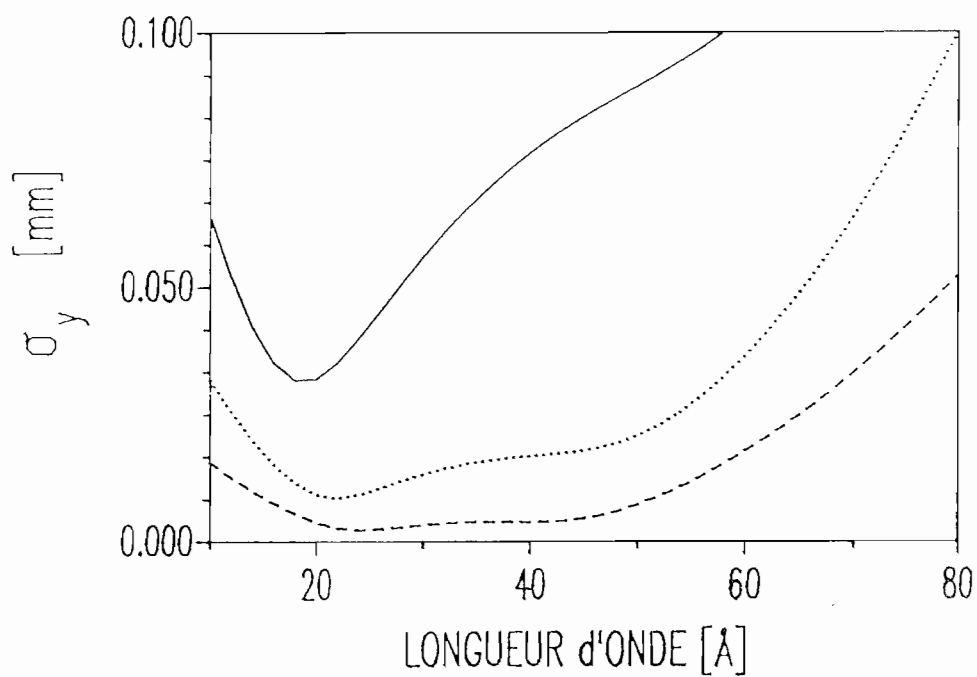


Figure 8.8

Dimensions calculées de la tache image monochromatique dans le plan de la fente de sortie, pour une source ponctuelle au centre de la fente d'entrée. Surface de réseau éclairée : 100×45 mm ; 60×20 mm ; 30×10 mm.

- a) Largeur à mi-hauteur dans le sens de la dispersion σ_y ;
 b) Largeur à mi-hauteur selon l'axe de la fente σ_z .

CHAPITRE 9

RECONSTRUCTION DES HOLOGRAMMES DE GABOR

9.1 INTRODUCTION

Nous venons de voir que l'holographie de Gabor permet d'enregistrer des hologrammes avec une ouverture suffisante pour atteindre des résolutions égales ou meilleures que $0,1 \mu\text{m}$. Dans le présent chapitre, nous allons maintenant examiner comment on peut extraire l'information enregistrée sous la forme d'un hologramme de Gabor et obtenir des images.

Pour l'opération de reconstruction on peut adopter deux approches différentes : la reconstruction numérique et la reconstruction optique. Nous ne développerons véritablement qu'une seule de ces approches, la reconstruction optique, parce qu'elle nous paraît plus simple à mettre en œuvre et plus pratique à utiliser. Cependant, les deux méthodes présentent, au niveau des principes des analogies évidentes, et les problèmes que nous aborderons dans la première partie de ce chapitre, la modélisation de l'hologramme et la question de l'image jumelle, demeurent quelque soit la méthode de reconstruction.

a) Reconstruction numérique

Un hologramme contient l'information disponible sur l'objet sous une forme codée, qui est essentiellement la convolution par une réponse percuttionnelle large et oscillante (cf §9.2). Si on est capable de numériser l'hologramme avec une résolution suffisante et sur un champ suffisamment étendu, on peut développer des méthodes de calcul (méthodes inverses) pour remonter à la distribution d'amplitude dans le plan de l'objet. En théorie, il n'y a pas d'autre limite que le pas de la numérisation, à la résolution qu'il est possible de restituer. On doit donc pouvoir atteindre des résolutions très éle-

vées, du même ordre de grandeur que celles des résines qui servent à l'enregistrement (~ 10 nm pour la résine PMMA).

Cependant la numérisation d'un hologramme enregistré sur résine est une opération délicate. Après développement, la résine présente des variations d'épaisseur plus ou moins importantes selon l'intensité reçue, de 1 à quelques centaines de nm. La reconstruction correcte de l'hologramme impose de mesurer ce relief non seulement avec une grande résolution, mais encore avec une très grande précision transversale. Les distorsions, qui se traduisent par une erreur d'évaluation de la phase de l'onde diffractée, doivent absolument être compensées. Il existe actuellement des instruments capables de mesurer avec précision l'amplitude de très faibles reliefs : il s'agit du microscope à effet tunnel (STM) et surtout du microscope à force atomique. Cependant ces instruments n'ont pas normalement la capacité d'enregistrer avec la précision transversale nécessaire, les images de plusieurs milliers de points par côté, dont on a besoin pour une reconstruction numérique. Il serait donc nécessaire de développer un dispositif de balayage X Y particulier.

Sur des images de grande taille, le traitement numérique est une opération volumineuse qui demande une grande puissance de calcul et du temps. La recherche de la mise au point comme celle des champs utiles peuvent difficilement être effectuées en temps réel - la distance d'enregistrement, donc la distance de mise au point, n'est jamais connue avec une précision suffisante -. A l'étape d'enregistrement de l'hologramme et à celle de sa reconstruction s'ajoute donc une troisième étape distincte, celle de la numérisation. On perd ainsi une partie de l'avantage essentiel de l'holographie de Gabor : sa simplicité.

Il est cependant possible d'atteindre une excellente résolution, comme l'ont montré Howells et Jacobsen [JACOBSEN 1990], en utilisant simplement un microscope électronique à balayage en transmission (STEM). Leur détecteur est constitué de résine PMMA couchée sur un support transparent aux électrons (100 nm de Si_3N_4). Après enregistrement et développement, la résine est "ombrée" par métallisation sous incidence très oblique. Au microscope électronique on recueille ainsi un signal proche de la dérivée de l'information de relief dans le sens de l'ombrage. Après traitement de ce signal pour retrouver l'intensité reçue et après compensation des distorsions du microscope, un traitement de diffraction simulée reconstruit l'image de l'objet dans un plan particulier de mise au point. De cette façon Howells et Jacobsen ont reconstruit l'image de

particules de $1\mu\text{m}$ de diamètre avec une résolution qu'ils estiment à $0,1\mu\text{m}$.

b) Reconstruction optique

L'optique permet de réaliser, directement par diffraction, l'essentiel de la reconstruction d'un hologramme de Gabor. Nous verrons en effet que l'image ainsi obtenue, n'est pas dépourvue de défauts, mais qu'elle permet d'avoir directement, même sans traitement numérique supplémentaire, une vision convenable de l'objet. Toutefois la résolution reste fondamentalement limitée par la longueur d'onde de la lumière utilisée pour la reconstruction. Cette limite dépend quelque peu du dispositif adopté mais peut être inférieure à $\lambda/2$. En travaillant dans l'ultra-violet proche, on peut ainsi espérer des résolutions meilleures que $0,1\mu\text{m}$. Cette résolution est intéressante surtout si elle est atteinte au moyen d'un instrument d'accès et d'emploi facile, par comparaison aux microscopes X installés à demeure sur un synchrotron.

C'est donc essentiellement la validité de cette approche optique que nous allons étudier dans ce chapitre, mais il conviendra tout d'abord d'examiner sous quelle forme le signal provenant de l'objet est enregistré dans un hologramme de Gabor et quelle information il est possible d'en extraire. En effet la phase de l'onde diffractée est perdue à l'enregistrement de l'hologramme. Il en résulte une ambiguïté sur la position de l'objet qui se traduit par une image fantôme, l'image jumelle. C'est le problème fondamental de l'holographie de Gabor et il est commun à toutes les méthodes de reconstruction.

Nous examinerons ensuite les questions propres à la reconstruction optique. On montrera tout d'abord, comment la résolution est liée à la disposition géométrique du système optique de reconstruction. On étudiera ensuite les aberrations qui résultent de la grande différence de longueurs d'onde entre l'enregistrement et la reconstruction. On en déduira les caractéristiques de l'objectif destiné à les compenser et on décrira enfin le dispositif envisagé pour effectuer la reconstruction optique.

9.2 PROBLEMES GENERAUX DE LA RECONSTRUCTION D'HOLOGRAMMES DE GABOR

9.2.1 MODELISATION DE L'HOLOGRAMME

a) Le signal enregistré

Nous avons déjà indiqué qu'on ne peut enregistrer correctement un hologramme de Gabor que si la transmittance de l'objet est proche de 1. Nous nous placerons donc systématiquement dans le cadre de cette hypothèse : l'objet sera caractérisé par un facteur d'absorption complexe $O(M)$ de telle sorte que l'amplitude transmise par l'objet lorsqu'il est éclairé par une onde plane d'amplitude unité, puisse s'écrire :

$$A_o = 1 - O(M) \quad (9.1)$$

L'hologramme est l'enregistrement en intensité de l'onde diffractée par l'objet, dont l'amplitude dans le plan de l'hologramme s'écrit simplement,

$$A_h = 1 - O(M) * F(\lambda, d, M) \quad (9.2)$$

si on désigne par $F(\lambda, d, M)$, la fonction de propagation sur la distance d , d'une onde de longueur d'onde λ . Dans l'expression (9.2) λ est donc la longueur d'onde des rayons X utilisés pour l'enregistrement et d , la distance objet - hologramme. L'hologramme, c'est à dire l'éclairement reçu par la résine est alors :

$$H(M) = 1 - O^*(M) * F(\lambda, -d, M) - O(M) * F(\lambda, d, M) + |O(M) * F(\lambda, d, M)|^2 \quad (9.3)$$

L'hologramme se présente donc comme une somme de quatre termes,

$$H(M) = 1 - H_r(M) - H_v(M) + H_i(M) \quad (9.4)$$

dont on peut donner la signification physique.

- Le premier terme, 1, n'est rien d'autre que l'onde ayant servi à éclairer l'objet ("ordre 0" de diffraction).
- Le deuxième, $H_r(M) = O^*(M) * F(\lambda, -d, M)$, est une onde qui converge à la distance, d , en avant de l'hologramme pour former une image réelle dont l'amplitude est conjuguée de $O(M)$ ("ordre +1").

- Le troisième, $H_v(M) = O(M) * F(\lambda, d, M)$, est une onde provenant d'une image virtuelle d'amplitude $O(M)$, située à la distance, d , en arrière de l'hologramme ("ordre -1").
- Le quatrième terme, $H_i(M) = |O(M) * F(\lambda, d, M)|^2 = H_r(M) \cdot H_v(M)$, est appelé terme d'intermodulation. C'est essentiellement un terme parasite dans le processus holographique. Cependant, il est proportionnel à $|O(M)|^2$ et, si l'on a pris la précaution déjà indiquée, de choisir un objet très peu absorbant ($O(M) \ll 1$), il pourra en général être négligé.

b) Réponse du détecteur

$H(M)$ est l'intensité reçue par le détecteur, mais celui-ci, en particulier s'il s'agit d'une résine photosensible, n'a généralement pas une réponse linéaire. Après exposition aux rayons X, une résine est normalement développée par un solvant. Selon le cas, les parties exposées deviennent soit plus solubles, soit au contraire moins solubles dans le révélateur. De ce changement de vitesse d'attaque, il résulte finalement une variation d'épaisseur qui reflète l'exposition reçue.

La réponse d'une résine, c'est-à-dire son épaisseur résiduelle en fonction de la lumination, a plusieurs raisons d'être non-linéaire [POLACK 1989]. D'abord, la vitesse d'attaque par le solvant présente normalement en fonction de l'illumination, de forts effets de seuil et de saturation (fig. 8.4). Cet effet peut être compensé par une préexposition de la résine de façon à la faire travailler dans la zone linéaire de sa caractéristique "vitesse d'attaque / lumination". Une autre cause de non-linéarité est l'effet de sur-creusement latéral autour des régions plus fortement sensibilisées, car l'attaque n'a pas de direction privilégiée. Cet effet est cependant bien moins à craindre pour l'holographie où l'on enregistre de petites modulations, que dans le cas de la lithographie des circuits intégrés où l'on cherche au contraire, avec ces mêmes résines, à réaliser des motifs de très fort contraste.

Le signal d'épaisseur ne peut pas toujours être utilisé directement pour l'opération de reconstruction. L'exemple de reconstruction numérique que nous avons donné plus haut montre que son exploitation est parfois très indirecte. Dans le cas d'une reconstruction optique, un hologramme enregistré sur résine produit généralement une modulation de phase, quelque soit son mode de relecture. Si l'hologramme est utilisé en transmission, l'onde de reconstruction est modulée par le facteur de transmission de la couche de résine :

$$T(M) = \exp \left[2i\pi \frac{(n-1) e(M)}{\lambda \cos \theta} \right] \quad (9.5)$$

où $e(M)$ est la modulation d'épaisseur inscrite dans la résine, n , l'indice de réfraction de celle-ci, et θ , l'angle d'incidence de l'onde de reconstruction. Aux longueurs d'onde visibles ou UV proche, et compte tenu de la faible épaisseur de résine intéressée par la modulation, on pourra généralement négliger l'absorption et ne tenir compte que de la partie réelle de l'indice, c'est-à-dire de la modulation de phase.

On peut aussi métalliser l'hologramme et l'utiliser en réflexion. L'onde de reconstruction est alors également modulée par un facteur

$$T(M) = \exp \left[2i\pi \frac{2 e(M)}{\lambda \cos \theta} \right] \quad (9.6)$$

(Notons que le même relief produit un signal 4 fois plus fort si l'hologramme est utilisé en réflexion).

Dans les deux cas, la relation entre le signal utile et $H(M)$ est exponentielle et ne peut être considérée comme linéaire que pour de très faibles valeurs de la modulation en épaisseur. En réflexion, il faudra satisfaire :

$$\frac{2 e(M)}{\cos \theta} < \frac{\lambda}{4} \quad (9.7)$$

Pour une longueur d'onde UV de 240 nm, cela conduit à des modulations maximales de quelques nanomètres, et, si on règle le développement de la résine pour que l'éclairement moyen reçu produise une attaque de 100 nm environ dans la résine, cela veut dire que la modulation de $H(M)$, $(H(M)-1)$, doit rester de l'ordre de quelques pour cent. Si cette condition est respectée, alors on peut écrire (9.5) ou (9.6) sous la forme

$$T(M) = 1 + i k (H(M)-1) \quad (9.8)$$

ou k est une constante qui dépend des conditions expérimentales.

En fin de compte le signal utile pour la reconstruction, que nous noterons T_h , peut dans tous les cas se mettre sous la forme suivante, où l'on ne tient pas compte d'un facteur multiplicatif constant sans effet sur la reconstruction :

$$T_h(M) = t_0 - H_r(M) - H_v(M) + H_i(M) \quad (9.9)$$

t_0 s'interprète comme le "facteur de transmission" apparent de l'ordre 0 (on peut avoir $|t_0| > 1$). Il est réel si l'hologramme se comporte comme un hologramme d'amplitude, imaginaire si l'hologramme est un hologramme de phase pure (résine métallisée par exemple). Dans une reconstruction optique d'un hologramme de phase, où on laisse l'ordre 0 interférer avec l'onde objet, le déphasage de $\pi/2$ de l'ordre 0 produit directement une image en contraste de phase de l'objet. Il faut alors déphaser l'ordre 0 pour obtenir l'image d'amplitude [POLACK 1989].

9.2.2 PROBLEME DE L'IMAGE JUELLE

a) Nature du problème

Le principe de la reconstruction consiste à éclairer l'hologramme par une onde identique à l'onde d'enregistrement. On obtient ainsi les quatre ondes que nous avons décrites au § 9.2.1 (éq. 9.3). On peut donc observer à la distance d de l'hologramme, une image réelle d'amplitude $O^*(M)$, ou plutôt $t_0 - O^*(M)$ en tenant compte de l'ordre 0, et, à la distance $-d$, en arrière de l'hologramme, une image virtuelle d'amplitude $t_0 - O(M)$. A ces images, sont bien sûr superposées des amplitudes parasites, dues aux autres ondes défocalisées.

Parce que nous avons enregistré l'hologramme dans la géométrie de Gabor où l'onde de référence et l'onde d'éclairage sont confondues, les différentes ondes diffractées par l'hologramme ne sont pas spatialement séparées. La question qui se pose alors, est la suivante : Est-il-possible d'extraire l'image utile des termes parasites ?

Nous allons montrer qu'il n'en est rien, du moins sans hypothèse supplémentaire. Reprenons en effet les expressions (9.9) et (9.3). En utilisant les relations qui existent entre les fonctions de propagation et notamment :

$$F(\lambda, d, M) * F(\lambda, d', M) = F(\lambda, d+d', M) \quad (9.10)$$

On peut alors écrire le facteur de transmission de l'hologramme sous la forme

$$\begin{aligned}
 T_h(M) &= [t_0 - O^*(M) - O(M) * F(\lambda, 2d, M)] * F(\lambda, -d, M) + H_i \\
 &= [t_0 - O^*(M) * F(\lambda, -2d, M) - O(M)] * F(\lambda, d, M) + H_i
 \end{aligned}
 \tag{9.11}$$

Cette expression (9.11), signifie que, au terme près d'intermodulation que l'on pourra le plus souvent négliger si l'objet est assez transparent, l'amplitude dans le plan de l'image est la somme de l'image de l'objet et de l'onde diffractée par l'objet à la distance $2d$. On remarquera également que les deux images réelles et virtuelles sont strictement identiques à une conjugaison complexe près. Il n'y a donc dans l'hologramme, aucune information complémentaire permettant de séparer l'image de sa jumelle défocalisée. Ainsi il est illusoire de penser que des conditions particulières de reconstruction optique, onde sphérique ou longueur d'onde différente, puissent améliorer les images. Il en est de même d'une reconstruction numérique qui se bornerait à la déconvolution sans utiliser d'information supplémentaire.

Cette superposition de l'image jumelle à l'image reconstruite a toujours été considérée comme néfaste ; c'est pourquoi on préfère si possible, l'holographie à porteuse inclinée à l'holographie de Gabor. Toutefois, il a été montré par différents auteurs [ONURAL 1987, LIU 1987 et 1990, NUGENT 1990] que la connaissance d'informations complémentaires, par exemple que l'objet est purement réel et restreint à un petit domaine spatial, et l'emploi d'algorithmes adaptés, permettent d'améliorer la qualité d'une reconstruction numérique. On ne peut pas dire que la transmittance aux rayons X mous des objets biologiques soit réelle. Cependant on peut remarquer que, à longueur d'onde donnée, le rapport entre la partie réelle et la partie imaginaire de l'indice de réfraction est à peu près le même pour tous les matériaux biologiques (eau exclue), ce qui en première approximation, donne une condition supplémentaire équivalente à la précédente. Qu'on nous permette également de penser qu'il n'est pas absolument nécessaire, pour éliminer l'image jumelle, d'effectuer une reconstruction numérique et de partir d'une image numérisée de l'hologramme. Il est certainement possible de le faire à partir d'une image du plan de reconstruction qui peut être considérée comme une première approximation de l'objet et qui contient en fait les mêmes informations que l'hologramme. Avec G. Koren nous avons tout récemment défini un algorithme de traitement numérique qui permet d'éliminer l'image jumelle d'une image reconstruite naturellement et connue en amplitude et en phase, lorsque l'objet n'occupe qu'une partie restreinte du champ [KOREN 1991].

b) Répercussion sur la qualité des images

Il ne semble pas non plus que l'on ait cherché à caractériser la dégradation des images en fonction des conditions d'enregistrement. On peut en effet se demander si il existe des conditions pour lesquelles la perturbation apportée par l'image virtuelle défocalisée soit faible. Intuitivement, on conçoit que, lorsque la distance de défocalisation (c'est à dire la distance d'enregistrement) est grande, l'image parasite se réduise pratiquement à un fond continu très faiblement modulé, dont l'influence est négligeable. Malheureusement, il est difficile d'enregistrer un hologramme X à grande distance de l'objet, car cela impose d'augmenter la cohérence du faisceau et réduit donc considérablement l'éclairement moyen de l'hologramme. Au mieux, on sait réaliser une cohérence permettant d'enregistrer quelques centaines de franges par point.

Il est certain que la dégradation due à l'image jumelle dépend aussi fortement de la nature propre de l'objet et de l'étendue de ses structures. Un objet composé de petites structures bien séparées sera bien plus "visible" dans l'image reconstruite qu'un objet plus homogène. Pour un objet composé de structures périodiques, le résultat pourra dépendre fortement de la distance d'enregistrement, notamment par la présence d'images de Talbot. Malgré ces restrictions, il nous a paru instructif de nous livrer à une simulation sur un objet de test.

Nous sommes parti de l'image d'un frustule de diatomée obtenu par microscopie électronique à balayage. Cette image a ensuite été numérisée et nous en avons conservé un morceau de 256 par 256 pixels (fig. 9.1.i). Nous avons ensuite calculé l'image résultant de la superposition cohérente de l'image initiale avec une image jumelle défocalisée pour différentes valeurs de cette défocalisation.

La méthode de calcul employée est la suivante. L'image de départ de 256×256 pixels est incluse dans une matrice de 1024×1024 points et bordée par d'autres images en symétrie de miroir (comme dans un kaléidoscope) de façon à limiter les discontinuités. On applique ensuite une fenêtre en cosinus sur les images rajoutées pour que les pixels de bord soient à zéro. Cette manière de procéder évite la formation d'effets de bord après les transformations de Fourier. L'image est alors filtrée dans sa TF par une pupille circulaire de 256 pixels de rayon pour que la résolution image soit 2 pixels. C'est cette image de base qui est montrée à la figure 9.1.i.

On calcule ensuite les images défocalisées en appliquant la fonction de transfert

$$\tilde{F}(\lambda, 2d, \nu) \simeq \exp[i\pi 2\lambda d \nu^2] \quad (9.12)$$

dont l'utilisation est valide parce que les ouvertures d'enregistrement sont petites. On calcule enfin l'interférence des deux ondes. Les résultats correspondant à des défocalisations croissantes sont montrés sur les figures 9.1.a à 9.1.h. Plutôt que d'utiliser le produit λd dont la signification dépend de l'échelle de l'image initiale, nous exprimons la défocalisation par le paramètre sans dimension

$$N = \frac{\lambda d}{2} \nu_{\text{max}}^2 = \frac{\lambda d}{8 r^2} \quad (9.13)$$

N , n'est rien d'autre que le nombre de franges de la zone de Fresnel qui constitue l'hologramme d'un point dans les conditions de cohérence correspondant à la résolution r .

L'examen des figures 9.1.(a-g) et de 9.1.i montre que à partir de $N = 50$, l'influence de l'image jumelle est tout à fait faible, du moins pour l'image que nous avons traité. Nous n'avons pas pu examiner des défocalisations plus importantes parce qu'à partir de $N = 100$, l'échantillonnage de la fonction très oscillante $\tilde{F}(\lambda, 2d, \nu)$ devient insuffisant. Nous pensons toutefois que 100 franges par point est un minimum tout à fait acceptable ; cela permet de fixer, pour une résolution donnée, la distance minimale d'enregistrement d , un paramètre que l'analyse des conditions de cohérence (Ch.2) laissait encore libre.

$$\begin{aligned} \text{Exemple numérique :} \quad \lambda &= 4 \text{ nm} & ; & \quad r = 0,1 \text{ } \mu\text{m} \\ N &= 100 & \Rightarrow & \quad d = 2 \text{ mm} \end{aligned}$$

Pour interpréter les figures 9.1, il est intéressant de considérer le nombre de Fresnel $N_f = \lambda d/s^2$. En rappelant que la largeur de la première frange de la figure de diffraction d'un bord d'écran est approximativement $\sqrt{\lambda d}$, on peut admettre que N_f représente à peu près le rapport de la surface occupée par l'image jumelle défocalisée à celle de l'objet. On constatera sur ces images que les structures présentes dans l'objet sont restituées de façon satisfaisante lorsque le nombre de Fresnel qui leur est associé atteint quelques unités.

Figures 9.1

Reconstruction simulée d'un hologramme de Gabor

Influence de la distance d'enregistrement sur la qualité de l'image reconstruite. La résolution est fixée à 2 pixels images (sur 256). La distance d'enregistrement est exprimée par le nombre de franges enregistrées $N = \lambda d / 8r^2$. De l'image 9.1.a à l'image 9.1.g, N varie de 1 (image en quasi contact) à 100. On a aussi indiqué la distance réelle pour les paramètres suivants $\lambda = 4 \text{ nm}$, résolution $0,1 \mu\text{m}$, et la dimension d'objet (en pixels), pour laquelle le nombre de Fresnel de l'enregistrement est 1. 9.1.i est l'image de base sur laquelle la simulation a été effectuée.

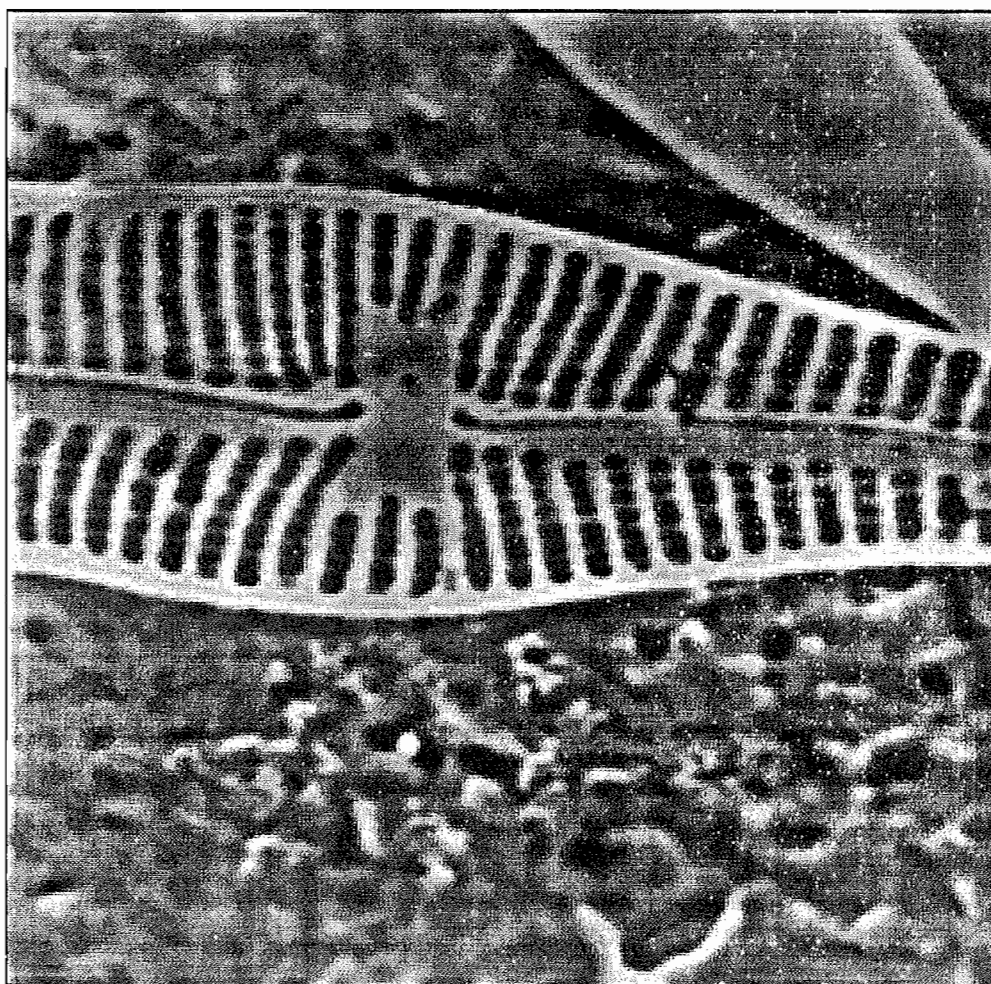


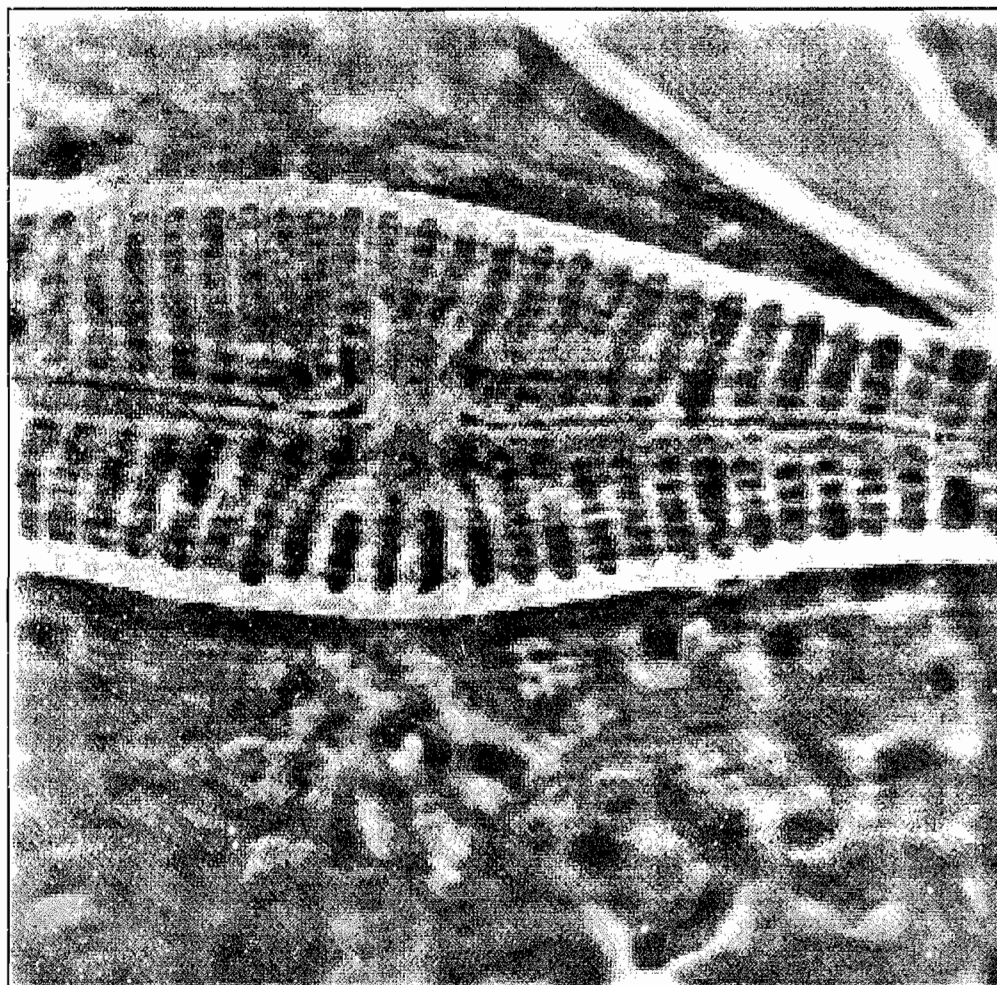
Figure 9.1.i

0 20 40 60 px

Image de base. Pour que l'objet reste réaliste on a utilisé une diatomée. La période principale des "côtes" est ~ 10 pixels, la période secondaire des perforations est $\sim 5,5$ pixels.

9.1.a

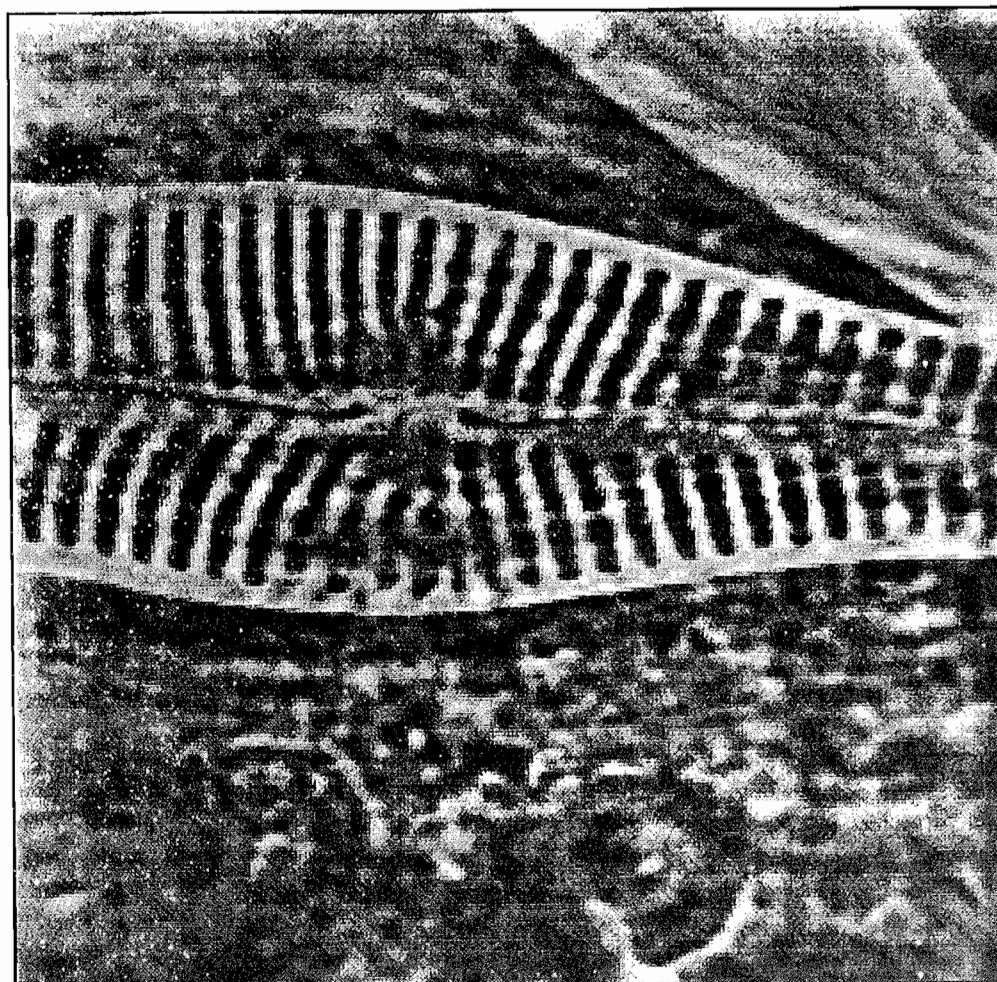
$N = 1$
 $(d = 20 \mu\text{m})$
 $= 1 \text{ pour } 5,6 \text{ px}$

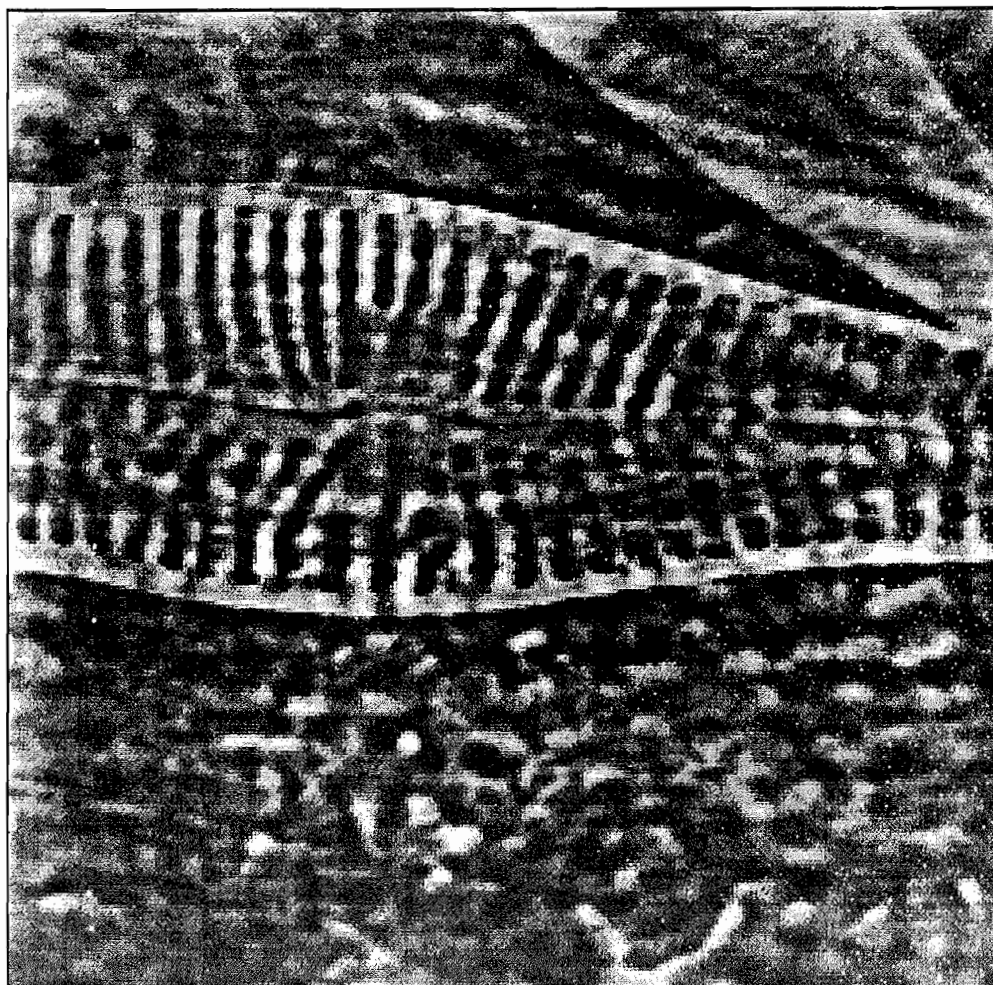


0 20 40 60 px

9.1.b

$N = 2,5$
 $(d = 50 \mu\text{m})$
 $= 1 \text{ pour } 8,9 \text{ px}$





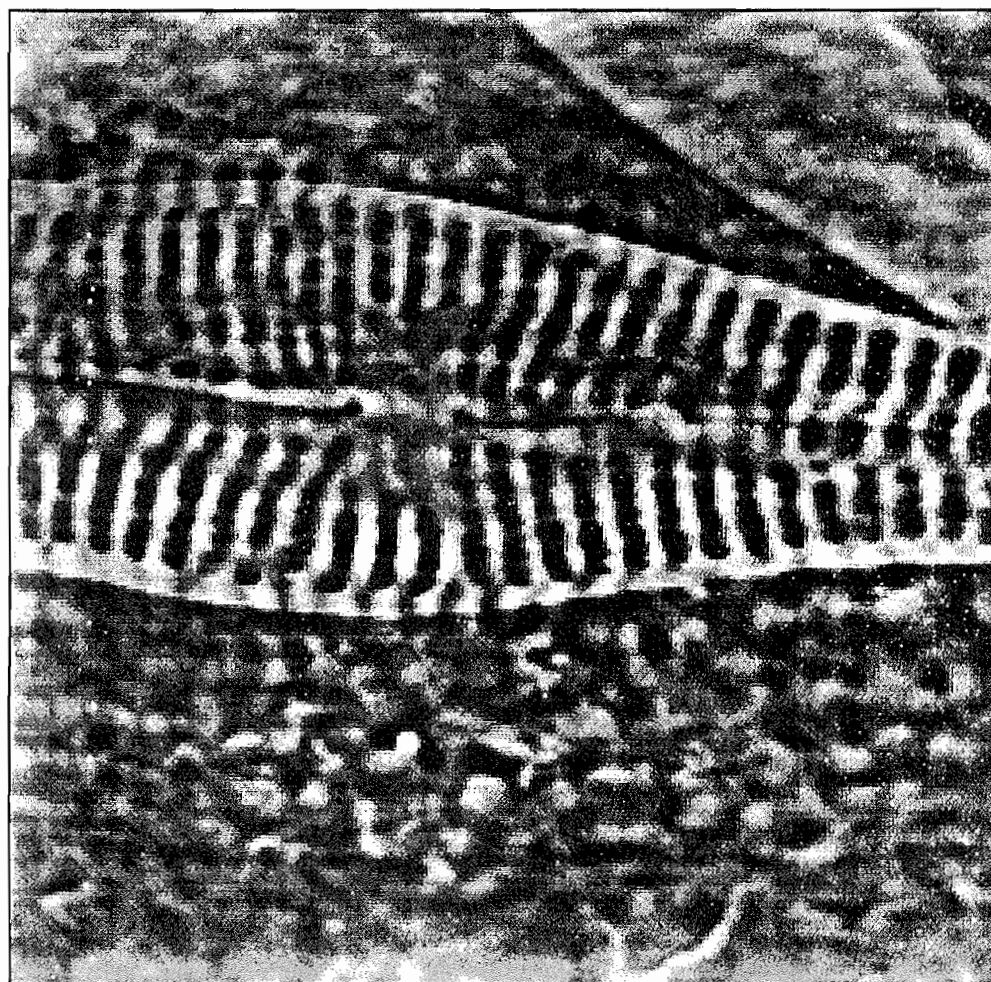
0 20 40 60 px

9.1.c

$N = 5$

($d = 100 \mu\text{m}$)

$N_f = 1$ pour 12,5 px



9.1.d

$N = 10$

($d = 200 \mu\text{m}$)

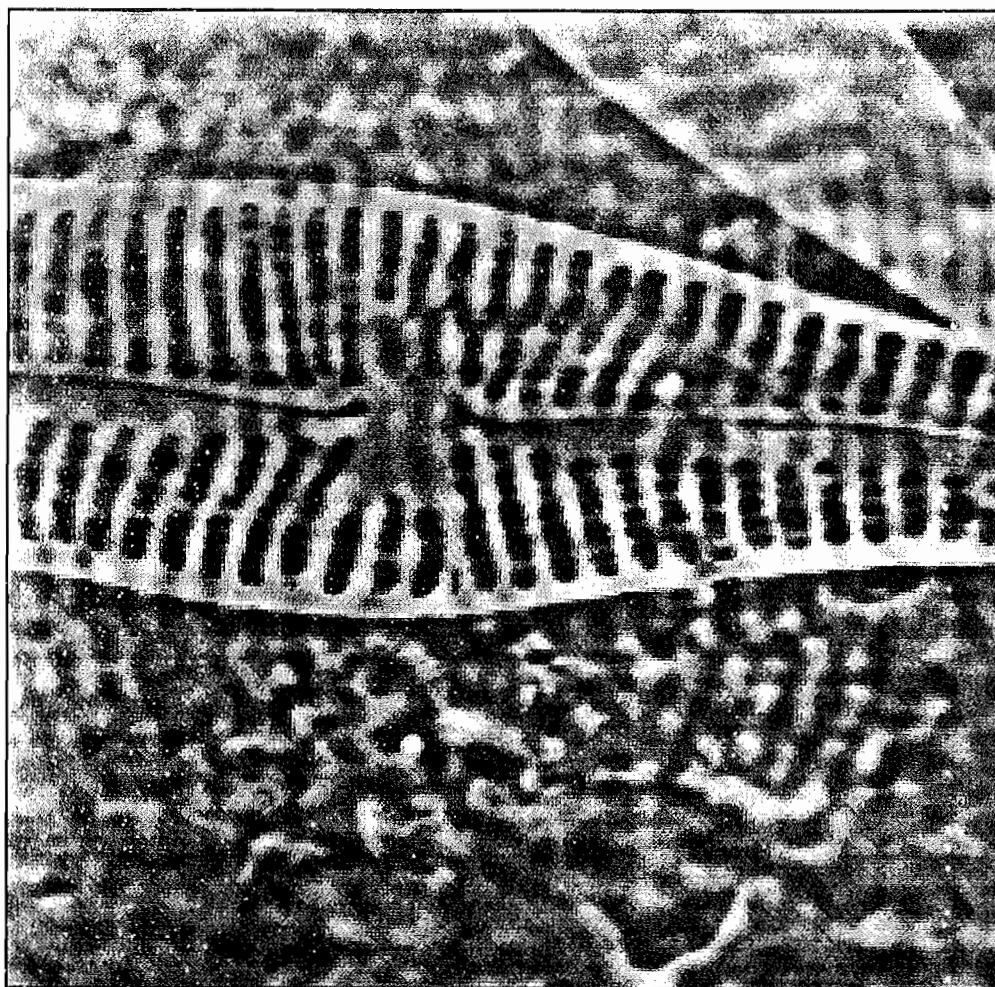
$N_f = 1$ pour 18 px

9.1.e

$N = 25$

($d = 0,5 \text{ mm}$)

$= 1 \text{ pour } 28 \text{ px}$



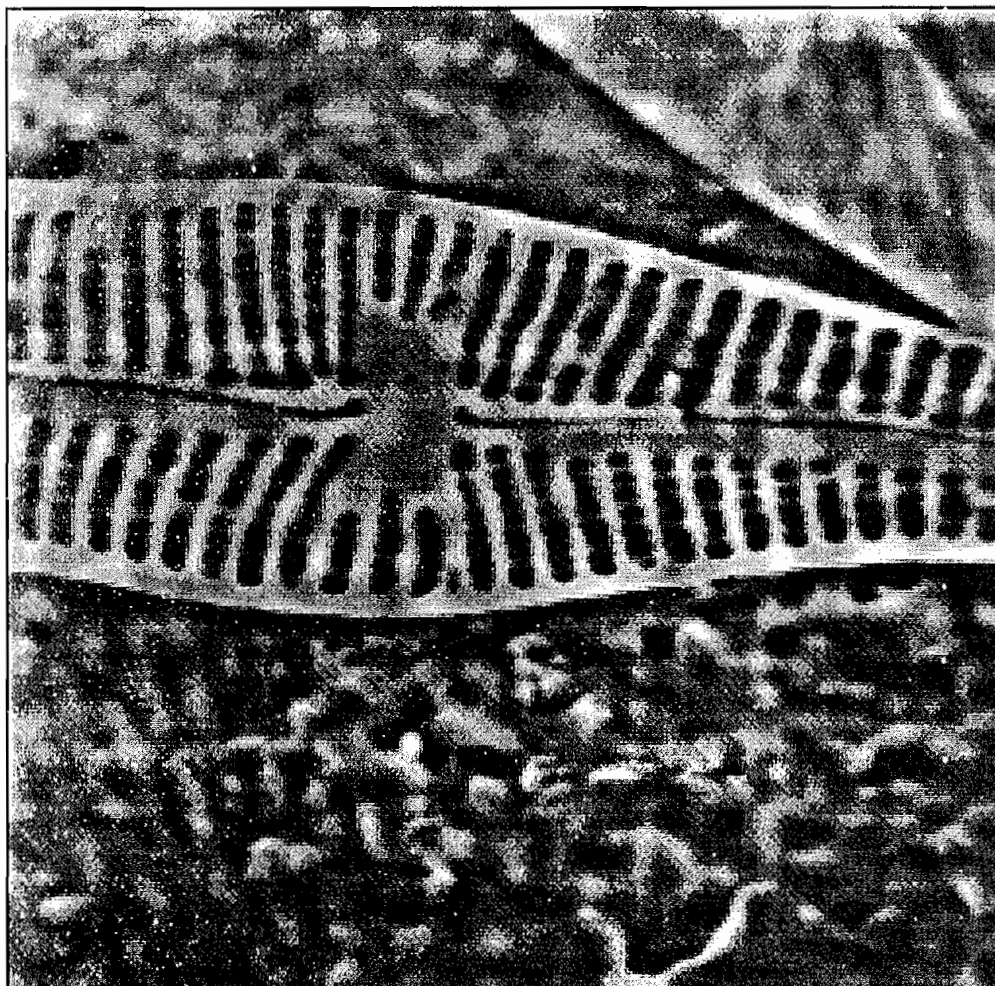
0 20 40 60 px

9.1.f

$N = 50$

($d = 1 \text{ mm}$)

$= 1 \text{ pour } 40 \text{ px}$

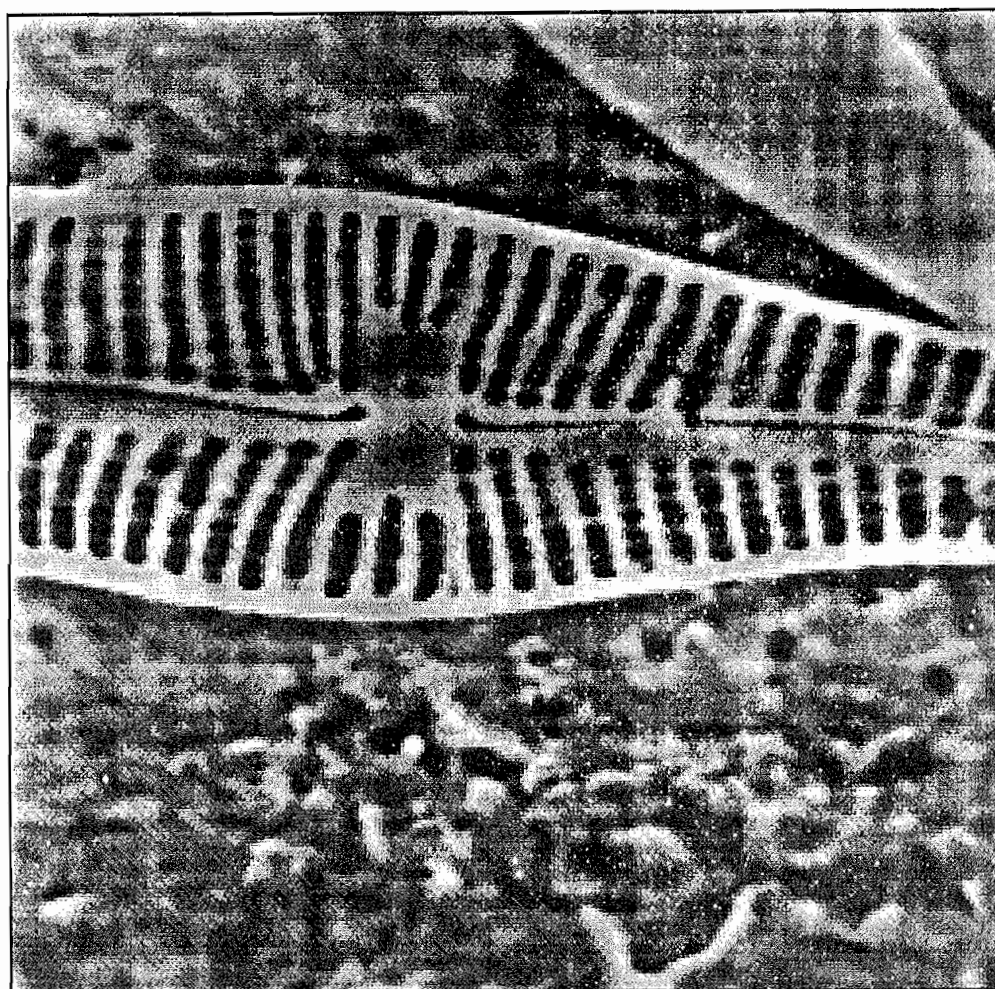


9.1.g

$N = 100$

($d = 2 \text{ mm}$)

$N_f = 1 \text{ pour } 56 \text{ px}$



0 20 40 60 px

9.2.3 HOLOGRAMME DE GABOR EN COHERENCE LIMITEE

Dans la modélisation qui précède, nous avons considéré les ondes qui interfèrent comme parfaitement cohérentes et nous n'avons pas cherché à les limiter. En réalité, l'extension latérale de l'hologramme d'un point est limitée par la fonction de cohérence qui module le contraste des franges. Si nous tenons compte de cet effet, nous devons réécrire l'équation 9.3 sous la forme suivante

$$H(M) = 1 - O^*(M) * [C(M) \cdot F(\lambda, -d, M)] - O(M) * [C(M) \cdot F(\lambda, d, M)] + |O(M) * F(\lambda, d, M)|^2 \quad (9.14)$$

a) Fonction de transfert

On conçoit facilement qu'en limitant l'extension latérale des franges, la fonction $C(M)$ intervient comme une pupille dans le processus d'imagerie. Pour le démontrer, nous calculons la transformée de Fourier du terme H_r de l'hologramme, défini à l'équation (9.4), qui après identification avec (9.14), s'écrit

$$H_r(M) = O^*(M) * [C(M) \cdot F(\lambda, -d, M)] \quad (9.15)$$

Pour effectuer le calcul, nous considérons que l'hologramme est enregistré en rayons X avec une ouverture faible, si bien que la fonction de diffraction, F , peut être valablement représentée par la fonction de Fresnel notée ici : $f_{\lambda d}$

$$F(\lambda, d, M) \simeq f_{\lambda d}(M) = \frac{i}{\lambda d} \exp\left(i\pi \frac{M^2}{\lambda d}\right) \quad (9.16)$$

La transformée de Fourier $H_r(\nu)$ de $H_r(M)$ est donc

$$\begin{aligned} \tilde{H}_r(\nu) &= \tilde{O}^*(-\nu) \int C(M) \frac{-i}{\lambda d} \exp\left(-i\pi \frac{M^2}{\lambda d}\right) \exp(2i\pi \nu M) dM \\ &= \tilde{O}^*(-\nu) \exp(-i\pi \lambda d \nu^2) \int \frac{-i}{\lambda d} C(M) \exp\left(-i\pi \frac{(M - \lambda d \nu)^2}{\lambda d}\right) dM \end{aligned} \quad (9.17)$$

On reconnaît dans le deuxième terme, la TF de $f_{\lambda d}$, et dans l'intégrale, le produit de convolution $C * f_{\lambda d}$, donc

$$\tilde{H}_r(\nu) = \tilde{O}^*(-\nu) \tilde{f}_{-\lambda d}(\nu) \left[C * f_{-\lambda d} \right] (\lambda d \nu) \quad (9.18)$$

C'est en fait la fonction $C * f_{-\lambda d}$ qui est la fonction de transfert du processus d'imagerie. Elle n'est rien d'autre que la "diffractée" de la fonction de cohérence à la distance $-d$. Nous pouvons cependant remarquer que C est une fonction très large vis à vis de la diffraction à la distance d , et que pour sa partie centrale, qui seule correspond aux fréquences que nous cherchons à restituer, on peut valablement négliger cet effet et écrire :

$$\tilde{H}_r(\nu) = \tilde{O}^*(-\nu) C(\lambda d \nu) \tilde{f}_{-\lambda d}(\nu) \quad (9.19)$$

Une expression similaire modifie également le terme $\tilde{H}_v(\nu)$.

Ainsi le fait d'utiliser une onde de cohérence limitée, conduit à enregistrer non pas l'objet $O(M)$ lui même mais une image filtrée de $O(M)$, $O_1(M)$ telle que :

$$\tilde{O}_1(\nu) = \tilde{O}(M) C(\lambda d \nu) \quad (9.20)$$

mais à cette substitution près l'expression de l'hologramme reste celle que nous avons donnée en (9.3) et (9.9).

b) Réponse percussionnelle

Il est également intéressant d'exprimer l'influence de la cohérence dans l'espace direct sous la forme des réponses percussionnelles de cohérence spatiale et temporelle.

$$O_1(M) = O(M) * R_s(M) * R_t(M) \quad (9.21)$$

La réponse percussionnelle spatiale est particulièrement simple parce que la fonction de cohérence spatiale est la transformée de Fourier de la répartition de luminance $S(M)$ de la source.

$$C_s(M) = \tilde{S}\left(\frac{M}{\lambda d}\right) \quad (9.22)$$

d'où

$$R_s(M) = \text{TF} \left[\tilde{S}\left(\frac{M}{\lambda d}\right) \right] = S\left(\frac{D}{d} M\right) \quad (9.23)$$

La réponse percussionnelle spatiale n'est rien d'autre que l'image de la source réduite dans le rapport d/D .

La réponse percussionnelle associée à la cohérence temporelle est moins facile à calculer parce que C_t est une transformée de Fourier unidimensionnelle de la luminance spectrale de la source, et que R_t est la TF bidimensionnelle de C_t . Nous la calculerons dans le cas particulier d'une bande spectrale uniforme de largeur $\delta\lambda$. On a alors (éq. 8.1)

$$\begin{aligned} C_t(M) &= \text{Sinc}\left(\pi \frac{\delta\lambda}{2d\lambda^2} M^2\right) \\ R_t(M) &= \text{TF}\left[\text{Sinc}\left(\pi \frac{\delta\lambda}{2d\lambda^2} (\lambda d \nu)^2\right)\right] \\ &= \text{TF}\left[\text{Sinc}\left(\pi \frac{\delta\lambda d}{2} \nu^2\right)\right] \end{aligned} \quad (9.24)$$

Le calcul de la transformée de Fourier de la fonction $\text{Sinc}(\pi a \nu^2)$ fait intervenir une transformée de Hankel dont la valeur peut être trouvée dans les tables (par ex. ERDELYI 8.2.39) :

$$\begin{aligned} \text{TF}[\text{Sinc}(\pi a \nu^2)] &= 2\pi \int_0^\infty J_0(2\pi \nu s) \text{Sinc}(\pi a \nu^2) \nu d\nu \\ &= \frac{1}{a} \text{si}\left(\frac{\pi a s^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (9.25)$$

où la fonction $\text{si}(x)$ dérive du sinus intégral par

$$\text{si}(x) = \int_x^\infty \frac{\sin t}{t} dt = \frac{\pi}{2} - \text{Si}(x)$$

Dans le cas du spectre rectangulaire la réponse percussionnelle de cohérence temporelle est donc

$$R_t(s) = \frac{2}{\delta\lambda d} \text{si}\left(\frac{2\pi s^2}{\delta\lambda d}\right) \quad (9.26)$$

la fonction $\text{si}(2u^2)$ est représentée sur la figure (9.2). Sa largeur est $\simeq 1$, et la largeur de la réponse R_t s'exprime en fonction de la résolution du monochromateur $\mathcal{R} = \lambda/\delta\lambda$ par :

$$r_{1/2} \simeq \sqrt{\frac{\delta\lambda d}{\pi}} = \sqrt{\frac{\lambda d}{\pi \mathcal{R}}} \quad (9.27)$$

Cette valeur est à comparer à l'expression (9.13) et montre que la résolution du monochromateur doit être à peu près égale à trois fois le nombre de franges à enregistrer.

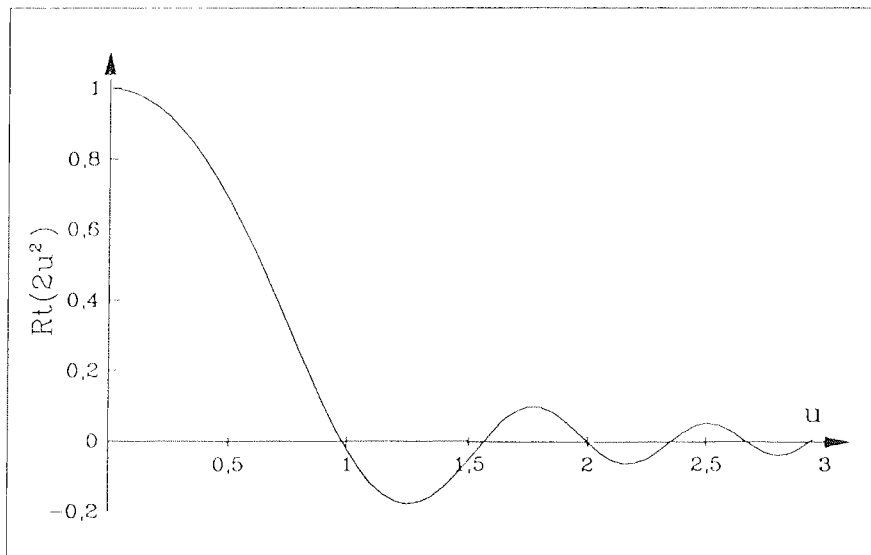


figure 9.2

Réponse percussionnelle de cohérence temporelle $si(2u^2)$.

9.3 RECONSTRUCTION OPTIQUE DES HOLOGRAMMES DE GABOR

Pour l'étude de la reconstruction optique, nous nous appuierons sur les propriétés générales que nous venons de démontrer. En particulier, nous considérerons que l'on peut négliger le terme d'intermodulation et écrire l'hologramme sous la forme

$$H(M) = 1 - O'(M) * F(\lambda, -d, M) \quad (9.28)$$

avec

$$O'(M) = O_1^* + O_1 * F(\lambda, 2d, M)$$

et

$$O_1(M) = O * R_s * R_t$$

et nous examinerons comment, et avec quelle qualité on peut reconstruire $O'(M)$ par les techniques de l'optique. En d'autres termes, nous nous proposons de reconstruire "l'image réelle", sans chercher à la séparer de son image jumelle, en éclairant simplement l'hologramme par une onde de longueur d'onde différente de celle d'enregistrement et en observant l'image diffractée.

9.3.1 ETUDE PARAXIALE DE LA RECONSTRUCTION OPTIQUE

Une grande partie des propriétés de la reconstruction optique peut être étudiée dans le cas paraxial, c'est-à-dire en limitant le développement des termes de phase des différentes ondes à leurs termes du deuxième ordre. Nous écrirons ainsi, en utilisant la fonction de Fresnel $f_{\lambda d}$, définie en (9.16)

$$H(M) = 1 + O'(M) * f_{-\lambda d}(M) \quad (9.29)$$

a) Relations de conjugaison

Pour reconstruire l'hologramme nous utiliserons une onde de longueur d'onde λ_1 , issue du point S dans le plan $\{-Z\}$ (figure 9.3). Immédiatement après l'hologramme, nous pouvons écrire l'amplitude de l'onde transmise sous la forme :

$$A(M) = f_{\lambda_1 z}(M) - \left[O'(M) * f_{-\lambda d}(M) \right] f_{\lambda_1 z}(M) \quad (9.30)$$

Or il est facile de montrer que :

$$[O(M) * f_a(M)] f_b(M) = \left[O(M) f_{\frac{M}{b-c}}(M/G) \right] * f_c(M) \quad (9.31)$$

avec $\frac{1}{c} = \frac{1}{a} + \frac{1}{b}$ et $G = \frac{c}{a} = \frac{b-c}{b}$.

Démonstration

$$\begin{aligned} (O(M) * f_a(M)) f_b(M) &= \frac{-1}{ab} \int O(P) e^{\frac{i\pi}{a}(P-M)^2} e^{\frac{i\pi}{b}M^2} dP \\ &= \frac{-1}{ab} \int O(P) e^{\frac{i\pi}{c}\left(M - \frac{c}{a}P\right)^2} e^{\frac{i\pi}{a^2}\frac{a-c}{a}P^2} dP \end{aligned}$$

en effectuant le changement de variable

$$Q = GP = \frac{c}{a} P$$

on obtient :

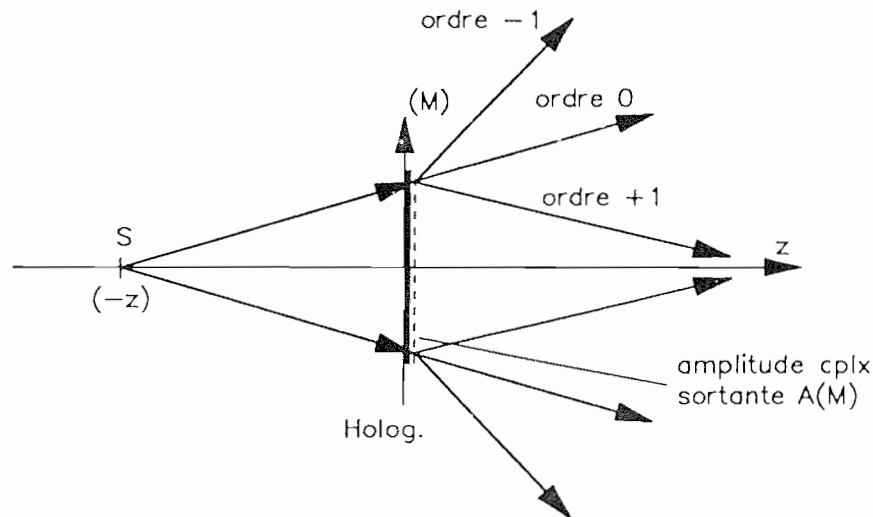


Figure 9.3

Schéma de la reconstruction : notations.

$$\begin{aligned}
 (O * f_a) f_b &= \frac{-a}{bc^2} \int O\left(\frac{Q}{G}\right) e^{\frac{i\pi}{c}(Q-M)^2} e^{\frac{i\pi}{c^2}(a-c)Q^2} dQ \\
 &= \frac{-1}{c(b-c)} \int O\left(\frac{Q}{G}\right) e^{\frac{i\pi}{c}(Q-M)^2} e^{\frac{i\pi}{c^2}(b-c)Q^2} dQ
 \end{aligned}$$

CQFD

En utilisant la propriété (9.31) on écrit alors l'onde transmise

$$A(M) = f_{\lambda_1 z}(M) - \left[O' \left(\frac{M}{G} \right) f_{\lambda_1 (z+z')}(M) \right] * f_{\lambda_1 z'}(M) \quad (9.32)$$

avec $\frac{1}{\lambda_1 z'} = \frac{1}{\lambda d} - \frac{1}{\lambda_1 z}$ et $G = \frac{\lambda_1 z'}{\lambda d} = \frac{z+z'}{z}$

Il se forme donc dans le plan $\{z'\}$, une image au grandissement G , dont l'intensité vaut :

$$I(M) = I_0 |1 - O'(M)|^2 \quad (9.33)$$

b) Résolution

Nous avons encore une fois raisonné sur des ondes non limitées latéralement. Il faut cependant tenir compte du fait que l'onde de reconstruction a dans le plan de l'hologramme, une extension limitée par une pupille $P(M)$. On doit alors écrire l'amplitude transmise par l'hologramme de la façon suivante :

$$A(M) = f_{\lambda_1 z}(M) - \left[O' \left(\frac{M}{G} \right) f_{\lambda_1 (z+z')}(M) \right] * \left[f_{\lambda_1 z'}(M) P(M) \right] \quad (9.34)$$

et comme nous l'avons montré précédemment (eq. 9.15), l'image ainsi formée diffère de ce que nous avons d'abord calculé par un filtrage linéaire dont la fonction de transfert est $P(\lambda_1 z' \nu)$.

En utilisant la réponse percuSSIONNELLE

$$R(M) = TF[P(\lambda_1 z' \nu)]$$

l'amplitude de cette image s'écrit :

$$A_i(M) = f_{\lambda_1 (z+z')}(M) [1 - O'(M)] * R(M) \quad (9.35)$$

La pupille $P(M)$ sera normalement circulaire. Elle limite l'onde de reconstruction à une ouverture α et l'onde image à une ouverture $\alpha' = \frac{z}{z'} \alpha$, si bien que $R(M)$ est une fonction d'Airy dont le rayon est

$$\rho = \frac{1.2 \lambda}{2 \alpha'}$$

ρ est la résolution de l'image, selon le critère de Rayleigh. Cependant la résolution, r , de la reconstruction holographique doit être rapportée à l'objet et dépend bien entendu du grandissement holographique $G = (z+z')/z = 1 + \alpha/\alpha'$:

$$\begin{aligned} r &= \frac{\rho}{G} \\ &= \frac{1.2 \lambda}{2(\alpha + \alpha')} \end{aligned} \quad (9.36)$$

Contrairement à la résolution d'un système optique classique, la résolution du dispositif de reconstruction holographique dépend à la fois des ouvertures objet et image. Cela provient de ce que l'objet est codé dans l'élément focalisant lui-même.

c) Choix du grandissement holographique

Dans la pratique, l'ouverture objet est fixée par l'objectif utilisé pour produire l'onde d'éclairage. L'ouverture image dépend du grandissement holographique et la résolution s'exprime alors par :

$$r = \frac{1.2 \lambda}{2 \alpha} \frac{G-1}{G} \quad (9.37)$$

Puisque nous employons l'holographie à faire de la microscopie X, il peut sembler naturel de rechercher un grandissement holographique élevé. Pour cela il suffit de placer la source de reconstruction à une distance proche de

$$f = \frac{\lambda d}{\lambda_1} \quad (9.38)$$

c'est-à-dire, au voisinage du foyer objet de la zone de Fresnel que constitue l'hologramme d'un point sur l'axe. Il est possible de cette façon, d'obtenir directement une image grandie de l'objet, avec des facteurs de grandissement de quelques centaines. Cependant l'ouverture image $\alpha' = \frac{\alpha}{G-1}$ devient alors très faible et la résolution n'est plus liée à l'ouverture de l'onde de reconstruction que par la relation classique

$$r = \frac{1.2 \lambda}{2 \alpha}$$

Il est également possible de sacrifier le grandissement holographique pour gagner en résolution. Il est alors nécessaire d'utiliser, en plus de l'objectif d'éclairage, qui sert en pratique à former la source de reconstruction, un deuxième objectif dont le rôle sera d'agrandir l'image holographique pour en permettre l'observation. Les ouvertures maxima, côté hologramme, de ces deux objectifs sont logiquement très semblables. Cela conduit à un dispositif de reconstruction symétrique dont le grandissement holographique est 2. La résolution de ce dispositif est alors

$$r = \frac{1.2 \lambda}{4 \alpha}$$

REMARQUE : Il peut sembler paradoxal d'aboutir à des limites de résolution inférieures à $\lambda/2$, mais il s'agit ici, d'un système un peu particulier où l'information objet est incluse dans l'élément optique : l'hologramme. La résolution est en fait logiquement déterminée par la plus petite période, p , de l'hologramme, que le système de reconstruction permet de faire diffracter. Le minimum minimorum est évidemment obtenu avec un

système idéal dans lequel les ouvertures objet et image sont égales à 1. Le rayon marginal incident et le rayon marginal émergent sont alors tous deux rasants sur l'hologramme. Le pas du réseau correspondant est $p = \lambda/2$ et la résolution $\lambda/4$.

En théorie, donc, la reconstruction avec une radiation ultra-violette - $\lambda \simeq 200$ nm - d'hologrammes enregistrés en rayons X, peut conduire à des résolutions proches de 50 nm, voire même inférieures si on est capable d'employer des éléments optiques en immersion dans un liquide d'indice convenable (par exemple, le glycérol, $n \sim 1,5$). De telles résolutions sont tout à fait comparables à celles des meilleures zones de Fresnel actuelles. Pour cela il faut employer des systèmes optiques très ouverts, pour lesquels l'étude paraxiale que nous venons de faire est très insuffisante, et doit être complétée par un examen complet des aberrations.

9.3.2 ETUDE DES ABERRATIONS

L'approximation paraxiale a permis de garder jusqu'à maintenant une invariance par translation - et par conséquent, un formalisme de convolution. A partir du moment où l'on utilise une grande ouverture il n'y a plus invariance par translation de la surface d'onde sortante. Pour étudier la surface d'onde qui converge vers un point image à la distance X de l'axe optique, nous considérons l'hologramme d'un point situé à la distance X/G de l'axe (cf. étude paraxiale). L'hologramme lui-même est invariant par translation, de sorte que la phase enregistrée sur cet hologramme est $\Phi_h(M-X/G)$, avec

$$\Phi_h(M) = \pi \left(\frac{M^2}{\lambda d} - \frac{1}{4} \frac{M^4}{\lambda d^2} \right) \quad (9.40)$$

Φ_h est le développement de la phase d'une onde sphérique de rayon, d, à la longueur d'onde d'enregistrement, λ . Cet hologramme reconstruit une onde qui converge vers le point (Z', X) et dont la phase dans le plan, H, de l'hologramme est

$$\Phi_2(M, X) = \Phi_1(M) - \Phi_h\left(M - \frac{X}{G}\right) \quad (9.41)$$

lorsque $\Phi_1(M)$ est la phase sur le plan, H, de l'onde d'éclairage.

a) Expression des aberrations

Au paragraphe précédent, nous avons étudié cette imagerie au deuxième ordre en M et X ; nous considérons maintenant le développement de la phase à l'ordre 4 et aux ordres supérieurs. Nous noterons φ_i , les termes de phase du deuxième ordre et ψ_i les termes d'ordre supérieur de chacune des ondes, de sorte que

$$\Phi_i = \varphi_i + \psi_i \quad (9.42)$$

et nous avons vu que, à l'ordre 2,

$$\varphi_2(M, X) = \frac{\pi}{\lambda_1} \left(- \frac{(M-X)^2}{z'} + \frac{X^2}{z+z'} \right) \quad (9.43)$$

lorsque

$$\varphi_1(M) = \frac{\pi}{\lambda_1} \frac{M^2}{Z}$$

Pour les termes d'ordre supérieur, nous pouvons écrire :

$$\psi_2(M, X) = \psi_1(M) - \psi_h \left(M - \frac{X}{G} \right) \quad (9.44)$$

Les propriétés remarquables que nous allons maintenant établir proviennent de ce que **dans les conditions normales d'une reconstruction optique, les termes de phase d'ordre supérieur à 2 de l'hologramme sont négligeables.**

En effet, lorsqu'on reconstruit à grande ouverture des points voisins de l'axe, on a sur l'hologramme

$$M \lesssim Z$$

si d'autre part on travaille, comme il est raisonnable, à des grandissements holographiques supérieurs à 2,

$$Z < 2 \frac{\lambda}{\lambda_1} d$$

Il en résulte sur les termes de phase à l'ordre (n), un facteur d'atténuation proportionnel à $\left(\frac{2\lambda}{\lambda_1} \right)^{n \cdot 2}$.

Pour l'ordre 4 par exemple,

$$\psi_h^{(4)}(M) = \frac{\pi}{4} \frac{M^4}{\lambda d^3} \lesssim 4\pi \frac{\lambda^3}{\lambda_1^4} d \approx 2\pi \frac{\lambda^2}{\lambda_1^3} z$$

exemple numérique : $\lambda = 4 \text{ nm}$; $d = 2 \text{ nm}$; $\lambda_1 = 200 \text{ nm}$:

$$\psi_h^{(4)}(M) < \frac{\pi}{3}$$

Dans ces conditions, on peut admettre :

$$\psi_2(M, X) = \psi_1(M) \quad (9.45)$$

Dans cette expression, ψ_i représente l'écart de la surface d'onde à une surface d'onde de référence dont le profil de phase dans le plan, H , est parabolique. Ces ondes à profil de phase parabolique ne sont pas stigmatiques. Elles sont cependant les "solutions propres" du problème puisque $\psi_1(M) = 0 \implies \psi_2(M) = 0$.

Pour calculer les aberrations, nous devons évaluer les écarts de phase par rapport à des ondes sphériques de même foyers paraxiaux.

$$\begin{aligned} \Delta\Phi_1 &= \Phi_1 - \Phi_s(-z, M) \\ \Delta\Phi_2 &= \Phi_2 - \Phi_s(z', M-X) \end{aligned}$$

On obtient donc :

$$\Delta\Phi_2(z', X) = \Delta\Phi_1(M) - \psi_s(z', M-X) - \psi_s(z, M) \quad (9.46)$$

Dans ces expressions $\Phi_s(z, M)$ est la phase de l'onde sphérique $F(\lambda, -z, M)$ et $\psi_s(z, M)$ est l'ensemble des termes de degré supérieur à 2 de $\Phi_s(z, M)$:

$$\psi_s(z, M) = \frac{2\pi z}{\lambda_1} \left[-\frac{1}{8} \left(\frac{M}{z}\right)^4 + \frac{1}{16} \left(\frac{M}{z}\right)^6 - \frac{9}{256} \left(\frac{M}{z}\right)^8 + \dots \right] \quad (9.47)$$

L'examen de ces expressions montre clairement que si on éclaire l'hologramme par une onde sphérique, toutes les aberrations sont présentes dans l'image.

b) Correction sur l'onde de reconstruction

Est-il possible de corriger les aberrations, simplement en éclairant l'hologramme par une onde présentant la bonne aberration ?

L'examen de l'équation (9.46) permet de constater que le choix convenable de $\Phi_1(M)$ permet toujours de compenser l'a-

berration sphérique (terme indépendant de X) mais n'agit pas sur les aberrations de champ, à une exception près : lorsque le terme $\psi_s(z', M-X) \equiv 0$, c'est-à-dire $z' = \infty$. Nous retrouvons la configuration *foyer - infini* qui permet d'obtenir directement une image agrandie de l'hologramme. On a alors :

$$\psi_1(M) = \Delta\phi_1 - \psi_s(f, M) = 0 \quad (9.48)$$

L'onde d'éclairage doit donc avoir un profil de phase parabolique sur l'hologramme. Cette onde est fortement sur-correctée : la caustique d'aberration sphérique est tournée dans le sens inverse de la propagation, et le rayon incident à la hauteur, h , sur l'hologramme est plus incliné sur l'axe qu'avec la surface d'onde sphérique correspondante (fig. 9.4) :

$$\sin \alpha = \frac{\lambda_1}{2\pi} \frac{d\phi(h)}{dh} = \frac{h}{f} \quad (9.49)$$

Cette surface d'onde est en première approximation (3^e ordre d'aberration), celle qui est produite par une lame à faces planes et parallèles.

Nous pouvons encore préciser la résolution, dans ces conditions de forte ouverture : l'onde sortante est stigmatique et son ouverture est

$$\alpha' = \frac{h}{z'} = G \sin \alpha \quad (9.50)$$

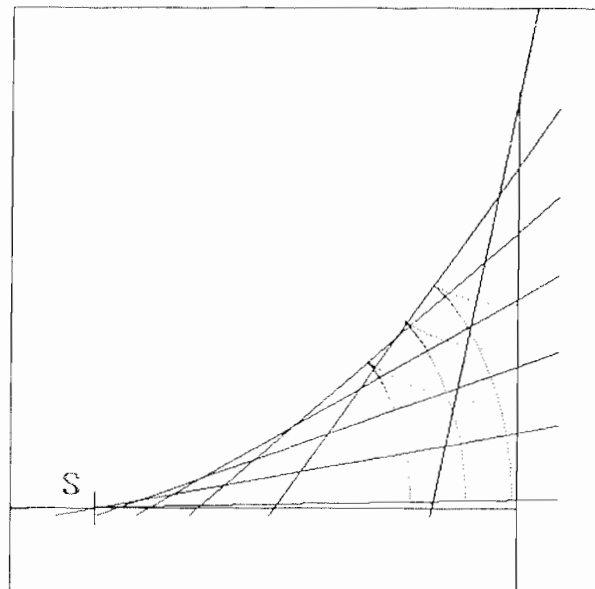


figure 9.4

Surfaces d'onde et rayons de l'onde reconstruction

En reportant cette valeur dans l'équation 9.36 qui évalue la résolution par la résolution rapportée à l'objet de la tache d'Airy image, on trouve l'expression classique :

$$r = \frac{1.2 \lambda_1}{2 \sin \alpha} \quad (9.51)$$

où α est l'inclinaison du rayon marginal de l'onde incidente.

c) Correction symétrique

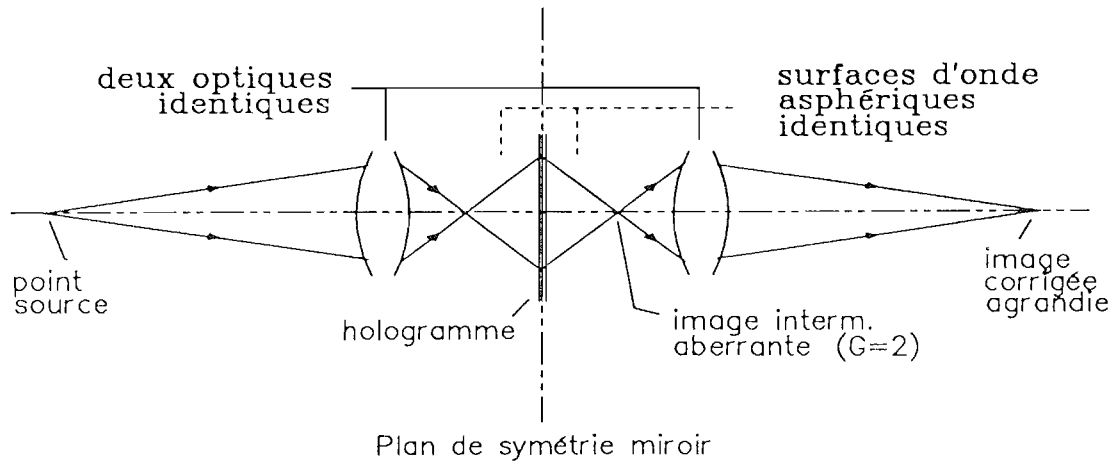
Nous avons montré précédemment que reconstruire avec un grandissement holographique proche de 2, permet de gagner un facteur 2 sur la résolution. Il faut alors nécessairement utiliser deux objectifs correcteurs, l'un pour produire la surface d'onde de reconstruction, l'autre pour corriger la surface d'onde reconstruite. L'équation 9.45 montre, de plus, que si l'onde de reconstruction a un profil de phase parabolique sur H, l'onde reconstruite a une forme semblable. Mieux, si le grandissement holographique est exactement 2, (ie. $z = 2\lambda d/\lambda_1 = 2f$), les deux ondes ont une forme exactement symétrique (figure 9.5). Enfin, en métallisant l'hologramme, celui-ci peut être reconstruit en réflexion ; le système optique de la figure 9.6 est alors replié au niveau de l'hologramme et n'exige plus qu'un seul objectif de correction. Nous reviendrons plus loin sur la manière de réaliser cet objectif et sur les avantages pratiques de ce montage. Avant cela, il convient d'étendre au système de grande ouverture, le calcul de la résolution que nous avons fait dans le cas paraxial.

Pour étudier la résolution, nous pouvons considérer que les objectifs ont un grandissement paraxial de 1, et que leur rôle consiste uniquement à compenser les aberrations des surfaces d'onde entrante et sortante.

Raisonnons sur l'objectif placé après l'hologramme. L'écart de phase aberrant qui permet de compenser la surface d'onde sortante est

$$\Delta\Phi = \psi_s(2f, M-X)$$

Remarquons d'abord que l'objectif idéal doit produire la même surface d'onde de révolution pour tous les points du champ. Cela veut dire qu'il ne présente que de l'aberration sphérique lorsque sa pupille d'entrée est à l'infini. Or, corriger une aberration sphérique lorsque le grandissement est 1, ne con-



La symétrie du montage permet de travailler en réflexion, avec une seule optique (hologramme métallisé).

Figure 9.5

Montage de reconstruction avec correction symétrique : Chacun des objectifs corrige la moitié des aberrations de l'hologramme de sorte que les surfaces d'onde entrante et sortante sont exactement symétriques.

siste en fait, qu'à modifier l'inclinaison des rayons en les faisant tourner autour de leur point d'intersection avec la pupille. Si la pupille est placée à l'infini, les rayons sont simplement translatés parallèlement à eux-mêmes de façon à converger en une image stigmatique. Les ouvertures des ondes stigmatiques à l'entrée et à la sortie du système optique, sont donc égales aux ouvertures marginales des ondes aberrantes qui entrent et sortent de l'hologramme. Ceci n'est pas seulement vrai de la reconstruction symétrique, et la relation (9.36) qui évalue la résolution par le rayon de la tache d'Airy, s'étend très simplement à tout système de reconstruction corrigé sous la forme :

$$r = \frac{1.2 \lambda_1}{2(\sin \alpha + \sin \alpha')} \quad (9.52)$$

où $\sin \alpha$ et $\sin \alpha'$ sont les ouvertures marginales de l'onde de reconstruction et de l'onde reconstruite dans le plan de l'hologramme.

9.3.3 MISE EN OEUVRE DE LA RECONSTRUCTION OPTIQUE

L'étude paraxiale et celle des aberrations nous ont permis de mettre en évidence deux configurations de reconstruction particulières. Pour déterminer la façon dont on pourra les mettre en œuvre, il nous faut encore étudier une dernière caractéristique, le champ.

a) Champ de reconstruction

La dimension du champ reconstruit ne dépend pas seulement de la qualité de la correction des aberrations par le ou les objectifs. Comme dans tout système optique, le champ est limité par les différentes diaphragmations. Nous avons mis en évidence celles qui interviennent au cours de la reconstruction au § 9.2, il s'agit de la surface de l'hologramme éclairée par l'onde de reconstruction (fonction pupille) et de la zone de cohérence. Cette dernière est centrée sur le point enregistré, elle dépend donc du champ (fonction lucarne). Nous noterons que même si la cohérence est poussée au delà du nécessaire, il existe toujours une limite, celle de la plus petite période capable de diffracter de la lumière à la longueur d'onde λ_1 : $p = \lambda_1/2$.

Nous considérons donc un hologramme enregistré avec une cohérence suffisante pour obtenir des franges jusqu'à la fréquence $2/\lambda_1$. Si on reconstruit l'hologramme dans la configuration *foyer - infini*, on en éclaire un disque de rayon inférieur à f (éq. 9.49). Dans l'hologramme d'un point situé sur l'axe, on utilise seulement les franges dont la fréquence est comprise dans la bande

$$\Delta\nu = \left[-\frac{\sin \alpha}{\lambda_1}, \frac{\sin \alpha}{\lambda_1} \right] \quad (9.53)$$

Si nous considérons maintenant l'hologramme d'un point situé à une distance, y , en dehors de l'axe, sa fréquence sur l'axe est

$$\nu_0 = \frac{y}{\lambda_1 f} \quad (9.54)$$

et la bande de fréquence utile est décalée de cette quantité. D'après nos hypothèses ces fréquences existent dans l'hologramme et peuvent diffracter ; ainsi la résolution reste inchangée dans le champ jusqu'à une valeur de champ $y_{\max} \approx f$, où

la fréquence des franges au bord de la zone éclairée atteint la valeur limite $2/\lambda_1$. Dans la configuration *foyer - infini* toute la cohérence n'est donc pas utilisée en résolution, mais le surplus de cohérence permet d'avoir du champ. Rappelons qu'une onde de reconstruction à profil de phase quadratique corrige les aberrations de champ (cf. § 9.3.2-b)

Maintenant, si on reconstruit le même hologramme dans la configuration symétrique $2f - 2f$, on éclaire un disque de rayon deux fois plus grand sur l'hologramme, c'est-à-dire que dans l'hologramme d'un point sur l'axe on utilise toute la bande de fréquence disponible

$$\Delta\nu' = \left[\frac{-2 \sin \alpha}{\lambda_1}, \frac{2 \sin \alpha}{\lambda_1} \right] \quad (9.55)$$

Lorsqu'on considère un hologramme décentré la fréquence des franges au bord de la pupille éclairée devient immédiatement trop grande pour que le rayon marginal puisse encore être accepté dans l'objectif de correction, voire même, être diffracté si

$$\nu > \frac{1 + \sin \alpha}{\lambda_1}$$

Dans la configuration $2f - 2f$ le champ reconstruit est donc très faible même si les aberrations de champ de l'onde image sont très bien corrigées. Il existe cependant une solution pour utiliser ce montage et gagner la résolution deux fois supérieure qu'il autorise, c'est de construire un microscope de reconstruction à balayage, dans lequel l'image est reconstruite point par point avec toute l'ouverture possible et le champ est obtenu par déplacement de l'hologramme.

b) Reconstruction foyer - infini

Au crédit de la configuration *foyer - infini*, il faut bien entendu porter une plus grande simplicité de mise en œuvre.

- 1) On ne corrige qu'une seule onde et l'objectif d'éclairage n'a besoin d'être corrigé que pour un point du champ - une certaine correction de champ est cependant bien utile pour faciliter le centrage -
- 2) On peut observer l'image directement.

C'est cette configuration que nous avons employée pour nos premiers essais de reconstruction des hologrammes enregistrés à ACO. Pour ces premières expériences, une résolution

très élevée n'était pas nécessaire, il s'agissait avant tout de montrer que la reconstruction optique de ces hologrammes de Gabor était possible. Nous avons donc utilisé la radiation du laser He-Ne à 633 nm, qui, avec des optiques d'ouverture numérique $O.N. \approx 0,6$ permet théoriquement d'obtenir une résolution proche de $0,5 \mu\text{m}$. Une telle ouverture est déjà assez grande pour qu'il faille tenir compte des aberrations d'ordre supérieur à 3, c'est à dire, en pratique réaliser un objectif de reconstruction adapté.

En fait, nous n'avons pas cherché à réaliser un tel objectif. Pour les reconstructions que nous avons effectuées, nous nous sommes contenté d'un objectif à miroirs qui possède un réglage d'aberration sphérique. Celui-ci est normalement prévu pour compenser l'aberration d'une lamelle couvre-objet, mais il a une certaine latitude de réglage inverse dont nous avons pu profiter.

Sur l'image présentée à la figure 9.6, on reconnaît une diatomée de même type que celle qui a servi de modèle pour nos simulations. La résolution correspond assez bien à celle qui était attendue puisque les structures parallèles de période $0,8 \mu\text{m}$ sont visibles. L'image présente toutefois un certain nombre de défauts. Tout d'abord l'objectif à miroirs a une obturation centrale. Celle-ci n'a pas une influence significative sur l'onde image $O'(M)$ elle-même. Par contre, l'ordre 0 de l'hologramme subit cette obturation et n'interfère pas avec $O'(M)$ dans la partie centrale du champ. Or c'est bien l'interférence $|1 - O'(M)|^2$ qui constitue l'image car la composante modulée est par hypothèse très faible. C'est ce que l'on constate sur la figure 9.6 où l'obturation centrale apparaît sous la forme de l'ombre circulaire visible sur la gauche de l'image. Un deuxième défaut provient d'une aberration dont nous n'avons pas parlé : la distorsion. On peut en effet vérifier que lorsqu'on éclaire par la surface d'onde correctrice, l'angle de champ image θ' n'est pas égal à l'angle de champ, θ_0 , du point enregistré, mais que les deux angles sont liés par

$$\sin \theta' = \tan \theta_0$$

Cet effet est légèrement sensible sur l'image présentée et se traduit par l'allongement relatif de la partie droite de l'image.

Le dernier défaut est finalement le plus grave. C'est la présence d'un fort bruit cohérent, dû à la diffusion des surfaces optiques. Ce bruit est bien visible dans l'image présentée dont il dégrade particulièrement le côté droit. Le

bruit cohérent des surfaces optiques est inévitable dans tout processus de reconstruction d'hologramme ; on peut le distinguer du bruit de l'enregistrement holographique en ce qu'il n'est pas lié à l'objet. Il n'y a en fait qu'une manière de se débarrasser du bruit des surfaces optiques c'est de travailler en balayage, comme nous l'expliquons maintenant.

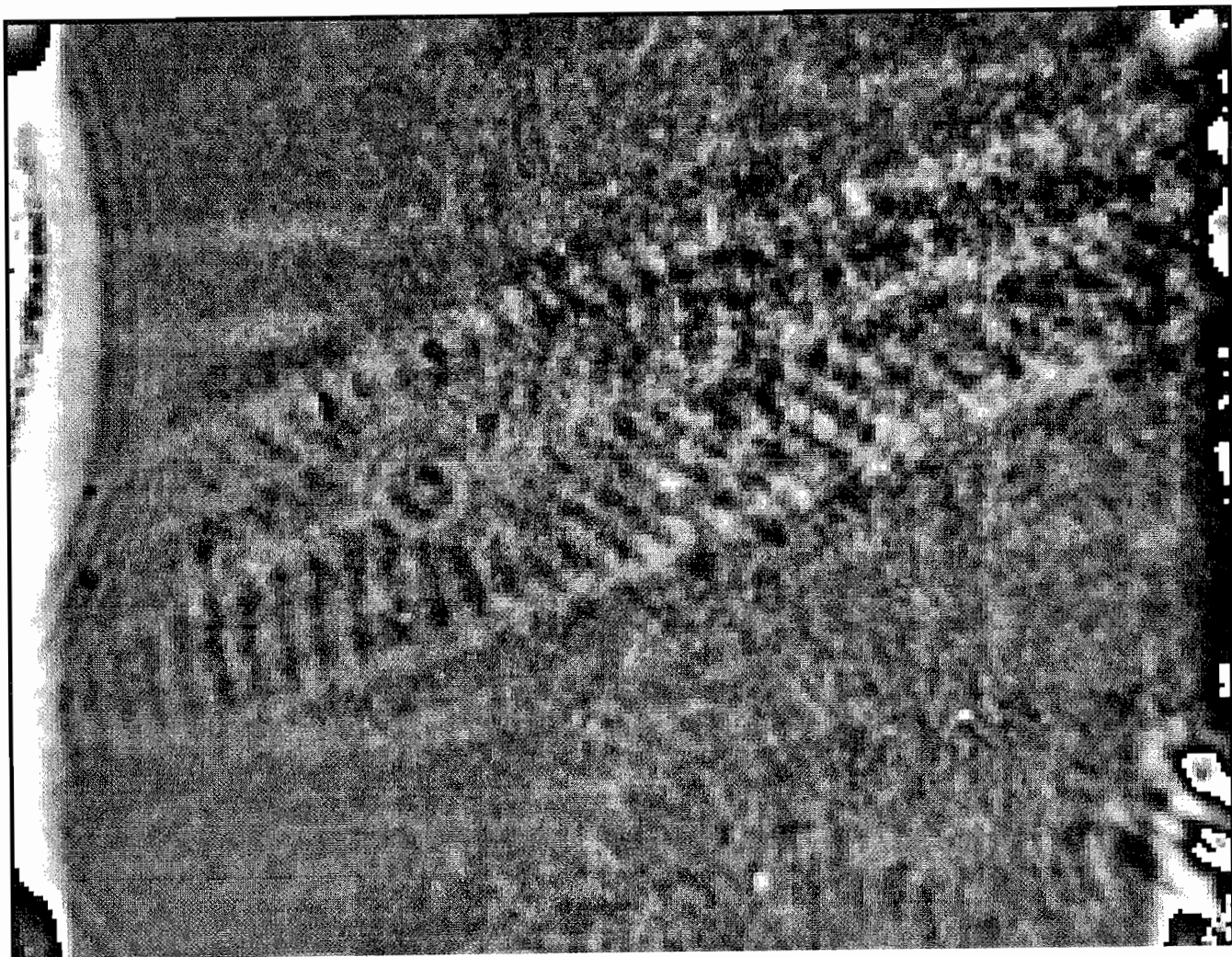


Figure 9.6

Image d'une diatomée reconstruite à partir d'un hologramme X. Champ $\sim 25 \times 30 \mu\text{m}$
 Enregistrement sur résine, $\lambda = 10 \text{ nm}$, cohérence pour $r \sim 0,5 \mu\text{m}$.

Reconstruction dans le visible par un montage foyer - infini, $\lambda = 633 \text{ nm}$

c) Reconstruction 2f-2f à balayage

La meilleure configuration de reconstruction optique dérive directement des résultats des paragraphes précédents. C'est le montage symétrique, replié au niveau de l'hologramme, qui est schématisé sur la figure 9.7. L'objectif forme à la distance $2f$ de l'hologramme une image réduite de la source (avec les aberrations convenables). L'hologramme est métallisé de sorte qu'il diffracte dans l'ordre utile $(+1)$, une onde identique à l'onde incidente au sens de propagation près. L'image, reconstruite avec un grandissement $2 G_{opt}$, se forme dans le plan de la source. Nous avons déjà remarqué que cette image n'a que très peu de champ. Il est par conséquent préférable de reconstruire l'hologramme point par point, comme le montre la figure 9.7. On place un détecteur au centre du champ image et l'hologramme est attaché à une platine de balayage rapide X, Y . On explore ainsi séquentiellement les différents "hologrammes de points" qui constituent l'hologramme.

Par rapport aux différentes configurations envisageables ce montage cumule tous les avantages. Une résolution maximale grâce à la configuration symétrique, mais aussi du champ. Travailler en balayage permet également une bonne réjection du bruit cohérent de la reconstruction. Celui-ci provient des réflexions parasites inévitables, des différentes ondes sur les surfaces de l'objectif. Lorsqu'on travaille en mode image, ces ondes parasites interfèrent avec les ondes utiles et brouillent les images. Ce bruit cohérent est largement éliminé lorsque l'image est détectée par balayage. En effet, les réflexions parasites les plus gênantes sont celles qui affectent l'ordre 0 car les autres ordres transportent une énergie beaucoup plus faible. En mode balayage, ces réflexions parasites sont stationnaires comme l'ordre 0, et ne participent qu'au fond continu.

Dans ce système optique, l'objectif a un double rôle :

- 1) compenser les aberrations de l'hologramme (le montage étant symétrique, la moitié des aberrations est compensée à chaque traversée) ;
- 2) donner un grandissement suffisant pour placer la source et le détecteur.

En principe, si la source et le détecteur sont sur l'axe de l'objectif, la symétrie du système est complète et on ne détecte que l'onde diffractée par "l'hologramme du point sur l'axe". On n'aurait donc pas besoin de corriger les aberrations de champ. Dans la pratique cependant, d'une part il

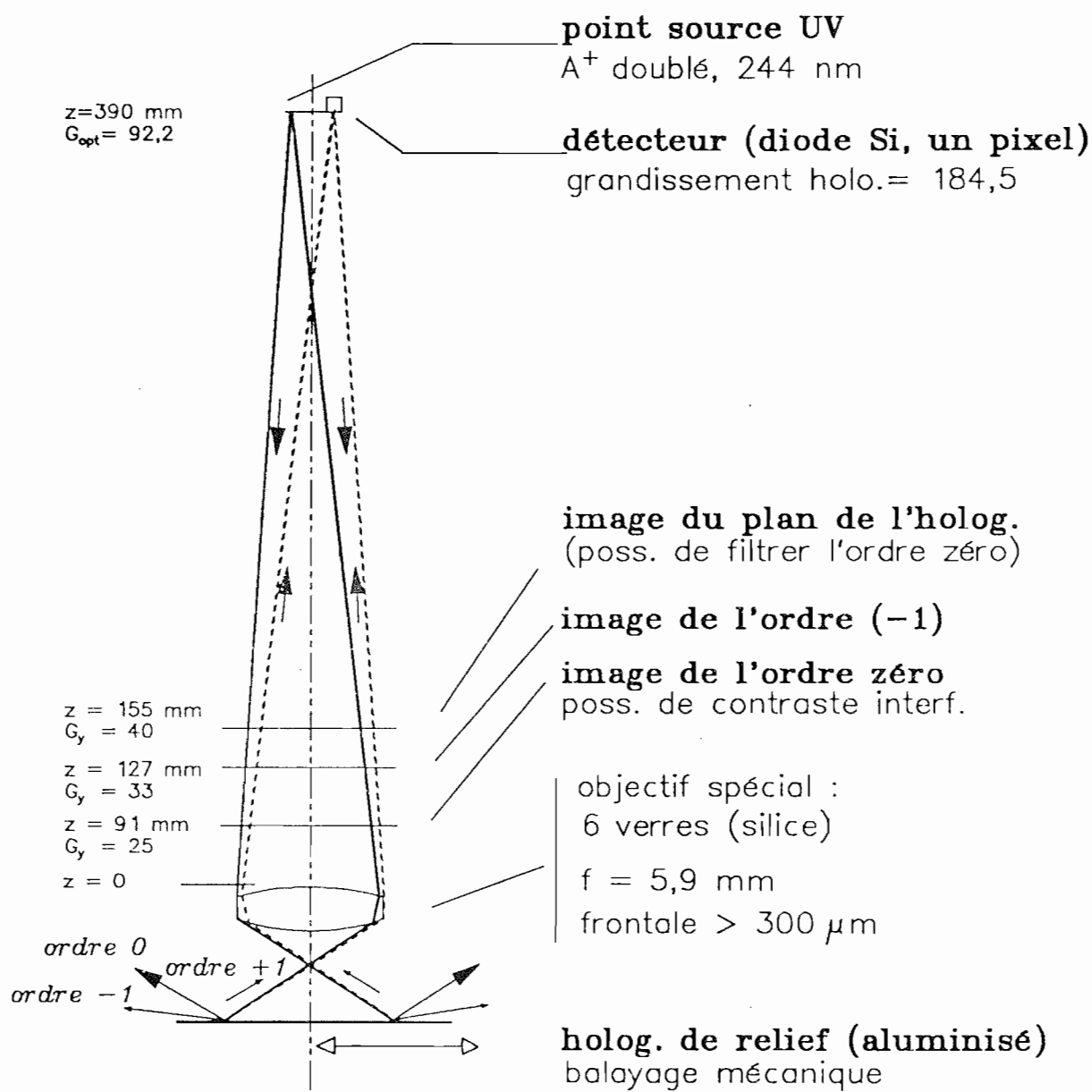


Figure 9.7

Principe d'un microscope de reconstruction à balayage, fonctionnant en UV dans la configuration $2f - 2f$.

est impossible d'assurer un centrage parfait, d'autre part il peut être commode de décaler la source du détecteur pour les laisser dans un même plan. Il en résulte qu'une correction, au moins partielle des aberrations de champ est nécessaire.

Il faut enfin remarquer que l'aberration sphérique à corriger est directement proportionnelle à la focale de l'hologramme

$$f = \frac{\lambda d}{\lambda_1}$$

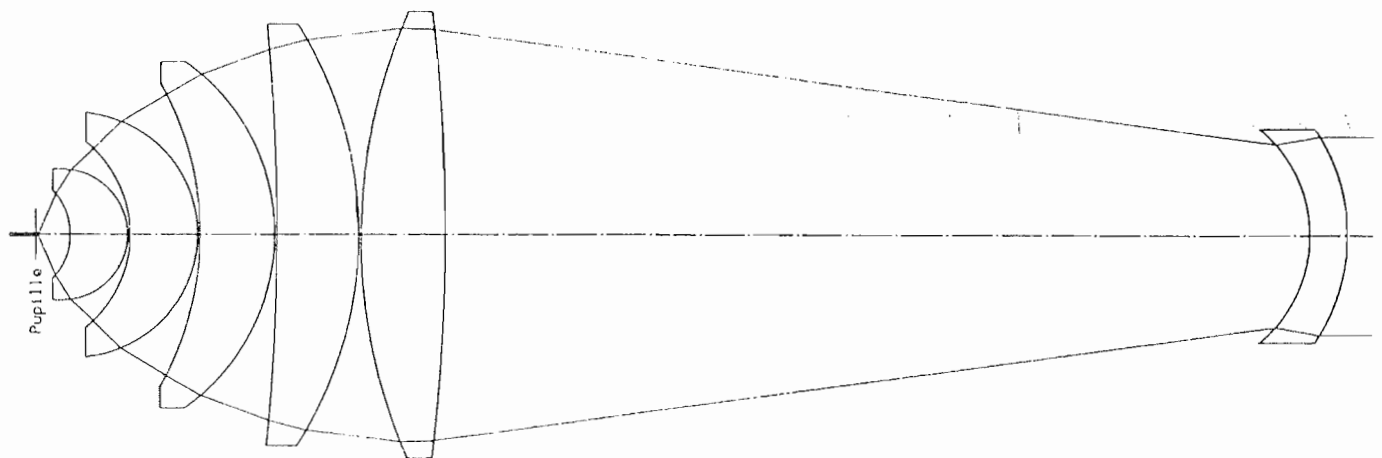
et que l'objectif est calculé pour une valeur particulière du produit λd (c'est-à-dire, en fait, du nombre de franges par point ou si l'on préfère de la distance entre images jumelles). Parce que l'aberration sphérique de l'hologramme est très forte, elle varie très rapidement avec la valeur de f . On pourrait craindre alors, d'être obligé de contrôler soigneusement la valeur de la distance d'enregistrement, ce qui irait à l'encontre de la simplicité recherchée. On retrouve heureusement une propriété similaire sur l'objectif qui présente l'aberration inverse. Ainsi, lorsqu'on étudie un système réel, et que l'on fait varier la focale de l'hologramme, on trouve que le déplacement du couple source-détecteur par rapport à l'objectif suffit à rétablir la correction.

Nous avons soumis le problème du calcul de cet objectif de reconstruction à R. Mercier, qui a bien voulu s'en charger. Il a spécialement modifié, pour tenir compte de nos hologrammes, le programme de calcul optique qu'il a développé pour l'Institut d'Optique. Les problèmes évoqués avec lui au cours de l'optimisation de l'objectif nous ont aussi permis de mieux comprendre les aberrations de nos hologrammes et en particulier l'importance des aberrations de champ (position des pupilles) pour définir la résolution (cf. § 9.3.2.c). Plusieurs combinaisons ont été examinées avant d'aboutir à celle qui servira de base à l'objectif définitif. Elle est présentée sur la figure 9.8. Avant sa réalisation, elle devra encore subir quelques retouches mineures pour adapter les rayons de courbure aux calibres du fabricant (Micro-contrôle - Nacet).

La combinaison retenue comporte 5 lentilles convergentes suivies d'une lentille divergente qui permet d'augmenter, pour le fabricant, la dimension des ménisques. Toutes ces lentilles sont en silice, et l'objectif a été calculé pour la longueur d'onde $\lambda = 244$ nm qui correspond au doublage en fréquence de la raie intense à 488 nm, du laser à l'argon. - La silice est l'un des rares matériaux optiques utilisables à ces courtes

longueurs d'onde et le plus facile à travailler. - Les caractéristiques théoriques du montage de reconstruction $2f-2f$ avec cet objectif, sont les suivantes.

Longueur d'onde	$\lambda_1 = 244 \text{ nm}$ (laser Argon doublé)
Focale de l'hologramme	$f = 32 \text{ }\mu\text{m}$
Ouverture numérique objet	O.N. = 0.9
Résolution holographique	$r = 84 \text{ nm}$
Grandissement optique	$G_{opt} = 92,2$
holographique	$G_{hol} = 184,5$
Séparation source-détecteur	$\lesssim 0,4 \text{ mm}$
Centrage du couple source-détecteur	$< 50 \text{ }\mu\text{m}$



1/2 hologramme + $5m + d$
 LL7B2P56E.DAT
 Focale : -5.9 mm

1 mm

12/06/91

Figure 9.8

Schéma de l'objectif de reconstruction

CONCLUSION

DE LA TROISIEME PARTIE

Le problème de l'enregistrement d'hologrammes haute résolution et celui de leur reconstruction, ont été envisagés dans un objectif précis : celui de faire de la **MICROSCOPIE X**. En introduisant ce sujet, nous posons déjà la question suivante :

Peut-on faire de l'holographie de Gabor en rayons X, un outil opérationnel, au même titre que les microscopes à réseaux de Fresnel ?

Le travail rapporté ici, permet de donner un certain nombre de réponses.

- 1) L'enregistrement d'hologrammes de Gabor peut être réalisé facilement avec une source de rayonnement synchrotron de type onduleur. Des hologrammes ont été enregistrés à ACO à 10 nm de longueur d'onde ; la résolution de franges obtenue a été conforme à ce qui était attendu du montage. Pour la source Super-ACO de LURE, nous avons réalisé une ligne de lumière cohérente, qui est actuellement opérationnelle. Elle a été optimisée pour une résolution de 0,1 μm , dans la bande spectrale 2 - 4 nm. Il est important de noter ici que les applications d'une ligne de lumière cohérente ne sont pas limitées à la seule holographie X. D'autres expériences demandent de la cohérence, en particulier les expériences d'interférométrie. Une expérience de mesure d'indices par interférométrie X est d'ailleurs en préparation.

- 2) Les hologrammes de Gabor enregistrés en rayons X, peuvent être reconstruits avec une résolution compatible avec la microscopie, par les méthodes de l'optique. Pour notre part, nous avons reconstruit des hologrammes de Gabor dans la configuration *foyer - infini*, et la résolution des images obtenues ($\sim 0,5 \mu\text{m}$), a été conforme à ce que l'on pouvait attendre compte tenu des moyens employés : laser He-Ne ($\lambda=633 \text{ nm}$) ; ouverture numérique $\text{O.N.} \approx 0,6$.
- 3) L'analyse des conditions optimales d'une reconstruction optique montrent qu'une résolution extrêmement élevée peut être obtenue. Elle est égale à $1.2 \lambda/4(\text{O.N.})$ (λ étant la longueur d'onde de reconstruction, et O.N. l'ouverture numérique du système optique, côté hologramme). En pratique, en travaillant dans l'UV, on peut obtenir des résolutions meilleures que $0,1 \mu\text{m}$, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que celle des microscopes à réseaux de Fresnel. D'autre part, les problèmes de bruit particuliers à la formation d'images en éclairage cohérent sont bien résolus par un système de reconstruction à balayage.

Cette étude théorique de la reconstruction optique a conduit à définir pour la reconstruction, un microscope optique à balayage dont la construction est maintenant notre principal objectif. Utilisant la longueur d'onde d'un laser à Argon doublé en fréquence, et un objectif d'ouverture $\text{O.N.} = 0,9$ spécialement calculé pour compenser les aberrations holographiques, ce microscope devrait atteindre une résolution proche de 85 nm .

- 4) La présence d'une image jumelle est un problème fondamental de l'holographie de Gabor. Pour l'éviter, certains auteurs proposent d'autres systèmes holographiques plus difficiles à mettre en œuvre et plus exigeants en cohérence : montage à porteuse inclinée ou de pseudo-Fourier.

L'image jumelle ne peut pas être éliminée par de simples moyens optiques ; par contre, son influence dans l'image observée dépend fortement de la distance d'enregistrement et elle affecte surtout les fréquences basses qui sont les moins intéressantes pour un microscopiste. Des simulations que nous avons effectuées, nous pensons pouvoir conclure que l'image jumelle ne perturbe que très peu les images quand les hologrammes sont enregistrés avec plus de 100 franges par point, ce qui correspond à une distance d'enregistrement de 2 mm à la longueur d'onde de 4 nm .

De plus, un traitement numérique de l'image reconstituée, doit pouvoir encore améliorer la qualité des résultats. Les algorithmes de traitement, que nous étudions avec G. Koren, sont encore à leur début. Le passage du stade actuel du traitement d'une image unidimensionnelle simulée à celui d'une image réelle, ne sera probablement pas direct. Ce qui apparaît actuellement, c'est qu'un traitement numérique peut améliorer la reconstruction d'une image enregistrée dans de telles conditions que l'image jumelle défocalisée s'étale largement autour de l'image réelle de l'objet (nombre de Fresnel grand pour la dimension de l'objet considéré). En champ proche par contre (petits nombres de Fresnel), l'image au point et sa jumelle défocalisée occupent pratiquement la même région du plan de reconstruction ; les algorithmes actuels ne les séparent pas, et il sera certainement difficile d'y arriver. Il reste donc important d'éviter de travailler en champ trop proche. Notons cependant qu'en microscopie, on est surtout intéressé par les petits détails et qu'un défaut de rendu des gros objets est moins important.

Il faut dire enfin, que le problème du choix entre reconstruction optique et reconstruction numérique, n'est pas tranché par cette étude. Il s'agit avant tout d'une question pratique : pour obtenir des images à résolution donnée, quelle est la méthode la plus pratique et la plus agréable d'emploi pour ses utilisateurs ? Notre réponse est : la reconstruction optique quand elle est possible - jusqu'à 80 nm, peut-être 60 nm de résolution - parce que la méthode est directe. Pour des résolutions supérieures, la reconstruction optique nécessite des longueurs d'onde plus courtes, donc d'autres techniques que celles que nous avons considérées ici ; la reconstruction numérique peut alors se révéler plus avantageuse.

Il reste donc un bon nombre de questions en suspens à la fin de ce travail, auxquelles nous aurions aimé donner des réponses sous une forme moins interrogative. Il faudra pour cela attendre les résultats du microscope de reconstruction optique qui est actuellement en voie de réalisation.

ANNEXES

ET

REFERENCES

ANNEXE I

CALCUL DE LA REFLECTIVITE DES MIROIRS POUR LES RAYONS X

La réflectivité à l'incidence i_1 se calcule classiquement par les formules de FRESNEL [BORN et WOLF]

$$R_{\perp} = \left| \frac{n_1 \cos i_1 - n_2 \cos i_2}{n_1 \cos i_1 + n_2 \cos i_2} \right|^2 \quad (\text{A1.1})$$

$$R_{\parallel} = \left| \frac{\cos i_1/n_1 - \cos i_2/n_2}{\cos i_1/n_1 + \cos i_2/n_2} \right|^2$$

où n_1 et i_1 sont les valeurs de l'indice de réfraction et l'angle d'incidence du rayonnement dans le milieu extérieur, n_2 est l'indice de réfraction du matériau du miroir et i_2 l'angle de propagation dans ce milieu. Les angles i_p sont ceux du vecteur d'onde dans le milieu p , avec la normale à la surface du miroir. Dans ce milieu l'onde qui se propage a la forme suivante

$$E = E_0 e^{i\omega t} e^{-i\omega/c n_p (\sin i_p x + \cos i_p y)} \quad (\text{A1.2})$$

Lorsque les indices sont complexes, l'angle i_p n'est plus réel car l'onde est alors inhomogène et s'atténue selon oy , mais les relations de Fresnel restent encore valables ainsi que la relation de Snell et Descartes

$$n_1 \sin i_1 = n_2 \sin i_2 \quad (\text{A1.3})$$

Dans le cas usuel, où le premier milieu est d'indice 1 (vide ou air)

$$R = \left| \frac{\cos i_1 - \xi_2}{\cos i_1 + \xi_2} \right|^2 \quad (A1.4)$$

$$R_{\parallel} = \left| \frac{n_2^2 \cos i_1 - \xi_2}{n_2^2 \cos i_1 + \xi_2} \right|^2$$

dans ces formules on évite d'utiliser les lignes trigonométriques complexes en notant par $\xi_2 = n_2 \cos i_2$, le cosinus directeur du vecteur d'onde dans le milieu absorbant. On obtient facilement le module et la phase de $\xi_2 = |\xi_2| e^{i\varphi}$ au moyen de la relation suivante, issue de l'éq. A1.3, dans laquelle on utilise la notation habituelle $n_2 = 1 - \delta - i\beta$ et

$$\xi_2^2 = |\xi_2|^2 e^{2i\varphi} = \cos^2 i_1 - 2\delta - 2i\beta \quad (A1.5)$$

on obtient alors les formules suivantes, faciles à programmer sur un ordinateur.

$$R = \frac{(\cos i_1 - |\xi_2| \cos \varphi)^2 + |\xi_2|^2 \sin^2 \varphi}{(\cos i_1 + |\xi_2| \cos \varphi)^2 + |\xi_2|^2 \sin^2 \varphi} \quad (A1.6)$$

$$R_{\parallel} = \frac{[(1-2\delta)\cos i_1 - |\xi_2| \cos \varphi]^2 + [2\beta \cos i_1 - |\xi_2| \sin \varphi]^2}{[(1-2\delta)\cos i_1 + |\xi_2| \cos \varphi]^2 + [2\beta \cos i_1 - |\xi_2| \sin \varphi]^2}$$

On trouvera au chapitre 4, les courbes de réflectivité du platine et du nickel, qui sont deux matériaux très utilisés pour fabriquer des miroirs dans les X mous. On remarquera particulièrement sur la figure 4.4, que la différence entre les deux polarisations est extrêmement faible comme le suggère la comparaison des expressions A1.6

ANNEXE II

CALCUL DU RESEAU

DU MONOCHROMATEUR

DE LA LIGNE DE "LUMIERE COHERENTE" DE SUPER-ACO

Nous indiquons ici la procédure utilisée pour optimiser le réseau de la ligne de lumière que nous avons aménagée pour poursuivre les expériences d'holographie X à Super-ACO. Les conditions à remplir ont été exposées au § 8.3.2 : une dispersion réciproque proche de la valeur optimale $K = 0,5 \text{ \AA/mm}$; utilisation de l'enceinte et de la partie mécanique du monochromateur existant avec une fente d'entrée à 2927 mm, mais réalisation d'une fente de sortie différente grâce à la déviation d'un miroir plan supplémentaire.

Comme les autres réseaux préexistant du monochromateur, le nouveau réseau doit rester un réseau holographique à support torique, et fonctionner avec un angle de déviation fixe égal à 172° . La figure (A2.1) précise comment sont définis les paramètres qui le caractérisent. Le support torique est caractérisé par ses deux rayons de courbure R et ρ . Le réseau lui-même est défini par les deux ondes sphériques qui servent à l'enregistrer dans le visible à la longueur d'onde λ_0 ($\lambda_0 = 488 \text{ nm}$). Nous appelons C et D les deux points sources de construction. Ils sont repérés par leurs distances au centre O du réseau, ℓ_c et ℓ_d , et l'angle de OC et OD avec la normale au réseau Ox, respectivement θ_c et θ_d . Ces six paramètres suffisent à définir le réseau holographique puisque le système possède un plan de symétrie xOy.

Nous cherchons maintenant à l'utiliser et à l'optimiser dans des conditions particulières : le réseau est employé avec la fente de sortie au point A à la distance ℓ_a de O et la fente de sortie au point B à la distance ℓ_b de O. Le réseau peut être orienté autour du point O, mais les deux fentes sont fixes, de telle sorte que la déviation totale est constante et que

$$\theta_b - \theta_a = \mathcal{D} = 172^\circ \quad (\text{A2.1})$$

θ_a et θ_b représentent les angles des directions des fentes avec la normale au réseau. La longueur d'onde de sortie ne dépend que de l'angle d'incidence θ_a par la relation des réseaux

$$\sin\theta_b + \sin\theta_a = N p \lambda \quad (\text{A2.2})$$

où N est la fréquence du réseau au centre et est déterminée par les angles θ_c et θ_d de construction :

$$\sin\theta_c \text{ et } \sin\theta_d = N \lambda_o \quad (\text{A2.3})$$

et p est l'ordre utile du réseau.

Dans notre utilisation particulière, la distance de la fente d'entrée du monochromateur est fixée :

$$\ell_a = 2927 \text{ mm} \quad (\text{A2.4})$$

la distance de la fente de sortie et le nombre de traits du réseau sont liés par la dispersion de sortie souhaitée K. K s'obtient en dérivant (A2.3) :

$$K = \frac{1}{\ell_o} \left(\frac{\partial \lambda}{\partial \theta_b} \right)_{\theta_a} = \frac{\cos \theta_b}{\ell_b N p} \quad (\text{A2.6})$$

Finalement, les 5 paramètres d'utilisation sont liés par 5 relations. Seul reste à choisir l'ordre utile $p = \pm 1$. Il nous faut donc maintenant déterminer les paramètres du réseau pour obtenir la meilleure conjugaison entre fente d'entrée et fente de sortie sur l'ensemble de l'intervalle spectral utile. D. Lepère [LEPERE, 1975] a donné le développement au troisième ordre de la surface d'onde diffractée par un réseau holographique torique lorsqu'il est éclairé par une onde stigmatique centrée au milieu de la fente d'entrée. L'écart normal entre cette surface d'onde et la surface d'onde stigmatique centrée au milieu de la fente de sortie s'écrit :

$$\Delta = T Y^2 + A Z^2 + C_1 Y^3 + C_2 Y Z^2 + S_1 Y^4 + S_2 Y^2 Z^2 + S_3 Z^4 \quad (\text{A2.7})$$

(La parité en Z de cette expression est imposée par la symétrie).

Les coefficients T à S_3 dépendent des paramètres du réseau et de la longueur d'onde. On trouvera leur expression explicite dans [LEPERE, 75]. Par référence aux termes d'aberration d'un système optique utilisé sous l'angle de champ θ_a , on les nomme :

T : coefficient de défocalisation tangentielle
 A : " " sagittale ou d'astigmatisme
 C_1 et C_2 : coefficients de Coma
 S_1, S_2, S_3 : " d'aberration sphérique.

Pour optimiser le réseau, il faut réduire les termes d'écart normal les plus importants et tout d'abord les deux termes de défocalisation. Nous imposons donc à T et A de s'annuler pour deux valeurs de la longueur d'onde situées au bord de l'intervalle utile, λ_1 et λ_2 . Parmi les termes restants, les plus gênants sont les termes de Coma et tout particulièrement le terme de Coma 1. Nous imposons de l'annuler ou de le minimiser pour une longueur d'onde λ_c . Nous définissons ainsi cinq relations d'optimisation et il nous reste un dernier paramètre pour conduire cette optimisation.

La pratique du calcul a montré que la minimisation du terme de Coma 1 ne pouvait être réalisée de façon satisfaisante que pour des rapports $\frac{\ell_b}{\ell_a} < 1$ dans l'ordre +1 ($p = 1$) et

$\frac{\ell_b}{\ell_a} > 1$ dans l'ordre -1 ; cette minimisation est d'autant plus

difficile à obtenir que $\frac{\ell_a}{\ell_b}$ est proche de 1. Dans la pratique du calcul, nous n'avons pas utilisé directement la relation (8.13) mais fixé ℓ_b à une valeur pas trop petite, $\ell_b = 2500$ mm, valeur pour laquelle la minimisation de C_1 reste possible. La dispersion $K \sim 0,5 \text{ Å/mm}$ est alors obtenue pour $N = 500$ traits/mm ; ce faible nombre de traits présente surtout l'avantage d'offrir une assez large bande passante.

L'optimisation est alors conduite avec $\lambda_1 = 30 \text{ Å}$, $\lambda_2 = 65 \text{ Å}$. On obtient ainsi une bonne focalisation sur l'intervalle spectral 20-80 Å. La longueur de minimisation de la

coma a été ajustée expérimentalement. Sa valeur n'a pas véritablement de signification physique. Nous avons trouvé qu'un choix de λ_c un peu à l'extérieur de la région spectrale utile du côté des courtes longueurs d'onde, tendait à réduire l'aberration maximale au bord de la pupille. Pour une pupille de 150 x 50 mm nous avons utilisé $\lambda_c = 10 \text{ \AA}$.

A la fin de ce calcul, il faut encore que les points de construction C et D soient réalistes. Il apparaît en effet que la distance ℓ_c est très grande. Il est donc convenable de rejeter le point C à l'infini, c'est-à-dire de construire l'hologramme avec une onde plane. L'optimisation est alors poursuivie par un tracé de rayons, en calculant les dérivées partielles par rapport aux divers paramètres d'une fonction de mérite. Cette fonction de mérite est l'écart quadratique moyen entre rayons dans le plan de la fente de sortie, pour une pupille donnée. Nous nous sommes arrêtés aux paramètres suivants :

Paramètres de construction :

Rayons de courbure : $R = 39\,732,8 \text{ mm}$
 $\rho = 188,124 \text{ mm}$

Points de construction à $\lambda_o = 4880 \text{ \AA}$

C	$\ell_c = \infty$	$\theta_c = -48,67^\circ$
D	$\ell_d = -334,437$	$\theta_d = -84,2213^\circ$

$\Rightarrow$ Nombre de traits $N = 500 \text{ traits/mm}$

Paramètres d'utilisation :

Distance des fentes

fente d'entrée	$\ell_a = 2927 \text{ mm}$
fente de sortie	$\ell_b = 2500 \text{ mm}$

Déviatiion $\mathcal{D} : 172^\circ$

Ordre $p = +1.$

Dispersion moyenne $K = 0,45 \text{ \AA/mm}$

Nous noterons que la formule retenue présente quelques caractéristiques inhabituelles à ce type de réseaux. D'abord, on utilise l'ordre $+1$, c'est-à-dire que l'on a le bras court et un angle rasant en sortie, le bras long et un angle d'incidence inférieur à $D/2$ en entrée. On notera surtout le rapport des bras proche de 1, nécessaire pour obtenir la dispersion de sortie voulue avec un petit nombre de traits, et la grande plage d'utilisation qui en résulte (cf. figure 8.8). Pour la fabrication, cela conduit à une onde C plane et à une longueur ℓ_d négative, c'est-à-dire à une onde D convergente.

ANNEXE III

ARTICLESSUR LA MICROANALYSE D'ABSORPTIONET LA DETECTION D'IMAGE PAR CONVERSION X - VISIBLE

- 1) Principe et dispositif expérimental pour la microanalyse d'absorption :

X-ray microanalysis near an absorption edge using Synchrotron radiation: how to obtain quantitative results

E. Bigler, F. Polack, S. Lowenthal
Optics Communications 41, 6 -12 (1982)

- 2) Exemple de résultats :

Large field X-ray absorption microanalysis near an absorption edge by image processing

E. Bigler, F. Polack
Journal de physique C2, 83 - 86 (1984)

- 3) Detecteur d'image X à fibres optiques scintillatrices :

Scintillating optical fiber array for high resolution x-ray imaging over 5keV

E. Bigler, F. Polack
Applied Optics 24, 994 - 997 (1985)

X-RAY MICROANALYSIS NEAR AN ABSORPTION EDGE USING SYNCHROTRON RADIATION: HOW TO OBTAIN QUANTITATIVE RESULTS

E. BIGLER, F. POLACK* and S. LOWENTHAL

Institut d'Optique, Université Paris-Sud, Bâtiment 503, 91406 Orsay Cedex, France

Received 13 November 1981

X-ray absorption microanalysis by contact microscopy with synchrotron radiation potentially offers the advantages of high resolution and large fields. However, difficulties appear when quantitative results are required, due in particular to the image detectors that are used. The degree of confidence in quantitative results is examined for photographic detectors. Computer processing is performed taking into account several factors such as the recording process, emulsion response, alignment of image pairs for subtraction, presence of harmonics in the synchrotron beam. As an example we show the analysis of nickel in 20 μm thick polymetallic nodule section on an area of $5.1 \times 5.1 \text{ mm}^2$.

Synchrotron radiation has proved to be an interesting tool for X-ray contact microscopy [1–3] and chemical microanalysis near an absorption edge [3,4]. These methods offer potentially two advantages: high resolution and large fields. This has effectively been proved in pure X-ray microscopy [1,5,6]. In spatial microanalysis, an additional problem appears: how to get quantitative or semi-quantitative results. The discussion of this question is the scope of this paper.

The two types of detectors that are currently used for contact microscopy bring severe limitations into analytical methods, but are complementary. Photoresists show high resolutions (100 $\text{\AA}$ in some cases [1,7]), but the nonlinearity of the final response makes them inadequate for quantitative output and their sensitivity is low for hard X rays. On the other hand, photographic plates can be used over the full X-ray spectrum but their resolution is limited to the micron range. Their response is also nonlinear, but far less than in the case of photoresists and is better known.

In this paper, we shall try to show how semi-quantitative chemical microanalysis can be obtained on large fields (up to a few cm^2) with photographic plates.

In several cases, the major factor of interest in microanalysis is the large field, a very high resolution being of less importance. This occurs for instance in geology, where a typical example can be found in the study of polymetallic nodules. In this case, an overall chart of the chemical elements could support the theory of the chemical history of the nodules. Other examples can be found in geology and biology. We present on fig. 1c a $5.1 \times 5.1 \text{ mm}^2$ chart of nickel in a polymetallic nodule. The sample was approximately 20 μm thick and the average concentration was between 5 and 10% in mass of nickel on this part of the nodule (the main chemical elements in these nodules are manganese and iron the concentration of which can reach up to 50%).

At first, let us briefly recall the principles of X-ray absorption microanalysis [8,9] in order to point out all the factors that are involved in feature extraction. Two contact microradiographs of the sample are recorded with a tunable monochromatic beam (the use of synchrotron radiation is essential for this purpose). The two images are recorded with two different wavelengths chosen on both sides of an absorption edge of the chemical element which is to be localized. We want to extract the two-dimensional chart of the quantity $m(x, y)$ which is the mass per unit area of the element of interest. For simplicity we

* Also L.U.R.E., Université Paris-Sud, Bâtiment 209 C, 91405 Orsay Cedex, France.

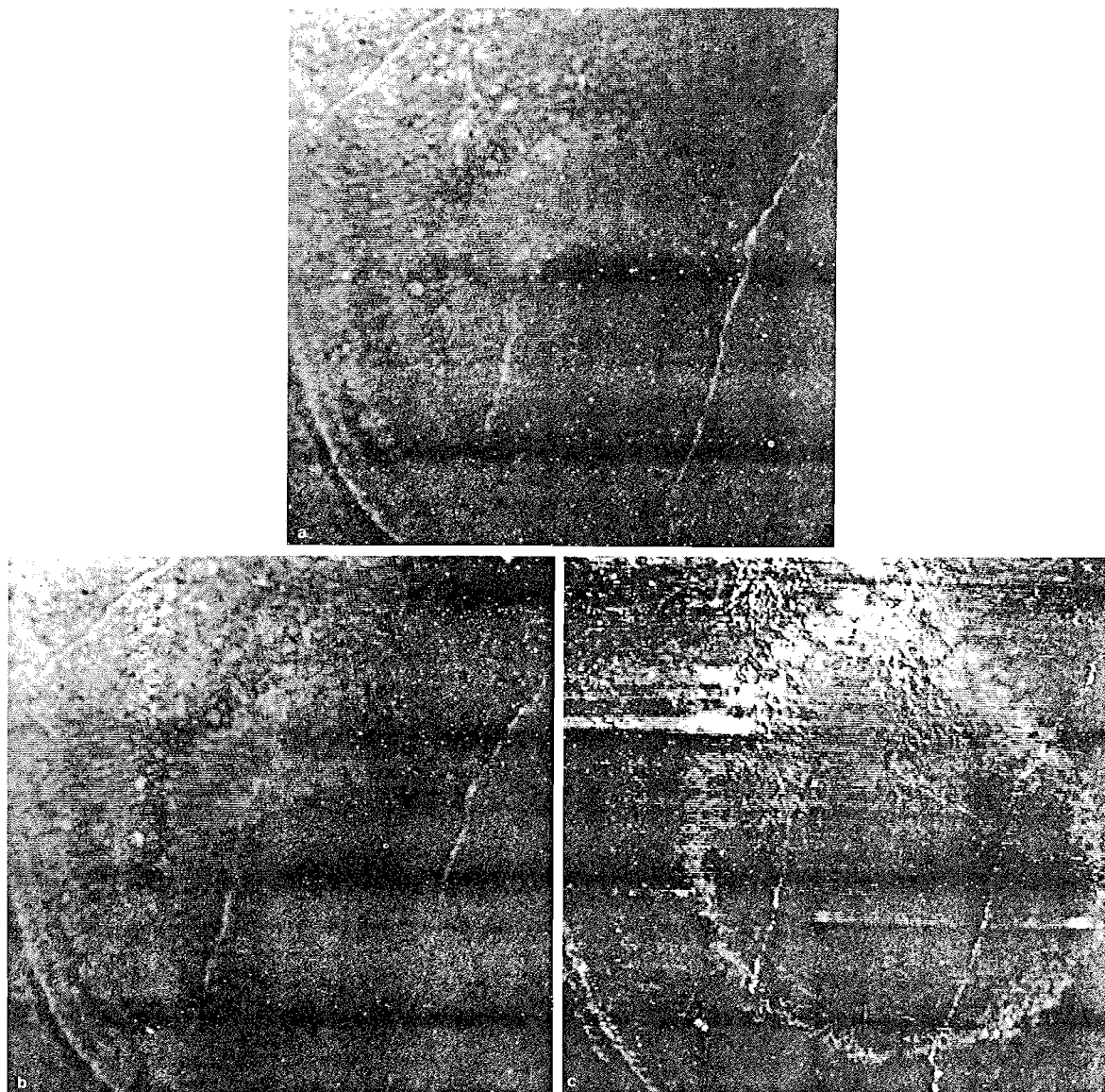


Fig. 1. Contact images of a polymetallic nodule sample with synchrotron X-ray illumination. Analysis of nickel. a) Wavelength $\lambda = \lambda_1$ on the minimum absorption side of the nickel K-edge (8.33 keV), b) Wavelength $\lambda = \lambda_2$ on the maximum absorption side of the K-edge: by visual inspection the difference with image 1a is hardly noticeable, c) Processed image showing concentration zones of nickel (e.g. the white circular zone).

shall use the equivalent thickness $t(x, y)$:

$$m(x, y) = \rho t(x, y),$$

where ρ is the mass per unit of volume of the pure element.

Assuming that the intensity of the X-ray beam is the same at each point of the observed field for the two recordings (just the wavelength has slightly changed after crossing the absorption edge), the following response is obtained if the detector is linear:

$$R_{1,2}(x, y) = I_{1,2}(x, y) K_{1,2}(x, y) T_{1,2}(x, y). \quad (1)$$

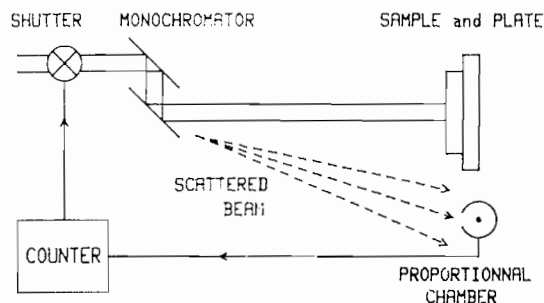


Fig. 2. Schematic diagram of the recording experiment.

Index 1 stands for the wavelength just above the absorption edge of one chemical element and index 2 for the wavelength just under. x, y are the coordinates of one point of the field. $I_{1,2}$ is the intensity of the beam at the wavelengths λ_1 or λ_2 . $K_{1,2}$ is the response scale factor of the linear detector. $T_{1,2}$ is the transmittance of the sample.

A given sample is characterized by the equivalent thicknesses $t_{1,2}^i(x, y)$ of the different chemical elements i . Their absorption coefficients are $\mu_{1,2}^i$:

$$T_{1,2} = \prod_i \exp(-\mu_{1,2}^i t_{1,2}^i).$$

In an ideal case, we may assume that: (i) $I_1 = I_2$, (ii) $K_1 = K_2$, (iii) for all the elements (number i) except the one which is being searched (number k for instance) the absorption discontinuities are far from λ_1 and λ_2 , and therefore:

$$\mu_1^i = \mu_2^i \quad \text{for all } i \neq k,$$

$$\mu_1^k \neq \mu_2^k, \quad \text{and } \mu_1^k - \mu_2^k = \Delta\mu^k.$$

The thickness $t(x, y)$ is then obtained by calculation of the quantity:

$$\ln(R_1(x, y)) - \ln(R_2(x, y)) = \Delta\mu^k t^k(x, y), \quad (2)$$

where $\Delta\mu^k$ is the edge-jump of the coefficient μ^k and is given by tables.

Let us now review in some detail the above assumptions. The main factors that could limit the precision in determining the thickness t are: inequality of exposure for both images, non-monochromaticity of the beam, non-linearity of the detector, difficulties in the registration (i.e. alignment) of the two images for digital processing. We comment here on

the problems which have already been solved and on what will be done in the next experiments.

1) Inequality of exposure

The exposure time of each plate is calculated by an automatic exposure meter. It is based on a flowing gas X-ray proportional counter, which measures the radiation scattered by air between the monochromator and the sample (fig. 2). An electronic digital preselection-counter follows, and stops the exposure when each plate has received the same number of photons.

During the exposure, plate and sample in contact are translated horizontally in a sinusoidal way in order to average the beam defects due to the monochromator. These defects appear as a double horizontal line on fig. 1c (a black and white one). The images of the defects are not exactly superposed on the two contact images because of the small rotation of the monochromator (necessary to change the wavelength), which causes a vertical shift of the beam of approximately 0.1 mm. For this reason, the defect appears split in two on the processed image obtained after registration of the two original images. These are easily identified as artefacts by their specific shape.

Let us finally mention that the spectral sensitivity of the detector remains almost the same for the two exposures, because the wavelength shift is small; an exception would occur in the case of photographic plates for which the sensitivity changes quickly when the wavelength crosses an absorption edge of silver or bromine. Of course, for this reason, a photographic plate would not be the proper detector for analysis of either of these elements.

2) Harmonics and monochromaticity of the beam

The relative bandwidth of the channel-cut monochromator is $\approx 10^{-4}$; that is far better than necessary, but a more severe limitation is due to the presence of the 2nd harmonic $\lambda/2$ which passes through any crystal monochromator tuned on the wavelength λ (higher order harmonics can be neglected because of the cutoff in the synchrotron spectrum of DCI (Orsay storage ring) at energies higher than about 10 keV).

In the beam transmitted by the sample, the ratio (2nd harmonic)/(1st harmonic) grows exponentially with the thickness of the layer; that could be very troublesome when working with a photographic plate.

In fact, tests on the beam delivered by our monochromator have been made with a discriminating detector and have shown that the ratio of photons (2nd harmonic)/(1st harmonic) was probably less than 10%. These tests are not easy, as all measurements on high X-ray intensities. Discriminating monochromators have been proposed to solve the 2nd harmonic problem [10,11]; they are based on a voluntary misalignment of the two crystals. Such a monochromator will be used at LURE-DCI in the future.

However, we can estimate the influence of the 2nd harmonic on a differential absorption measurement. Let us first assume a linear detector.

At the wavelengths $\lambda_{1,2}$, the recorded signal is no longer $R = IKT$ (see eq. (1)), but $R' = R + B$, where B is the background due to the 2nd harmonic.

The difference $R'_2 - R'_1$ eliminates B . (We can assume that $B_1 = B_2 = B$ since the probability is small that $\lambda_B = \lambda_{1,2}/2$ corresponds to the absorption edge of another element in the sample). But this does not yield the quantity of interest, i.e. the thickness t^k (see eq. (2)).

Thus we may use the quantity: $\ln(R'_1/R'_2) = [(R_1 + B)/(R_2 + B)]$ and investigate the influence of the perturbing term B .

Let us examine:

$y = \ln(R'_1/R'_2)$ function of the variable $x = t\Delta\mu$ for a given B .

If $t\Delta\mu \ll 1$, then

$$\ln(R'_1/R'_2) \approx t\Delta\mu R_2/(R_2 + B), \quad (3)$$

If $t\Delta\mu \gg 1$, then

$$\ln(R'_1/R'_2) \approx t\Delta\mu - \ln(1 - B/R_2). \quad (4)$$

The relative error on t is approximately B/S_2 in the worst case, i.e. for small values of t . A correction is possible for this systematic error: we plot the curve $\ln(R_1/R_2)$ for different values of t obtained with a known reference sample, and then fit the curve to get the parameter B/S .

3) Nonlinearity of the detector

The previous analysis is related to beam and exposure problems. Let us now see how quantitative results can be obtained from our detector. First, let us discuss briefly why quantitative results are difficult to obtain from photoresists [6].

After chemical processing, the resist presents

micro-reliefs which are related to the X-ray dose received, in a strongly nonlinear way; the response is more or less binary: each point having received a dose above a certain threshold will present the same height. In addition, the resist must be examined with a SEM (Scanning Electron Microscope), and the electronic image depends more on the slopes of the resist relief than on its heights. Thus, the signal coming out of the SEM is not related in a simple way to the initial X-ray exposure.

A photographic plate is more likely to give quantitative results. The output of this detector is the optical density which is measured with a microdensitometer.

A large amount of work has been done on photographic plates in the field of *soft X rays* [9,12,13,14]. Especially for contact microradiographs, we may refer to [15] and [16]. Kodak H-R plates have been used for this purpose [16]. In our case we use *hard X rays*, with a monochromatic beam. It is important to point out that a density of 2 is obtained on these plates after a 3 hour exposure with a classical polychromatic X-ray apparatus. We get the same result with a 6 min. exposure in spite of the loss of photons due to the monochromator; although the sensitivity of these plates is low, exposure times are reasonable.

These plates offer some advantages in comparison with classical X-ray films. The maximum resolution is about $1 \mu\text{m}$ (limited only by the mean free path of photoelectrons). The glass support gives very high dimensional stability, which is important for the microdensitometer scanning and the ensuing registration.

The H.R. emulsions present several advantages for quantitative analysis: (i) the film grain noise is low, (ii) the influence of The Callier effect is low [17], (iii) the aperture of the analysing microscope is large; thus with the thin H.R. emulsion, a better resolution is obtained compared to thick emulsions; for example, the use of nuclear emulsions (fine grain but thick layer) would give an improvement of sensitivity, but simultaneously a loss of resolution (see fig. 3).

We just need a relative calibration of the plates, as we calculate a ratio of two responses of the detector on *homologous* points. For this purpose, we record on the same plate and with the same exposure the two images and a calibration scale.

It is well known that, in the X-ray region, the plates obey the reciprocity and intermittency law [12,15];

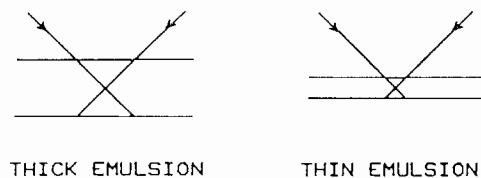


Fig. 3. Microdensitometer analysis: resolution limitation due to geometrical diffusion. The dimension of the spot is proportional to emulsion thickness for a given aperture of the analysing beam. Diffraction effects and emulsion diffusion modify of course this geometrical model.

then just one density curve $D(I, \tau)$ gives us the response of the plate, where I is the irradiance and τ the exposure time. The curves $D(I, \tau)$ on fig. 4 are obtained by exposing one plate covered with aluminum layers of increasing thickness. They show a parabolic shape crossing the origin of axes because the densities are measured with reference to the fog. A reasonable fit to our experimental points is given by:

$$E = A_0 D(1 + A_1 D),$$

where $E = I\tau$ is the exposure. The factor A_0 is eliminated in eq. (2). The factor A_1 results from the measurements (see fig. 4). Further experiments with better calibration samples will improve the model.

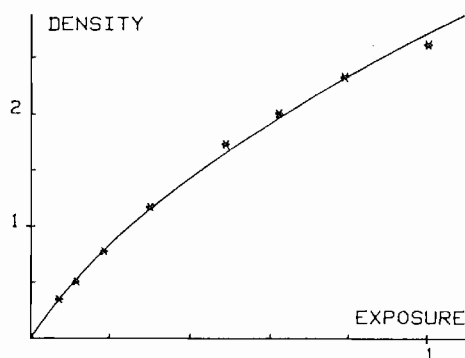


Fig. 4. Density versus exposure curve for a Kodak H.R. plate type 1 A at $\lambda = 1.7 \text{ \AA}$. Exposure is in arbitrary units. Experimentally the exposure time was 6 min through aluminum layers with transmittance increasing from 0.071 to 1.

4) Problems of image registration for digital processing

The images are digitized with a microdensitometer that offers a minimum aperture of $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ and an accuracy of $1 \mu\text{m}$ for the position. Usually, we work with a $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ aperture and record a 256×256 pixels image that covers a $5 \times 5 \text{ mm}^2$ field. For each image, the same region of interest is scanned successively. The problem is to make sure that the two digitized images represent exactly the same part of the sample. For this purpose, we use control points that are visually selected on the sample and to which the same set of coordinates are given.

We have found that two control points separated on the sample by a distance of approximately 2 cm could be registered with an accuracy better than $2 \mu\text{m}$. It shows that the stability is very good, and that the sample itself, which is mounted on a thin mylar support, remains stable between the two exposures.

The quality of image registration can be optimized by a visual inspection of an image showing the absolute values of differences between the two original images, which is displayed on a TV monitor. If necessary, a new scan is made to minimize differentiation effects on the sharp edges of the images.

With this technique, we are able to register our images precisely. Usually, a first scan directly gives us an alignment of $\pm 4 \mu\text{m}$, which is sufficient for elements like Fe or Mn, because the "true" difference signal is strong in that case. With elements of lesser concentration like Ni, the artefacts due to the differentiation of sharp edges already stand above the difference signal with a misalignment of $\pm 4 \mu\text{m}$. Cancelling these artefacts by a new scanning slightly different yields a $\pm 2 \mu\text{m}$ final registration, even if the aperture size is $20 \times 20 \mu\text{m}^2$. It may seem paradoxical that 0.2 pixel can be visualized and that this fraction of pixel introduces artefacts, since one pixel is the smallest image element.

The explanation of this phenomenon lies in the fact that our images present very sharp edges in some places; the differentiation of a sharp edge with a density jump of 1 causes a density peak of 0.5 in the absolute value of the difference when the misregistration is 1/4 of the aperture size (fig. 5). For this reason, we cannot estimate the presence of the chemical element being sought very near to the sharp edges of the image. (On our images these edges occur where

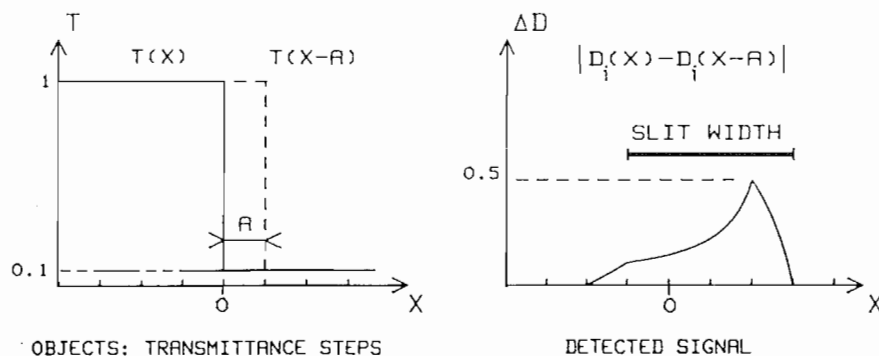


Fig. 5. How a misalignment smaller than one pixel is detected: a) Solid curve: step object. Dashed curve: object shifted by $A = 1/4$ of slit width. b) Difference of the densities D_i measured over the microdensitometer slit for the two objects of fig. 5a: $D_i = -\log_{10}[\int_{\text{slit}} \text{Transmittance}]$.

the sample has been fractured during the sectioning and lapping operations). But the low spatial frequencies of the concentration image remain meaningful.

This manual registration technique needs a certain number of successive testings, but it is precise and thus will be a good preliminary test for when we shall turn to automatic registration techniques that are used for example in digital processing of satellite images [18–21].

The specific aspects of our problem are: (i) that we have the possibility of direct resampling, which is not the case with satellite data, and (ii) that we need sub-pixel accuracy [22].

There is no problem of rotation, scale, or skew matching, but just residual translation to cancel. We think that an a posteriori resampling and correlation algorithm could help us and save time, but this is not at present the most important.

Discussion of first results

Fig. 1c shows an example of a processed image, not yet corrected for the nonlinearity of the response curve of the plate.

The object was a polymetallic nodule section of approximately 20 μm thick. Figs. 1a and b show the two images recorded at the wavelengths λ_1 and λ_2 on each side of the k -edge of nickel at 8.33 keV. By a simple visual inspection, no difference can be seen between the two images, due to the low concentration of nickel (5 to 10% in mass) in opposition to iron and especially manganese, the concentration of which can reach up to 50% and yields a clear visual difference [3].

Each image is digitized to 12 bits. Digital processing consists then in calculating the quantity

$$\ln(D_{\min}) - \ln(D_{\max}),$$

where $D_{\min}$ is the density image recorded at the minimum of absorption of the element (i.e. maximum densities of the image) and $D_{\max}$ is recorded at the maximum of absorption.

The image of fig. 1c shows the result. The field covered is $5.1 \times 5.1 \text{ mm}^2$.

If there were no noise, the processed image would be positive; the noise introduces a few pixels for which the quantity $\ln(D_{\min} - D_{\max})$ is negative. The histo-

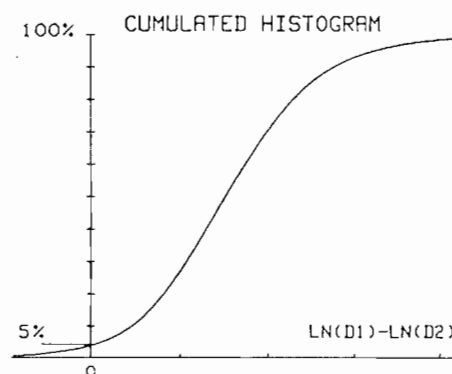


Fig. 6. Physical meaning of the processing: in the cumulated histogram of the subtracted image ΔI (see fig. 1c) only 5% of image points show a negative value, due to noise and residual misalignment of images. The quantity of interest for chemical analysis is $\Delta I = \ln(D_1) - \ln(D_2)$ where D is a density.

gram of fig. 6 shows that less than 5% of the pixels have a negative value in the processed image; that is reasonably good when compared to the fact that the average value of the processed image corresponds to an initial and low density ratio of 1.07/1 of the two initial images.

In conclusion, we can say that with the use of photographic plates it is now possible to get semiquantitative charts of elements in concentrations down to a few percent in mass $\approx 10^{-4}$ g/cm² as in the case of fig. 1c on fields from $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ up to a few cm².

The possibility of covering a large field is a highly interesting feature for geologists; especially the comparison of large field charts of different elements in the same area is decisive on the case of poly-metallic nodules.

In the future with detectors such as an array detector (CCD) or an X-ray microscope based on photoelectrons [23], the contact X-ray absorption microanalysis technique would gain in versatility. For large field and moderate resolutions, investigations could be covered with photographic plates or with array detectors; for small fields, high-resolution analysis would be achieved with a photoelectron X-ray microscope.

We are especially grateful to Prof. M. Steinberg[‡] and co-workers for the selection and preparation of the nodule specimens, helpful assistance during the experiments and fruitful discussion. We would also like to thank Mr. Marion and Mr. Equibey for the help in image digitization with the microdensitometer of CDSI[‡].

[‡] Laboratoire de Géochimie et Sédimentologie, Orsay.

[‡] Centre de dépouillement et de synthèse des Images, Orsay.

References

- [1] E. Spiller, R. Feder, J. Topalian, D. Eastmann, W. Gudat and D. Sayre, *Science* 191 (1976) 1172.
- [2] R. Feder, D. Sayre, E. Spiller, J. Topalian and J. Kirz, *J. Appl. Phys.* 47 (1976) 1192.
- [3] F. Polack, S. Lowenthal, Y. Petroff and Y. Farge, *Appl. Phys. Letters* 31 (1977) 785.
- [4] J. Kirz, *Annals of the New-York Academy of Sciences* 342 (1980) 273.
- [5] W. Gudat, *Nucl. Instr. Methods* 152 (1978) 279.
- [6] J.Wm. McGowan and M.J. Malachowski, *Annals of the NY Ac. of Sciences* 342 (1980) 288.
- [7] E. Spiller and R. Feder, in: *X-ray optics*, ed. H.I. Queisser, *Topics in Appl. Phys.* Vol. 22 (Springer Verlag, Berlin, 1977) p. 35.
- [8] A. Engström, *Acta Radiol. Suppl.* 63 (1946).
- [9] V.E. Cosslett and W.C. Nixon, in: *X-ray microscopy* (Cambridge University Press, Cambridge, 1960) p. 139.
- [10] G. Materlik and V.O. Kostroun, *Rev. Sci. Instrum.* 51(1) (1980) 86.
- [11] D. Mills and V. Pollock, *Rev. Sci. Instrum.* 51 (1980) 1664.
- [12] G.M. Comey, in: *Theory of the photographic process*, 3rd edition, eds. C.E. Kenneth Mees and T.H. James (The Mac Millan Company, New-York, 1966) p. 185.
- [13] L.S. Birks, *SPIE X-ray imaging* 106 (1977) 19.
- [14] B. Nieman, *Annals of the NY Ac. of Sciences* 342 (1980) 230.
- [15] V.E. Cosslett and W.C. Nixon, *ibid.* p. 160.
- [16] A. Engström, R. Greulich, B.L. Henke and B. Lundberg, in: *X-ray microscopy and microradiography*, *Proc. Symposium Cavendish Laboratory*, 1956 (Academic Press, New-York, 1957).
- [17] P. Chavel and S. Lowenthal, *J. Opt. Soc. Am.* 68 (1978) 559.
- [18] D.J. Bamea and H.F. Silvermann, *IEEE Trans. Comput.* C21 (1972) 179.
- [19] K.Y.K. Ng, *Comput. and Elect. Engng.* Vol. 4 (Pergamon Press, 1977) p. 71.
- [20] M. Sveldow, C.D. Mc Gillem and P.E. Anuta, *IEEE Trans. Aerospace and Electronic Systems* AES-14 (1978) 141.
- [21] R. Jeansoulin, A. Bruel, J.Y. Collot, G. Saint and M. Traizet, *Annales des Mines* 186 (1980) 62.
- [22] R. Voles, *IEEE Proc.* 127-F (1980) 401.
- [23] F. Polack and S. Lowenthal, *Rev. Sci. Instrum.* 52(2) (1981) 207.

LARGE FIELD X-RAY ABSORPTION MICRO-ANALYSIS NEAR AN ABSORPTION EDGE BY IMAGE PROCESSING

E. Bigler and F. Polack*

*Institut d'Optique, B.P. 43, 91406 Orsay Cedex, France***L.U.R.E., Université Paris-Sud, Bât. 209 C, 91405 Orsay Cedex, France*

Résumé - La microradiographie de contact en rayonnement X mono-chromatique accordable (synchrotron) permet de faire de l'analyse chimique. On obtient par absorption sélective au voisinage d'un seuil des cartes quantitatives de répartition des éléments sur des champs de l'ordre de 3 cm².

Nous exposons les possibilités actuelles et les développements futurs de la méthode : champ et résolution spatiale, sensibilité et facteurs correctifs.

Abstract - Chemical microanalysis is performed by contact micro-radiography with a tunable synchrotron X-ray beam. Large field (3 cm²) quantitative charts of the elements are obtained by selective absorption near an edge. We expose here present performances and future developments of the method : field and spatial resolution, sensitivity and corrective factors.

Microanalytical study of objects with complex structures requires both a large field and a high spatial resolution. In this paper, we examine how these two opposite qualities can be obtained by X-ray differential absorption near an edge and contact imaging.

1 - PRINCIPLES

1.1. Chemical analysis by X-ray absorption near an edge {1,2}

The transmittance of a sample is measured with a monochromatic X-ray illumination. The beam is successively tuned on each side of an absorption edge of a given element. The concentration C of the analyzed element is given by :

$$C = \frac{1}{m_0 \Delta(\frac{\mu}{\rho})} \ln(N_2/N_1) \quad (1)$$

where (μ/ρ) is the mass absorption edge-jump (cm²/g) of the analyzed element. m_0 is the mass per unit area of the whole sample. N_1 and N_2 are the number of transmitted photons on each side of the absorption edge. The result can also be expressed as a mass per unit area

$$m = \frac{1}{\Delta(\mu/\rho)} \ln(N_2/N_1) \quad (2)$$

1.2. Experimental set-up

The X-ray source is the synchrotron beam delivered by the storage ring D.C.I. in Orsay. A tunable monochromatic beam (1 - 3 Å) is delivered by a channel-cut monochromator (S_i : 220). Two contact microradiographs of the sample (one of each side of an absorption edge) are recorded on a high resolution photographic plate. When the concentration of the analyzed element is greater than $\approx 10\%$, a simple visual comparison of the two images shows the localisation zones of the element {3}.

The field covered is limited only by the section of the synchrotron beam, i.e 3 cm².

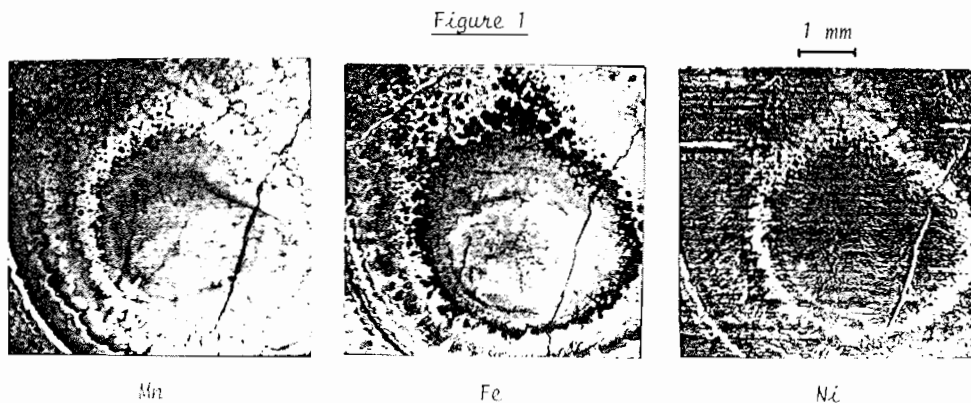
II - IMAGES PROCESSING : EXAMPLE OF RESULTS

2.1. Microdensitometer analysis

An area of interest is visually selected on enlarged prints. The original plates are scanned with a microdensitometer. The analytical signal, given by Eq.(1), is obtained by comparison of optical densities of the two contact images. A calibration scale, recorded on each plate, gives the sensitometric data. The curve plotting optical densities vs number of received photons is linear for optical densities < 1.5. A simple analytical model of the response curve allows a plate calibration up to densities of 2.5. It must be pointed out that we only need a relative calibration, which is much more simple. For example, inequalities of exposure between homologous images can be corrected a posteriori. A careful registration of images pairs is necessary to ensure that the number of photons N1 and N2 in Eq.1 correspond exactly to the same pixel of the sample. This problem is solved during the recording of the second image by displaying the image of local differences. The best registration is obtained when differentiation artefacts disappear near the sharp lines of the image.

2.2. Computer processing

The mass per unit area of the analyzed element is computed for each point of the image (Eq. (2)). The result is a numeric array which is displayed as an image in grey levels. Figure 1. shows 3 analytical charts of Mn, Fe and Ni in a 30 µm-thick polymetallic nodule section. White areas correspond to higher concentrations of the analyzed element. Large field correlations between the concentrations zones of the elements appear clearly on these pictures. It would be rather difficult to obtain such images with a microprobe : a large field method is highly interesting to study objects with complex structures like polymetallic nodules.



2.3. Quantitative output : discussion

The sample shown on Figure 1. has also been analyzed with a S.E.M. The concentration of Mn, Fe and Ni have been measured in their zone of predominance. The sample is known to have an average density of 4 : comparison can be made in concentration terms.

	Mn	Fe	Ni
X-ray absorption	28 %	10 %	3 %
SEM-fluorescence	35 %	16 %	4 %

The systematic under evaluation of our results can be explained by different factors :

- * a non selective detector like the photographic plate records also a fluorescent signal which is additive to the absorption signal. Analysis shows that the contrast between the two images is reduced.
- * the channel-cut monochromator tuned on wavelength λ also delivers the harmonics $\lambda/2$, $\lambda/3$... These high energy components of the beam are not affected by the presence of the absorption edge. Thus, another additive signal is recorded on each image. This phenomenon yields another reduction of the differences between the two images, mostly with thick samples. Let us finally mention that the presence of monocrystals in the sample can bring topographic effects in the contact images. This has never been observed with the nodule samples (Fig. 1.) which are amorphous.

III - PRESENT PERFORMANCES AND IMPROVEMENTS

3.1. Spatial resolution

High resolution plates yield 1 μm resolution, but the final pixel size is determined by the smallest available microdensitometer slit, i.e 5 x 5 μm^2 . It must be emphasized that the photographic plate remains one of the only X-ray images detector with good spatial resolution and quantitative output. With the new photoelectron soft X-ray microscope {4}, we hope to get a .1 μm resolution and quantitative images.

3.2. Sensitivity

Sensitivity is mainly determined by the number of available photons during an absorption measurement. For example, in the case of Iron analysis near the K edge in a 30 μm thick sample (average density : 4), the minimum detectable concentration in a 20 x 20 μm^2 cell is $C_{\text{min}} = 3 \times 10^{-4}$ with a 4 min synchrotron exposure and an ideal detector. Experimentally, the minimum concentration is found to be $\approx 1\%$ in the same conditions, with a photographic detector. To improve sensitivity, we are developing a non saturating scintillation image detector. Our aim is to get 10 μm resolution with counting output.

CONCLUSION

New synchrotron sources such as undulators will deliver 10 to 100 times more photons than the first synchrotron sources. These very intense beams will offer the possibility of X-ray imaging microanalysis with very short exposures. One must choose between two complementary tools : X-ray absorption, and fluorescence. According to J. KIRZ {5}, X-ray absorption is better in the soft X-ray region while fluorescence is more sensitive in the 1 - 3 Å region.

X-ray absorption with contact imaging offers high quality images ; on the other hand fluorescence analysis can be more sensitive {6}, but image reconstruction needs a scanning microscope. At present, there is no available microscope of this kind with a few μm resolution (apart from a pioneer work of HOROWITZ and HOWELL {7}). All the projects of scanning X-ray microscopes include an X-ray focussing optics, and therefore will be limited to the soft X-ray region. In the hard X-ray domain, contact imaging remains the simplest method.

We have shown that quantitative analytical images can be obtained with a photographic detection. We think that the next years will bring important improvements of X-ray images detectors and therefore X-ray absorption microanalysis will be more efficient.

REFERENCES

- {1} ENGSTROM A., Acta Radiol. Suppl. 63(1946)
- {2} COSSLETT V.E. et NIXON W.C., X ray microscopy Cambridge University Press, Cambridge England (1960).
- {3} POLACK F. et al. Appl. Phys. Lett. 31 (1977) 785.
- {4} POLACK F. This conference
- {5} KIRZ J., Ann. N.Y. Acad. Sci. 342, (1980) 273.
- {6} KNOCHER A. et al., Nucl. Instr. Methods, 208 (1983) 659.
- {7} HOROWITZ P. and HOWELL J.A., Science 178, (1972) 608-611.

Reprinted from *Applied Optics*, Vol. 24, page 994, April 1, 1985
 Copyright © 1985 by the Optical Society of America and reprinted by permission of the copyright owner.

Scintillating optical fiber array for high-resolution x-ray imaging over 5 keV

E. Bigler and F. Polack

An x-ray image detector having a 10–5- μm resolution for 5-keV x rays in high flux conditions is described. It consists of an array of optical fibers, the core of which has been replaced by a high-index fluorescent material. Preliminary realizations and experiments are reported, which give hope that good efficiencies will be obtained by matching a scintillating fiber array to an image intensifier. Such detectors should find useful applications, for example, to synchrotron radiation experiments.

I. Introduction

X-ray image detectors are widely used in astronomy, x-ray spectroscopy, nondestructive testing, and medical imaging. In most of the experiments (x-ray telescopes, for example), the x-ray detector is coupled to x-ray optics. Then, except in microradiography, high-resolution detectors are not a fundamental need, since the optics can be matched to the detector. Moreover, in the case of astronomical detectors which are designed for very low x-ray illumination, a position-sensitive detector in the pulse counting mode can offer excellent spatial resolution.

A new situation is created by x-ray microradiography with synchrotron radiation (SR)¹; spatial resolution is limited only by the detector, and this detector must work with high x-ray fluxes to preserve the advantages of the SR beam. In the 5–20-keV energy range, the available photon flux can be over 10^{11} counts $\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$, and this figure is likely to increase in the near future with new SR sources such as wigglers.

In this paper we shall first briefly review the different x-ray imaging devices available, their advantages and their disadvantages. We shall then describe a possible solution to realize large-field x-ray image detectors with a 5–10- μm resolution, which can withstand very high x-ray fluxes. Finally, we shall discuss the results of our first experiments.

II. Review of the Conventional X-Ray Image Detectors

X-ray image detectors can be divided into two classes:

A. Detectors Using Physical or Chemical Changes in a Recording Medium; Time-Deferred Detectors

1. Silver Halide Photographic Plates

They provide quantitative output and good spatial resolution (a few microns) but they can only count a limited number of photons before saturation occurs. For this reason, the image statistics cannot be improved by a longer exposure time.

2. Photoresists

They can have a resolution down to 10 nm and large fields. They are used for microscopy in the soft x-ray range,² but their sensitivity is very low in the 1–10-Å range³ and they do not provide quantitative output since their response is almost binary.

B. Detectors Using Secondary Particles; Real-Time Detectors

1. Multiwire Chambers

1-D or 2-D multiwire proportional chambers show high efficiency and quantitative output. They are widely used in diffraction chambers for crystallography, but their spatial resolution is limited to $\sim 100 \mu\text{m}$,⁴ and their counting rate is limited to 10^5 – 10^6 counts/sec on the whole active area.

2. Fluorescent Screens

Conventional phosphor screens (such as those used with radiographic films or with x-ray image converters), based on the visible fluorescence of a scintillating powder, can have a high quantum efficiency (better

E. Bigler is with Universite de Paris-Sud, Institut d'Optique, B.P. 43, 91406 Orsay CEDEX, France, and F. Polack is with Universite de Paris-Sud, LURE, Batiment 209C, 91405 Orsay CEDEX, France.

Received 20 March 1984.

0003-6935/85/070994-04\$02.00/0.

© 1985 Optical Society of America.

than 50%) when a thick layer is used. But the spatial resolution is severely reduced by light diffusion in the phosphor layer; $50\text{ }\mu\text{m}$ is the actual limit of resolution which can be achieved.

3. Photodiode Arrays

CCD or photodiode arrays can be used in direct x-ray exposure in the 1–10-keV range. They show good efficiency and provide quantitative output to a computer for real-time imaging. But their spatial resolution is limited to 15–20 μm (Ref. 5) and they are easily damaged by the x-ray flux in SR beams, especially bidimensional arrays. To avoid this last drawback, they are usually coupled to a phosphor conventional screen by a fiber plate which severely downgrades the spatial resolution.

4. Channel Plates

The microchannel plates can be used directly as an x-ray-to-electron image converter.⁶ For our purpose, this type of device suffers from three major drawbacks:

(a) The channel plate must be held under a good vacuum.

(b) The quantum efficiency of an x-ray-to-electron conversion always becomes very low (<1%) with energies higher than 6 keV.⁷

(c) A good spatial resolution can only be obtained in the pulse counting mode, when each individual x-ray photon produces a bunch of photoelectrons on a readout grid. A 10- μm ultimate spatial resolution is achieved by centroid detection; this mode of detection severely reduces the maximum counting rate to 10^4 – 10^5 counts/sec on an area of a few cm^2 , which is at least 6–7 orders of magnitude less than the average illumination delivered by a synchrotron beam line with a crystal monochromator.

C. Comments

Comparing these different devices, one can say that no ideal x-ray detector exists at present, but some good solutions have been proposed in the soft x-ray range (energies <1 keV, wavelengths >10 Å). For harder x rays, a necessary compromise between detection efficiency and spatial resolution must be found. Our purpose is to show that a good detection efficiency (better than 10–20%) can be obtained with a nonsaturating detector, with good spatial resolution (10 μm) at energies higher than a few keV.

III. Scintillating Optical Fiber Array

In a fluorescent screen, image blurring occurs because the visible light induced by x-ray interaction with a scintillator is emitted isotropically. The idea is to confine the fluorescent light in the direction of incident x rays when they are highly collimated as in synchrotron beams. For this purpose, one can try to use an array of optical fibers, the cores of which are made of a fluorescent material. Provided that the refractive index of this scintillating core is high enough, the visible light produced by x-ray interaction will be guided toward the

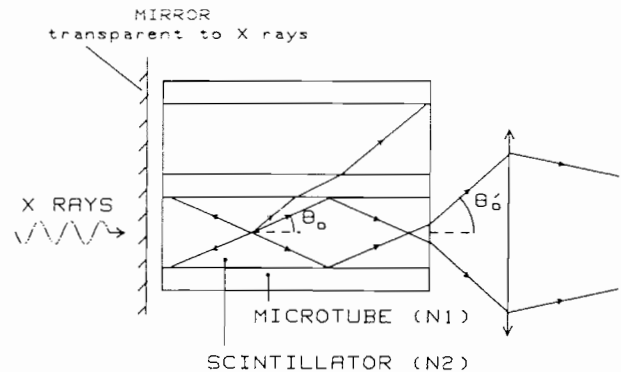


Fig. 1. Principle of x-ray detection with an array of scintillating optical fibers.

end of the fiber plate. Each fluorescent fiber can be made long enough to ensure a good stopping power for hard x rays.

Because of the fiber structure, the diffusion of light is reduced by internal total reflection. But here, as shown in Fig. 1, the fluorescent light is emitted isotropically in the core medium itself. The fraction of light emitted within the limited aperture of the fiber is guided, but the often more important remaining part propagates from fiber to fiber; it therefore does not carry any spatial information but is a considerable source of stray light. It had been suggested⁸ to limit the lateral diffusion of light in a fluorescent screen by dividing it into small cells with opaque walls. This is not necessary as long as the exit face of the fiber plate is imaged through an optical system of limited numerical aperture. An illustration of the phenomenon is given in Fig. 1 in the simple geometrical model which is valid for fiber 10–20 μm in diameter. The fluorescent rays whose angles of incidence on the fiber borders exceed the critical angle are refracted instead of reflected. They would blur the image if it were recorded in direct contact with the fiber plate. They will not contribute to the image if the aperture of the collection lens is lower than θ'_0 :

$$\theta'_0 = \sin^{-1}(\sqrt{n_2^2 - n_1^2}). \quad (1)$$

The case of 5- μm microtubes would require a more rigorous approach in terms of guided or nonguided modes, but the important phenomenon, the minimization of light spreading, would remain. Let us mention that an efficient way to get rid of the nonguided light rays is to use a microtube array incorporating interstitial extramural absorbent (ema) fibers, such as those used in ordinary high-aperture fiber plates.⁹ This has been done in one of our experiments.

As the fluorescent light is emitted in a 2π solid angle, the total yield of the system (assuming a lens of aperture angle θ_0) can be estimated:

$$y_t = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{n_1}{n_2} \right) \cdot y_s, \quad (2)$$

where y_s stands for the scintillating yield. The collection of visible light can be improved (doubled) if a thin mirror transparent to x rays is placed in front of the

scintillating array to reflect the fraction of fluorescent light emitted backward. We must also emphasize that the use of a magnifying lens allows an exact matching between the dimension of each scintillating fiber core and the spatial resolution of the final image detector (CCD array or visible light image intensifier), so that the initial resolution is preserved.

IV. Experimental Results

A. Medium Resolution

We worked with an array of microtubes filled with a liquid scintillator. To adjust its refractive index to a value high enough for light guiding, we used a mixture based on two components:

(i) A classical x-ray liquid scintillator: PPO (2,5-diphenyloxazole) and dimethyl-POPOP 1,4-di-[2-(4-methyl-5-phenyloxazolyl)] benzene in toluene solvent ($n_D = 1.496$).

(ii) 1-bromonaphthalene ($n_D = 1.658$), added for its high refractive index. The refractive index could be chosen between 1.50 and 1.60. Higher indices require an excess of bromonaphthalene which is UV absorbent and thus unfavorable to the fluorescent yield of the scintillator. In a first experiment, the microtube array was an unfinished microchannel plate (MCP), i.e., a MCP only etched, without any oxide reduction for secondary electron emission. The period of the array was $20\text{ }\mu\text{m}$ and the diameter of each microtube was $17.5\text{ }\mu\text{m}$. The microtubes (0.7 mm long) were filled by capillarity with the scintillating mixture. The refractive index of the glass used for this MCP is unknown, but we estimated it at 1.57 ± 0.01 , according to its ability to guide light (or not) when filled with liquids of different indices. Thus the refractive index of the core mixture was adjusted to 1.59–1.60 which is the minimum value necessary for good light guiding in a fiber array.

The experimental arrangement is shown in Fig. 2. The test object was a 300-mesh/inch grid, glued on a thin aluminized Mylar support which was held on the entrance face of the scintillating plate by capillary forces only. On the exit face, we placed a 0.17-mm thick cover glass to ensure optical flatness and to minimize evaporation of the scintillator. The object was irradiated at a distance of 5 cm from the focus of a crystallographic x-ray tube (CrK_α , $\lambda = 2.29\text{ }\text{\AA}$, $U = 30\text{ kV}$, $I = 30\text{ mA}$).

The x-ray contact image of the test grid, converted into the visible, was finally magnified with a $10\times$ N.A. = 0.18 microscope objective which eliminates the non-guided light according to Eq. (1). Figure 3 shows the result of a 45-min exposure on 400 ASA film.

B. Improved Resolution

To improve spatial resolution, the $20\text{-}\mu\text{m}$ hexagonal MCP was replaced by a $10\text{-}\mu\text{m}$ period fiber-optic plate with ema fibers. The core of each optical fiber was removed by chemical etching. Then, using a setup similar to that of the above experiment, the image of a 300-mesh/inch object grid was recorded. It can be seen in Fig. 4 that a resolution equal to the fiber spacing was obtained since the individual fibers are clearly imaged.

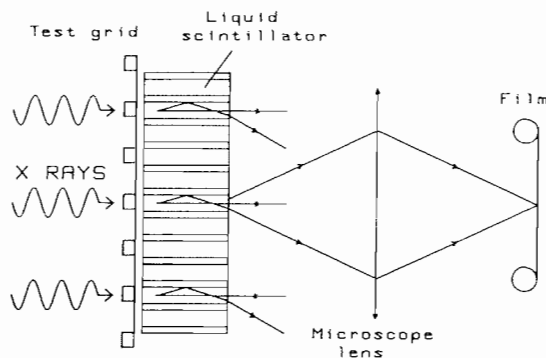


Fig. 2. Schematic of the test experiment.

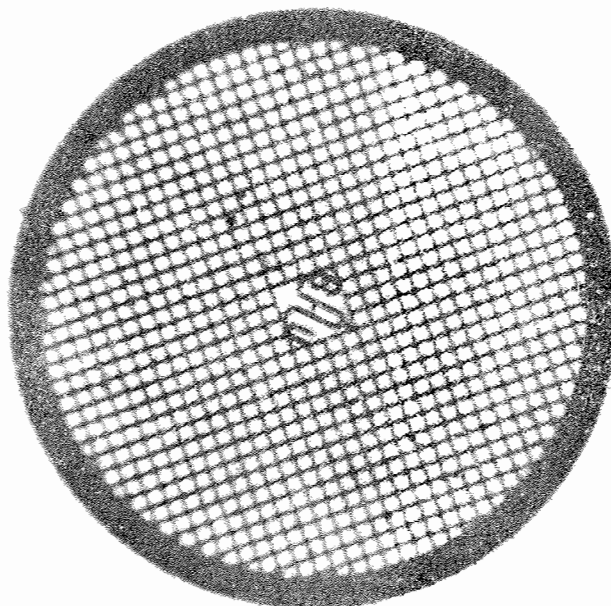


Fig. 3. X-ray image of a 300-mesh/inch grid. Resolution loss in the outer part is due to the field curvature of the microscope lens.

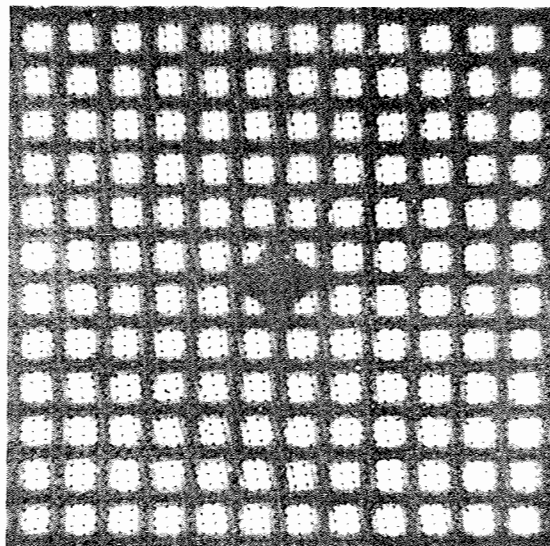


Fig. 4. X-ray image of a 300-mesh grid with a $10\text{-}\mu\text{m}$ period microtube array obtained by chemical etching of an optical fiber plate.

In this experiment, it should be noted that the aperture of the microscope lens ($20\times$ N.A. = 0.35) need not be exactly matched to the fibers aperture, because the unguided light is strongly absorbed by the ema fibers.

C. Quantum Efficiency

1. Physical Phenomena

Direct measurement of the quantum efficiency is difficult. The total yield given by Eq. (2) involves the scintillating yield and the collecting yield which cannot be easily separated experimentally. However, we can estimate the minimum value of the scintillating yield, because the collecting yield is limited by the numerical aperture of the optical system. From the measured data of the second experiment, the collecting yield can be estimated at 10^{-2} , as computed from Eq. (2) with the following refractive indices: scintillator $n_2 = 1.58$; microtube glass $n_1 = 1.55$. Since we have ema fibers, the output of the bundle is in principle limited to the numerical aperture of the fibers: N.A. = 0.31. But because the absorbing effect of the ema fibers cannot be 100% in our case, it is wise to use a loosely adapted microscope lens (N.A. = 0.35).

2. Estimation of the Quantum Yield

In an ideal x-ray-to-visible conversion, energy is conserved. For one x-ray photon ($\lambda = 2.29 \text{ \AA}$) 1750 visible photons ($\lambda = 0.4 \text{ }\mu\text{m}$) are created. If we consider only the guided photons, 17 photons per one incident x-ray photon are detected (34 in the case of a perfect reflecting mirror added in front of the scintillating fibers). For our device, the incident illumination was 10^8 x-ray photons $\text{cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$, according to the standard tables¹⁰ and correcting factors for accelerating voltage.¹¹ Then, each microtube ($100 \text{ }\mu\text{m}^2$) received 100 x-ray photons per second during the 1-h exposure. The optical density recorded on the film corresponds to an energy flux of $3.5 \times 10^{-16} \text{ J} \cdot \text{sec}^{-1}$ per each microtube. In terms of photons ($\lambda = 0.4 \text{ }\mu\text{m}$), the result is 700 photons per second and per microtube. Finally it comes out that one x-ray photon experimentally induces 7 visible photons, which is to be compared to the maximum theoretical yield of 34 visible photons per incident x-ray quantum. Therefore, the fluorescence yield of the scintillator

$$y_s = \frac{\text{energy emitted as visible light}}{\text{energy deposited by x rays}},$$

can be estimated at 10–15%, which is obviously a lower bound for the detection quantum efficiency.

V. Conclusion

We have shown that the expected resolution could be achieved, even without any opaque wall between the scintillating cells, using only total reflection guiding. In its present form, the collection yield is rather poor, 1%; even with this figure, since each efficient x-ray photon creates many visible photons, the quantum efficiency approaches the x-ray fluorescence efficiency. The problem is now to create an image containing a sufficient number of visible photons to be observed easily. This can be done by using an image intensifier, thus the theoretical quantum efficiency of the scintillator is

nearly preserved.

Further work will require a precise measurement of the quantum efficiency, as better characteristics will result in a balance between collection efficiency, i.e., raising the scintillator refractive index, and fluorescence efficiency. Other scintillating materials could be investigated—glasses, plastics, gels—from this point of view. Substrate development should be carried on toward low index materials and $5\text{-}\mu\text{m}$ matrices.

If the present limitations can be overcome and the device coupled to an image acquisition system, it should be of great value for a class of techniques growing up with synchrotron radiation, such as real-time topography,¹² x-ray microscopy and absorption microanalysis, and also nondestructive testing and microangiography.¹³

We are very grateful to J. F. Delpech who suggested the use of an unfinished microchannel plate for the preliminary experiments and for fruitful discussions of x-ray imaging devices. We would like to thank the R.T.C. Co. for providing us with a microchannel sample suitable for our work. We are also very indebted to V. Duchenois and P. Chalme from the Laboratoire d'Electronique et de Physique Appliquée for the preparation of the etched specimens of fiber plates and for helpful advice.

References

1. E. Bigler, F. Polack, and S. Lowenthal, "Quantitative Mapping of Atomic Species by X-Ray Absorption Spectroscopy and Contact Microradiography," *Nucl. Instrum. Methods* **208**, 387 (1983).
2. P. C. Cheng *et al.*, "Soft X-Ray Contact Microscopy and Microchemical Analysis of Biological Specimens," in *X-Ray Microscopy*, G. Schmahl and D. Rudolph, Eds. (Springer, New York, 1984), p. 285.
3. E. Spiller and R. Feder, "X-Ray Lithography," in *X-Ray Optics: Applications to Solids*, H. J. Queisser, Ed. (Springer, New York, 1977).
4. C. J. Hailey, T. T. Hamilton, and W. H. M. Ku, "Imaging X-Ray Spectrophotometers," *Nucl. Instrum. Methods* **184**, 543 (1981).
5. M. C. Peckerar, W. D. Baker, and D. J. Nagel, "X-Ray Sensitivity of a Charge-Coupled-Device Array," *J. Appl. Phys.* **48**, 2565 (1977).
6. E. Kellog, P. Henry, S. Murray, and L. Van Speybroeck, "High Resolution Imaging X-Ray Detector," *Rev. Sci. Instrum.* **47**, 282 (1976).
7. J. E. Mack, F. Paresce, and S. Bowyer, "Channel Electron Multiplier: Its Quantum Efficiency at Soft X-Ray and Vacuum Ultraviolet Wavelengths," *Appl. Opt.* **15**, 861 (1976).
8. N. A. McLeod, "Luminescent Screen and Method of Making Same," U.S. Patent 3,041,456 (1962).
9. W. B. Allan, *Fibre Optics: Theory and Practice* (Plenum, New York, 1973), p. 140.
10. 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.
11. B. K. Agarwal, *X-Ray Spectroscopy* (Springer, New York, 1979), p. 65.
12. J. Miltat and M. Sauvage, "Recent Advances in Topography Instrumentation," *Nucl. Instrum. Methods* **208**, 685 (1983).
13. E. B. Hughes *et al.*, "The Application of Synchrotron Radiation to Non-Invasive Angiography," *Nucl. Instrum. Methods* **208**, 665 (1983).

REFERENCES

REFERENCES

OUVRAGES COLLECTIFS PLUSIEURS FOIS CITES

X-ray Microscopy, G. Schmahl et D. Rudolph eds., Springer series in optical sciences, 43, Springer verlag (1984)

X-ray Microscopy II, D. Sayre, M. Howells, J. Kirz, H. Rarback eds., Springer series in optical sciences, 56, Springer verlag (1988)

X-ray Microscopy III, A. Michette, G. Morrison et C. Buckley eds., Springer (à paraître 1991)

X-ray data booklet, D. Vaughan ed., Center for X-ray Optics" (Pub. 490) Berkeley, (1986)

AUTRES OUVRAGES ET PUBLICATIONS

ADE 1988 -

H. Ade, J. Kirz, H. Rarback, S. Hulbert, E. Johnson, D. Kern, P. Chang et Y. Vladimirovsky, "Possibilities for a scanning Photoemission microscope at the NSLS", in *X-ray microscopy II*, op. cit., 280-283

ADE 1991 -

H. Ade, J. Kirz, S.L. Hulbert, E.D. Johnson, E. Anderson, D. Kern, "Recent developments in x-ray photoemission microscopy with the X1-SPEM", à paraître in *X-ray microscopy III*, op. cit. (1991)

AGARWAL -

B.K. Agarwal X-ray Spectroscopy, Springer series in Optical Sciences 15, Springer-Verlag, Berlin (1979)

ANDERSON 1991 -

E.H. Anderson et D. Kern, "Nanofabrication of zone plate lenses for high resolution X-ray microscopy", à paraître in *X-ray microscopy III*, op. cit. (1991)

AOKI 1972 -

S. Aoki, Y. Ichihara, et S. Kikuta, "X-ray hologram obtained by using synchrotron radiation", Japan. J. Appl. Phys. 11 1857 (1972)

AOKI 1974 -

S. Aoki et S. Kikuta, "X-ray holographic microscopy", Japan. J. Appl. Phys. 13, 1385-1392 (1974)

AOKI 1988 -

S. Aoki, "Axisymmetric grazing incidence optics for an x-ray microscope and microprobe", in *X-ray microscopy II, op. cit.*, 102-107

ARISTOV 1988 -

V.V. Aristov, A.I. Erko et V.V. Martynov, "Principles of Bragg-Fresnel multilayer optics", Revue Phys. Appl. 23 1623-1630 (1988)

BAEZ 1952 -

A.V. Baez, "A study in diffraction microscopy with special reference to X-rays", J. Opt. Soc. Am., 42, 756-762 (1952)

BAEZ 1961 -

A.V. Baez, "Fresnel zone plate for optical image formation using extreme ultraviolet and soft x-ray radiation", J. Opt. Soc. Am. 51 405-412 (1961)

BARBEE 1984 -

T.W. Barbee, "Multilayers for x-ray optical applications", in *X-ray microscopy, op. cit.*, 144-162 (1984)

BEAMSON 1981 -

G. Beamson, H.Q. Porter, et D.W. Turner, "Photoelectron spectromicroscopy", Nature 290 556 (1981)

BENNETT 1991 -

P.M. Bennett, C.J. Buckley, G.F. Foster, P.A.F. Anastasi, "Radiation damage studies on active myofibrils", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)

BIGLER 1982 -

E. Bigler, F. Polack, S. Lowenthal, "X-ray microanalysis near an absorption edge using synchrotron radiation : how to obtain quantitative results" Opt. Comm. 41, 6-12 (1982) [voir Annexe III]

BIGLER 1983 -

E. Bigler, F. Polack, S. Lowenthal, "Quantitative mapping of atomic species by x-ray absorption spectroscopy and contact microradiography", Nucl. Instr. Meth. 208, 387-392 (1983)

BIGLER 1984 -

E. Bigler, F. Polack, "Large field x-ray absorption microanalysis near an absorption edge, by image processing", J. Phys. 45 C2, 83-85 (1984) [voir Annexe III]

- BIGLER 1985 -
E. Bigler, F. Polack, "Scintillating optical fiber array for high-resolution x-ray imaging over 5 keV", Appl. Opt. 24, 994-997 (1985) [voir Annexe III]
- BIGLER 1986 -
E. Bigler "DéTECTEURS d'images X grand champ : applications à la microscopie X de contact et à la microanalyse d'absorption avec le rayonnement synchrotron", Thèse, Université de Paris XI, Orsay (1986)
- BÖGLI 1988 -
V. Bögli, P. Unger, H. Beneking, B. Greinke, P. Guttman, B. Niemann, D. Rudolph, et G. Schmahl, "Microzone plate fabrication by 100 keV electron beam lithography", in *X-ray microscopy II*, op. cit. 80-87 (1988)
- BONJOUR 1980 -
P. Bonjour, "Numerical methods for computing electrostatic and magnetic fields", Adv. Electron. Electron. Phys. sup. 13 A (Academic Press, London, 1980) 1-44
- BONSE 1989 -
U. Bonse, H. Lotsch, et A. Henning, "Scanning interferometer for the measurement of anomalous dispersion with synchrotron X-rays", J. X-ray Sci. Tech., 1, 107-120 (1989)
- BONSE 1991 -
U. Bonse, "X-ray microtomography", à paraître dans *X-ray microscopy III*, op. cit. (1991)
- BORN et WOLF -
M. Born et E. Wolf, *Principle of optics*, Pergamon Press, Oxford (1964)
- BRUNDLE 1975 -
C.R. Brundle, "Elucidation of surface structure and bonding by photoelectron spectroscopy?", Surf. Science 48 99-136 (1975)
- BURCH 1896 -
G.J. Burch, Nature 54,11 (1896)
- CAZAUX 1973 -
J. Cazaux, "Microscope photoélectronique pour l'analyse chimique des surfaces", Rev. Phys. Appl. 8, 371-381 (1973)
- CAZAUX 1981 -
J. Cazaux, D. Mouze, J. Perrin, X. thomas, "Simultaneous bulk and surface microanalysis by electron microscopy", Appl. Phys. Lett. 38 1021-1023 (1981)
- CAZAUX 1982 -
J. Cazaux, D. Mouze, J. Perrin, "Scanning X-ray radiography : first test in an electron spectrometer", J. Appl. Phys. 53, 3299-3302 (1982)

CERRINA 1988 -

F. Cerrina, G. Margaritondo, J.H. Underwood, M. Hettrick, M.A. Green, L.J. Brillson, A. Franciosi, H. Höchst, P.M. Deluca Jr., et M.N. Gould, "MAXIMUM : a scanning photoelectron microscope at Aladdin", Nucl. Instr. Meth. A266, 303-307 (1988)

CHARALAMBOUS 1991 -

P.S. Charalambous, D. Morris, "Status of zone plate fabrication at King's College London" à paraître dans *X-ray microscopy III*, *op.cit.* (1991)

CHAUVINEAU 1988 -

J.P. Chauvineau, "Soft X-ray reflectometry applied to the evaluation of surface roughness variation during the deposition of thin films", Revue Phys. Appl. 23 1645-1652 (1988)

CHENG 1991 -

P.C. Cheng, D.M. Shinozaki, Th. Lin, R. Sridhar, S.P. Newberry, M.T. Chen, "X-ray shadow projection microscopy and microtomography" et
T.H. Lin, G. Wang, P.C. Cheng, "A multiple cone-beam projection algorithm for x-ray microtomography",
à paraître dans *X-ray microscopy III*, *op. cit.* (1991)

COSSLETT -

W.E. Cosslett et W.C. Nixon, "X-ray Microscopy" (University Press, Cambridge, 1960)

DAIDO 1991 -

H. Daido, G.M. Zeng, T. Togawa, H. Aritome, M. Nakatsuka et S. Nakai, "Repetitive laser-plasma x-ray source for microscopy application", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)

DAUVILLIER 1927 -

A. Dauvillier, "Sur un tube à rayons X de longueur d'onde effective égale à 8 unités Angström", C.R. Acad. Sci. 185, 1460-1462 (1927)

DAUVILLIER 1930 -

A. Dauvillier, "Réalisation de la microradiographie intégrale", C.R. Acad. Sci. 190 1287-1289 (1930)

DUGAS 1961 -

J. Dugas, P. Durandeau, C. Fert, "Lentilles électroniques magnétiques symétriques et dyssymétriques", Revue Optique, 40, 277-305 (1961)

DURANDEAU 1957 -

P. Durandeau, C. Fert, Revue Optique, "Lentilles électroniques magnétiques", 36, 205 (1957)

ELISEENKO 1968 -

L.G. Eliseenko, V.N. Shschemelev, M.A. Rumsh, Sov. Phys. Tech. Phys. 13, 122 (1968)

ERDELYI -

Tables of Integral Transforms, A. Erdélyi, ed., W. Magnus, F. Oberhettinger, F.G. Tricomi, McGraw-Hill, New York (1954).

- FALCONE et KIRZ 1988-
OSA proceedings on short wavelength coherent radiations : generation and applications", R. Falcone et J. Kirz eds., OSA, Washington D.C. (1988)
- FEDER 1977 -
R. Feder, E. Spiller, J. Topalian, A.N. Broers, W. Gudat, B.J. Panessa, Z.A. Zadunaisky, et J. Sedat, "High resolution soft x-ray microscopy", *Science* 197, 259-260 (1977)
- FERT et SIMON 1956 -
C. Fert et R. Simon, "Amélioration du pouvoir de résolution du microscope électronique à émission", *C.R. Acad. Sci.* 243, 1300-1303 (1956)
- FORD 1991 -
T.W. Ford, et A.D. Stead, "Development of soft x-ray contact microscopy using laser-produced plasmas", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)
- GABOR 1949
D. Gabor, "Microscopy by reconstructed wave-fronts", *Proc. Roy. Acad. Sci. London A* 197, 454-487 (1949)
- GAINES 1973 -
J.L. Gaines et R.A. Hansen, "X-ray-induced emission from thin gold foils" *J. Appl. Phys.* 47, 3923-3928 (1973)
- GILBERT 1991 -
J.R. Gilbert, J. Pine, J. Kirz, C. Jacobsen, S. Williams, C.J. Buckley, H. Rarback, "Soft x-ray absorption imaging of whole wet tissue culture cells", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)
- GOBY 1913 -
P. Goby, "Une application nouvelle des rayons X : la microradiographie", *C. R. Acad. Sci.* 156 686-688 (1913)
- GRIFFITH 1987 -
O.H. Griffith et G.F. Rempfer, "Photoelectron imaging: photoelectron microscopy and related techniques" in *Advances in Optical and Electron Microscopy*, R. Barer and V.E. Cosslett eds., Academic Press, London, 10 269-237 (1987)
- GRIFFITH 1989 -
O.H. Griffith, D.L. Habliston, G.B. Birrell, W.P. Skoczylas, K.K. Hedberg, "Biological Photocathodes" *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 86 1826-1830 (1989)
- GRIVET -
P. Grivet, "Electron Optics" (Pergamon Press, London 1965)
- HAELBICH 1980 -
R.P. Haelbich, "A scanning ultrasoft x-ray microscope with multilayer coated reflection optics : first test with synchrotron radiation around 60 eV photon energy", in *Scanned image microscopy*, E.A. Ash ed., Academic Press, London, (1980)

HENKE 1977 -

B.L. Henke, J.A. Smith, D.T. Attwood, "0.1 - 10 KeV X-ray-induced electron emission from solids : models and secondary electron measurements", J. Appl. Phys. 48, 1852-1866 (1977)

HENKE 1979 -

B.L. Henke, J. Liesegang, S.D. Smith, "Soft-X-ray-induced electron emission from semiconductors and insulators : models and measurements", Phys. Rev. B 19, 3004 (1979)

HENKE 1981 -

B.L. Henke, J.P. Knauer, K. Premaratne, "The characterisation of X-ray photocathodes in the 0.1 - 10 KeV photon energy region", J. Appl. Phys. 52, 1509-1520 (1981)

HENKE 1982 -

B.L. Henke, P. Lee, T.J. Tanaka, R.L. Shimabukuro, B.K. Fujikawa, "Low-energy x-ray interaction coefficients : photoabsorption, scattering and reflection", At. Data Nucl. Data Tables, 27, 1-144 (1982)

HENRY 1964 -

L. Henry, "Filtrage magnétique des vitesses en microscopie électronique", Thèse, Université de Paris, Orsay (Masson, Paris, 1964)

HERMANN et KRAHL 1984 -

K.H. Hermann et D. Krahel, "Electronic image recording in conventional electron microscopy", Adv. Optical Electron Microsc. 9 (Academic Press, London, 1984) 1-64

HILKENBACH 1988 -

R. Hilkenbach, J. Thieme, P. Guttmann, et B. Niemann, "Phase zone plate for the Göttingen x-ray microscopes", in *X-ray microscopy II*, op. cit. 95-101 (1988)

HOLTZ 1991 -

R. Holz, R. Lebert, W. Neff et F. Richter, "A plasma source for an imaging x-ray microscope", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)

HOROWITZ 1972 -

P. Horowitz et J.A. Howell, "A scanning x-ray microscope using synchrotron radiation", Science 178, 608-611 (1972)

HOROWITZ 1978 -

P. Horowitz, "Some experiences with x-ray and proton microscopes", Ann. N. Y. Acad. Sci. 306, 203-222

HOWELLS 1984 -

M. Howells, "Possibilities for X-ray holography using synchrotron radiation", in *X-ray Microscopy*, op. cit., 311-336

HOWELLS 1986 -

M.R. Howells, M.A. Iarocci et J. Kirz, "Experiments in x-ray holographic microscopy using synchrotron radiation", J. Opt. Am. A 3, 2171-2178 (1986)

HOWELLS 1987 -

M. Howells, C. Jacobsen, J. Kirz, R. Feder, K. McQuaid, S. Rothman, "X-ray holography at improved resolution : a study of zymogen granules", *Science*, 238, 514-517 (1987)

HUANG 1957 -

L.Y. Huang, "Röntgen Bildwandler Mikroskopie", *Z. Phys.* 149, 225-253 (1957)

JACOBSEN 1988.a -

C. Jacobsen, J. Kirz, M. Howells, K. McQuaid, S. Rothman, R. Feder et D. Sayre, " Progress in high-resolution X-ray holographic microscopy", in *X-ray microscopy II*, op. cit. 253-262

JACOBSEN 1988.b -

C. Jacobsen, M. Howells, J. Kirz, K. McQuaid et S. Rothman, "X-ray holographic microscopy : improved images of zymogen granules", in *OSA Proc. on Short Wavelength Coherent Radiation: Generation and Applications*, R. Falcone and J. Kirz eds. (OSA, Washington DC, 1988) Vol. 2, 303-308 .

JACOBSEN 1988.c -

C. Jacobsen "X-ray holographic microscopy of biological specimens using an undulator", These Ph. D., State University of New York at Stony Brook (1988)

JACOBSEN 1990 -

C. Jacobsen, M. Howells, J. Kirz, S. Rothman, "X-ray holographic microscopy using photoresists", *J. Opt. Soc. Am.*, A 7, 1847-1861 (1990)

JACOBSEN 1991 -

C. Jacobsen et S. Lindaas, "Experiments in zone plate replication using spatial frequency multiplication", à paraître dans *X-ray microscopy III*, op. cit. (1991)

JAMELOT 1987 -

G. Jamelot, P. Jaeglé, A. Carillon, B. Gauthé, A. Klisnick, A. Sureau, H. Guennou, "Des progrès sur la voie du laser à rayons X", *Le courrier du CNRS Sup.* 68, 40-45 (1987)

JOYEUX 1988.a -

D. Joyeux, S. Lowenthal, F. Polack, A. Bernstein, "X-ray microscopy by holography at LURE", in *X-ray Microscopy II*, op. cit., 246-252

JOYEUX 1988.b -

D. Joyeux, F. Polack, "Progress in optical reconstruction of X-ray holograms", in *OSA Proc. on Short Wavelength Coherent Radiation: Generation and Applications*, R. Falcone and J. Kirz eds. (OSA, Washington DC, 1988) Vol. 2, 295-302

JOYEUX 1989.a) -

D. Joyeux, Rapport final de la convention DRET 85.34.194.00. 470.75.01, "Réalisation d'expériences d'holographie en rayons X mous"

JOYEUX 1989.b) -

D. Joyeux, F. Polack, R. Mercier, "Principle of a "reconstruction microscope" for high resolution X-ray holography", Proc. SPIE 1140, 399-405 (1989)

KASPER 1976 -

E. Kasper, "On numerical calculation of static multipole fields", Optik 46, 271-286 (1976)

KEARNEY 1991 -

P.A. Kearney, J.M. Slaughter, C.M. Falco, "Materials for multilayer x-ray optics at wavelengths below 100 Å", Opt. Eng., 30, 1076-1080 (1991) [voir aussi les autres articles de ce numéro consacrés à l'optique X/UV extrême]

KENNEY 1985 -

J.M. Kenney, C. Jacobsen, J. Kirz, H. Rarback, F. Cinotti, W. Thomlinson, R. Rosser, G. Schidlowsky, "Absorption microanalysis with a scanning soft x-ray microscope - mapping the distribution of calcium in bone", J. Microsc. 138, 321 (1985)

KIKUTA 1972 -

S. Kikuta, S. Aoki, S. Kosaki, K. Kohra, "X-ray holography of lensless Fourier transform type", Opt. Com. 5 86-89 (1972)

KINNEY 1989 -

J.H. Kinney, Q.C. Johnson, M.C. Nichols, U. Bonse, R.A. Saryan, R. Nusshardt, et R. Pahl, "X-ray microtomography on beamline X at SSRL", Rev. Sci. Instrum. 60, 2471-2474 (1989) [voir aussi dans ce même numéro 4 articles portant également sur la microtomographie pp. 2475-2489]

KINOSHITA 1990 -

K. Kinoshita, T. Matsumara, Y. Inagaki, N. Hirai, M. Sugiyama, H. Kihara, N. Watanabe, Y. Shimanuki, A. Yagishita, "The electronic zooming TV Readout system for an x-ray microscope", à paraître dans *X-Ray microscopy III* (1991)

KIRKPATRICK 1948 -

P. Kirkpatrick et A.V. Baez, "Formation of optical images by x-rays", J. Opt. Soc. Am. 38, 766-774 (1948)

KIRZ 1974 -

J. Kirz, "Phase zone plates for X-rays and the extreme ultraviolet", J. Opt. Soc. Am., 64, 301-304 (1974)

KIRZ 1980.a -

J. Kirz, R. Burg, H. Rarback, "Plans for a scanning transmission X-ray microscope", Ann. N. Y. Acad. Sci. 342, 135-147 (1980)

KIRZ 1980.b -

J. Kirz et D. Sayre, "Soft x-ray microscopy of biological specimens", in *Synchrotron radiation research*, H. Winick et S. Doniach eds., Plenum, New York (1980) pp. 277-321

KOREN 1991 -

G. Koren, F. Polack, D. Joyeux, "Twin image elimination in in-line holography of finite support complex objects", à paraître dans *Opt. Lett.* dec 1991

KOWALSKI 1986 -

M.P. Kowalski, G.G. Fritz, R.G. Gruddace, A.E. Unzicker, N. Swanson, "Quantum efficiency of cesium iodide photocathodes at soft x-ray and extreme ultraviolet wavelengths", *Appl. Opt.* 25, 2440-2446 (1986)

KRINSKY 1983 -

S. Krinsky, M.L. Permann et R.E. Watson, "Characteristics of synchrotron radiation and of its sources", in *Handbook of synchrotron radiation*, D.E. Eastman et Y. Farge, gen. eds, vol 1 A, E.E Koch ed., North Holland, Amsterdam, 65-171 (1983)

KÜHNE 1991 -

M. Kühne et r. Thornagel, "Soft x-ray emission from a laser-produced carbon plasma", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)

LADD 1956 -

W.A. Ladd, W.M. Hess et M.W. Ladd, "High resolution microradiography", *Science* 123, 370-371 (1956)

LANNES 1977 -

A. Lannes, "Correction des effets de l'image jumelle et du terme quadratique en holographie de Gabor", *Opt. Com.* 20, 356-359 (1977)

LEPERE 1975 -

D. Lepère, "Monochromateur à simple rotation du réseau, à réseau holographique sur support torique pour l'ultraviolet lointain", *Nouv. Rev. Optique* 6, 173-178 (1975)

LIU 1987 -

G. Liu, P. D. Scott, "Phase retrieval and twin image elimination for in-line Fresnel holograms", *J. Opt. Soc. Am.*, 4, 159-165 (1987)

LIU 1990 -

G. Liu, "Object reconstruction from noisy holograms", *Opt. Eng.*, 29, 19-24 (1990)

LONDON 1989 -

R.A. London, M.D. Rosen, J.E. Trebes, "Wavelength choice for soft x-ray laser holography of biological samples", *Appl. Opt.* 15 3397-3404 (1989)

MARECHAL et FRANÇON -

A. Maréchal et M. Françon, *Diffraction et structure des images*, Masson, Paris (1970)

MERTZ 1961 -

L. Mertz et N.O. Young "Fresnel transformation of images" *Proc. Internat. Conf. on Opt. Instrum.*, Chapman & Hall, London, (1961)

MICHETTE 1984 -

A.G. Michette, M.T. Brown, P. Charalambous, R.E. Burge, M.J. Simpson, P.J. Duke, "Fabrication of small linewidth diffractive optics for use with soft x-rays", in *x-ray microscopy, op. cit.*, 109-118 (1984)

MICHETTE 1986.a -

A.G. Michette et C.J. Buckley, "Phase modulating zone plate for x-ray microscopy", *Proc. SPIE* 733 (1986)

MICHETTE 1986.b -

A.G. Michette, *Optical systems for soft x-rays*, Plenum Press, New York (1986)

MORISSON 1988 -

G.R. Morisson, J.T. Beswetherick, M.T. Browne, R.E. Burge, R.C. Cave, P.S. Charalambous, R.J. Duke, G.F. Foster, A.R. Hare, A.G. Michette, D. Morris, A.W. Potts, T. Tagushi, "Development and applications of the King's College / Daresbury x-ray microscope", *Proc. of the Tohigi meeting on X-ray microscopy* (août 1988)

MORRISON 1991 -

G.R. Morisson, M.T. Browne, C.J. Buckley, R.E. Burge, P.S. Charalambous, G.F. Foster, A.G. Michette, D. Morris, J.R. Palmer, G.E. Slark, P.M. Bennett, P.J. Duke, "Recent progress with the King's College scanning transmission x-ray microscope", à paraître in *X-ray microscopy III, op. cit.* (1991)

MOUZE 1985 -

D. Mouze, J. Cazaux, X. Thomas, "Scanning x-ray radiography with an improved detection scheme", *Ultramicroscopy* 17 269-272 (1985)

MOUZE 1988 -

D. Mouze, J. Cazaux, X. Thomas, "Scanning x-ray microradiography and related microscopy in a SEM", in *X-ray microscopy II, op. cit.*, 301-305 (1988)

MOUZE 1991 -

D. Mouze, "Contribution à la microfluorescence X et à la microradiographie X à balayage", Thèse, Université de Reims Champagne Ardenne (1991)

MUELLER 1977 -

R.K. Mueller et S. Jorna, "Intensity requirements in X-ray holography at 1 Å", *Appl. Opt.* 16 525-526 (1977)

MUNRO 1973 -

E. Munro, "Computed aided design of electron lenses by the finite element method", in *Image Processing and Computer Aided Design in Electron Optics*, P.W. Hawkes ed., Academic Press, London (1973) 284-323

McNULTY 1990 -

I. McNulty, J. Kirz, C. Jacobsen, "Soft x-ray microscope using Fourier transform holography", *Nucl. Instrum. Meth. A* 291, 74-79 (1990)

- McNULTY 1991 -
I. McNulty, J. Kirz, C. Jacobsen, M.R. Howells, E.H. Anderson,
"First results with a Fourier transform holographic microscope", à paraître dans *X-ray microscopy III*, *op. cit.* (1991)
- NEFF 1988 -
W. Neff, J. Eberle, R. Holz, F. Richter et R. Lebert, "A plasma focus as radiation source for a laboratory x-ray microscope", in *X-ray microscopy II*, *op. cit.* 22-29 (1988)
- NIEMANN 1976 -
B. Niemann, D. Rudolph et G. Schmahl, "X-ray microscopy with synchrotron radiation", *Appl. Opt.* 15, 1883-1884 (1976)
- NIEMANN 1980 -
B. Niemann, "Detective quantum efficiency of some film materials in the soft x-ray region", *Ann. N. Y. Acad Sci.* 342 230-234 (1980)
- NIEMANN 1991 -
B. Niemann, "Investigations of biological specimens with the scanning x-ray microscope at BESSY with 2.4 nm radiation", à paraître in *X-ray microscopy III*, *op. cit.* (1991)
- NUGENT 1990 -
K. A. Nugent, "Twin image elimination in Gabor holography", *Opt. Comm.*, 78, 293-299 (1990)
- ONURAL, 1987 -
L. Onural, P. D. Scott, "Digital decoding of in-line holograms" *Opt. Eng.*, 26, 1124 (1987)
- PATTEE 1957 -
H.H. Pattee et R. Warnes, in *X-ray microscopy and microradiography*, Academic Press, New York (1957) p. 387
- PIANETTA 1989 -
P. Pianetta, I. Lindau, P.L. King, M. Keenlyside, G. Knapp, R. Browning, "Corelevel photoelectron microscopy with synchrotron radiation", *Rev. Sci. Instrum.* 60 1686-1689 (1989)
- PINE 1991 -
J. Pine et J. Gilbert, "Live cell specimens for x-ray microscopy", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)
- POLACK 1977 -
F. Polack, S. Lowenthal, Y. Petroff, Y. Farge, "Chemical microanalysis by x-ray microscopy near an absorption edge with synchrotron radiation", *Appl. Phys. Lett.* 31, 785 (1977)
- POLACK 1978 -
F. Polack, S. Lowenthal, Y. Petroff, Y. Farge, "Selective x-ray absorption microanalysis with synchrotron radiation", *Nucl. Instrum. Meth.* 152 289-291 (1978)
- POLACK 1989 -
F. Polack, A. Bernstein, D. Joyeux, *Proc. SPIE* 1140, 367-372 (1989)

- POLACK 1991 -
F. Polack et D. Joyeux, "Prospects on direct refraction index measurement by soft x-ray interferometry", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)
- RANWEZ 1896 -
F. Ranwez, C.R. Acad. Sci. 122, 841 (1896)
- RARBACK 1984 -
H. Rarback, J.M. Kenney, J. Kirz, M.R. Howells, P. Chang, P.J. Coane, R. Feder, P.J. Houzago, D.P. Kern, D. Sayre, "Recent results from the Stony Brook scanning microscope", in *X-ray microscopy, op. cit.* 203-216 (1984)
- RARBACK 1988.a -
H. Rarback, D. Shu, Su Cheng Feng, H. Ade, C. Jacobsen, J. Kirz, I. McNulty, Y. Vladimirovsky, D. Kern, et P. Chang, "The Stony Brook/NSLS scanning microscope", in *X-ray microscopy II, op. cit.* 194-208 (1988)
- RARBACK 1988.b -
H. Rarback, C. Jacobsen, J. Kirz, I. McNulty, "The performance of the NSLS mini-ondulator", Nucl. Instrum. Meth. A 226 96-105 (1988)
- REUTER 1976 -
B. Reuter et H. Mahr, "Experiments with Fourier transform holograms using 4.48 x-rays", J. Phys. E 9, 746-751 (1976)
- RÖNTGEN 1895 -
W.C.Röntgen, "Über eine neue Art von Strahlen", Sitzungber. Phys. - Med. Ges. Würzburg, 137- 141 (1895)
- ROSE 1946 -
A. Rose, "Unified approach to the performance of photographic film, television pickup tubes, and human eye", J. Soc. Motion Pict. Eng. 47, 273-294 (1946)
- RUDOLPH 1991 -
D. Rudolph, G. Schneider, P. Guttmann, G. Schmahl, B. Niemann et J. Thieme, "Investigations of wet biological specimens with the x-ray microscope at BESSY", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)
- SAHA 1990 -
T.T. Saha, "Image defects from surface and alignment errors in grazing incidence telescopes", Opt. Eng. 29, 1296-1305 (1990)
- SAYRE 1977 -
D. Sayre, J. Kirz, R. Feder, D.M. Kim, E. Spiller, "Transmission microscopy of unmodified biological materials : comparative radiation dosages with electrons and ultrasoft x-ray photons", Ultramicroscopy 2, 337-341 (1977)
- SCHMAHL 1969 -
G. Schmahl et D. Rudolph "Lichtstarke Zonenplatten als abbildende Systeme für weiche Röntgenstrahlung", Optik, 29, 577-585 (1969)

- SCHMAHL 1980 -
G. Schmah1, D. Rudolph, B. Niemann et O. Christ, "X-ray microscopy of biological specimens with a zone plate microscope", *Ann. N. Y. Acad. Sci.* 342, 368-386 (1980)
- SCHMAHL 1984 -
G. Schmah1, D. Rudolph, P. Guttman, et O. Christ, "Zone plates for x-ray microscopy", in *X-ray microscopy*, *op. cit.*, 63-74 (1984)
- SCHMAHL 1988 -
G. Schmah1, D. Rudolph, et P. Guttman, "Phase contrast X-ray microscopy - experiments at the BESSY storage ring", in *X-ray microscopy II*, *op. cit.*, 228-232 (1988)
- SCHMAHL 1991 -
G. Schmah1, B.Niemann, D.Rudolph, M.Diehl, J. Thieme, W. Neff, R. Holz, R. Lebert, F. Richter et G. Herziger, "A laboratory source x-ray microscope with a plasma x-ray source", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)
- SHULZ 1991 -
M.S. Shulz, A.G. Michette et R.E. Burge, "X-ray microscopy using a laser plasma source", à paraître dans *X-ray microscopy III* (1991)
- SLODZIAN 1980 -
G. Slodzian, *Adv. Electron. Electron. Phys. Sup. 13 B* (Academic Press, London, 1980) p. 1
- SPILLER 1972 -
E. Spiller, "Low-loss reflection coatings using absorbing materials", *Appl. Phys. Lett.*, 20 365-367 (1972)
- SPILLER 1976 -
E. Spiller, R. Feder, J. Topalian, D. Eastman, W. Gudat, et D. Sayre, "X-ray microscopy of biological objects with carbon K α and with synchrotron radiation", *Science* 191, 1172-1174 (1976)
- SPILLER 1983 -
E. Spiller, "Soft x-ray optics and microscopy" in *Handbook on synchrotron radiation*, D.E. Eastman et Y. Farge, gen. eds., Vol. 1 A, E.E. Koch ed., North Holland, Amsterdam (1983) pp. 1091-1129
- SPILLER 1990 -
E. Spiller "Refractive index of amorphous carbon near its K-edge", *Appl. Opt.*, 29, 19-23 (1990)
- STEAD 1988 -
A.D. Stead, T.W. Ford, R. Eason, A.G. Michette, W. Myring, et R. Rosser, "Soft X-ray contact microscopy of botanical material using laser produced plasmas or synchrotron radiation", in *X-ray microscopy II*, *op. cit.* 433-437 (1988)

STEINBERG 1978 -

M. Steinberg, F. Polack, M. Rivière, A. Martin, "Utilisation du rayonnement synchrotron pour la localisation d'éléments à l'échelle de la lame mince dans diverses concrétions polymétalliques", Colloques Internationaux du CNRS, *La genèse des nodules de manganèse*, 289, 357-367 (1978)

STEINBERG 1984 -

M. Steinberg, E. Bigler, S. Tlig, C. Bonnot-Courtois, A. Desprairies, E. Lallier-Vergès, M. Rivière, J. Marcoux, "Comparaison des caractéristiques texturales et géochimiques de quelques concrétions ferro-magnésifères récentes et fossiles", Bull. Soc. Géol. Fr. 7, T.26, 1 (1984)

TATCHYN 1984 -

R.O. Tatchyn, "Optimum zone plate theory and design", in *X-ray microscopy*, *op. cit.*, 40-50 (1984)

THIEME 1988

J. Thieme, "Theoretical investigations of imaging properties of zone plates using diffraction theory" in *X-ray microscopy II*, *op. cit.*, 70-79 (1988)

THIEME 1991 -

J. Thieme, D. Rudolph, G. Schmahl, P. Guttman, B. Greinke, M. Diehl, "Germanium phase zone plates with high aspect ratios for x-ray microscopy experiments", à paraître dans *X-ray microscopy III*, *op. cit.* (1991)

THIRY 1981 -

P. Thiry, "La photoémission angulaire dans les solides", Thèse, Université Pierre et Marie Curie, Paris (1981)

THIRY 1983 -

P. Thiry, "Tables de flux et de polarisation de l'onduleur ACO", Rapport LURE (novembre 1983).

THOMAS 1991 -

X. Thomas, J. Cazaux, D. Erre, D. Mouze et P. Collard, "X-ray projection microscopy and microtomography in a scanning electron microscope", à paraître in *X-ray microscopy III*, *op. cit.* (1991)

TREBES 1988 -

J. Trebes, S. Brown, E.M. Campbell, N.M. Ceglio, D. Eder, D. Gaines, A. Hawriluk, C. Keane, R. London, B. McGowan, D. Mattheus, S. Maxon, D. Nilson, M. Rosen, D. Stearns, G. Stone, D. Whelan, in *X-ray microscopy II*, *op. cit.*, 30-35

UNDERWOOD 1991

J.H. Underwood, R.C. Perera, J.B. Kortright, P.J. Batson, C. Capasso, S.H. Liang, W. Ng, A.K. Ray-Chaudhury, R.K. Cole, G. Cheng, Z.Y. Guo, J. Wallace, J. Welnak, G. Margaritondo, F. Cerrina, G. De Stasio, D. Mercanti, M.T. Ciotti, "The MAXIMUM photoelectron microscope at the university of Wisconsin's synchrotron radiation center", à paraître dans *X-ray microscopy III*, *op. cit.*

VLADIMIRSKY 1989 -

Y. Vladimirsky, D. Kern, W. Mayer-Ilse, D. Attwood,
 "X-ray imaging of nanostructure pattern", Appl.
 Phys. Lett. 54, 286-288 (1989).

WATANABE 1991 -

N. Watanabe, M. Taniguchi, Y. Shimanuki, K. Kawasaki, Y. Watanabe, Y. Nagai, H. Kihara, "Soft xray microscope with zone plates at UVSOR", à paraître in *X-ray microscopy III*, op. cit. (1991)

WATTS 1991 -

R.N. Watts, D.L. Ederer, T.B. Lucatorto, M. Isaacson, "NIST metrology for soft X-ray multilayer optics", à paraître dans *Soft X-ray projection lithography*, Technical digest series, OSA, Washington D.C. (1991)

WOLTER 1952 -

H. Wolter, "Mirrors systems with grazing incidence as image-forming optics for x-rays", Ann. Phys, 10, 94-114 (1952)
 H. Wolter, "Generalized Schwarzschild systems of mirrors with glancing reflection as optical systems for x-rays", Ann. Phys. 10, 286-295 (1952)

WU 1990 -

WU Y., A.C. Thompson, J.H. Underwood, R.D. Giaume, K. Chapman, M.L. Rivers, K.W. Jones, "A tunable x-ray microprobe using synchrotron radiation", Nucl. Instr. Meth. A 291 54-59

YARIV -

A. Yariv, *quantum electronics*, John Wiley & Sons, New York, (1967)

YUN 1988 -

W.B. Yun et M.R. Howells, "Experimental demonstration of producing high resolution zone plates by spatial frequency multiplication", in *X-ray microscopy II*, op. cit., 182-185 (1988)
 W.B. Yun et M.R. Howells, "High resolution Fresnel zone plates for x-ray applications by spatial frequency multiplication", J. Opt. Soc. Am. A 4 34-40 (1987)

TABLE
DES
MATIERES

TABLE DES MATIERES

	pages
AVANT PROPOS	7
 CHAPITRE 1 - INTRODUCTION	
Origine et motivations de la microscopie X et de nos expériences	
1.1 - Aperçu historique	9
1.2 - Motivations	13

PARTIE I

CONSIDERATIONS GENERALES SUR LA MICROSCOPIE X

INTRODUCTION à la PREMIERE PARTIE	19
 CHAPITRE 2 - Interaction des rayons X avec la matière	
2.1 - Introduction	21
2.2 - Généralités	22
2.3 - Description de l'interaction X - matière	
1. Facteur de diffusion atomique	24
2. Indice de réfraction complexe	26
2.4 - Propriétés essentielles des constantes optiques dans le domaine X	
1. Ordres de grandeur	28
2. Relation avec les sections efficace ..	31
3. Mesures	32
2.5 - Conclusion	36

CHAPITRE 3 - Interaction des rayons X avec un objet

3.1 - Introduction	39
3.2 - Contraste	
1. Rappel de quelques notions essentielles	40
2. Contraste d'absorption	43
3. Contraste en éclairage cohérent	47
4. Limite de détection des faibles contrastes	51
5. Images par détection de particules secondaires	55
3.3 - Dommages subis par un objet examiné aux rayons X	
1. Notion de dose de rayonnement	58
2. Limitation de la sensibilité de détec- tion par la dose absorbée	59
3.4 - Préparation des objets	63
3.5 - Microanalyse	
1. Microanalyse de fluorescence X	67
2. Microanalyse d'absorption X	70
3. Comparaison des deux méthodes	72
3.6 - Conclusion	75

CHAPITRE 4 - L'optique X 70

4.1 - Sources de rayons X mous	
1. Rayonnement synchrotron	77
2. Sources à bombardement électronique ..	89
3. Sources à plasma	91
4.2 - Détecteurs	
1. Détecteurs de flux	94
2. Détecteurs d'images	96
4.3 - Focalisation des rayons X	
1. Miroirs	98
2. Réseaux	106
4.4 - Systèmes optiques pour la microscopie X	
1. Formation d'image sans élément optique	116
2. Microscopes à rayons X	123

PARTIE II

MICROSCOPIE DE CONTACT PAR CONVERSION D'IMAGE

	pages
INTRODUCTION à la DEUXIEME PARTIE	133
CHAPITRE 5 - Détection d'images de contact par conversion photoélectrique	
5.1 - Rappel des propriétés de l'imagerie de contact	137
5.2 - Principes et propriétés fondamentales de la conversion photoélectrique	138
5.3 - Limitations liées à la collection des électrons	
1. Aberration sphérochromatique	140
2. Calcul de la résolution par le cercle de moindre diffusion	144
3. Etude du compromis efficacité / résolution par la FTM	148
5.4 - Limitations intrinsèques à la conversion de rayons X en électrons secondaires	
1. Théorie élémentaire de la photoémission secondaire	157
2. Limites de la qualité des images obtenues par conversion X - électron ..	163
3. Choix d'une photocathode	172
CHAPITRE 6 - Réalisation du microscope	
6.1 - Introduction	175
6.2 - La lentille à émission	
1. Choix du type de lentille	176
2. Calcul et optimisation d'une lentille à émission diode	177

6.3 - L'optique magnétique	
1. Définition des éléments optiques	185
2. Réalisation mécanique de la colonne de microscope électronique	192
6.4 - Autres éléments du microscope	
1. Eclairage	194
2. Détection	195
3. Vide	196

CHAPITRE 7 - Expériences avec le microscope à conversion d'image et discussion des résultats

7.1 - Mise au point du système optique	
1. Première série d'expériences	199
2. Modification du centrage	200
7.2 - Expériences sur le microscope modifié	
1. Mise au point de la colonne modifiée ..	201
2. Influence de la préparation des photocathodes	202
7.3 - Discussion des résultats	
1. Photocathodes	205
2. Optique électronique	206
7.4 - Devenir de l'expérience	207

CONCLUSION de la DEUXIEME PARTIE	211
--	-----

PARTIE III

MICROSCOPIE X PAR HOLOGRAPHIE DE GABOR

	pages
INTRODUCTION à la TROISIEME PARTIE	215
 CHAPITRE 8 - Enregistrement d'hologrammes en rayons X	
8.1 - Principes de l'holographie X	219
8.2 - Enregistrement d'hologrammes avec des rayons X	
1. Problème de la cohérence	220
2. Minimisation des besoins en cohérence. Choix de la méthode de Gabor	220
3. Avantages et inconvénients du montage de Gabor	222
4. Autres configurations d'enregistrement	226
8.3 - Montage d'enregistrement sur le synchrotron	
1. Le montage d'enregistrement à ACO	229
2. La ligne "Holographie X" de Super-ACO	235
 CHAPITRE 9 - Reconstruction des hologrammes de Gabor	
9.1 - Introduction	241
9.2 - Problèmes généraux de la reconstruction d'hologrammes de Gabor	
1. Modélisation de l'hologramme	244
2. Problème de l'image jumelle..	247
3. Hologramme de Gabor en cohérence limitée	256
9.3 - Reconstruction optique des hologrammes de Gabor	
1. Etude paraxiale de la reconstruction optique	260
2. Etude des aberrations	264

3. Mise en oeuvre de la reconstruction optique	270
CONCLUSION de la TROISIEME PARTIE	279

ANNEXES ET REFERENCES

ANNEXE I	Calcul de la réflectivité des miroirs pour les rayons X	285
ANNEXE II	Calcul du réseau de la ligne de Lumière cohérente de Super-ACO	287
ANNEXE III	Articles sur la microanalyse d'absorption et la détection d'image par conversion X - visible	293
REFERENCES		321

<u>TABLE DES MATIERES</u>	329
---------------------------	-----