



HAL
open science

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

David Gauthier

► **To cite this version:**

David Gauthier. Imagerie nanométrique ultra-rapide par diffraction cohérente de rayonnement extrême-UV produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2012. Français. NNT : 2012PA112019 . tel-00734344

HAL Id: tel-00734344

<https://theses.hal.science/tel-00734344>

Submitted on 21 Sep 2012

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

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

UNIVERSITE PARIS-SUD 11

École Doctorale Ondes et Matière

THÈSE DE DOCTORAT

Effectuée au Service des Photons, Atomes et Molécules (SPAM), IRAMIS, DSM
Commissariat à l'Energie Atomique, Saclay.

Spécialité : Lasers et Matière

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITE PARIS-SUD XI

David GAUTHIER

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

Soutenue le 7 février 2012 devant le jury composé de :

M. François POLACK	Rapporteur
M. Jan LUNING	Rapporteur
Mlle. Virginie CHAMARD	
Mme. Annie KLISNICK	
M. Victor MALKA	
M. Hamed MERDJI	Co-directeur de thèse
M. Bertrand CARRE	Directeur de thèse

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

A ma maman

A ma famille

Remerciements

J'ai grandement apprécié ces années passées parmi les membres du groupe Attophysique que je souhaite remercier pour tout.

Je remercie Hamed Merdji qui m'a proposé ce sujet de thèse, à la suite de mon stage, pour développer cette nouvelle thématique du groupe. Je le remercie de m'avoir guidé sur différents axes de recherche intéressants et novateurs, et d'avoir encadré mes travaux. Je remercie également Bertrand Carré d'avoir accepté d'être mon directeur de thèse « officiel », ainsi que pour sa patience pendant la rédaction de ce manuscrit.

Je remercie également les personnes avec lesquelles j'ai travaillé étroitement pendant ma thèse. Merci à Xunyou Ge, Fan Wang et Willem Boutu de m'avoir supporté (dans différents sens du terme) pendant ces années. Sans oublier Alessandra Ravasio (« hey stage ! »). Ainsi que Marc Billon avec lequel j'ai « tripatouillé » la manip.

Je remercie les membres arrivés en cours de route dans l'équipe diffraction, Ana BORTA, Aura-Inès Gonzalez Angarita (« mé yé parle très bien français ! »), Mathieu Ducouso et Benjamin Barbrel (l'expatrié). Sans oublier les stagiaires « de passage », Mathieu Durero (qui mange à 2 à l'heure... mais efficace au travail) et Liu Xiaochi.

Je remercie le reste du groupe Atto : Zsolt Diveki mon camarade-doctorant, Stefan Haessler mon ainé-doctorant, Antoine Camper pour les discussions « scientifiques » très tardives, Thierry Ruchon pour la navette CEA-Massy, Pierre Breger, Marie Géléoc, Pascal Salière, Elizabeth English, Nan Lin, Bastian Manschwetus, Thierry Auguste et Christian Cornaggia.

Je remercie les différents collaborateurs avec qui j'ai travaillé, à commencer par Benoit Mahieu, Manuel Guizar-Sicairos et Filipe Maia. Ainsi que les membres de l'équipe source, Olivier Gobert, Michel Perdrix et tous les autres, les membres du LOA qui se reconnaîtrons...

Je remercie les membres du SPAM, la chef Cécile Reynaud, Jacqueline Bandura et Véronique Gerecny du secrétariat, Gilles Le Chevallier de l'atelier électrotechnique ainsi que les personnes de l'atelier de mécanique.

Merci à tous de m'avoir fait passer trois années agréables...

Enfin, je remercie François Polack et Jan Luning d'avoir acceptés d'examiner mon manuscrit, ainsi que Virginie Chamard, Annie Klisnik et Victor Malka d'avoir acceptés de faire partie de mon jury.

Résumé

Ce manuscrit présente des expériences d'imagerie par diffraction réalisées en utilisant une source de rayonnement cohérent basée sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé d'un laser Ti:Sa. Elles démontrent que cette source extrême-UV de laboratoire produit un nombre suffisant de photons par impulsion pour enregistrer une figure de diffraction d'objets tests en « simple tirs ». Le signal ainsi enregistré permet l'obtention d'une image de l'objet avec une résolution d'une centaine de nanomètres. Deux schémas sont utilisés pour reconstruire l'objet : le premier utilise un algorithme itératif de reconstruction de la phase perdue pendant la détection de la figure de diffraction ; le second utilise une configuration holographique par transformée de Fourier. Les travaux réalisés comportent deux parties. La première concerne l'optimisation de la source harmonique et inclut une étude expérimentale d'un dispositif de filtrage spatial du faisceau laser de génération par propagation dans une fibre creuse. La seconde partie présente les expériences d'imagerie par diffraction, et notamment une démonstration du schéma holographique HERALDO qui est une extension de l'holographie par transformée de Fourier à des références en forme de polygones. L'utilisation de ces références « étendues » a pour avantage d'optimiser l'enregistrement holographique tout en conservant une reconstruction directe et sans ambiguïté de l'objet. Une analyse signal-sur-bruit ainsi qu'une comparaison des reconstructions d'hologramme pour différentes formes de références sont effectuées.

Mots-clefs : Diffraction cohérente, Imagerie sans lentille, Génération d'harmoniques d'ordre élevé, Source UV-X, Filtrage modal, Holographie par transformée de Fourier, Références holographiques étendues, Rapport signal sur bruit.

Ultrafast nanometers scale coherent diffractive imaging with extreme-UV light from high harmonics generation beamline.

Abstract:

This manuscript presents diffraction imaging experiments performed using a source of coherent radiation based on high order harmonics generation of a Ti:Sa laser. They demonstrate that this laboratory size XUV source produces a number of photons per pulse sufficient to record the diffraction pattern of test objects in « single shot ». The signal thus recorded allows obtaining an image of the object with a resolution of around 100 nanometers. Two schemes are used to reconstruct the object: the first one uses an iterative algorithm to retrieve the phase lost during the detection of the diffraction pattern; the second uses a configuration of Fourier transform holography. The work presented here is separated in two parts. The first one concerns the optimization of the harmonic source, including an experimental study of a spatial filtering device for laser beams by propagation in a hollow core fiber. The second part deals with the diffraction imaging experiments. In particular, I present a demonstration of the holographic scheme HERALDO, which is an extension of the Fourier transform holography with polygonal references. The use of these « extended » references allows the optimization of the holographic recording while maintaining a direct and non-ambiguous reconstruction of the object. An analysis of signal-to-noise ratio and a comparison of hologram reconstructions for different types of references are performed.

Key-words: Coherent diffraction, Lensless imaging, High order harmonics generation, XUV source, Modal filtering, Fourier transform holography, Extended references, Signal to noise ratio.

Table des matières

Introduction	1
Partie I : Ligne de lumière génération d'harmoniques d'ordre élevé.	7
1. Génération d'harmoniques d'ordre élevé	8
1.1 Introduction sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé (aspects microscopiques de la GH)	8
1.2 Construction du rayonnement harmonique (aspects macroscopiques de la GH)	10
1.2.1 Équation de propagation	10
1.2.2 Accord de phase	12
1.2.3 Longueurs caractéristiques	15
1.2.4 Optimisation de la génération d'harmonique	16
2. Génération d'harmoniques en géométrie longue focale : le setup « HHG haute énergie laser »	18
2.1 La ligne de lumière harmonique haute énergie laser	18
2.1.1 Présentation	18
2.1.2 Principales caractéristiques	20
2.2 Optimisation expérimentale du dispositif « grand volume »	22
2.2.1 Ajustement des principaux paramètres	22
2.2.2 Campagne de mesure du front d'onde UV-X	23
3. Amélioration des qualités du faisceau harmonique par filtrage modal du laser de génération	26
3.1 Dispositif de filtrage modal sur le laser « LUCA »	26
3.1.1 Présentation du dispositif	26
3.1.2 Résultats du filtrage modal	28
3.2 Propriétés du faisceau harmonique généré après filtrage modal	31
3.2.1 Caractéristiques du mode filtré pour la génération	31
3.2.2 Génération avec le mode filtré	33
3.2.3 Conclusion	38
4. Propriétés de l'illumination pour l'expérience de diffraction	39
4.1 La configuration « expérience d'imagerie sans lentille »	39
4.2 Propriétés de l'illumination de l'échantillon	43
4.2.1 Distribution de l'illumination au plan de focalisation	43
4.2.2 Cohérence au plan de focalisation	44

5.	Approximation de projection et diffraction de Fraunhofer	52
5.1	Transmittance d'un objet sous l'approximation de projection	52
5.2	Diffraction en champ lointain.....	54
5.3	Onde transmise et plan objet	56
6.	Conditions de l'imagerie sans lentille	60
6.1	Détection et échantillonnage	60
6.1.1	Enregistrer la figure de diffraction	60
6.1.2	Echantillonner la figure de diffraction	61
6.1.3	Notion de sur-échantillonnage linéaire.....	63
6.1.4	Échantillonnage par fenêtre rectangulaire : le capteur CCD	64
6.2	Cohérence en diffraction	66
6.2.1	Autocorrélation de l'objet et cohérence	66
6.2.2	Etude de cas.....	67
7.	Construction des images	70
7.1	Problème de la phase et algorithme de reconstruction	70
7.1.1	Le problème de la phase et l'oversampling.....	70
7.1.2	Reconstruction de la phase par algorithme itératif	71
7.2	Holographie par transformée de Fourier	72
7.2.1	Introduction et concept de l'holographie.....	72
7.2.2	Principe de l'holographie par transformée de Fourier.....	73
8.	Signal, bruit et efficacité de diffraction	76
8.1	Limitation par le signal et rapport signal sur bruit (SNR).....	76
8.1.1	Le rapport signal sur bruit (SNR) et bruit de photon.....	76
8.1.2	Image et résolution limitée par le signal enregistré.....	77
8.2	Distribution de l'éclairement.....	79
8.2.1	Fluence sur le détecteur d'un élément de résolution	79
8.2.2	Considérations pour un échantillon à 2 dimensions	80
8.3	Contribution de l'échantillon au signal	82
8.3.1	Avantage du terme hétérodyne.....	82
8.3.2	SNR du terme hétérodyne.	82
8.3.3	Référence étendue et reconstruction.....	84

9. Démonstration expérimentale de l'imagerie par diffraction cohérente sur la ligne harmonique.....	90
9.1 Setup expérimental.....	90
9.1.1 L'échantillon	90
9.1.2 Le détecteur CCD UV-X.....	92
9.2 Résultats de diffraction cohérente.....	97
9.2.1 Caractéristiques de l'expérience de diffraction.....	97
9.2.2 Acquisition de la figure de diffraction	100
9.2.3 La reconstruction par algorithme itératif.....	101
9.2.4 Le PRTF et l'estimation de la résolution.....	102
9.2.5 Retour sur les propriétés de l'illumination.....	103
9.2.6 Dommages aux échantillons.....	104
9.2.7 Autres reconstructions.....	105
10. Holographie avec référence étendue : HERALDO	109
10.1 Principe de la reconstruction HERALDO	109
10.2 Résultats expérimentaux	112
11. HERALDO : analyse signal sur bruit	116
11.1 Analyse théorique.....	116
11.2 Résultats expérimentaux	120
11.2.1 Filtrage des données avant reconstruction.....	121
11.2.2 Influence du bruit de lecture-amplification sur la reconstruction	123
11.2.3 Acquisition multi-tirs et hardware binning	126
11.2.4 Comparaison FTH / HERALDO.....	127
11.2.5 Reconstruction CDI avec références étendues	131
11.2.6 Conclusion.....	132
12. Perspective d'applications	133
12.1 Imagerie 3D « stéréo »	133
12.1.1 Objectifs	133
12.1.2 Reconstructions préliminaires	133
12.1.3 Perspectives.....	135
12.2 Imagerie de domaines magnétiques	136
12.2.1 Objectifs	136
12.2.2 Résultats de diffusion.....	136
12.2.3 Perspectives.....	138

Conclusion générale.	141
Annexes.	145
A. Transformée de Fourier, convolution et corrélation : notations et propriétés utiles.....	145
B. Propagation et diffraction sous approximation paraxiale	147
1. L'équation de Helmholtz et solutions	147
2. Approximation paraxiale.....	148
3. Relation entre vecteur d'onde et phase.....	150
C. Notions sur la cohérence	151
D. Publications	153
Bibliographie.	177

Introduction

La microscopie a toujours été un outil fondamental pour les sciences. L'observation d'un « objet » biologique, physique, etc., au moyen de son « image », est la façon la plus directe, la plus simple, de recueillir l'information nécessaire à son étude. Obtenir l'image d'objets individuels, systèmes mésoscopiques, macromolécules, molécules à l'échelle nanométrique (10^{-9} mètre) ou sub-nanométrique, avec une résolution temporelle femtoseconde (10^{-15} seconde) ou attoseconde (10^{-18} seconde), représente de nos jours un challenge fascinant qui va au-delà des techniques établies à ce jour [1]. Les techniques actuelles de microscopie sont nombreuses et utilisent des sources de rayonnement ou de particules diverses. Exemple : la microscopie optique visible, la microscopie électronique, les systèmes à sonde locale (microscope électronique à balayage (MEB), microscopie à effet tunnel, ...), la microscopie X pour les objets individuels.

Les techniques de microscopie de plein champ (en opposition aux techniques à sondes locales) sont usuellement basées sur l'utilisation d'un système de formation de l'image, constitué d'optiques qui collectent le rayonnement diffusé par l'objet et forme son image. L'utilisation d'un système optique s'accompagne de diverses contraintes de manipulation et de limitation sur la qualité et la résolution des images. Une solution serait de détecter directement la lumière diffusée ou diffractée par l'objet. C'est le principe de l'imagerie par diffraction ou imagerie « sans lentille » (Figure 1). Les techniques d'imagerie sans lentille, ou « lensless », ont été développées et appliquées largement dans le domaine du rayonnement extrême-UV (EUV – gamme de longueur d'onde 10-100 nm) et « soft X-ray » (~ 0.5-10 nm) [2]. L'imagerie par diffraction fournit une solution alternative à l'utilisation contraignante d'optiques diffractives utilisées pour la microscopie X classique [3].

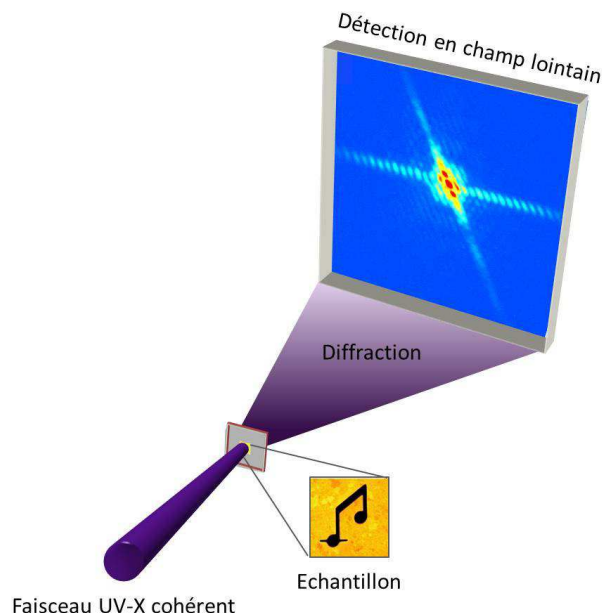


Figure 1 : illustration de la configuration d'imagerie sans lentille, ou par diffraction. Aucun système optique n'est présent entre l'objet et le détecteur.

L'utilisation de rayonnement énergétique de courte longueur d'onde est motivée par une relation universelle de l'optique (et plus largement de la physique) qui impose que la longueur d'onde de la « sonde » soit inférieure aux phénomènes sondés. En microscopie de plein champ, cela peut se traduire par la relation bien connue, introduite par Rayleigh, qui définit la résolution accessible sur une image par rapport à la longueur d'onde de l'illumination [4]. Ceci étant relié aux propriétés de propagation du rayonnement, plus précisément à sa diffraction, et justifie l'utilisation de rayonnement EUV ou X pour la microscopie.

Le rayonnement X a suscité un intérêt particulier pour l'imagerie depuis sa découverte par Wilhelm Röntgen, en particulier pour l'imagerie médicale et la cristallographie. Les fondements conceptuels de la microscopie X sans lentille sont établis dans les années 1950-1960, dans le cas d'une configuration holographique. Des expériences à haute résolution avec un schéma holographique de Gabor sont obtenues à la fin des années 1980 [5].

L'imagerie sans lentille est basée sur la détection du rayonnement diffracté par un objet présentant un contraste d'amplitude ou de phase, et sur la possibilité d'inversion de la figure de diffraction enregistrée. Cette inversion nécessite comme condition principale la cohérence de l'illumination incidente sur l'objet – on parle alors de diffraction cohérente. L'inversion suppose de résoudre le problème de la phase, c'est-à-dire d'obtenir l'information de la phase associée à la mesure de la distribution d'éclairement qui constitue la figure de diffraction [6]. La perte de l'information de phase pendant la détection est généralement rencontrée en physique, notamment en optique femto-seconde et atto-seconde. C'est un problème central de l'imagerie sans lentille. Couramment, deux méthodes sont utilisées pour obtenir l'information de phase. La première est l'holographie par transformée de Fourier (acronyme anglais FTH) où une source ponctuelle juxtaposée à l'objet permet d'encoder l'information de la phase par interférence dans la figure de diffraction (appelé hologramme). La première démonstration expérimentale dans le domaine spectral des rayons X fut obtenue par McNulty et al. en 1992 [7]. La deuxième est l'imagerie par diffraction cohérente (Coherent Diffraction Imaging, CDI). Cette technique utilise une procédure itérative de reconstruction de la phase basée sur des conditions particulières d'échantillonnage qui nécessite que l'objet soit isolé. La première démonstration expérimentale a été effectuée par Miao et al. en 1999 [8].

Depuis ces démonstrations, de nombreuses équipes se sont engagées dans cette voie, notamment auprès de sources synchrotrons [9-15]. Cependant les durées d'impulsions des sources synchrotrons ne permettent pas d'accéder aux processus les plus rapides à l'échelle atomique ou nanométrique, typiquement de la femtoseconde (10^{-15} s) à l'attoseconde (10^{-18} s). Les nouvelles sources cohérentes de rayonnement UV-X (on considère généralement que le terme ambiguë « UV-X » regroupe le domaine EUV et Soft X-ray), en particulier le laser à électrons libres, ont récemment démontré la faisabilité de l'imagerie cohérente dans cette gamme de longueur d'onde [16-18]. Les premières études d'imagerie par diffraction cohérente ultra-brèves ont permis d'imager des objets nanométriques isolés, en utilisant une impulsion EUV femtoseconde unique (durée ~ 25 fs), délivrée par le Laser à Electrons Libres (LEL) de Hambourg [19-21]. Très récemment, le tout premier laser à électrons libres émettant dans les X-durs (< 0.5 nm) a donné lieu à deux travaux de première importance [22, 23]. Ces résultats peuvent révolutionner les sciences de l'imagerie en permettant d'imager des systèmes nanométriques, des macromolécules, des virus sans avoir recours à la cristallisation.

De façon générale, pour un système d'imagerie sans lentille, la résolution des images est en principe « limitée par diffraction », c.-à-d. limitée par la configuration de détection (ouverture numérique de détection) et par la longueur d'onde. Dans la pratique, la principale limitation provient du signal enregistré sur la figure de diffraction et de la capacité du processus de reconstruction à extraire l'information de cette figure de diffraction. La résolution limite peut se matérialiser par l'angle maximum de diffraction pour lequel le rapport signal sur bruit (SNR) permet d'extraire l'information nécessaire à la reconstruction – notion de « diffraction intensity-limited resolution ». La capacité de ces techniques se rapporte donc principalement à la quantité et la qualité du signal enregistré sur la figure de diffraction. Ceci justifie la forte motivation à développer des sources UV-X ultrabrèves délivrant un flux de photons cohérent important, comme cela est le cas pour les lasers à électrons libres en opération ou en projet dans le monde [24, 25]. Cependant ces machines sont peu nombreuses et restent donc peu accessibles à la communauté scientifique. Cela motive le développement de source UV-X « alternative » utilisable pour des applications en imagerie avec ou sans lentille. De façon non exhaustive, on distingue les sources basées sur l'émission stimulée d'un plasma pompé par décharge électrique [26] ou par laser [27-29] et les sources X issues de l'accélération de particules (bêatron, ...) [30]. Ces sources sont peu ou ne sont pas cohérentes, généralement ultra-brèves, délivrant un nombre de photons généralement limité (par rapport au LEL) et couvrent une gamme spectrale large.

Le processus de génération d'harmoniques, depuis sa découverte et sa compréhension, n'a cessé d'être le sujet d'une recherche intensive; c'est également vrai des applications. Les potentialités de la source harmonique sont nombreuses du fait de la brièveté des impulsions et de l'énergie des photons générés. Les applications se sont développées dans de nombreux domaines de la physique : en physique des solides et des surfaces [31], en physique moléculaire et atomique où les impulsions attoseconde peuvent être utilisées pour sonder des processus électroniques ultrarapides, tels que l'effet Auger ou l'effet tunnel. Par exemple, l'analyse du rayonnement harmonique émis permet de reconstruire la structure des paquets d'ondes électroniques lors de la génération dans les atomes et les molécules [32, 33].

Les applications en imagerie de la source harmonique, utilisant des configurations sans-lentille, mettent à profit les propriétés de cohérence du rayonnement émis (il existe très peu de travaux basée sur l'utilisation d'optiques diffractives [34]). Les premières expériences ont utilisé une configuration d'holographie in-line [35-37] avec des résolutions supérieures au micromètre. Les premières expériences CDI ont été réalisées sur une source harmonique en 2007. Cette configuration s'avère beaucoup moins contraignante et permet d'obtenir des résolutions bien meilleures (sub-100nm) notamment parce que non limitée par l'ouverture numérique faible des schémas « in-line ». Dans les travaux publiés par le groupe du JILA [38-40], la source utilisée était très peu intense. Les données étaient obtenues sur des temps d'accumulation de l'ordre de l'heure (10^6 tirs lasers!). Au CEA, il avait déjà été démontré la possibilité de délivrer avec une source harmonique des énergies de l'ordre du micro-joule par impulsion dans la gamme UV-X [41]. C'est sur la base de ces travaux que le dispositif HHG appelé « grand volume » a été construit en 2007, avec pour objectif une application à l'imagerie sans lentille en simple tir.

Ce travail de thèse intervient dans la continuité des développements de cette source harmonique à haute énergie laser, et dans le domaine de l'imagerie par diffraction qui est actuellement en plein essor, avec un nombre de publications en constante augmentation. Il démontre la capacité

de la source harmonique à effectuer une expérience de microscopie par diffraction « ultrabrève ». Un premier objectif était d'obtenir l'acquisition « simple tir » d'une figure de diffraction qui permette de reconstruire l'image d'un objet avec une résolution nanométrique. Cette acquisition simple tir offre la possibilité d'accéder à des résolutions temporelles ultrabrèves de l'ordre de la durée de l'impulsion UV-X produit par la source harmonique (quelques dizaines de femtosecondes). Cet objectif a été atteint au cours de mes premiers travaux dans le groupe Attophysique du CEA-Saclay, pendant lesquels les premières figures de diffraction en simple tir « restructurables » ont été enregistrées. Une image d'un objet test a pu être reconstruite, dans une collaboration avec Filipe R. N. C. Maia de l'université d'Uppsala (Suède), avec une résolution de 120 nm [42, 43] (voir article n°1 en annexe). Après cette démonstration test, nous avons travaillé sur la source afin d'optimiser son flux et sa fonctionnalité. Ces efforts nous ont permis d'obtenir relativement aisément des résolutions inférieures à la centaine de nanomètres. La dernière amélioration apportée sur la source a été le système de filtrage modal du laser femtoseconde IR de génération (voir article n°3 en annexe). Parallèlement, dans un cadre de recherche des moyens d'optimisation de la détection du signal diffracté et de reconstruction d'une image haute résolution en simple-tir, une nouvelle configuration holographique par transformée de Fourier a été expérimentée. Ce travail effectué en collaboration avec Manuel Guizar-Sicairos et James Fienup de l'Université de Rochester, a permis d'obtenir une image résolue à 110 nm par reconstruction directe d'un hologramme en simple tir [44] (voir article n°2 en annexe). Ces avancées nous permettent maintenant d'aborder des applications concrètes de l'imagerie nanométrique ultrarapide avec notamment l'imagerie de nano-domaines magnétiques ou bien l'imagerie stéréoscopique.

Le manuscrit est partagé en trois parties. La **première partie** présente la source harmonique, du laser de génération à la focalisation de l'impulsion UV-X sur l'échantillon. Le **premier chapitre**, après une rapide présentation de l'aspect microscopique de la génération d'harmonique (GH), développe la construction macroscopique du faisceau harmonique. Cette partie présente un état de l'art des recherches effectuées sur la compréhension de la construction cohérente du rayonnement et l'optimisation de cette construction. Cette connaissance de l'aspect macroscopique de la GH est importante pour l'optimisation et le contrôle de la source. Le **chapitre 2** présente le schéma de génération d'harmoniques d'ordre élevé à haute énergie laser ou « grand volume » avec ses principales caractéristiques et les expériences d'optimisation et de « fonctionnalisation » qui ont permis de générer des photons de façon « quasiment » routinière, d'où la dénomination de « ligne de lumière harmoniques ». Le **chapitre 3** est consacré à des travaux sur le filtrage spatial du mode laser de génération nécessaire à l'amélioration de la source harmonique (accord de phase, qualité spatiale). Le dispositif de filtrage spatial utilise la propagation et la sélection modale dans un capillaire creux placé après le dernier étage d'amplification du laser femtoseconde. Des résultats seront présentés sur le filtrage au niveau du laser, avant et après compression, puis sur la comparaison de la génération d'harmonique avec et sans dispositif de filtrage. Le **chapitre 4** présente la configuration complète du dispositif pour les expériences d'imagerie qui inclut la génération, le transport optique, la sélection spectrale et la focalisation du faisceau harmonique. Les caractéristiques de l'illumination des échantillons seront présentées, déterminées par des mesures de front d'onde et des mesures de cohérence par interférence d'Young. Cette première partie se conclut alors sur la mesure des caractéristiques nécessaires pour l'imagerie par diffraction.

La **deuxième partie** du Mémoire introduit les outils théoriques de l'imagerie par diffraction cohérente (CDI) et l'holographie par transformée de Fourier (FTH). Le **chapitre 5** présente les propriétés de l'onde transmise par un échantillon considéré dans l'approximation de projection puis les notions fondamentales de la diffraction de Fraunhofer. Les propriétés du régime de diffraction et la validité des différentes approximations sont discutées. Le **chapitre 6** présente les aspects théoriques de la détection de la figure de diffraction, les conditions de cohérence et d'échantillonnage, qui doivent être satisfaites dans un schéma d'imagerie par diffraction. Le **chapitre 7** introduit les concepts de reconstruction pour la configuration CDI avec l'algorithme de reconstruction de la phase et les propriétés d'une reconstruction FTH. Le **chapitre 8** discute de l'influence du niveau de signal et du rapport signal sur bruit (SNR) des figures de diffraction. Ces notions sont fondamentales puisque la principale limitation à la reconstruction, à partir d'une acquisition simple tir, est le niveau du signal de diffraction. Ce dernier est relié au nombre de photons incidents sur le détecteur, lequel est proportionnel au nombre de photons incidents sur l'échantillon et donc au nombre de photons délivrés par la source. Ce chapitre présente la relation entre les propriétés de l'échantillon, la fluence sur le détecteur et la résolution accessible sur l'image reconstruite. Ces notions seront utilisées pour le choix des échantillons test, la disposition du détecteur, et surtout pour l'analyse signal des acquisitions holographique avec référence étendue.

La **troisième partie** présente les principaux résultats expérimentaux obtenus en imagerie CDI et holographique, respectivement. Le **chapitre 9** présente les résultats de diffraction cohérente (CDI) obtenus sur la ligne harmonique ainsi que les reconstructions des images d'objets tests obtenu par algorithme de reconstruction de la phase. Les propriétés et la fabrication des échantillons tests sont détaillées, ainsi que les caractéristiques du détecteur CCD UV-X. Nous présentons les résultats en acquisition simple et multi-tirs, en détaillant les procédures de reconstruction, la détermination de la résolution et une analyse post-reconstruction des propriétés de l'illumination. Le **chapitre 10** résume les résultats du schéma holographique par transformée de Fourier avec référence étendue « HERALDO ». Le principe de reconstruction HERALDO est décrit et appliqué au cas particulier de la référence « fente ». Les résultats de reconstruction HERALDO sont présentés pour les hologrammes enregistrés avec cette référence étendue, en simple et en multi-tirs. Ce chapitre se termine avec une discussion sur le point source équivalent après reconstruction. Le **chapitre 11** présente une analyse du signal principalement axée sur les avantages et les inconvénients de la technique HERALDO dans nos conditions expérimentales. Nous étudions notamment les caractéristiques du bruit de détection et la diffraction par une référence étendue. Une analyse sur différentes acquisitions est effectuée avec une comparaison entre deux types de référence étendue et des références ponctuelles. Pour finir, le **chapitre 12** montre des résultats préliminaires de deux expériences d'application de l'imagerie sans lentille.

Partie I : Ligne de lumière génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Du laser à l'échantillon

La découverte du phénomène de génération d'harmoniques d'ordre élevé en 1987, à Chicago [48] et à Saclay [49], a soulevé bien des questions quant à son origine. Il était en effet difficile d'admettre qu'un atome puisse émettre des photons d'énergie bien supérieure à son potentiel d'ionisation. Ce n'est que quelques années plus tard, grâce à notre compréhension de la dynamique d'interaction d'un atome avec un champ laser intense, que ces questions ont pu trouver des réponses et permettant des voies d'optimisation de la génération d'harmoniques en vue de diverses applications.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz est un phénomène qui dépend de plusieurs paramètres. De nombreuses études ont permis d'appréhender et de mieux définir les conditions qui conduisent à une efficacité de conversion optimale. Les travaux continuent dans ce sens, en incluant le contrôle étendu des paramètres « fins » de la génération, comme le front d'onde, la phase spectrale de l'impulsion laser. Parallèlement, les travaux visent à maximiser le nombre absolu de photons, à efficacité de conversion donnée, en augmentant l'énergie laser et les dimensions du milieu générateur. En 2002 au CEA Saclay, des énergies par impulsion de l'ordre du microjoule sont obtenues en utilisant une lentille de grande longueur focale permettant de créer un large volume de génération à forte énergie laser [41]. Des travaux similaires ont été publiés simultanément par le groupe du Professeur Midorikawa au Japon [45, 46].

La source de lumière utilisée pour les expériences d'imagerie cohérente est issue du dispositif appelé « grand volume » basé sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé à « haute énergie laser ». L'objectif est de coupler au mieux toute l'énergie laser disponible et le milieu atomique générateur, ce qui conduit à un grand volume d'interaction. Outre le nombre de photons générés, les travaux d'optimisation se concentrent sur les propriétés spatiales du faisceau harmonique. De toutes les sources UV-X ultra-brèves, la source harmonique est celle dont les propriétés optiques s'approchent le plus de celles du laser, dans le sens où le faisceau provient d'une addition cohérente des émissions des différents atomes du milieu [47]. Dans un laser, c'est l'émission stimulée et la cavité qui « pilotent » cette construction cohérente. Dans la génération d'harmoniques, c'est le laser IR de génération qui « pilote », de façon plus ou moins directe, la construction cohérente du faisceau harmonique via l'accord de phase. C'est cette caractéristique qui oblige à optimiser les propriétés spatiales du laser de génération. Je présente ici, après une description du processus d'accord de phase et des propriétés associées à la génération « en grand volume », les travaux que j'ai effectués sur le filtrage par sélection modale d'un laser femtoseconde. Pour finir, les caractéristiques de la source harmonique sont décrites, particulièrement celles obtenues dans le plan de l'échantillon. Ces caractéristiques vont contraindre les besoins en imagerie par diffraction.

1. Génération d'harmoniques d'ordre élevé

Note : Les éléments constituant ce chapitre de rappel sont repris en partie des thèses de Willem BOUTU et Marco De GRAZIA, que je remercie.

1.1 Introduction sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé (aspects microscopiques de la GH)

Le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé a été mis en évidence simultanément à Chicago [48] et à Saclay [49]. En focalisant dans un milieu gazeux atomique ou moléculaire une impulsion laser de fréquence ω , de durée pico ou femtoseconde, avec un éclairement de quelques 10^{13} à 10^{15} W/cm², on induit une réponse très non linéaire du milieu qui rayonne « vers l'avant » – dans la direction de propagation du faisceau laser – les harmoniques d'ordre impair de la fréquence fondamentale ω . Le spectre des harmoniques générées se présente comme un plateau, dans lequel l'intensité des harmoniques est relativement constante – ce qui traduit le fait que l'interaction non-linéaire est non-perturbative – limité par une coupure qui définit l'énergie maximale des photons qui peuvent être générés. C'est en 1992 que Krause et coll. [50] ont fait avancer la compréhension du processus en proposant une loi empirique pour rendre compte de la «coupure»:

$$h\nu_{max} = I_p + 3.2U_p$$

Où I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome et $U_p = e^2E^2/4m\omega^2$ est l'énergie cinétique moyenne d'un électron libre acquise au cours de son oscillation dans le champ laser, dite énergie pondéromotrice.

Peu de temps après, cette loi empirique a pu être justifiée dans le cadre d'un modèle semi-classique en régime de champ fort à basse fréquence [51]. Le modèle décompose la génération d'harmoniques en trois étapes:

- i) A l'éclairement laser considéré, le paramètre de Keldysh $\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}$ est < 1 . L'atome est ionisé par effet tunnel à travers la barrière du potentiel coulombien, qui devient de largeur finie en présence du champ.
- ii) En fonction de l'instant d'ionisation, l'électron éjecté – ou le paquet d'ondes électronique - oscille dans le champ laser quasi-librement (le potentiel Coulombien est négligé). Il peut gagner de l'énergie cinétique et être accéléré vers le système dont il est issu.
- iii) Le paquet d'ondes électronique peut être diffusé et se recombiner radiativement avec l'ion parent en émettant une impulsion ultra-brève (attoseconde) de lumière UV-X. L'énergie du photon est alors la somme de I_p et de l'énergie cinétique acquise par l'électron lors de son oscillation dans le champ laser ; on montre facilement que celle-ci est inférieure ou égale à $3.2 U_p$.

Rapidement, Lewenstein et coll. [52-54] proposent un modèle complètement quantique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, dans l'approximation des champs forts à basse fréquence (Strong Field Approximation, SFA). Dans ce modèle, le dipôle atomique est calculé comme une somme d'amplitudes de probabilité, associée chacune à un chemin quantique pour le paquet d'ondes électronique. Le chemin quantique, qui s'identifie à une trajectoire semi-classique, inclut les étapes d'ionisation, d'accélération et de recombinaison : le modèle de Lewenstein justifie donc à son tour le modèle semi-classique en trois étapes. Le modèle conduit à identifier un nombre fini de trajectoires dont la contribution à la génération de l'harmonique $q\omega$ est dominante : dans le plateau, deux trajectoires, respectivement *courte* et *longue*, contribuent ; dans la coupure, ces deux trajectoires se confondent en une trajectoire unique.

Ce modèle microscopique sera très utilisé pour optimiser le dipôle rayonné par chaque atome. Lorsque l'on cherche à optimiser le nombre total de photons émis par le milieu, on doit prendre en compte la réponse macroscopique du système. Pour que le transfert d'énergie entre le champ et le milieu soit optimal, il est indispensable de satisfaire la condition d'accord de phase, c'est à dire que la polarisation source et le champ harmonique se propagent dans le milieu avec la même vitesse de phase. Dans ce cas, lors de la construction du rayonnement, les champs harmoniques émis par chacun des dipôles interfèrent constructivement, construisant ainsi un champ macroscopique cohérent en sortie du milieu.

1.2 Construction du rayonnement harmonique (aspects macroscopiques de la GH)

1.2.1 Équation de propagation

Afin de bien comprendre comment s'effectue l'accord de phase lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, nous allons présenter un rappel du formalisme utilisé pour caractériser la propagation du champ harmonique à travers un milieu dispersif [53]. L'équation générale de propagation d'un champ électromagnétique $\vec{E}(\vec{r}, t)$ dans un milieu diélectrique isotrope neutre caractérisé par une polarisation électrique $\vec{P}(\vec{r}, t)$ peut s'écrire :

$$\Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}(\vec{r}, t)}{\partial t^2}$$

Le champ « total » $\vec{E}(\vec{r}, t)$ dans le milieu est la superposition du champ fondamental et de ses harmoniques impaires. On peut l'écrire comme une somme discrète de composantes de Fourier de fréquence $q\omega$ (l'indice « 1 » correspond au champ laser IR) :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{q=1, \text{ impair}} \vec{\mathcal{E}}_q(\vec{r}, t) e^{-iq\omega t}$$

Où $\vec{\mathcal{E}}_q(\vec{r}, t)$ est l'enveloppe lentement variable de la porteuse à la fréquence $q\omega$. De même, on peut décomposer la polarisation en composantes de Fourier :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_{q=1, \text{ impair}} \vec{\mathcal{P}}_q(\vec{r}, t) e^{-iq\omega t}$$

Il est usuel d'écrire la polarisation $\vec{\mathcal{P}}_q$ comme la somme d'un terme linéaire en fonction des champs $\vec{\mathcal{E}}_{q'}$ – qui ne peut donc dépendre que de la composante $q'=q$ à la fréquence $q\omega$ – et d'un terme non linéaire en fonction des champs $\vec{\mathcal{E}}_{q'}$ – par exemple impliquant les composantes q_1, q_2, \dots, q_n telles que $q_1+q_2+\dots+q_n=q$ – qui dépendra principalement du champ laser $\vec{\mathcal{E}}_1$:

$$\vec{\mathcal{P}}_q(\vec{r}, t) = \vec{\mathcal{P}}_q^L(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{P}}_q^S(\vec{r}, t)$$

La polarisation linéaire est associée au phénomène de dispersion ; elle est donnée par :

$$\vec{\mathcal{P}}_q^L(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi_q(\vec{r}, t) \vec{\mathcal{E}}_q(\vec{r}, t)$$

Pour $q>1$, au terme de dispersion linéaire s'ajoute le terme non linéaire $\vec{\mathcal{P}}_q^S(\vec{r}, t)$ qui correspond au terme source du rayonnement harmonique.

On peut introduire $n_q(\vec{r}, t) = \sqrt{1 + \chi_q(\vec{r}, t)}$ l'indice du milieu vu par le fondamental ($q = 1$) et les différentes harmoniques. Dans le cas d'une faible dispersion, l'indice de réfraction est la somme des différents termes de dispersion induits par les atomes, les ions et les électrons libres.

L'indice dépend de l'espace et du temps à travers les variations des densités atomique et électronique/ionique. L'indice $n_1(\vec{r}, t)$ perçu par le champ fondamental est dominé par le terme dû aux électrons libres produits par ionisation tunnel. En plus de l'ionisation, qui est déjà un processus non linéaire en \mathcal{E}_1 , l'indice peut aussi inclure l'effet Kerr, processus qui dépend de l'éclairement du champ fondamental (contribution effective de la susceptibilité χ_1 du troisième ordre).

Nous faisons l'hypothèse que la dispersion de la vitesse de groupe est négligeable, c.-à-d. que l'impulsion fondamentale et les impulsions centrées sur les différents ordres harmoniques se propagent à la même vitesse de groupe dans le milieu. Cette hypothèse est vérifiée pour une génération dans les gaz. Bien que la génération d'harmoniques utilise des impulsions courtes (régime femtoseconde), les propriétés spatiales de la génération d'harmoniques, qui nous intéressent ici, peuvent alors être décrites en régime « stationnaire », soit dans un référentiel qui suit la propagation de l'impulsion. On fera le changement de variables $(t, z) \rightarrow (t' = t - z/v_g, z' = z)$, où $v_g = \left(\frac{dk(\omega)}{d\omega}\right)^{-1}$ est la vitesse de groupe « moyenne ».

On obtient un système d'équations qui décrit la propagation du fondamental:

$$\Delta \vec{\mathcal{E}}_1 + \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{\mathcal{E}}_1 = -\frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{\mathcal{P}}_1^L$$

Et des harmoniques :

$$\Delta \vec{\mathcal{E}}_q + \left(\frac{q\omega}{c}\right)^2 \vec{\mathcal{E}}_q = -\frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{q\omega}{c}\right)^2 (\vec{\mathcal{P}}_q^L + \vec{\mathcal{P}}_q^S)$$

En utilisant l'expression de l'indice, elles s'écrivent encore :

$$\begin{aligned} \Delta \vec{\mathcal{E}}_1 + \left(n_1(\vec{r}) \frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{\mathcal{E}}_1 &= 0 \\ \Delta \vec{\mathcal{E}}_q + \left(n_q(\vec{r}) \frac{q\omega}{c}\right)^2 \vec{\mathcal{E}}_q &= -\frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{q\omega}{c}\right)^2 \vec{\mathcal{P}}_q^S \end{aligned} \quad (1.1)$$

L'équation qui décrit la propagation du champ laser dans le milieu ne dépend ni du terme source ni du champ harmonique. La résolution de ce système se fait donc en trois étapes : on détermine le champ laser dans le milieu ; le champ est ensuite utilisé pour calculer le terme source harmonique dans la seconde équation ; on résout finalement l'équation de propagation du champ harmonique.

La polarisation non linéaire $\vec{\mathcal{P}}_q^S$, terme source du rayonnement harmonique, correspond à la densité de dipôle \vec{d}_q atomique (microscopique) induit par le champ laser à la fréquence $q\omega$, $\vec{\mathcal{P}}_q^S = n_{at} \vec{d}_q$, où n_{at} est la densité atomique dans le milieu. Le dipôle atomique \vec{d}_q est calculé, par exemple, dans l'approximation du champ fort (SFA), en utilisant le modèle de Lewenstein [54]. Suivant l'axe du champ laser polarisé linéairement, la polarisation non linéaire est une grandeur scalaire complexe :

$$\mathcal{P}_q^S = |\mathcal{P}_q^S| e^{i(\varphi_d + q\varphi_1)}$$

Où $\varphi_d(\vec{r}, t)$, fonction de l'espace et du temps, représente la phase du dipole et $\varphi_1(\vec{r}, t)$ la phase du champ laser dans le milieu.

La solution de l'équation (1.1) pour le champ $\vec{\mathcal{E}}_q$ est une fonction complexe de la forme :

$$\mathcal{E}_q(\vec{r}, t) = |\mathcal{E}_q| e^{i\varphi_q}$$

Le transfert d'énergie du terme de polarisation source au champ harmonique est optimal si la condition d'accord de phase « généralisée » est satisfaite, c'est-à-dire s'il y a égalité des vitesses de phase, $v_{phase} = \omega/k$, respectivement du champ \mathcal{E}_q et de la polarisation \mathcal{P}_q . Le vecteur d'onde (fonction de l'espace et du temps) est défini comme le gradient de la phase $\vec{k} = \vec{\nabla}\varphi(\vec{r}, t)$ (voir annexe). La condition d'accord de phase se traduit par la relation :

$$\vec{\nabla}\varphi_q(\vec{r}, t) \approx \vec{\nabla}\varphi_q^S(\vec{r}, t) = \vec{\nabla}\varphi_d(\vec{r}, t) + q\vec{\nabla}\varphi_1(\vec{r}, t) \quad (1.2)$$

On peut la récrire en notation « vecteurs d'ondes » :

$$\vec{k}_q(\vec{r}, t) \approx \vec{k}_q^S(\vec{r}, t) = \vec{K}(\vec{r}, t) + q\vec{k}_1(\vec{r}, t) \quad (1.3)$$

Avec $\vec{k}_q = \vec{\nabla}\varphi_q(\vec{r}, t)$, le vecteur d'onde associé au champ harmonique, $\vec{K} = \vec{\nabla}\varphi_d(\vec{r}, t)$ le vecteur d'onde associé à la phase du dipôle, et $\vec{k}_1 = \vec{\nabla}\varphi_1(\vec{r}, t)$ le vecteur d'onde associé au champ fondamental. La condition implique une interférence constructive entre le champ harmonique dans le milieu et la source de génération. C'est ainsi que se construit le champ macroscopique $\mathcal{E}_q(\vec{r}, t)$.

1.2.2 Accord de phase

La condition d'accord de phase (1.3) détermine la géométrie du rayonnement harmonique et donc du faisceau harmonique généré en sortie du milieu [55]. Dans ce paragraphe, nous allons rappeler succinctement les conditions d'accord de phase en explicitant les différents termes de dispersion présents dans le milieu ainsi que les effets de phase induits par le champ laser intense sur les vecteurs d'onde \vec{k}_q et \vec{k}_1 .

Polarisation non linéaire à la fréquence $q\omega$

Le vecteur d'onde $\vec{k}_q^S(\vec{r}, t) = \vec{K}(\vec{r}, t) + q\vec{k}_1(\vec{r}, t)$ associé à la polarisation non linéaire est la somme de deux termes :

1. Le vecteur d'onde $q\vec{k}_1(\vec{r}, t)$ associé au champ fondamental

$$\vec{k}_1(\vec{r}, t) = \vec{\nabla}\varphi_1(\vec{r}, t) = k_1^0(z, t)\hat{z} + \delta\vec{k}_{1,géo}(\vec{r}, t) + \delta\vec{k}_{1,élec}(\vec{r}, t)$$

$k_1^0(z, t)\hat{z}$ est le vecteur d'onde de l'onde plane se propageant dans un gaz atomique suivant l'axe de propagation de vecteur unitaire \hat{z} , $k_1^0(z, t) = \frac{\omega}{c}(1 + \alpha_{\text{at}}n_{\text{at}}(z, t))$, α_{at} est la polarisabilité atomique à la fréquence ω .

$\delta\vec{k}_{1,\text{géo}}(\vec{r}, t)$ est la modification « géométrique » du vecteur d'onde introduite par la focalisation (phase de Gouy).

$\delta\vec{k}_{1,\text{élec}}(\vec{r}, t)$ est la modification du vecteur d'onde introduite par les électrons libres produits par ionisation.

2. Le vecteur d'onde $\vec{K}(\vec{r}, t)$ est associé à la phase du dipôle atomique φ_d . On montre que la phase dépend linéairement de l'éclairement laser et de la trajectoire considérée – courte ou longue – qui contribue à la génération [56]. On écrira donc:

$$\varphi_q^j \propto -\alpha_q^j I(\vec{r}, t)$$

où l'indice j se rapporte à la trajectoire courte ou longue.

$$\vec{K}(\vec{r}, t) = \vec{\nabla}\alpha_q^j = -\alpha_q^j\vec{\nabla}I$$

Les conditions de focalisation du laser, qui déterminent l'accord de phase, vont donc offrir le moyen de sélectionner l'une ou l'autre contribution (on omet l'indice j dans la notation K , en supposant que l'on a sélectionné une trajectoire par la condition d'accord de phase). A leur tour, les propriétés spatiales et spectrales du rayonnement harmonique à la fréquence $q\omega$ sont déterminées par la sélection de la contribution de l'une ou de l'autre trajectoire.

Champ harmonique à la fréquence $q\omega$

Le vecteur d'onde du champ harmonique s'écrit :

$$\vec{k}_q(\vec{r}, t) = \vec{\nabla}\varphi_q(\vec{r}, t) = k_q^0(z, t)\hat{z} + \delta\vec{k}_{q,\text{géo}}(\vec{r}, t) + \delta\vec{k}_{q,\text{élec}}(\vec{r}, t)$$

Où les termes $k_q^0(z, t)\hat{z}$, $\delta\vec{k}_{q,\text{géo}}$, $\delta\vec{k}_{q,\text{élec}}$ sont définis comme précédemment. La modification du vecteur $\delta\vec{k}_{q,\text{élec}}$ due à la dispersion électronique est le terme dominant. On peut alors, en première approximation, écrire la relation de dispersion pour la composante suivant l'axe z du vecteur d'onde sous la forme :

$$k_q^0(z, t) + \delta k_{q,\text{élec}}(\vec{r}, t) \approx n_q(\vec{r}, t) \frac{q\omega}{c}$$

Condition d'accord de phase

La condition d'accord de phase (1.3), $\vec{k}_q(\vec{r}, t) \approx \vec{k}_q^S(\vec{r}, t)$ peut s'écrire de façon plus détaillée comme :

$$\vec{\Delta}k_q = \vec{k}_q(\vec{r}, t) - \vec{k}_q^S(\vec{r}, t) = \Delta k_q^0\hat{z} + \vec{\Delta}k_{q,\text{géo}} + \vec{\Delta}k_{q,\text{élec}} - \vec{K} \approx 0 \quad (1.4)$$

Où $\Delta k_q^0 = k_q^0 - qk_1^0 \approx 0$ pour les ondes planes se propageant dans un milieu neutre, $\Delta \vec{k}_{q,géo} = \delta \vec{k}_{q,géo} - q\delta \vec{k}_{1,géo}$, $\Delta \vec{k}_{q,élec} = \delta \vec{k}_{q,élec} - q\delta \vec{k}_{1,élec}$.

Les distributions spatiales des vecteurs d'onde \vec{k}_1 ($\vec{\Delta k}_{q,géo}$) dépendant de la focalisation, $\vec{\Delta k}_{q,élec}$ et \vec{K} dépendant de la distribution d'éclairement, vont déterminer les régions où l'accord de phase est réalisé. Nous l'illustrons sommairement sur la [Figure 1.1](#), dans le cas d'un faisceau fondamental gaussien de paramètre confocal b , pour une dispersion électronique $\vec{\Delta k}_{q,élec}$ supposée négligeable.

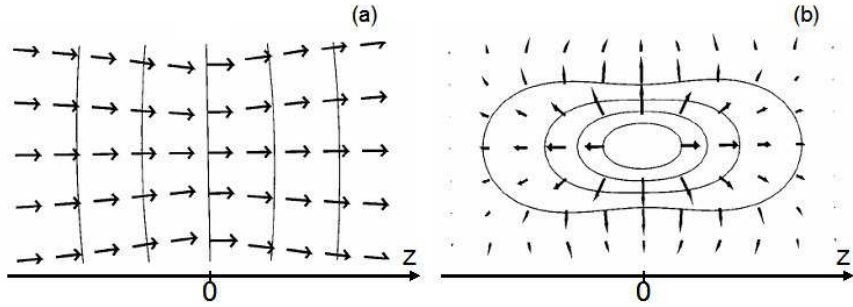


Figure 1.1 : Distribution spatiale dans la région du foyer du vecteur d'onde du laser \vec{k}_1 (a) et du vecteur d'onde associé à la phase atomique \vec{K} (b). Le laser se propage de la gauche vers la droite. Pour $z > 0$, le laser est focalisé avant le centre du milieu de génération. D'après Balcou et al. [55].

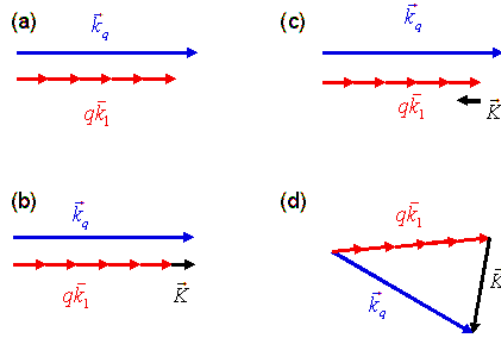


Figure 1.2 : Représentation géométrique de l'accord de phase en termes de vecteurs d'onde en fonction des différentes régions du volume focal. (a) $r = 0$ et $z = 0$, (b) $r = 0$ et $z > 0$, (c) $r = 0$ et $z < 0$, (d) $r \neq 0$ et $z < 0$.

Différents cas de figure se présentent selon la position dans le volume focal. La [Figure 1.2](#) présente les différents cas d'accord de phase réalisés suivant la distribution spatiale du vecteur \vec{K} .

(a) En $r = 0$ et $z = 0$: le vecteur \vec{K} est nul. La phase de Gouy n'est alors pas compensée, et l'accord de phase n'est pas réalisé ($k_q - qk_1 \approx \frac{2q}{b}$, b étant le paramètre confocal).

(b) En $r = 0$ et $z > 0$: le vecteur \vec{K} permet de compenser le désaccord de phase introduit par la variation de la phase géométrique. L'accord de phase a lieu sur l'axe, ce qui entraîne une émission harmonique centrée en sortie de milieu et en champ lointain. La trajectoire électronique courte est alors favorisée [57-59].

(c) En $r = 0$ et $z < 0$: le vecteur \vec{K} pointe dans la même direction que $\delta\vec{k}_{1,géo}$ et ne permet donc plus de le compenser. Dès lors l'accord de phase ne peut plus être réalisé.

(d) En $r \neq 0$ et $z < 0$: il est possible de satisfaire la condition d'accord de phase hors axe. Dans ces conditions, le champ harmonique en sortie de milieu présente une structure annulaire. La trajectoire électronique longue est alors favorisée.

1.2.3 Longueurs caractéristiques

Dans le cas où l'accord de phase n'est pas parfaitement réalisé, le désaccord de phase $\Delta\vec{k}_q$ (1.4) n'est pas nul. On définit alors la longueur de cohérence L_{coh} comme la longueur sur laquelle le champ harmonique et la polarisation non linéaire se déphasent de π . C'est donc la longueur qui limite la construction efficace du rayonnement harmonique :

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k_q}$$

La longueur de cohérence est une grandeur locale, définie en un point du milieu et à un instant.

La longueur du milieu L_{med} doit être de l'ordre de la longueur de cohérence (il est inutile qu'elle soit plus longue puisque le champ harmonique « se déconstruit » au-delà de L_{coh}).

A côté de la « déconstruction » du champ harmonique, un autre processus limite la GH, la réabsorption du rayonnement par le milieu générateur lui-même. On définit la longueur d'absorption L_{abs} , sur laquelle le champ est atténué d'un facteur $1/e$, $L_{abs} = \frac{1}{\sigma_q N_{at}(r,z,t)}$, où σ_q est la section efficace de photo-absorption du milieu atomique à la fréquence $q\omega$.

En donnant une solution simplifiée de l'éq. (1.1), Constant et al. [60] ont montré qu'on peut écrire le nombre de photons N_q générés à la fréquence $q\omega$ en fonction des longueurs L_{coh} , L_{med} et L_{abs} :

$$N_q \propto \frac{4L_{abs}^2}{1 + 4\pi^2 \left(\frac{L_{abs}}{L_{coh}}\right)^2} \left[1 + \exp\left(-\frac{L_{med}}{L_{abs}}\right) - 2 \cos\left(\pi \frac{L_{med}}{L_{coh}}\right) \exp\left(-\frac{L_{med}}{2L_{abs}}\right) \right]$$

La Figure 1.3 représente l'évolution du nombre de photons générés par rapport à la longueur du milieu pour différentes longueurs de cohérence. A partir d'une certaine longueur de milieu (plus de quelques longueurs d'absorption), les harmoniques émises en début de milieu sont réabsorbées.

Maximiser la génération d'harmoniques va donc revenir à chercher les valeurs optimales pour les trois longueurs L_{med} , L_{coh} et L_{abs} . Si l'on veut que le signal soit au moins égal à la moitié du signal maximum théorique, on définit les conditions suivantes :

$$L_{med} > 3L_{abs}$$

$$L_{coh} > 5L_{abs}$$

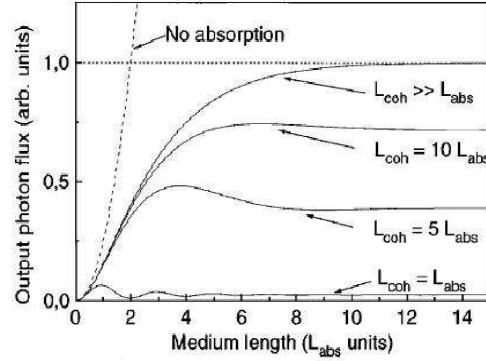


Figure 1.3 : Nombre de photons harmoniques générés en fonction de la longueur du milieu L_{med} , pour différentes longueurs de cohérence L_{coh} . Tiré de Constant et al [60].

Pour conclure, on pourra dire que l'on a optimisé la GH quand longueur de cohérence et longueur du milieu sont supérieures à L_{abs} . La GH elle n'est alors limitée que par la réabsorption.

1.2.4 Optimisation de la génération d'harmonique

L'optimisation de la génération d'harmoniques est une procédure relativement complexe, qu'elle soit théorique ou expérimentale, compte tenu du nombre de paramètres qui interviennent. De plus, il peut être difficile d'optimiser simultanément le nombre de photons et, par exemple, les qualités optiques du faisceau UV-X. De façon générale, l'optimisation du nombre de photons résulte d'un compromis entre plusieurs conditions qui peuvent être antagonistes:

- 1) un éclairage laser suffisant pour maximiser la réponse du dipôle, mais qui n'ionise pas le milieu au-delà de quelques %. L'ionisation détruit en effet les émetteurs neutres et dégrade l'accord de phase par le terme $\vec{\Delta}k_{q,elec}$ dû aux électrons libres, responsable notamment du déplacement vers le bleu de la fréquence fondamentale (« blue shift ») et de la forte réfraction du faisceau laser. On détermine ainsi un éclairage optimal dit éclairage de saturation I_{sat} .
- 2) une focalisation « lente » (optique à longue focale) qui détermine des conditions homogènes d'accord de phase ($\vec{\Delta}k_{q,géo}$) et une grande section transverse du volume d'interaction dans la région focale. La focalisation doit cependant maintenir un niveau d'éclairage proche de I_{sat} .

- 3) une densité atomique (nombre d'émetteurs harmonique) élevée, qui optimise la densité de dipôle. Elle doit cependant rester compatible avec la condition d'accord de phase ($\vec{\Delta}k_{q,elec}$), et ne pas entraîner une trop grande réfraction du faisceau laser : en présence d'ionisation, la forte densité d'électrons libres sur l'axe joue le rôle d'une lentille divergente qui va modifier les propriétés d'accord de phase. De plus, la densité de gaz détermine le niveau de réabsorption du rayonnement harmonique dans le milieu générateur lui-même.

Dans une première étape d'optimisation on détermine en général un éclairage optimal, légèrement inférieur à l'éclairage de saturation I_{sat} pour lequel le milieu est légèrement ionisé, une densité optimale, une géométrie optimale assurant un accord de phase uniforme dans tout le milieu [61]. La géométrie dite « en longue focale », dans laquelle l'éclairage et la phase du faisceau laser varient lentement le long de l'axe de propagation, est favorable. Dans ce cas, le milieu pourra être lui-même de grande longueur (cellule). De même, le guidage du faisceau laser dans une fibre creuse remplie de gaz assure un accord de phase uniforme, dans lequel la dispersion atomique (densité) sert de paramètre d'accord [62]. Quand les paramètres éclairage laser, densité atomique, géométrie de la focalisation sur l'axe (accord de phase) sont fixés, le seul degré de liberté qui subsiste pour augmenter le nombre absolu de photons, à efficacité de conversion constante, est la dimension transverse de la source. Dans ce but, on doit augmenter la section transverse du faisceau laser au voisinage de la région focale, en se plaçant dans une géométrie de focalisation en « longue focale ». La condition de « limite d'absorption » est accessible sur les ordres harmoniques intermédiaires, pour lesquels la longueur d'absorption est faible (forte section efficace d'absorption au-dessus des seuils d'ionisation des gaz générateurs). Elle est plus difficile à atteindre aux ordres élevés (faible absorption). L'utilisation d'une cellule remplie de gaz comme milieu de génération va nous permettre de bien ajuster cette condition. En effet, l'avantage d'un tel dispositif est qu'il permet d'obtenir un profil de densité atomique relativement homogène, de densité variable, et qu'il est relativement versatile. Il est en effet aisé de varier la longueur d'une cellule. De ce fait, il est possible de passer d'un milieu court et dense à un milieu long et peu dense, et ainsi chercher des conditions optimales de génération sur un plus grand nombre de paramètres.

2. Génération d'harmoniques en géométrie longue focale : le setup « HHG haute énergie laser »

2.1 La ligne de lumière harmonique haute énergie laser

2.1.1 Présentation

La ligne de lumière harmonique dédiée aux applications en imagerie cohérente a fait l'objet, de 2005 à 2007, de nombreuses campagnes d'expérience en vue d'optimiser et de caractériser le rayonnement. Les études d'optimisation se sont basées sur les premiers travaux effectués quelques années auparavant [41], où la génération d'impulsions d'énergie de deux microjoules sur l'harmonique 15 avait été démontrée dans le xénon, en utilisant 25 mJ d'énergie laser et une focale de 5 m. L'efficacité de génération mesurée était de $8 \cdot 10^{-5}$. Dans ces travaux, la géométrie de focalisation, la longueur du milieu et la densité d'atomes ont été optimisées de telle sorte que la GH est « limitée par l'absorption ». Le laser LUCA permet cependant de délivrer une énergie de 80 mJ par impulsion. Il est nécessaire de prendre quelques précautions si l'on souhaite utiliser une telle énergie. En effet, l'éclairement de saturation, optimal pour la GH, est de l'ordre de 10^{14} à 10^{15} W/cm² selon le gaz utilisé. Afin de coupler plus d'énergie avec le milieu à éclairement constant, il est nécessaire d'augmenter le seul paramètre qui n'est pas fixé par la procédure d'optimisation, la section transverse du faisceau. Dans les conditions « optimales » de génération, pour multiplier l'énergie UV-X par 4, il faut donc en principe augmenter la section du volume focal par 4, soit le rayon du faisceau par 2 ce qui est obtenu généralement en doublant la longueur focale.

Le dispositif « grand volume » permet de gérer des énergies laser importantes en utilisant des lentilles de 3 à 7,5 mètres. L'ensemble de ce dispositif est représenté sur la [Figure 2.1](#). Un important travail d'ingénierie basé sur les compétences acquises à Saclay est mis en place : régulation automatique de la pression de gaz, motorisation tous axes de la cellule de gaz, gestion sous Labview du système de pompage, de la prise de données, etc... Le milieu de génération est constitué d'une cellule de longueur réglable remplie de gaz ([Figure 2.2](#)) placée dans la première enceinte. La seconde enceinte contient, dans sa configuration spectrométrie, un spectromètre UV-X de haute résolution permettant la sélection d'une harmonique donnée. Le spectromètre est de type TM-PGM (Toroidal Mirror-Plane Grating Monochromator), constitué d'un miroir torique de grande dimension et d'un réseau plan à pas variable, qui focalise les différentes longueurs d'onde dans le plan spectral. Ce dispositif a été testé pour différentes conditions de génération : selon l'énergie laser que l'on souhaite utiliser ou la longueur focale par exemple.

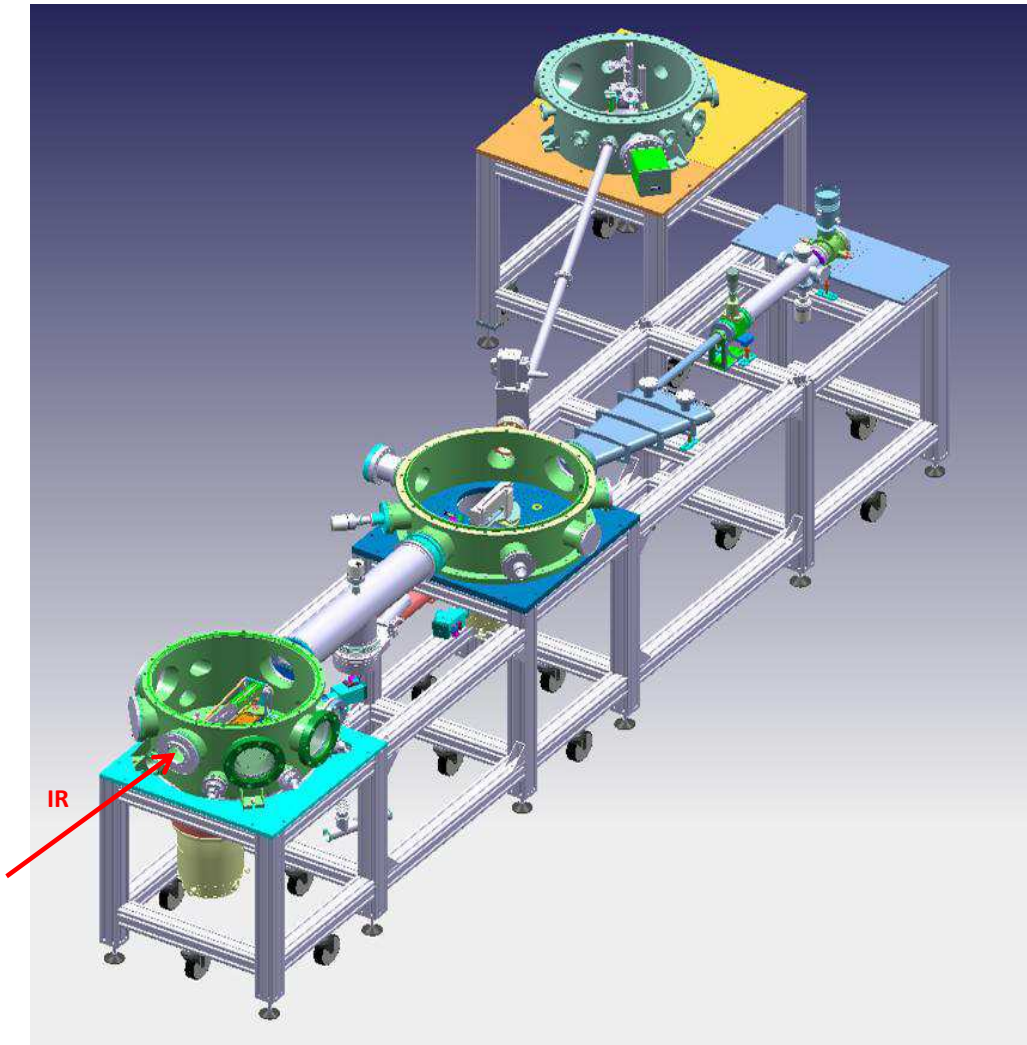


Figure 2.1 : Schéma du dispositif pour la génération d'harmoniques à haute énergie (au premier plan) et enceinte d'application (en arrière plan). La longueur du bâti est de 5 mètres. Dans le sens de propagation du laser (indiqué par la flèche rouge) nous avons une première enceinte qui contient la cellule de génération et la deuxième dans laquelle se trouve le spectromètre UV-X (configuration spectromètre avec les fentes d'analyse dans le prolongement direct). La dernière enceinte contient le dispositif d'imagerie sans lentille (configuration diffraction).



Figure 2.2 : Photographie de la cellule de génération. La ligne de lumière bleutée correspond à l'émission par les atomes d'argon ionisés par le laser générateur. Nous rappelons que dans les conditions optimales de génération l'ionisation doit être faible et de ce fait cette émission plasma doit être peu visible. La longueur de la cellule peut varier de 0 à 15 cm avec des trous d'entrée, de diamètre variable, alignés sur l'axe laser.

2.1.2 Principales caractéristiques

La Figure 2.3 représente l'évolution de l'énergie harmonique générée pour différents gaz en fonction de la longueur focale de la lentille. L'énergie laser utilisée avec la focale de 4 m est de 20 mJ, contre 38 mJ pour la longueur focale maximale. Dans ces conditions, nous avons pu générer à la source près d'un microjoule par impulsion à 32 nm (harmonique 25), valeur estimée en prenant en compte les transmissions des différentes optiques et des filtres. Entre les conditions de génération à 20 mJ et 38 mJ, le signal harmonique augmente d'un facteur 1.9 pour l'ordre 21 et d'un facteur 1.5 pour l'ordre 25 (Figure 2.3). Cependant, l'augmentation de la section transverse du volume focal est de 3,5. L'augmentation du signal est donc inférieure à celle prévue par une loi d'échelle purement géométrique. Les raisons de cet écart, notamment liées à la réfraction du faisceau laser (induite par une forte ionisation) dans les « bords » du volume d'interaction, sont discutées dans *Boutu et al.* [63]. De plus, un effet non négligeable peut être attribué à la qualité de focalisation et aux propriétés de propagation du laser IR dans le milieu de génération. Cela sera plus amplement présenté dans la suite. En pratique, l'optimisation de la GH – en fonction du couple énergie-longueur focale à éclairissement constant – a été limitée à l'énergie laser maximum disponible. En effet, l'énergie maximum disponible après le diaphragme de contrôle de la focalisation était de ~ 40 mJ pour les mesures présentées Figure 2.3.

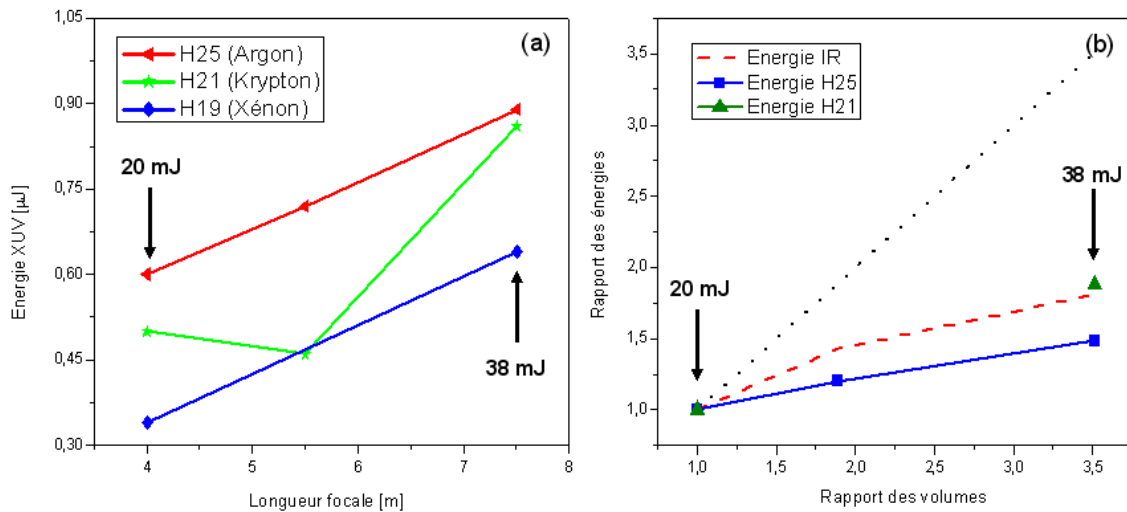


Figure 2.3 : (a) Evolution de l'énergie harmonique générée pour différents ordres harmoniques et différents gaz (triangles : H25 générée dans l'argon, étoiles : H21 générée dans le krypton, losanges : H19 générée dans le xénon) en fonction de la longueur focale utilisée. (b) Evolution du signal harmonique en fonction de l'augmentation du volume de génération. Le rapport des volumes et de l'énergie du signal harmonique généré est normalisé au cas $E = 20$ mJ. Le trait en pointillé représente l'évolution du signal avec une loi d'échelle parfaite.

Le nombre de photons produits n'est pas un paramètre suffisant pour caractériser la source. Une mesure de la distribution d'éclairissement du faisceau harmonique en champ lointain a été faite par une caméra CCD UV-X (Figure 2.4). La tache mesurée présente un profil gaussien. La divergence de l'harmonique 25 présentée ici est très faible, inférieure à 0,4 mrad. Une mesure du

degré de cohérence spatiale du faisceau harmonique a été effectuée au moyen de fentes d'Young disposées à 1 mètre du point de focalisation du miroir torique (considéré comme l'image de la source et incluant les aberrations du couple torique-réseau). Les figures d'interférences ont été enregistrées sur une caméra CCD UV-X disposé à 1,6 m des fentes d'Young. Les figures d'interférences sont présentées sur la [Figure 2.5](#). La cohérence spatiale s'estime en considérant la visibilité des franges au centre de l'interférogramme d'Young. La [Figure 2.5](#) présente le résultat des mesures de cohérence spatiale pour 2 longueurs focales différentes. Le degré de cohérence mesuré est relativement indépendant de la longueur focale (et donc de l'énergie laser) et reste supérieur à 0,4.

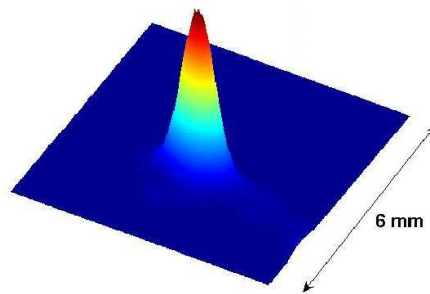


Figure 2.4 : Profil spatial de l'harmonique 25 mesuré en champ lointain. La longueur focale est de 7.5 m, et l'énergie laser de 38 mJ.

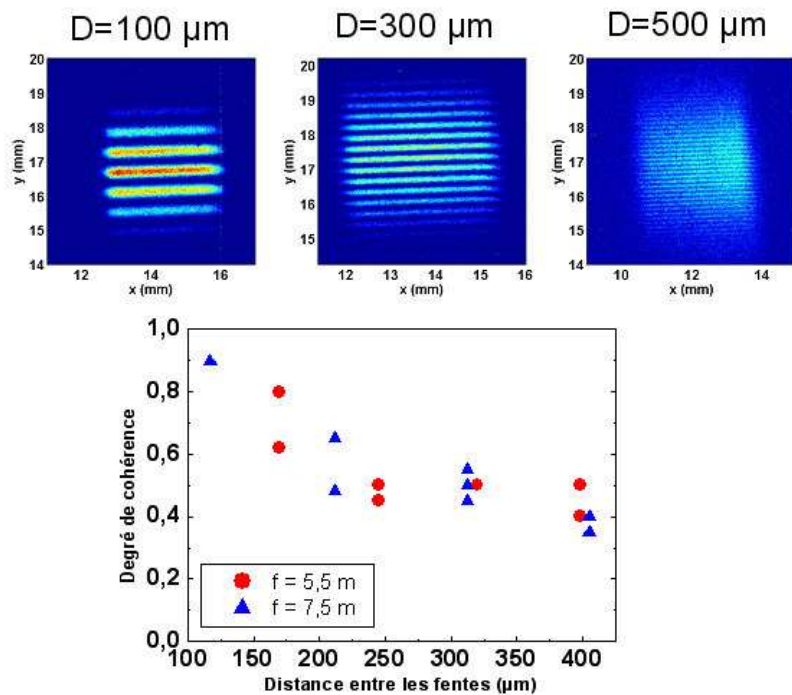


Figure 2.5 : Figures d'interférence obtenues avec des fentes de Young sur l'harmonique 25 (32nm) ; mesure du degré de cohérence spatiale pour différentes distances entre les fentes et deux longueurs focales laser. Les fentes d'Young sont placées à 1 mètre du point focal du miroir torique, la caméra CCD à 1.6 m. La distance entre les fentes varie de 100 à 500 μm.

2.2 Optimisation expérimentale du dispositif « grand volume »

2.2.1 Ajustement des principaux paramètres

Nous avons tout d'abord une limite liée à l'éclairement de saturation au-delà duquel le signal harmonique n'augmente pas et peut, au contraire, diminuer. Cette valeur de saturation dépend du gaz utilisé. Nous reportons sur la Figure 2.6 le signal intégré des harmoniques 11 à 15 générées dans le xénon en fonction de la densité de gaz générateur. La Figure 2.6 (a) présente la variation du signal pour deux longueurs de cellule. Il existe dans chacun des cas une pression optimale dépendant de la longueur du milieu et du gaz utilisé, au-delà de laquelle le signal harmonique chute. La Figure 2.6 (b) présente la variation du signal pour deux éclairements *au foyer* (qui peuvent être supérieurs à l'éclairement de saturation), le foyer étant approximativement situé au centre de la cellule. La pression optimale dépend également de l'éclairement de génération.

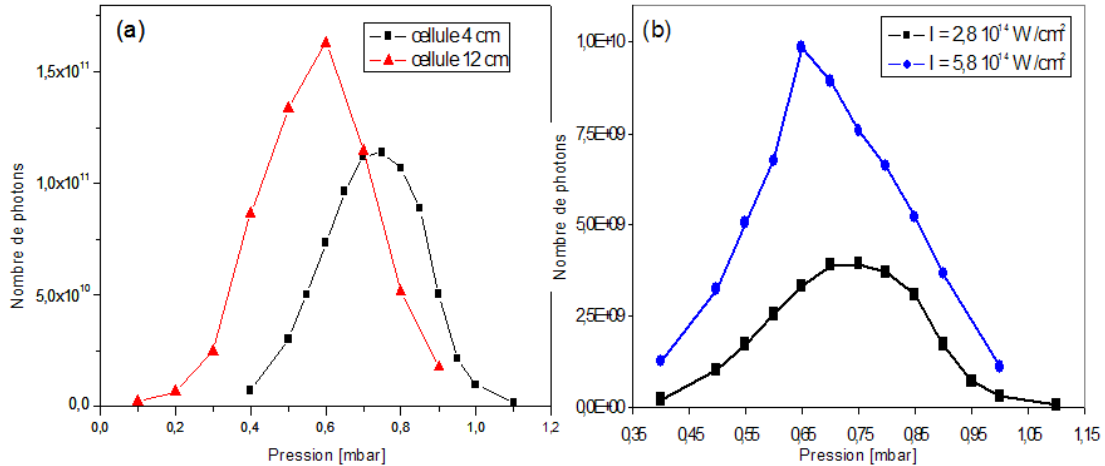


Figure 2.6 : Mesure du signal harmonique (H11 à H15) généré (a) dans le xénon en fonction de la pression, pour un éclairement de $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et deux cellules de longueurs différentes (carrés noirs : cellule de 4 cm, triangles rouges : cellule de 12 cm) et (b) dans le xénon dans une cellule de 4 cm, pour deux éclairements différents (carrés noirs : $2,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et cercles bleus : $5,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). La mesure de la pression effective au sein de la cellule est assez difficile. La pression en abscisse est la pression en amont de la cellule, proportionnelle à la pression dans la cellule.

Pour les expériences d'imagerie par diffraction à 32 nm, la GH utilise l'argon, ce qui permet d'étendre le spectre jusqu'à l'harmonique 31, h25 (32 nm) étant dans le plateau (Figure 2.7). Dans l'argon, les conditions standard pour générer et optimiser le signal, la qualité spatiale et la stabilité de la génération de l'harmonique h25 sont : cellule de longueur ~8 cm, le plan de focalisation de la lentille de longueur focale 5,65 m situé en sortie de la cellule, pression de gaz de l'ordre de 10 mbar, valeur qui varie en fonction de la valeur de la fuite de gaz (fonction de l'usure des trous percés à l'entrée et la sortie de la cellule). La Figure 2.7 présente un spectre mesuré dans ces conditions de génération.

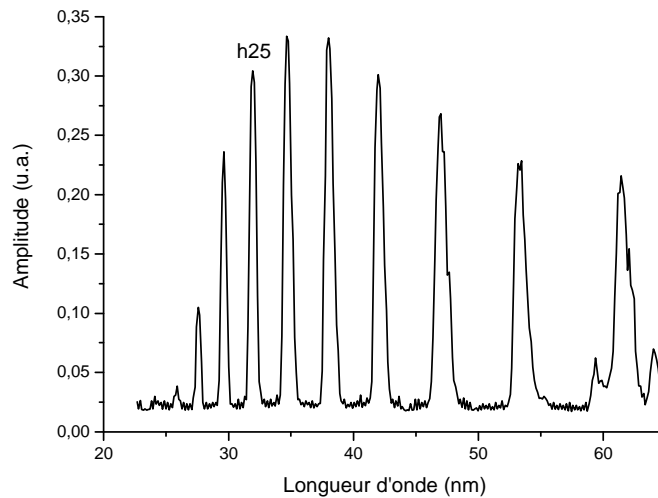


Figure 2.7 : spectre dans l'argon dans les conditions standards de génération utilisées. Le spectre n'est pas corrigé de la transmission du spectromètre UV-X.

Il est important de remarquer que, pour une position du foyer après le milieu de génération, l'accord de phase favorise en principe la contribution des trajectoires longues et une émission hors axe (voir section 1.2.2). Cependant, les caractéristiques mesurées (profil en champ lointain et divergence) semblent privilégier un accord de phase sur l'axe. Cela nous amène à considérer qu'il y a une modification des propriétés de propagation du laser IR dans le milieu de génération, causée notamment par l'ionisation [63]. La défocalisation provoquée par l'ionisation compense la focalisation initiale du laser, ce qui pourrait induire un effet d'autoguidage du mode laser de génération [64]. Cet effet modifie significativement les propriétés de propagation du laser (distribution d'éclairement et phase) et donc l'accord de phase.

2.2.2 Campagne de mesure du front d'onde UV-X

Une première campagne de mesures du front d'onde UV-X sur l'harmonique H25 (32 nm) a été effectuée dans une configuration dite « faisceau direct ». Les mesures sont réalisées sur le faisceau harmonique, après suppression de l'IR résiduel de génération par réflexion sur une lame traitée antireflet IR et transmission par un filtre aluminium, comme présenté section 4.1. La sélection spectrale de l'harmonique H25 est effectuée par un traitement diélectrique multicouche sur un miroir plan. Le dispositif de mesure utilisé est un senseur de front d'onde UV-X de type Hartmann [65-67]. La grille Hartmann est disposée à $505 \text{ cm} \pm 5 \text{ cm}$ de la sortie de la cellule de génération. Dans le plan de la grille, le senseur mesure l'intensité et la déviation locale du front d'onde du faisceau harmonique h25 en champ lointain. La reconstruction du point source harmonique est effectuée par propagation inverse du profil de champ ainsi caractérisé dans le plan de la grille. Ces propagations numériques sont effectuées sous approximation paraxiale avec le formalisme de la diffraction (voir annexe). L'analyse de la phase (déviation du front d'onde

par rapport à l'onde plane) et de la distribution d'intensité au niveau de la grille, puis la qualité de la source reconstruite, ont permis de contrôler l'influence des paramètres de génération. Il faut noter, comme cela sera précisé dans le chapitre suivant, une forte instabilité de la génération (très forte en dehors des paramètres optimaux) qui rend difficile l'analyse systématique : la statistique présente une déviation standard élevée. Cependant, ces mesures ont permis de préciser la plage de valeurs optimales pour la génération de h25 dans l'argon, qui réalise un bon compromis entre le nombre de photons générés et la qualité spatiale de la source harmonique. Cette campagne a eu un impact important sur la « standardisation » du fonctionnement de la ligne harmonique. Toutes les mesures ont été effectuées avec une lentille de longueur focale 5,65 m. Les paramètres optimaux retenus sont : diamètre du diaphragme de génération ~20 mm – il détermine une taille de faisceau au foyer de l'ordre de 250 μm et un paramètre confocal $b \sim 15$ cm ; pression d'argon dans la cellule = 8-9 mbar ; longueur de cellule = 5-8 cm ; position du plan de focalisation par rapport à la sortie de cellule = 2 cm.

Les analyses sont effectuées en considérant la qualité du point source harmonique reconstruit et en utilisant le rapport de Strehl, rapport des intensités maximum entre la tache focale reconstruite et une tache idéale avec aucune aberration du front d'onde. Ce rapport permet d'estimer la qualité de focalisation en quantifiant la dispersion de l'énergie dans la tache focale. Un rapport de Strehl supérieur à 0.80 caractérise une tache focale « limitée par diffraction » (critère de Maréchal [68]). Les variations de signal GH associées à la pression de gaz et la longueur de cellule restent faibles au voisinage des valeurs optimales. Par contre, la sensibilité de la GH à l'ouverture du diaphragme est importante (Figure 2.8). Ce comportement est évident puisque, à énergie constante avant le diaphragme (42 mJ par impulsion), l'ouverture du diaphragme a un double impact sur l'éclairage dans la cellule (diminution de la section focale et augmentation de l'énergie dans la cellule), qui croît en R^4 (R rayon du diaphragme). Quand l'éclairage devient supérieur au seuil de saturation, l'ionisation a un impact défavorable sur la qualité du faisceau généré. De plus, cet effet de l'ionisation est combiné à une forte dégradation du profil laser dans la cellule de génération. Comme cela sera montré dans le chapitre suivant, le profil spatial du laser se dégrade fortement pour une ouverture du diaphragme de génération supérieure à 22 mm. La Figure 2.9 présente une reconstruction des profils d'intensité et de phase de la source, pour l'harmonique h25, dans les conditions de génération présentées précédemment. Ces résultats sont donnés pour une ouverture de diaphragme de 20 mm (Figure 2.9 (a)) et 24 mm (Figure 2.9 (b)) avec une énergie injectée dans la cellule de 21 mJ et 28 mJ respectivement. Le rapport de Strehl du point source harmonique obtenu pour un diaphragme de 20 mm est de 0.67 (voir les points associés sur la Figure 2.8). Il faut noter que le plan source harmonique reconstruit est situé entre 30 et 40 cm avant la sortie de la cellule. Le diamètre du spot source harmonique évolue rapidement, de 60 μm pour une ouverture du diaphragme de 20 mm jusqu'à 90 μm pour une ouverture de 18 mm, avec un paramètre confocal estimé de 15 cm à 30 cm respectivement.

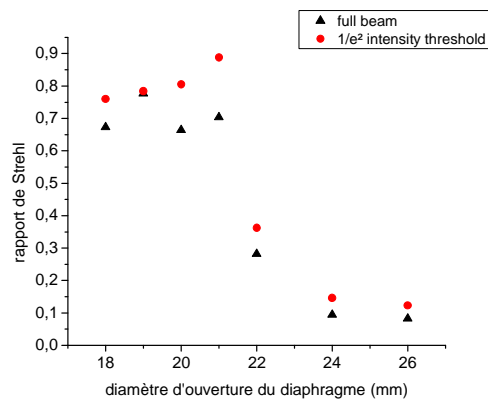


Figure 2.8 : évolution du rapport de Strehl en fonction de l'ouverture du diaphragme de génération pour une cellule d'argon de 8 cm à la pression de 8 mbar. Les deux types de point sont associés à la méthode de reconstruction utilisant (rond rouge) ou pas (triangle noir) un seuil en $1/e^2$ sur les mesure d'intensité sur la grille Hartmann.

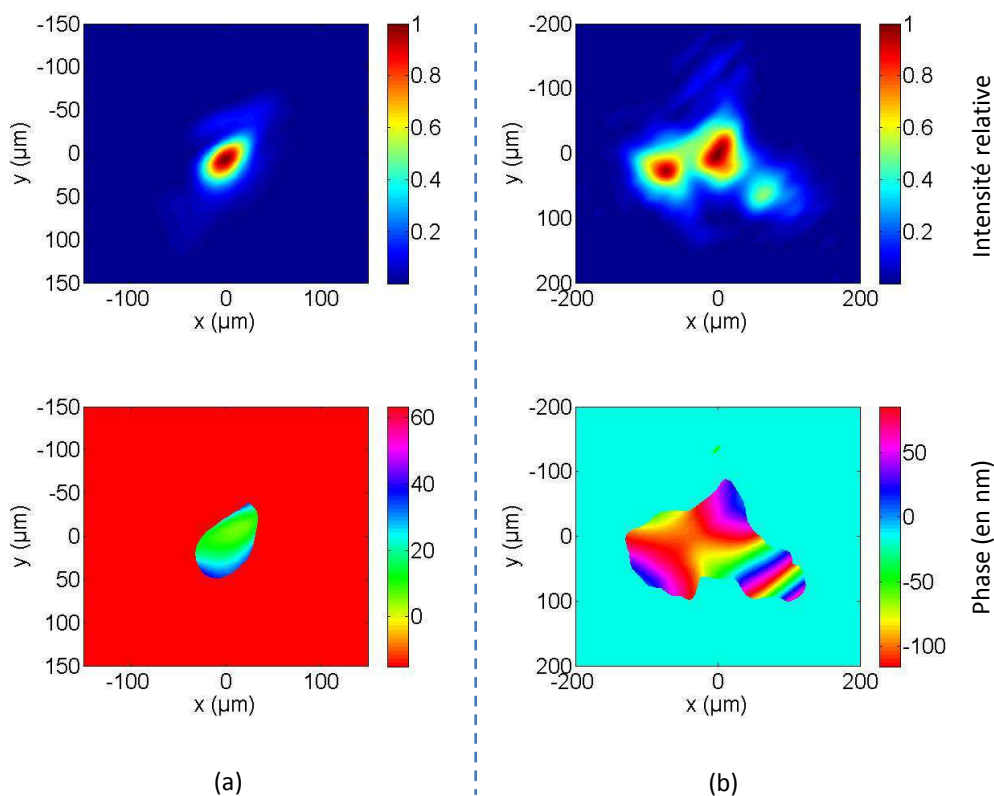


Figure 2.9 : reconstruction de la distribution d'intensité et de la phase dans le plan de la source harmonique h25 avec en (a) une ouverture du diaphragme de 20 mm de diamètre et en (b) en ouverture de 24 mm. Les conditions sont : longueur de cellule = 8 cm et pression de gaz argon = 8 mbar. Le plan de reconstruction est situé à 5,48 mètres de la grille pour (a) et 5,37 pour (b).

3. Amélioration des qualités du faisceau harmonique par filtrage modal du laser de génération

Une partie de mes travaux de thèse a été effectuée dans les conditions laser décrites dans la section précédente. Ces conditions, bien qu'optimisées au meilleur niveau des performances publiées, n'étaient pas encore suffisantes pour l'application à l'imagerie par diffraction cohérente, qui demande une excellente qualité de front d'onde, reproductible d'un jour à l'autre. La qualité spatiale du faisceau ainsi que sa stabilité pouvaient être améliorées. Le problème principal provenait d'un profil laser peu homogène en sortie de l'étage de compression (voir la [Figure 3.6](#)). Il était alors très difficile d'uniformiser l'illumination du diaphragme de génération. En conséquence, le profil de focalisation dans la cellule de génération était de qualité médiocre, ce qui se retrouvait dans la génération : problèmes de « ressemblance » d'un jour à l'autre et de stabilité de tir à tir. La qualité du faisceau et le nombre de photons générés dans les « meilleurs jours » étaient intéressants mais pouvaient, et ont été, améliorés comme cela est montré dans la suite. La nécessité d'améliorer le mode laser découle de ce que la génération d'harmonique dépend de l'accord de phase, et donc de la qualité de la focalisation du laser dans le milieu, de la qualité de sa propagation et de son front d'onde. Cependant, les processus microscopiques (ionisation, dipôle atomique) aussi bien que macroscopiques (propagation dans un milieu ionisé) sont de fait hautement non-linéaires. La relation entre champ laser IR et faisceau harmonique est donc plus ou moins directe [69, 70], et fluctue rapidement en fonction des conditions de génération. C'est notamment vrai des caractéristiques de la distribution de l'intensité IR (transversale et longitudinale) dans le milieu de génération. La réponse non-linéaire du processus de génération implique une corrélation limitée entre les propriétés du champ laser IR et le rayonnement harmonique. Le processus de génération pourrait présenter une sorte de filtrage spatial « par le gain » – par l'éclairement local, la qualité du front d'onde et de l'accord de phase – au détriment de l'efficacité macroscopique de génération. Il semble donc nécessaire là encore d'optimiser les propriétés de focalisation du laser IR de génération.

3.1 Dispositif de filtrage modal sur le laser « LUCA »

3.1.1 Présentation du dispositif

Il y a deux possibilités pour contrôler le laser de génération. D'une part, on peut manipuler le faisceau pendant la génération. C'est ce qui se fait par exemple dans la génération dans les capillaires [62], où l'on contrôle l'accord de phase. Par contre, pour conserver une génération en espace libre dans une cellule de gaz, ce qui présente un avantage expérimental, il faut manipuler le faisceau avant interaction avec le milieu de génération par un filtrage ou une mise en forme spatio-temporelle. Ceci a été réalisé, par exemple, par la mise en forme « top-hat » à Saclay au moyen de lames de phase [71]. Il faut noter que le diaphragme de génération qui met en forme spatialement le faisceau laser dans la cellule [72] peut être considéré comme un filtrage spatial du laser avant génération. Mais, à moins de perdre trop d'énergie, son action n'est pas suffisante dans notre expérience pour obtenir une bonne qualité de faisceau. Il fallait mettre en place un dispositif de filtrage du laser en amont.

Ce filtrage est réalisé par un processus de sélection modal dans un capillaire de silice creux placé entre le dernier étage d'amplification et le compresseur à réseaux. L'opération est équivalente à un filtrage spatial du faisceau par sélection modale ou simplement filtrage modal. On couple le faisceau dans le capillaire par focalisation ; le mode de sortie du capillaire diverge (diffracte) et est collimaté pour passer dans le compresseur, puis il est ensuite refocalisé dans le milieu de génération (Figure 3.1). Finalement, on obtient dans la cellule l'image conjuguée de la sortie de fibre à travers l'élément compresseur. Ceci n'est pas tout à fait vrai car l'on conserve le diaphragme de génération pour contrôler le diamètre du faisceau, la mise en place d'un système afocal pour adapter le diamètre après compression étant difficile.

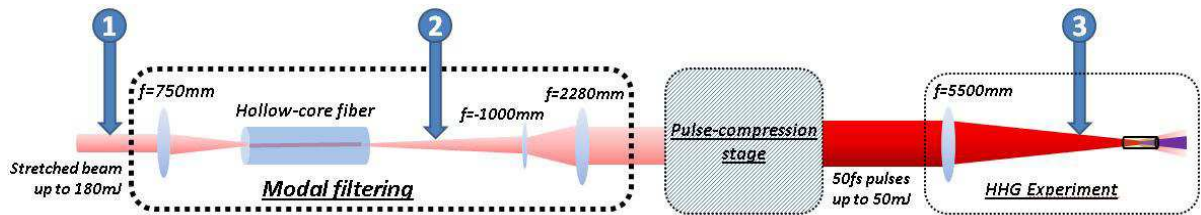


Figure 3.1 : schéma d'ensemble de l'opération de filtrage modal et de génération d'harmoniques.

Ce montage est largement inspiré du schéma de post-compression de l'impulsion laser par automodulation de phase dans un capillaire, ou encore de génération dans un capillaire. Dans ces cas, la fibre creuse est disposée après le compresseur. Disposer le système avant compression, là où l'impulsion a une durée de 200 ps, permet de faciliter la mise en œuvre expérimentale en travaillant sur un faisceau de moindre intensité. De plus, la caractérisation du faisceau après compression nous montre qu'il est avantageux d'envoyer un faisceau filtré dans le compresseur. D'ailleurs, sur ce type de chaîne laser, le filtrage est généralement effectué avant compression par un pinhole, pour supprimer les hautes fréquences spatiales, combiné à une correction de front d'onde.

Le filtrage par sélection modale se compose de deux processus :

- Premièrement, l'injection et le couplage du mode laser sur une base de modes propres de la fibre.
- Deuxièmement, discrimination modale par atténuation pendant la propagation dans la fibre.

Le mode fondamental de la fibre, qui présente le moins de perte pendant la propagation, est le mode hybride EH_{11} [73, 74]. La distribution radiale du champ électrique du mode fondamental dans la fibre est donné par $E(r) = J_0\left(\frac{2.405r}{a}\right)$, où J_0 est la fonction de Bessel de première espèce d'ordre zéro et a le rayon de cœur de la fibre. Ce mode est aussi celui dans lequel le champ laser se couple le mieux. Le mode EH_{11} présente l'avantage d'avoir une distribution transverse proche du mode gaussien TEM_{00} (Figure 3.2). De ce fait, l'efficacité du couplage d'un mode gaussien de waist $w_0 = 0.65 a$ est de 98%. La décomposition modale du laser s'effectue sur une base de modes linéairement polarisés (polarisation déterminée par la polarisation laser) qui se propagent dans la fibre dans nos conditions expérimentales (indice de la silice, longueur d'onde du laser) [73, 74].

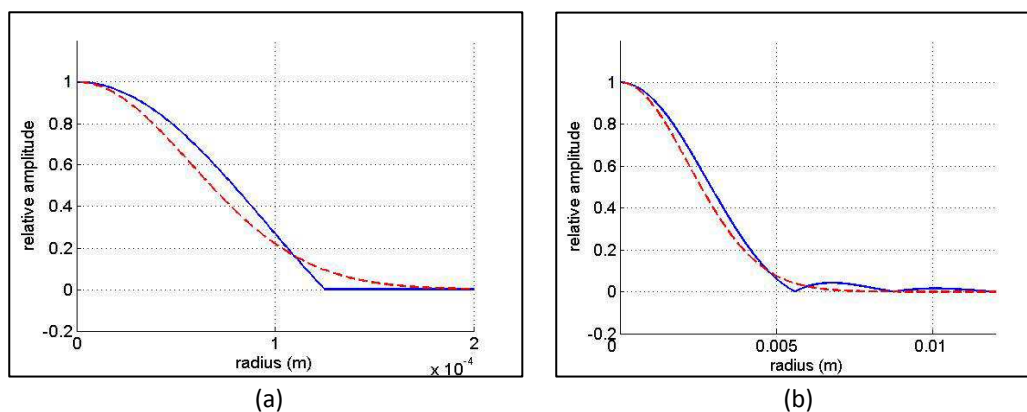


Figure 3.2 : a, comparaison des profils en amplitude du mode EH11 (bleu) en sortie de fibre avec le mode gaussien ($w_0 = 0.65$ a). b, profil en amplitude de ces mêmes modes en champ lointain (1 m de propagation).

3.1.2 Résultats du filtrage modal

L'efficacité du processus de filtrage a été vérifiée par des mesures d'intensité et de front d'onde sur les faisceaux à l'entrée puis à la sortie de la fibre (positions notées « 1 » et « 2 » sur la Figure 3.3 avec un capteur de front d'onde de type Shark-Hartmann (Figure 3.3).

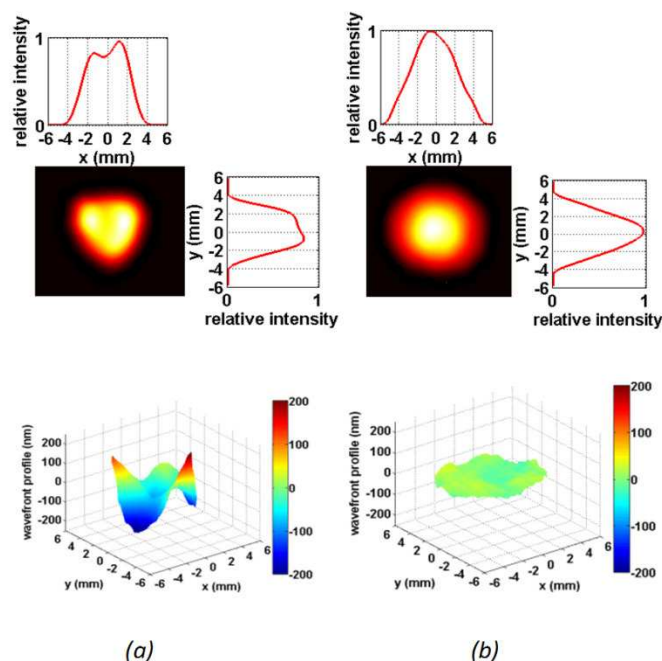


Figure 3.3 : mesure Shack-Hartmann : a) en sortie de l'amplificateur multi-passage et b) en champ lointain, 1m après la sortie de fibre.

En sortie de l'amplificateur multi-passage, le mode laser présente un profil d'intensité très inhomogène avec une forte dissymétrie centrale. La surface d'onde a une déviation RMS, par rapport à l'onde plane, de l'ordre de $\lambda/12$ et une déviation crête-à-crête de $\lambda/2$ ($\lambda = 795 \text{ nm}$). Après filtrage modal, le profil du faisceau divergent est de nouveau à symétrie centrale et proche de la distribution théorique (Figure 3.2 (a)). Le senseur de front d'onde a un seuil de mesure en $1/e^2$; on n'a donc pas d'information sur les anneaux autour du spot central (moins de 1% de l'énergie totale). La déviation RMS en sortie de fibre est de $\lambda/59$; la déviation crête-à-crête est de $\lambda/10$. On obtient une diminution d'un rapport 5 du défaut de planéité du front d'onde. La déviation $\lambda/59$ RMS en sortie de fibre est à comparer avec le critère de Maréchal de $\lambda/14$ qui qualifie un faisceau limité par diffraction [68].

Les profils transverses du champ en entrée et sortie de fibre sont obtenus en calculant numériquement la propagation des profils de champ mesurés par le senseur de front d'onde (Figure 3.4). Les amplitudes reconstruites numériquement sont en accord avec des mesures directes de la distribution de l'intensité effectuée par imagerie de l'entrée et sortie de fibre. Les principaux modes dans lesquels le laser se couple (Figure 3.5), avec leur atténuation théorique pour une longueur de fibre utilisée de 30 cm, sont : les modes hybrides EH_{11} (2% d'atténuation) et EH_{12} (11%), le mode composite $EH_{31} + EH_{-11}$ (9,5%) et $EH_{41} + EH_{-21}$ (14,5%).

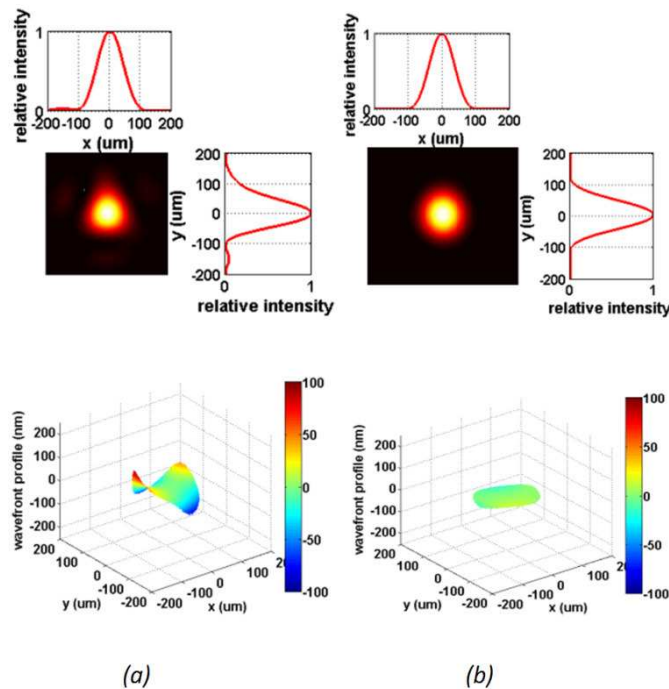


Figure 3.4 : propagation numérique en : a) entrée de fibre et b) sortie de fibre

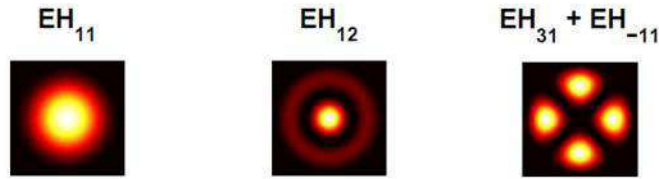


Figure 3.5 : amplitude des principaux modes polarisés linéairement dans lesquels se couple le laser LUCA.

Les taux de couplage sont calculés avec une intégrale de recouvrement entre les champs complexe en entrée et sortie de fibre et les modes considérés. Un résultat particulier de recouvrement normalisé, pour les modes couplés à plus de 1%, est présenté dans le tableau ci-dessous.

modes	entrée de fibre (sur 100%)	sortie de fibre (sur 100%)
EH_{11}	88,64	95,01
EH_{12}	3,96	3,15
$EH_{31} + EH_{-11}$	1,46	0,96
$EH_{41} + EH_{-21}$	2,03	0,03
Reste dans autres modes	3,91	0,85

Tableau 3.1 : taux de recouvrement normalisé en entrée et sortie de fibre.

On retrouve une bonne correspondance entre le recouvrement en sortie de fibre et le taux d'atténuation théorique pour le mode fondamental EH_{11} et le second mode le plus couplé EH_{21} . Les autres modes sont sous-représentés dans le recouvrement en sortie de fibre. La remarque principale est que l'efficacité de la discrimination modale, c'est-à-dire le « gain » sur le mode fondamental par rapport aux autres modes, ne représente que de 7% du couplage initial. Cependant, on peut tout à fait augmenter cette valeur en allongeant la longueur de la fibre, l'atténuation sur le mode fondamental étant faible. L'énergie présente dans le cœur de la fibre $r \leq a$ est de l'ordre de 90% de l'énergie totale. Donc, le mode laser avant injection contenait 20% d'énergie dans des modes d'ordre supérieur qui sont atténués pour pratiquement la moitié à l'injection, notamment par l'effet « trou de filtrage spatial ». Les pertes théoriques à la propagation du mode fondamental étant faibles (2%), on peut estimer une efficacité du filtrage modal de l'ordre de 80%, c'est-à-dire que 80% de l'énergie initiale du laser est dans le mode EH_{11} en sortie de fibre. Expérimentalement, la transmission en énergie du dispositif est plutôt entre 60 et 70 %, selon l'énergie injectée entre 70 mJ et 200 mJ. La différence entre la valeur théorique et la valeur mesurée provient des pertes supplémentaires à l'injection qui ne sont pas prises en compte dans le calcul du couplage des modes, et s'élèvent donc à plus de 10 %. Finalement, il faut noter la dégradation importante de l'entrée de la fibre au cours du temps : la silice en entrée de fibre éclate et se morcèle. On peut perdre comme cela jusqu'à 1 cm de la fibre sans modification notable du processus de filtrage modal. Cela en fait un système très robuste.

3.2 Propriétés du faisceau harmonique généré après filtrage modal

3.2.1 Caractéristiques du mode filtré pour la génération

Une caractérisation spatio-temporelle du faisceau laser filtré a été réalisée après l'étage de compression du laser. Tout d'abord, nous avons effectué des mesures temporelles pour vérifier la qualité de compression du mode filtré. Ensuite, nous avons effectué des mesures de front d'onde suivies d'une propagation numérique du faisceau dans la cellule de gaz de génération. Les mesures temporelles (SPIDER) ont été faites à trois différentes énergies en entrée du compresseur et mesurées en sortie de celui-ci. Le récapitulatif est présenté dans le tableau ci-dessous.

Energie après compression	4 mJ	18 mJ	42 mJ
Durée d'impulsion (FWHM)	47 fs	43 fs	65 fs

Tableau 3.2 : récapitulatif des mesures SPIDER.

En conclusion : la qualité de compression du faisceau reste, en moyenne, équivalente à celle initialement donnée de 45-50 fs pour le système LUCA sans dispositif de filtrage modal. Cependant, le mode filtré, de profil « quasi-gaussien », a le désavantage de densifier l'énergie en son centre (voir Figure 3.6). Cela est probablement la cause d'une dégradation de la compression à énergie élevée, produite par une densité d'énergie importante sur les réseaux ou par propagation dans l'air. Malheureusement, on n'a pas de mesures sans le dispositif de filtrage pour pouvoir effectuer une comparaison plus avancée des propriétés temporelles avec et sans filtrage modal.

Après compression temporelle, les propriétés spatiales du faisceau sont obtenues en disposant la matrice de lentille du senseur de front d'onde sur le faisceau convergent, 1,80 m avant le plan de focalisation de la lentille de génération (focale de 5,65 m) comme indiqué par la position « 3 » sur la Figure 3.1. Le passage du compresseur à réseaux dégrade de façon significative le faisceau après le dispositif de filtrage modal. Cependant, on conserve la nette amélioration du faisceau filtré en comparant les mesures d'intensité et de front d'onde (Figure 3.6). La déviation RMS du front d'onde sur le faisceau filtré est en moyenne de $\lambda/13$ après passage du compresseur alors qu'elle était de $\lambda/59$ avant. Le faisceau non filtré est, lui, fortement dégradé avec une déviation RMS de $\lambda/5$. Cette dégradation du front d'onde est principalement imputée à un important et permanent astigmatisme provoqué par le système de compression.

La propagation numérique des mesures précédentes permet de rendre compte de la forme et de la qualité du faisceau dans le milieu de génération HHG. Sur la Figure 3.7 est présenté le profil d'intensité i) au plan focal, et ii) défocalisé de part et d'autre d'une dizaine de centimètres, distance correspondant approximativement au paramètre confocal en faisceau plein. Dans le plan focal, le rapport de Strehl obtenu sans le dispositif de filtrage modal est de 0,33, alors qu'il est de 0,82 après filtrage modal. En accord avec le critère de Maréchal, une valeur supérieure à 0.80 du rapport de Strehl caractérise le point focal comme limité par diffraction.

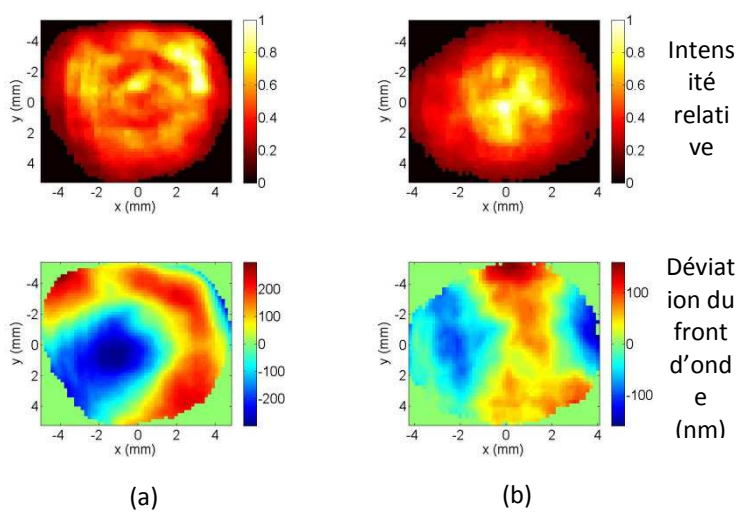


Figure 3.6 : comparaison des mesures d'intensité et de front d'onde après passage de l'étage de compression : a) sans filtrage préalable du faisceau et b) avec le dispositif de filtrage modal.

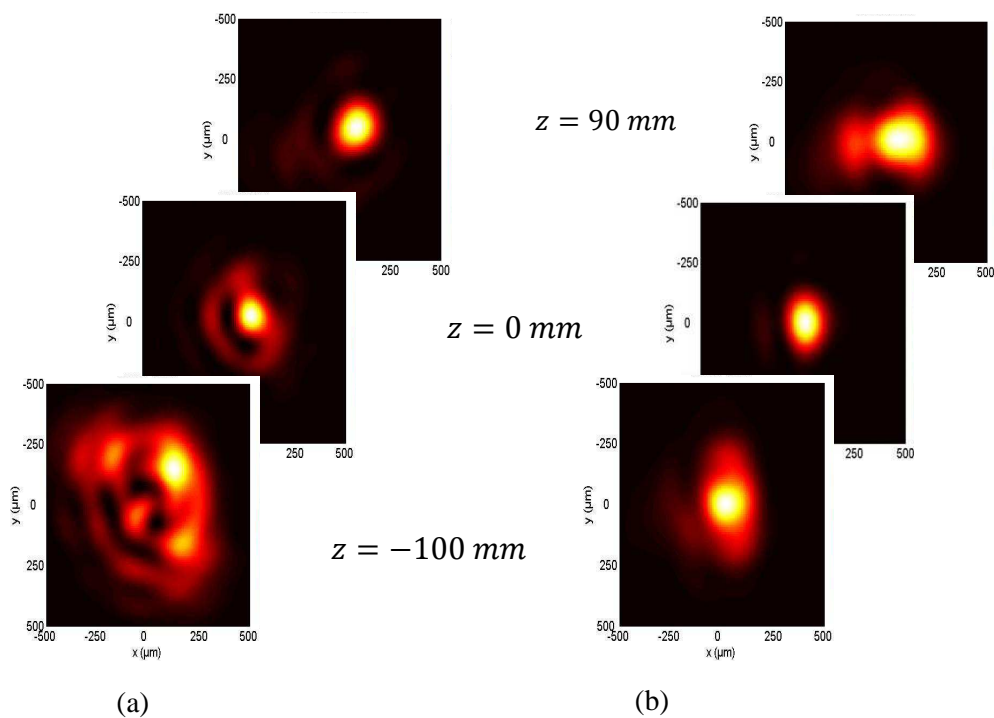


Figure 3.7 : distribution d'intensité au voisinage de la lentille de génération (obtenue par propagation numérique) : a) sans et b) avec dispositif de filtrage modal.

3.2.2 Génération avec le mode filtré

En parallèle avec les mesures sur le laser IR, une analyse de l'efficacité de génération, en fonction des conditions laser, a été effectuée sur la ligne harmonique. Elle comprend des mesures de profil d'intensité des harmoniques en champ lointain avec une CCD UV-X, ~ 1.5 m après le foyer du miroir torique. La sélection spectrale d'une harmonique générée est réalisée par un réseau dans une configuration torique-réseau. Cette configuration permet aussi de faire des mesures spectrales au moyen d'une fente disposée au point focal du torique et d'une détection sur photomultiplicateur. La distribution d'intensité en champ lointain caractérise les propriétés spatiales en intensité du faisceau sur l'harmonique considérée (malheureusement, pas de mesures avec senseur de front d'onde UV-X). Les mesures en champ lointain seront présentées pour l'harmonique h25 avec une génération dans l'argon, et pour l'harmonique h37 dans le néon. Les nombres de photons donnés dans la suite correspondent aux photons incidents sur la CCD. La ligne comprend, entre la cellule de génération et le CCD, le torique-réseau et un filtre mince en aluminium (200 nm). Les paramètres standard de génération sur le dispositif « grand volume » (voir section 2.2) sont : cellule de longueur 8 cm, le plan de focalisation de la lentille de 5,65 m situé à 2 cm en sortie de la cellule avec une pression de gaz de l'ordre de 14 mbar (trous de cellule « usinés » par le laser IR, donc fuite de gaz importante).

Dans le processus de génération d'harmoniques, le faisceau avant focalisation dans la cellule est limité par le diaphragme de génération. Ce diaphragme, nécessaire pour adapter le diamètre du foyer de focalisation, a aussi un rôle de filtrage spatial non négligeable dans le cas du faisceau non-filtré (sans filtrage modal). Le faisceau non-filtré a un diamètre ~ 40 mm sur le diaphragme contre 32 mm (en $1/e^2$) pour le faisceau filtré avec un paramètre confocal pour ces deux faisceaux de l'ordre de 15 cm. Leurs dimensions relatives peuvent être visualisées [Figure 3.6](#). La simulation avec des faisceaux idéaux, c'est-à-dire de formes top-hat pour le cas non filtré et gaussienne pour celui après filtrage modal, présente des propriétés de focalisation équivalente (diamètre et paramètre confocal) après un diaphragme d'ouverture 22 mm. Donc, théoriquement, pour une ouverture inférieure à 22 mm, ces deux modes se comportent identiquement dans le milieu de génération. La [Figure 3.8](#) présente des reconstructions de la focalisation pour une mesure sur des faisceaux non-filtré et filtré, respectivement, tous les deux limités par une ouverture du diaphragme de 22 mm. La transmission en énergie du diaphragme est de 50% pour le faisceau non-filtré et de 60% pour le faisceau filtré. Cette ouverture du diaphragme permet d'obtenir des qualités quasiment similaires entre les deux faisceaux dans le plan focal. Le profil laser en entrée du milieu de génération est celui correspondant au plan $z = -100$ mm sur les reconstructions. Dans ce plan, la qualité du faisceau non-filtré est inférieure avec un rapport de Strehl de 0.52 contre 0.58 pour le mode filtré. Le mode non-filtré se dégrade fortement pour une ouverture supérieure à 22 mm jusqu'à revenir au profil sans diaphragme de la [Figure 3.7](#). Il faut noter que ces profils reconstruits nous donnent seulement un aperçu du mode laser IR de génération au niveau de la cellule de génération en espace libre. La présence de gaz dans la cellule va modifier notablement les propriétés de propagation principalement à cause de l'ionisation (voir section 1.2 sur les aspects macroscopiques de la GH).

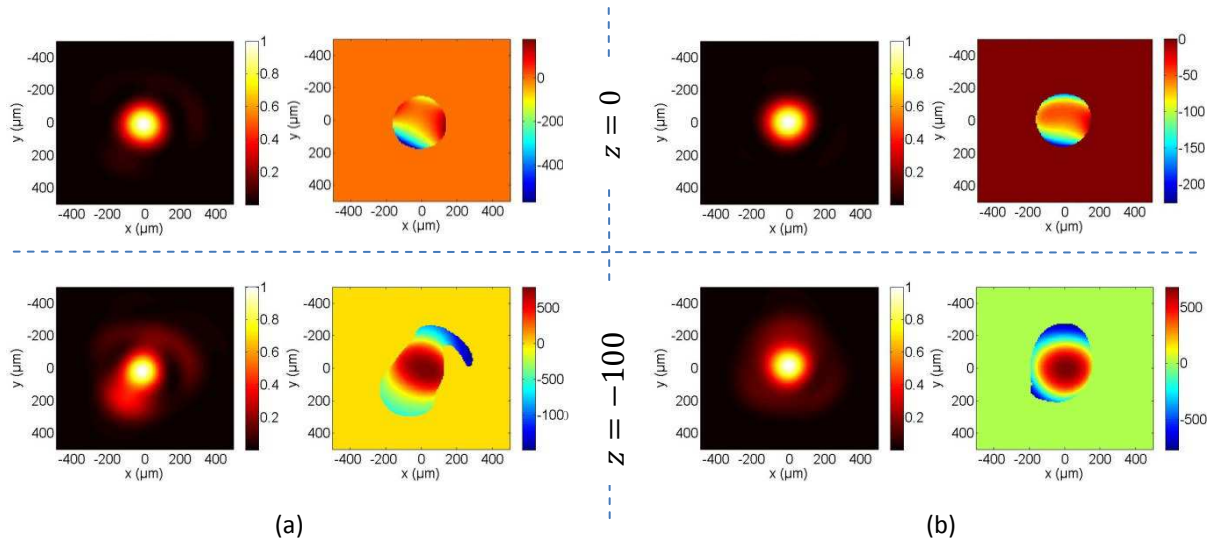


Figure 3.8 : profil en intensité (unité arbitraire) et en phase (déviaton en nm) aux plans $z = 0$ et $z = -100$ mm. Les reconstructions sont effectuées, avec un faisceau IR diaphragmé à 22 mm de diamètre, dans le plan focal de la lentille de génération a) sans et b) avec dispositif de filtrage modal.

L'optimisation de la génération dans l'argon sur l'harmonique h25 est effectuée en observant les distributions spatiales d'intensité en champ lointain. Les paramètres de génération - position du plan de focalisation, longueur de cellule, pression de gaz - sont similaires avec et sans laser filtré. La [Figure 3.9](#) présente différentes distribution en fonction de l'ouverture du diaphragme et de l'énergie par impulsion laser injectée dans le milieu de génération. Ces figures sont prises dans les conditions qui optimisent la distribution spatiale et le nombre de photons générés. Dans une configuration sans dispositif de filtrage sur le laser ([Figure 3.9 \(a\)](#)), l'énergie injectée dans le milieu de génération est limitée par l'énergie disponible en sortie de laser. Dans ce cas, pour pouvoir faire évoluer le nombre de photons, il faut augmenter l'énergie injectée dans la cellule, ce qui implique d'« ouvrir » le diaphragme. Cependant, si l'on augmente l'ouverture, on observe une dégradation de la distribution d'intensité et une instabilité de la génération, bien que le nombre de photons continue d'augmenter. Cet effet est corrélé à la dégradation du profil laser dans la cellule pour une ouverture du diaphragme supérieure à 22 mm. Ce comportement, déjà souligné par les analyses du point source harmonique (voir section 2.2), est attribué principalement à la qualité du profil laser. Le comportement avec le dispositif de filtrage modal est différent et correspond mieux au comportement théorique. Avec le faisceau laser filtré spatialement, on injecte beaucoup moins d'énergie dans la cellule. Cependant, pour une ouverture inférieure à 20 mm, on génère plus de photons à qualité de distribution spatiale de l'intensité équivalente. Avec le faisceau laser filtré, on doit limiter l'énergie injectée dans le milieu pour éviter l'« explosion » du faisceau harmonique généré. L'explosion du faisceau est attribuable à l'ionisation, par son effet sur la propagation du faisceau laser et par l'effet de la dispersion électronique sur l'accord de phase. Donc, l'énergie indiquée ([Figure 3.9 \(b\)](#)) correspond à la limite pour laquelle on atteint probablement l'éclairement de saturation dans le milieu de génération. Pour pouvoir augmenter l'énergie tout en conservant un même éclairement, il est nécessaire de diminuer le diamètre du diaphragme de génération pour augmenter la section du volume de génération ; c'est le principe de génération en « grand

volume ». Pour une ouverture similaire de l'ordre de 22 mm, avec et sans filtrage, on a un rapport entre les énergies injectées de 3,8. Il semblerait que, dans le cas non-filtré, on ait un éclairage dans la cellule au moins 3,8 fois plus faible que dans le cas filtré, alors que théoriquement il devrait être très similaire. La différence, évidente entre les propriétés de génération en laser filtré et non-filtré, l'est cependant beaucoup moins quand on analyse les profils du laser de la [Figure 3.8](#). Cette différence pourrait refléter une grande sensibilité du processus de génération au « mode laser », notamment en régime d'auto-guidage dans les milieux longs.

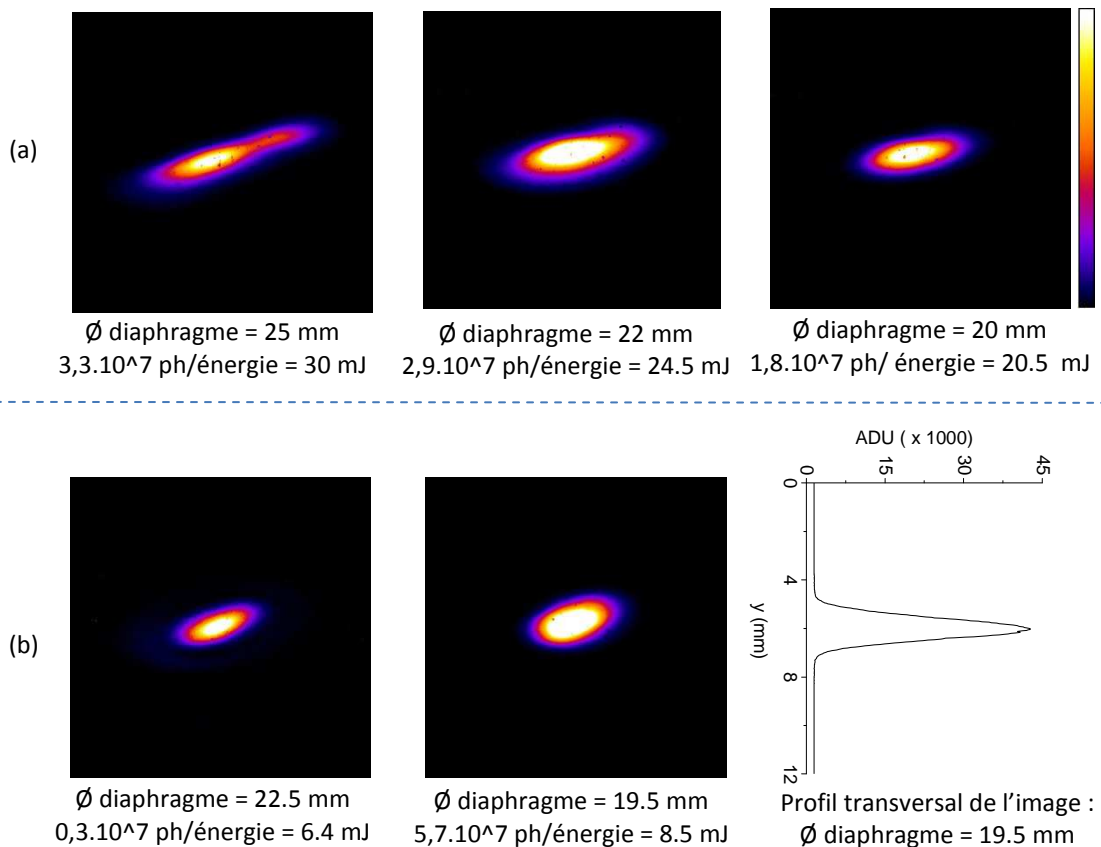


Figure 3.9 : distribution d'intensité (champ lointain) de l'harmonique h25 : a) sans filtrage spatial du laser et b) avec dispositif de filtrage modal. Il est indiqué : le diamètre du diaphragme de génération, le nombre de photons générés (h25) incident sur le CCD et l'énergie des impulsions du laser IR de génération. La déformation « elliptique » provient probablement d'une aberration liée aux optiques torique-réseau.

Pour une ouverture de diaphragme identique sur le faisceau filtré, on peut estimer un seuil d'énergie injectée pour lequel la distribution d'intensité reflète une modification des propriétés spatiales du faisceau harmonique. La [Figure 3.10](#) présente deux profils correspondant à une ouverture de 18,5 mm, où l'on peut estimer que la transition intervient pour une énergie de 11,5 mJ dans la cellule. Cela correspond, pour une impulsion de 55 fs, à un seuil d'éclairement de $2,8 \cdot 10^{14}$ W/cm² proche du seuil d'éclairement de l'argon de $2,5 \cdot 10^{14}$ W/cm². Ces résultats, très

proches du comportement théorique de la génération harmonique en « grand volume » avec un faisceau gaussien, démontrent l'efficacité du dispositif de filtrage modal.

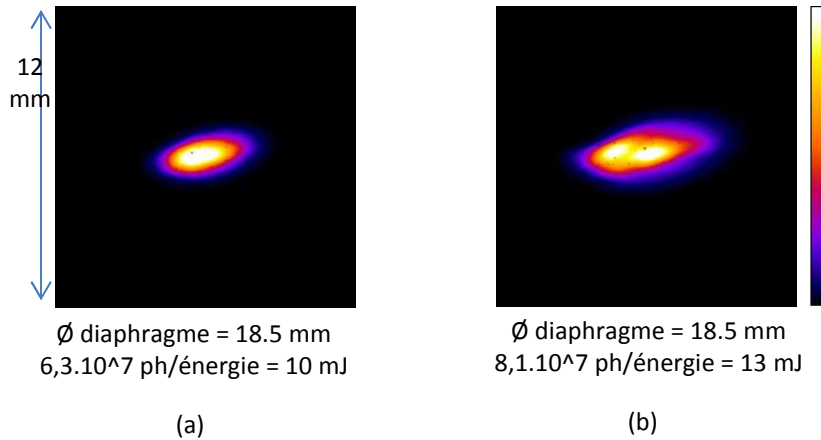


Figure 3.10 : distribution en champ lointain en fonction de l'énergie par impulsion dans la cellule de gaz : a) faisceau h25 homogène et b) faisceau « explosé ».

La configuration de génération où le diamètre du laser filtré est de 32 mm, focalisé par une lentille de 5,65 m, ne permet pas d'optimiser le flux de photons générés dans l'argon par rapport à l'énergie laser disponible (diamètre trop important dans le plan de la lentille et longueur focale trop faible). Sans changer la configuration, on va pouvoir utiliser cette « énergie disponible » en générant dans le néon qui a un éclairement de saturation (supérieur à celui de l'argon) de $8,7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. La Figure 3.11 présente des distributions d'intensité, optimisées en forme et nombre de photons, pour une génération dans le néon de l'harmonique h37. Les paramètres de génération sont la focalisation (approximativement) en sortie de cellule et la pression de gaz comprise entre 45 et 50 mbar. Les propriétés de la génération dans le néon avec et sans filtrage modal restent similaires à celles de la génération dans l'argon. Cependant, dans le néon, la génération sans le dispositif de filtrage est très instable. Ceci résulte de la grande ouverture du diaphragme pour avoir un éclairement suffisant dans le milieu de génération, et donc de la diminution du filtrage par le diaphragme.

Pour finir, une caractérisation spectrale été effectuée dans le néon avec et sans dispositif de filtrage (Figure 3.12). Le spectre avec filtrage modal présenté sur cette figure n'est pas optimisé en nombre de photons. On observe une bonne corrélation des propriétés spectrales avec et sans filtrage modal. Les deux profils diffèrent par un décalage de l'ordre de 0,15 nm pour l'harmonique h37 centrée respectivement sur 21,55 nm (filtré) et 21,70 nm (non filtré). Ce décalage du spectre (avec le mode laser filtré) vers le bleu n'est apparemment pas provoqué par un « blue shift » de la fréquence fondamentale du laser de génération (effet de l'ionisation), puisque l'on ne remarque aucune modification en fonction de l'énergie injectée dans le milieu. Il est cependant possible de décaler le spectre (avec le mode laser filtré) de moins de 0.1 nm vers le bleu et le rouge, en modifiant la compression du laser, tout en conservant des propriétés convenables de génération.

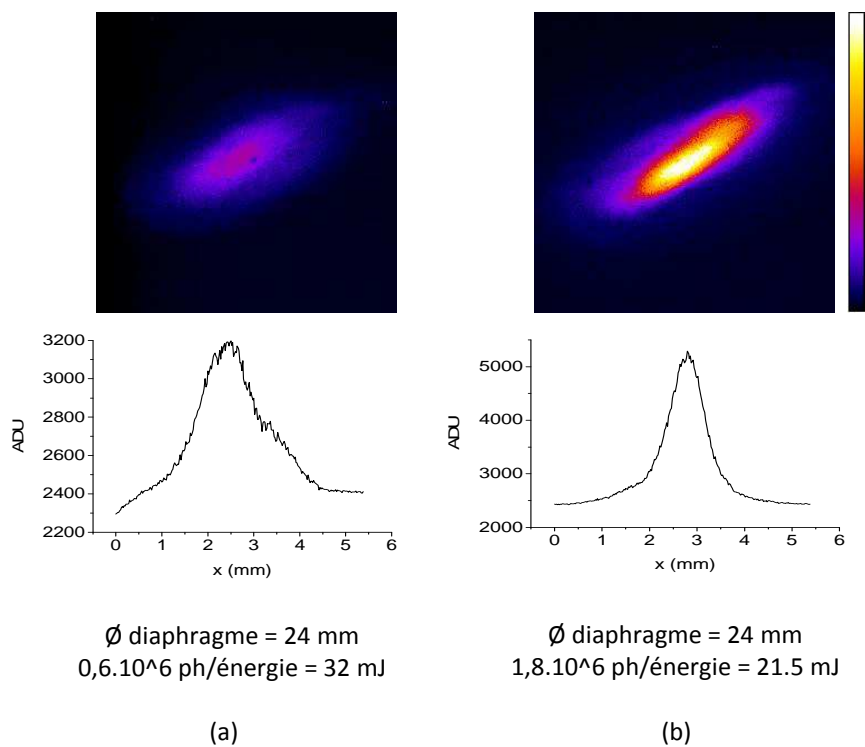


Figure 3.11 : distribution d'intensité et profil transverse sur l'harmonique h37 (néon) dans le cas a) du faisceau laser non-filtré et b) filtré.

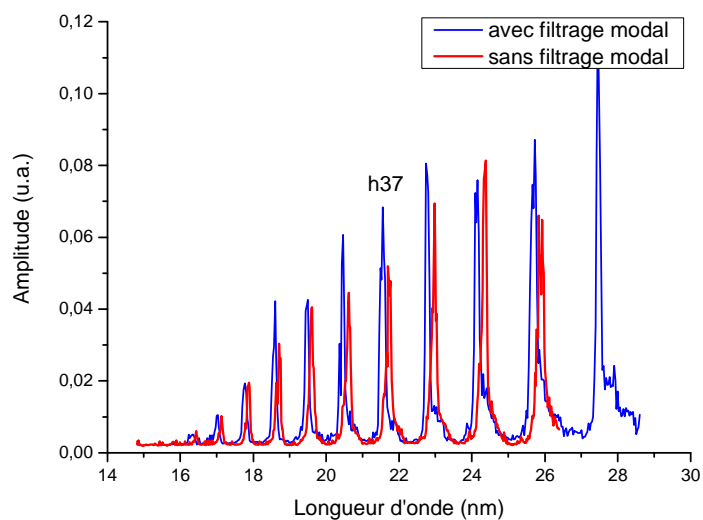


Figure 3.12 : spectre dans le néon avec et sans dispositif de filtrage modal. Les conditions sont choisies pour obtenir un nombre de photons équivalent sur l'harmonique h37.

3.2.3 Conclusion

L'étude de la génération d'harmoniques en configuration « longue focale » montre un avantage certain au mode laser filtré spatialement par sélection modale. Cet avantage concerne principalement l'efficacité de génération – nombre de photons générés par rapport à l'énergie injectée dans le milieu de génération – avec une augmentation supérieure à un facteur 4 et 5 sur la génération, respectivement, de l'harmonique h37 dans le néon et h25 dans l'argon. Bien qu'une analyse rigoureuse ne soit pas effectuée, on observe aussi l'amélioration de la qualité et de la stabilité du profil en champ lointain du faisceau harmonique. Cependant, l'avantage du filtrage modal pour la génération s'explique difficilement par comparaison entre les profils spatiaux laser dans le milieu de génération, reconstruits à partir des mesures Shack-Hartmann. Un aspect temporel pourrait aussi intervenir pour expliquer la différence d'efficacité de génération [75], notamment du fait que l'on améliore le mode laser avant l'étape de compression. Pour vérifier cela, une comparaison approfondie des caractéristiques temporelles du laser, avec et sans dispositif de filtrage modal, devra être effectuée.

4. Propriétés de l'illumination pour l'expérience de diffraction

4.1 La configuration « expérience d'imagerie sans lentille »

Le schéma de description complet de la « ligne harmonique » dans sa configuration d'imagerie sans lentille est présenté en [Figure 4.1](#). Cette ligne expérimentale utilise, dans sa version actuelle (depuis 2011), le dispositif de filtrage modal (voir précédemment). L'impulsion laser de génération (800 nm, jusqu'à 40 mJ par impulsion de ~55fs, 20 Hz), ainsi filtrée spatialement, est focalisée dans le dispositif de génération d'harmoniques grand volume. Le rayonnement harmonique généré est ensuite transporté vers l'enceinte d'application à l'imagerie sans lentille. L'ensemble du système est sous vide, avec une pression de quelques 10^{-3} mbar pour l'enceinte de génération (fuite de gaz) et descendant jusqu'à 10^{-8} mbar dans les enceintes spectromètre et application. Il est nécessaire de travailler sous vide pour éviter les perturbations pendant la focalisation du laser de génération, mais surtout pour éviter l'absorption du rayonnement harmonique. D'une façon générale, l'absorption importante par la matière, dans la gamme spectrale 10-100 nm, est la principale contrainte expérimentale qui impose d'utiliser exclusivement des optiques réfléchives ou diffractives. C'est notamment une des raisons qui motivent le principe de l'imagerie sans lentille dans l'UV-X.

Dans la configuration d'imagerie, l'enceinte spectromètre contient une lame en silice (dimensions 100×300 mm, épaisseur 20 mm, planéité $\lambda/20$, rugosité 3\AA RMS) traitée antireflet, avec une transmission supérieure à 99% pour l'IR (de 790 à 810nm, incidence quasi-rasante de 10° en polarisation « s »). La dernière couche en SiO₂ assure une réflexion du rayonnement harmonique de l'ordre de 60% autour de 32nm pour l'incidence rasante de 10° . L'énergie IR, en sortie de génération, dépasse celle des harmoniques de plus de 5 ordres de grandeur, une dizaine de mJ pour l'IR et quelques centaines de nJ pour l'harmonique h25. L'objectif de cette lame est de limiter la fluence du faisceau laser de génération co-propageant au faisceau harmonique, sortant de l'enceinte spectromètre et incidente sur le filtre aluminium. Le filtre aluminium élimine quasiment la totalité de l'IR résiduel. La transmission à 32 nm des filtres utilisés a été améliorée au cours des expériences pour passer de ~10% à plus de 60%, avec des filtres de 150 nm d'épaisseur (Al) et des « sandwichs » 5 nm (C) / 140 nm (Al) / 5 nm (C) (filtre LUXEL, entre 1000 et 1500 \$ pièce !). Un montage sous vide (non représenté sur la figure précédente) permet aussi de les protéger en permanence de l'oxydation, même lors des mises à l'air du reste de l'expérience pendant les phases de montage et d'alignement.

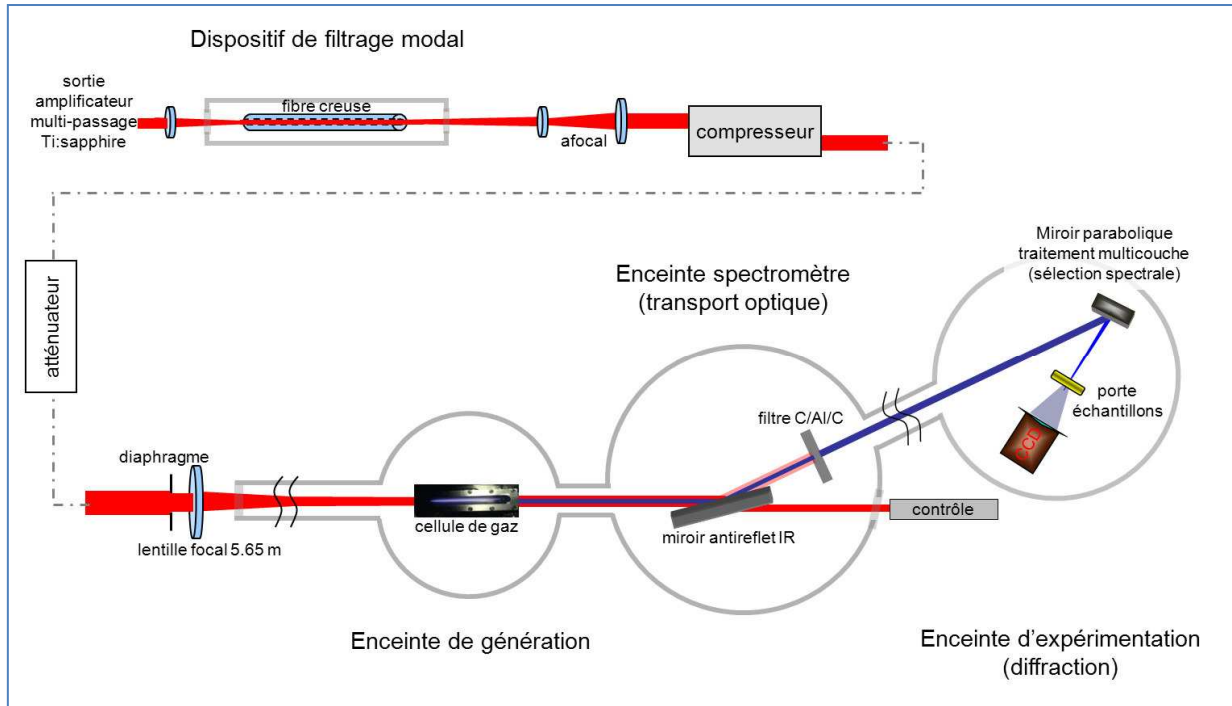


Figure 4.1 : Vue d'ensemble du dispositif expérimental d'imagerie sans lentille sur le système « grand volume » (voir Figure 2.1) incluant le dispositif de filtrage modal (voir Figure 3.1). L'enceinte spectromètre est utilisée ici pour le transport et le filtrage du faisceau harmoniques. La dernière enceinte d'expérimentation contient le miroir de focalisation parabolique multicouche, ayant pour fonction la sélection spectrale (h25) et la focalisation sur l'échantillon.

L'enceinte d'application comprend principalement une optique de focalisation, le porte-échantillon et le détecteur CCD UV-X (Figure 4.2). Les fonctions de focalisation et de sélection spectrale sont assurées par le miroir parabolique avec revêtement multicouche. La géométrie de l'optique est représentée Figure 4.3. Son angle d'incidence est de 11.25° , son diamètre est de $1''$ pour une focale de 200 mm. La parabole hors axe est montée sur une platine motorisée, constituée de deux goniomètres et d'une rotation qui permettent son alignement sous vide. Les réglages principaux sont constitués de deux rotations. La première s'effectue dans le plan hors axe avec l'axe de rotation situé au centre de l'optique (voir Figure 4.3). L'autre rotation est dans le plan perpendiculaire au plan hors axe (contenant l'axe optique). La parabole utilisée présente un défaut de planéité du substrat de 21.9 nm RMS (écart à la surface de référence) sur une sous-pupille de 12 mm de diamètre. Ce défaut provoque une déformation importante du front d'onde pour une utilisation à $\lambda = 32 \text{ nm}$; en conséquence, la tache focale a un diamètre très supérieur à la limite de diffraction. Cependant, la dimension du faisceau sur la parabole ne dépasse pas 4 mm, donc le défaut de planéité exploré par le faisceau doit être réduit. Je l'estime grossièrement à $1/4$ de la longueur d'onde quand le faisceau est centré sur la parabole. La planéité se dégrade quand on s'éloigne du centre de la parabole hors axe, donc il est important de bien centrer le faisceau.

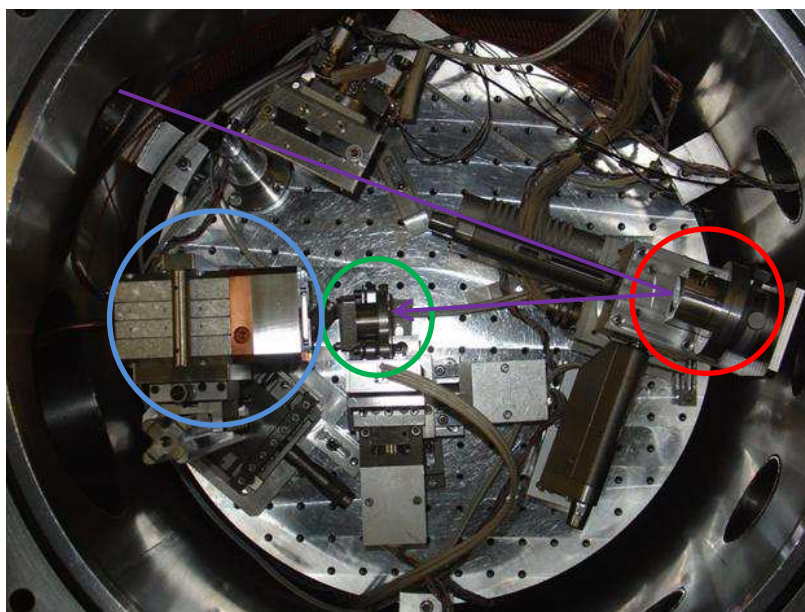


Figure 4.2 : Enceinte d'application qui contient le miroir parabolique sur son support (cercle rouge), le porte échantillons (cercle vert) et le détecteur CCD UV-X (cercle bleu). Le trait violet matérialise le faisceau harmonique avant son incidence sur l'échantillon.

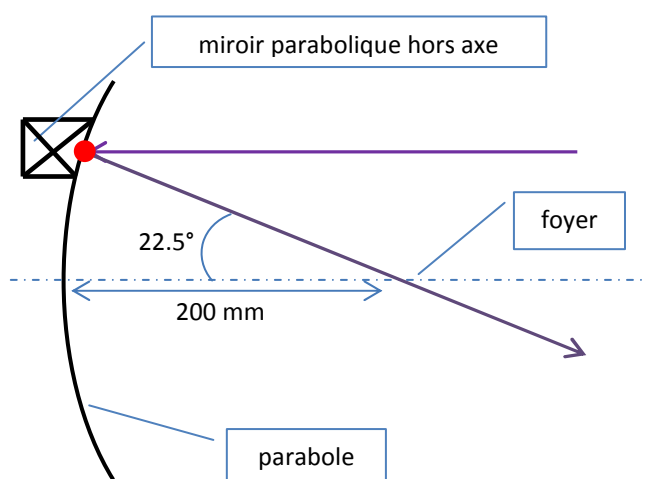


Figure 4.3 : propriété géométrique du miroir parabolique. Le plan du dessin est le plan hors axe du miroir parabolique. Le point rouge matérialise l'axe de rotation du réglage « hors axe ».

Dans le peigne de fréquences harmoniques, h25 est sélectionnée par un traitement multicouche B₄C/Si sur la parabole. Le revêtement multicouche est composé de 12 périodes de 3.6 nm de B₄C et 14.2 nm de Si avec une précision sur les épaisseurs de ± 0.1 nm. La dernière couche est du B₄C. On n'a pas de mesure de réflectivité du multicouche déposé sur la parabole, mais ses caractéristiques sont équivalentes à celles présentées sur la Figure 4.4. La réflectivité pour un angle de 10° d'incidence est centrée sur 40 eV. L'harmonique h25 est centrée sur 39 eV (31,9

nm) (mesure spectrale) avec des variations maximum de à 0.1 nm autour de cette valeur, dépendant des conditions de génération. En décalant la courbe mesurée de 1 eV, on peut estimer le taux de réjection des harmoniques adjacentes h23 et h27 de 6.5 % (h23/h25) et 7.5 % (h27/h25). La largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 1,7 nm, à comparer avec la largeur spectrale d'une harmonique de l'ordre de 0,70 nm.

Les caractéristiques et propriétés du détecteur CCD UV-X seront précisées dans le chapitre 9.

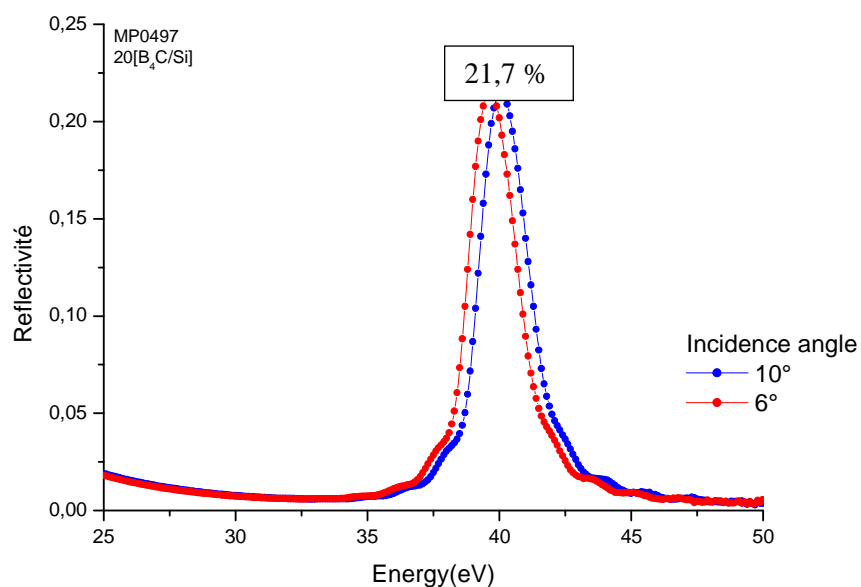


Figure 4.4 : réflectivité mesurée sur rayonnement synchrotron en fonction de l'énergie pour une multicouche B4C/Si. Le maximum de réflectivité mesuré, pour un angle d'incidence de 10°, est centré sur 40 eV (31,03 nm). La largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 2,1 eV.

4.2 Propriétés de l'illumination de l'échantillon

4.2.1 Distribution de l'illumination au plan de focalisation

A la suite de la caractérisation du faisceau harmonique au moyen d'un senseur de front d'onde UV-X (voir section 2.2), le même dispositif a été utilisé sur le faisceau après sa focalisation par l'optique parabolique. Cette campagne de mesures (2009) a été effectuée avant l'installation du dispositif de filtrage modal. Ces mesures ont permis d'obtenir la reconstruction du spot focal du faisceau harmonique h25 dans le plan de focalisation de la parabole. Deux objectifs : avoir une meilleure connaissance de la tache focale sur l'échantillon et aligner « finement » la parabole hors axe, à partir de l'alignement « manuel » renouvelé à chaque alignement complet de la configuration imagerie (un seul par campagne de mesure). Toujours pour des problèmes de stabilité du faisceau harmonique (mesure effectuée avant filtrage spatial du laser de génération), il fut difficile de réaliser parfaitement ce dernier point. De plus, il est apparu clairement que la partie la plus critique est l'alignement global de la ligne harmonique pendant les phases de mise en route quotidienne. C'est le facteur le plus critique qui influence la qualité de focalisation. Il est donc difficile d'avoir un alignement « fin » de la parabole pour une campagne complète d'imagerie cohérente (plusieurs mois). Cependant, ce défaut d'alignement ne dégrade pas trop fortement la tache focale. La conclusion est que le réglage « manuel » est suffisant pour une campagne de mesure et permet, malgré un désalignement journalier, de rester dans des conditions acceptables de focalisation.

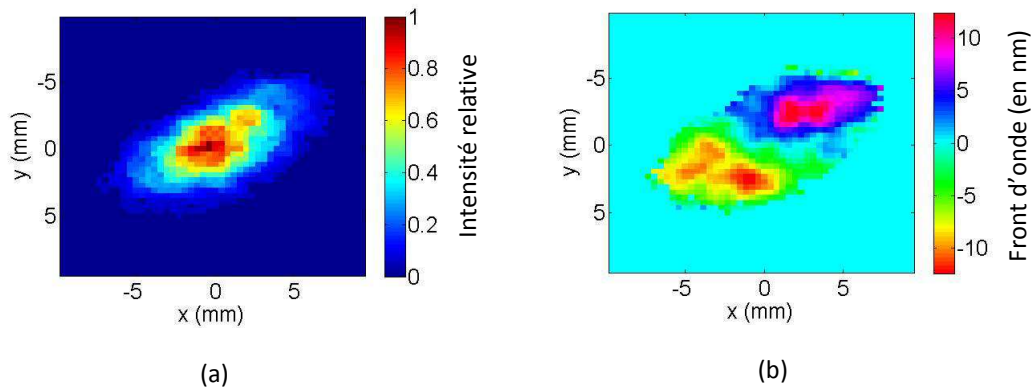


Figure 4.5 : mesure de l'intensité (a) et du front d'onde (b) dans le plan de la grille du senseur UV-X pour l'harmonique h25 (accumulation sur 100 tirs).

La Figure 4.5 présente une mesure dans le plan de la grille Hartmann, caractéristique des résultats obtenus pendant cette campagne. Le profil de phase est le plus souvent dominé par l'aberration de coma caractéristique d'un désalignement axial du miroir parabolique. On retrouve la signature de cette aberration sur les distributions d'intensité reconstruites dans le plan de focalisation de la parabole (Figure 4.6). Le spot focal est relativement de bonne qualité malgré un rapport de Strehl de seulement 0.57. Dans les plans dé-focalisés, les distributions

d'intensité évoluent très rapidement avec un paramètre confocal estimé inférieur à 1 mm. On passe d'un spot focal de l'ordre de 4-5 μm de diamètre à quasiment 10 μm dans la dimension la plus déformée. Ces caractéristiques confirment l'importance de la précision du positionnement de l'échantillon suivant les trois axes.

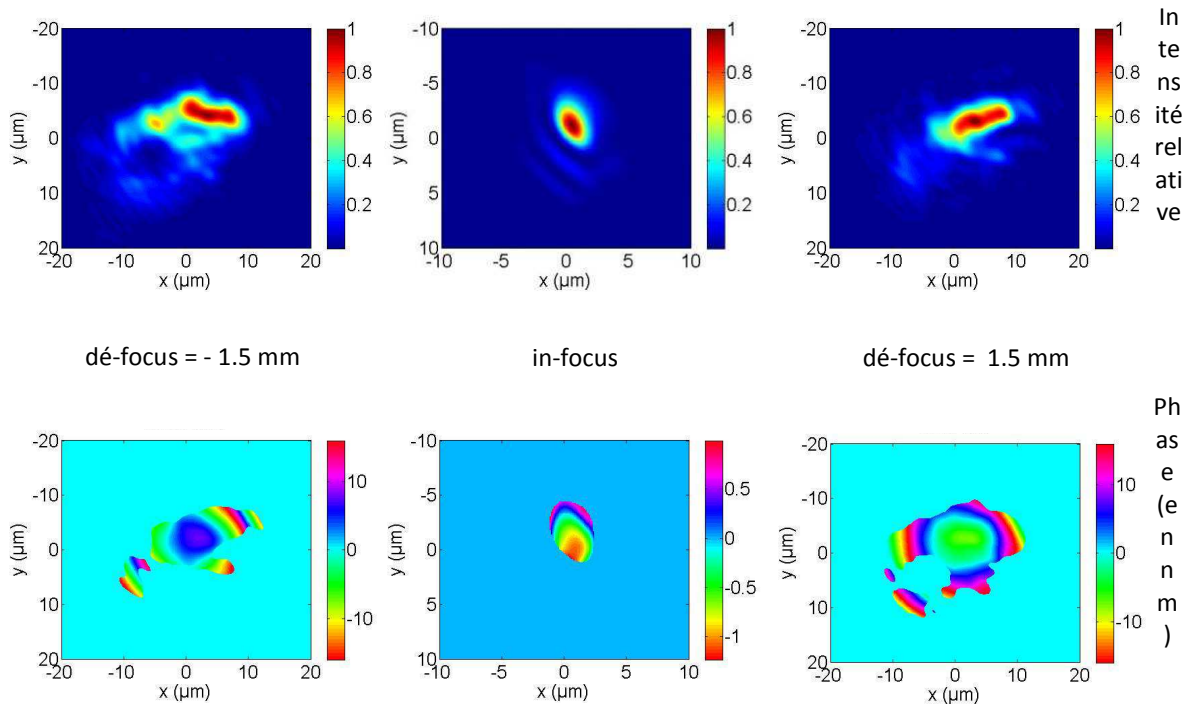


Figure 4.6 : tache focale de l'harmonique h25 reconstruite à partir des mesures de la figure précédente. Reconstruction de la distribution d'intensité et de la phase de part et d'autre du plan de focalisation avec une défocalisation de ± 1.5 mm (attention, les échelles sont différentes).

4.2.2 Cohérence au plan de focalisation

La cohérence a été mesurée au moyen de trous d'Young dans le plan de focalisation, qui correspond au plan dans lequel sont placés les objets à imager. Les trous sont fabriqués de manière identique aux objets diffractants des expériences d'imagerie (voir section 9.1.1). La figure d'interférence est enregistrée dans les conditions de l'expérience d'imagerie sans lentille. Le faisceau harmonique est généré avec le mode laser filtré spatialement. Les trous d'Young font 610 nm de diamètre et sont espacés de 5 μm . L'espacement de 5 μm est à comparer avec les dimensions du spot focal de l'ordre 4-5 μm dans l'hypothèse où l'on se situe exactement dans le plan de focalisation (voir précédemment).

La Figure 4.7 (a) présente un interférogramme caractéristique, issu d'une accumulation de 5 tirs consécutifs sur le détecteur CCD. La cohérence transversale mesurée, liée à la visibilité des

franges au centre de la figure d'interférence, est de 84%. Cette valeur est obtenue en effectuant le rapport entre les lobes satellites et le lobe central de la transformation de Fourier de l'interférogramme (Figure 4.7 (b)) (voir section 6.2). On obtient des valeurs similaires de cohérence transverse, entre 80% et 85%, pour des acquisitions simple tir et des accumulations jusqu'à 10 tirs. Normalement, l'instabilité du spot focal (distribution de l'éclairement et le front de phase) doit dégrader les mesures de cohérence transverse proportionnellement au nombre de tirs accumulés. De fait, on intègre les fluctuations du pointé dans la visibilité de l'interférogramme. L'instabilité constitue une difficulté pour les expériences d'imagerie sans lentille comme cela sera précisé chapitre 9. Il faut noter que ces mesures de cohérence ont été effectuées sur le faisceau harmonique généré avec le mode laser filtré spatialement. Le dispositif de filtrage modal a permis d'améliorer la stabilité du pointé.

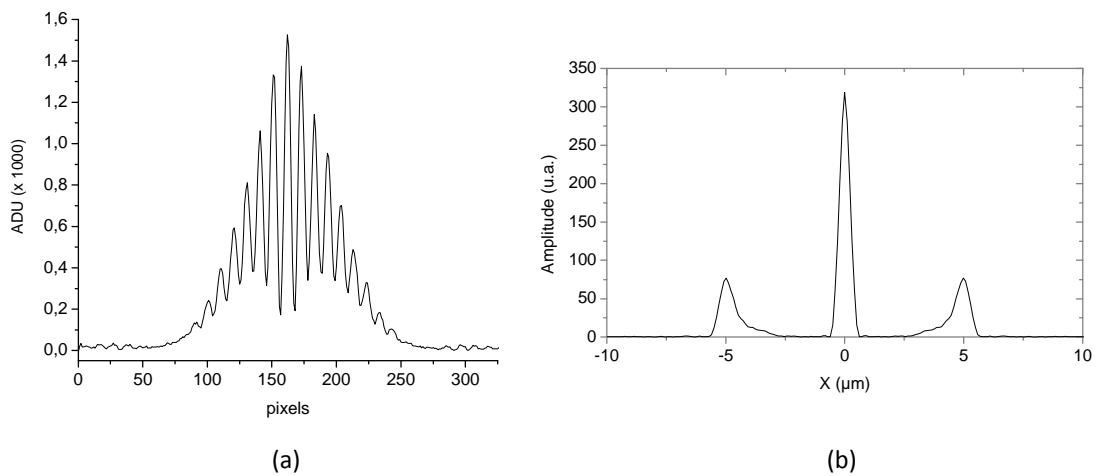


Figure 4.7 : (a) figure d'interférence (pixel de $13.5 \mu\text{m}$) de deux trous d'Young espacés de $5 \mu\text{m}$, placés dans le plan de focalisation et (b) la transformation de Fourier de l'interférogramme.

Sur la Figure 4.7 (b) la largeur à mi-hauteur du lobe central est associée à la largeur des trous d'Young. Les lobes satellites ont une largeur à mi-hauteur de 710 nm qui représente la somme de la largeur des trous et de la largeur spectrale de l'harmonique h25 (en unité spatiale équivalente). On en déduit une largeur spectrale $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ de $2 \cdot 10^{-2}$, identique à celle calculée au moyen du spectre. On peut remarquer une structure supplémentaire sur les « pieds » intérieurs des lobes satellites. Cette structure correspond à une contribution d'harmoniques d'ordre plus faible. Cet effet spectral se discerne bien sur l'interférogramme. On distingue très bien la contribution de h23 adjacente à h25, plus faiblement les contributions de h21, h19 et h17. Par contre, sur la partie extérieure des lobes satellites, on ne distingue pas de contribution associée à l'harmonique h27. L'estimation du rapport d'amplitude entre l'harmonique h23 et h25 est de 15%. Les contributions de h21, h19 et h17 sont estimées inférieures à 6%. La transmission des ordres harmoniques faibles, dans le plan de l'échantillon, résulte de la différence d'amplitude relative entre les harmoniques générées (si h25 est dans la coupure par exemple) combiné à la transmission du multicouche, sachant que le filtre aluminium non-oxydé à une transmission

équivalente pour toutes ces harmoniques. Ce défaut de sélection spectrale et son incidence sur la cohérence longitudinale de l'illumination de l'échantillon, qui se traduit sur l'interférogramme, semblent néanmoins ne pas constituer un problème majeur pour les expériences d'imagerie par diffraction présentées dans la suite.

Conclusion de la partie I

En conclusion, la source harmonique « grand volume » permet non seulement d'obtenir une énergie atteignant le microjoule (environ 10^{11} photons à 32 nm) par impulsion à 20 Hz, mais possède de plus d'excellentes qualités spatiales. Une géométrie en longue focale permet de "coupler" une énergie laser plus élevée avec le milieu en augmentant la dimension transverse de la source. Ce schéma favorise également un accord de phase uniforme et permet donc d'augmenter l'efficacité de génération. L'optimisation implique le contrôle des paramètres de la génération, diamètre du faisceau, pression dans la cellule, position du foyer par rapport au milieu générateur. La possibilité d'un contrôle étendu aux paramètres de la GH, tels que la distribution d'amplitude et de phase spectrales de l'impulsion laser, doit encore améliorer l'efficacité de conversion pour une harmonique donnée. D'importants progrès ont été faits dans le transport et les qualités spatiales (cohérence, front d'onde) du faisceau : citons notamment l'utilisation de filtres d'aluminium de haute qualité, l'optimisation des paramètres de la génération d'harmoniques, le contrôle de l'alignement de la parabole au moyen de mesures de front d'onde et la mise en place d'un dispositif de filtrage spatial du laser de génération. Le filtrage spatial du laser par sélection modale dans une fibre creuse contribue fortement à l'amélioration des caractéristiques de la GH. Les résultats très récents montrent un gain en efficacité de génération d'un facteur 4 à 5 et une amélioration des qualités spatiales du faisceau harmonique. Après ces études de filtrage spatial, il pourrait être aussi intéressant d'approfondir le contrôle et la mise en forme de l'impulsion laser. Tous ces efforts nous ont permis d'améliorer les résultats de l'imagerie par diffraction présentés dans la suite. D'autres voies sont à l'étude. Par exemple, le dispositif expérimental permettant de coupler des énergies laser de quelques 10 à quelques 100 mJ sur le laser LUCA 10TW peut évoluer vers un laser plus puissant comme le laser UHI 100TW du CEA-Saclay. Dans ces conditions de forte énergie laser, l'énergie UV-X pourrait atteindre quelques 10 μ J par impulsion. Les aspects pratiques (très longue focale remplacée par un afocal basé sur des miroirs sphériques) ainsi que les problèmes de propagation et de réfraction sont cependant à résoudre.

La source harmonique est donc une source cohérente, ultrabrève et intense dans le domaine UV-X. La brillance crête de la source (analogue à la luminance) est de 10^{24} (photons/s/mrad²/mm²/0.1% de largeur spectrale) pour l'harmonique h25 (32 nm) après sélection spectrale, suppression de l'IR et transport optique (ce qui correspond aux photons utiles aux utilisateurs). Malgré une brillance crête inférieure de 3-4 ordres de grandeur à ceux délivrés par les lasers à électrons libres (LEL, ex. l'installation FLASH à Hambourg), elle permet de réaliser certaines des applications envisagées sur les LEL, dans des conditions d'accès infiniment plus souples. Dans sa « **configuration imagerie** », les propriétés photométriques de la ligne harmonique sur l'échantillon sont les suivantes (harmonique h25 à 32 nm):

- **Nombre de photons ~ $5 \cdot 10^8$ photons/impulsion, quelques nJ.**
- **Durée d'impulsion : 20 fs**
- **Puissance crête : 0.1 MW**
- **Eclairement sur une tache focale de 5 μ m : 10^{12} W/cm²**
- **Largueur spectrale : $\lambda/\Delta\lambda = 50$**

De façon plus générale, les excellentes propriétés de cohérence de la source harmonique mais aussi sa simplicité de mise en œuvre et de maintenance la rendent particulièrement intéressante pour les applications, telles que l'injection du laser à électrons libres SCSS du RIKEN, Japon [76], du laser X plasma du LOA, Palaiseau [29]. Dans la suite, je présente une deuxième partie importante de mon travail de thèse, l'application de la source harmonique à l'imagerie cohérente ultrarapide d'objets nanométriques.

Partie II : Théorie sur l'imagerie sans lentille : diffraction cohérente et holographie par transformée de Fourier.

De l'objet à la formation de l'image

Lorsqu'un faisceau de lumière cohérente illumine un objet, la figure de diffraction dans le champ lointain est associée à la transformée de Fourier des modifications, en amplitude et/ou en phase, de l'onde incidente par l'objet. C'est la détection et l'analyse du champ électromagnétique diffracté par l'objet qui doit permettre de retrouver l'information – l'image – de l'objet. Cependant, « la détection » ne mesure pas l'amplitude complexe du champ électromagnétique, mais seulement l'« intensité » diffractée : la phase associée est perdue pendant le processus de détection de la figure de diffraction. Toutefois, la figure de diffraction contient toute l'information sur l'objet. Il y a donc suffisamment d'information avec la figure de diffraction pour pouvoir construire l'image de cet objet. Le concept d'imagerie sans lentille comprend deux étapes. Une étape d'acquisition des données et une étape de reconstruction numérique. La reconstruction numérique permettra, sous certaines conditions sur l'illumination, sur la détection et sur l'échantillon, d'obtenir l'image de l'objet.

Il existe différents schémas et configuration d'imagerie sans-lentille. Ils peuvent être classifiés en deux catégories en fonction du principe de reconstruction utilisé pour obtenir une image. Le premier consiste à reconstruire la phase perdue pendant la détection. Le deuxième consiste à enregistrer cette phase dans des modulations holographiques. Dans ce manuscrit seront présentées ces deux différentes méthodes. Plus particulièrement, on utilisera *l'imagerie par diffraction cohérente* (CDI) ou *l'holographie par transformée de Fourier* (FTH). Les contraintes expérimentales pour ces deux configurations seront identiques dans notre étude. Ainsi, l'étape d'acquisition des données de diffraction de ces deux schémas pourra être considérée comme équivalente. La distinction interviendra pendant l'analyse des données et la reconstruction. La configuration *d'imagerie par diffraction cohérente* (CDI) est basée sur la reconstruction itérative et non-déterministe de la phase avec un algorithme de « phase retrieval ». Le schéma *d'holographie par transformée de Fourier* (FTH) lui repose sur un principe de reconstruction non-itératif et déterministe (solution analytique) par « démodulation de la phase » enregistrée dans l'hologramme.

Dans cette deuxième partie du manuscrit, je présente les notions théoriques sur la description de l'objet, sur le principe de diffraction et la détection, ainsi que sur les différents schémas de reconstruction.

5. Approximation de projection et diffraction de Fraunhofer

Différents formalismes sont utilisés pour décrire le phénomène de diffraction et trouver une relation entre la mesure de la figure de diffraction et l'objet. Le formalisme généralement utilisé est celui de la diffraction dans l'approximation de Born. Ce formalisme permet de décrire l'interaction d'un objet optiquement mince (hypothèse de diffusion simple) en trois dimensions avec une onde incidente plane [77]. Pour les expériences décrites dans la suite de cette étude, j'ai utilisé le formalisme de la diffraction de Fraunhofer d'une onde transmise par un objet considéré dans l'approximation de projection. Ce formalisme simple est bien adapté pour décrire la diffraction des objets en deux dimensions [78]. Pour ce type d'objet et sous certaines hypothèses, la description par la diffraction de Fraunhofer est identique à celle obtenue dans l'approximation de Born.

5.1 Transmittance d'un objet sous l'approximation de projection

L'interaction de l'onde incidente avec l'objet est décrite dans l'approximation de projection. D'une façon générale, l'objet est défini par un indice de réfraction, représentation macroscopique de l'interaction rayonnement-matière. Il est commun, dans le domaine spectral UV-X [79], d'exprimer cet indice comme :

$$n(r, \omega) = 1 - \delta(r, \omega) - i\beta(r, \omega)$$

Avec :

$$\delta(r, \omega) = \frac{r_e \lambda^2}{2\pi} n_a(r) f_1(\omega)$$

$$\beta(r, \omega) = \frac{r_e \lambda^2}{2\pi} n_a(r) f_2(\omega)$$

Les fonction $f_1(\omega)$ et $f_2(\omega)$ sont associées au facteur de forme $f = f_1 + if_2$ qui caractérise la diffusion élastique des électrons d'un atome [80]. Ces valeurs sont tabulées dans la gamme spectrale X.

L'objet peut être décrit au moyen d'une fonction de transmission, appelé généralement transmittance de l'objet. Cette notion implique que la modification de l'amplitude complexe par l'objet est indépendante des propriétés de l'onde incidente et qu'elle est seulement fonction des deux dimensions transverses à la direction de propagation : c'est l'approximation de projection. Dans cette hypothèse, l'onde transmise par l'objet sera le produit de l'amplitude complexe incidente et de la transmittance complexe de l'objet. L'approximation de projection considère que l'onde incidente se propage à travers l'objet sans subir d'évolution suivant la direction transverse de propagation, en d'autres termes, sans diffracter à l'intérieur de l'objet. Cela revient à négliger la valeur du Laplacien de coordonnées transverses (terme responsable de la

diffraction) dans l'équation d'Helmholtz dans l'approximation paraxiale (voir annexe). Dans le cas d'une onde plane se propageant suivant z avec pour vecteur d'onde dans le vide $k(\omega)$, on a :

$$\psi(r_{\perp}, \omega, z) = \psi_0 e^{ik(\omega) \int_0^z n(r_{\perp}, \omega, z') dz'}$$

L'onde transmise en $z = l$ correspond à la phase accumulée (i.e. le chemin optique) par l'onde incidente pendant sa traversée de l'objet :

$$\psi(r_{\perp}, \omega, l) = \psi_0 e^{ik(\omega) \int_0^l n(r_{\perp}, \omega, z') dz'} = \psi_0 e^{ik(\omega) N(r_{\perp}, \omega)}$$

On obtient la transmittance de l'objet :

$$t(r_{\perp}, \omega) = e^{ik(\omega) N(r_{\perp}, \omega)} \quad (5.1)$$

Où $N(r_{\perp}, \omega)$ représente un « indice de réfraction projeté » (unité : mètre) dans le plan transverse en sortie de l'objet. Dans le cadre de l'approximation de projection, l'onde transmise s'exprime simplement comme le produit d'une onde incidente par la transmittance.

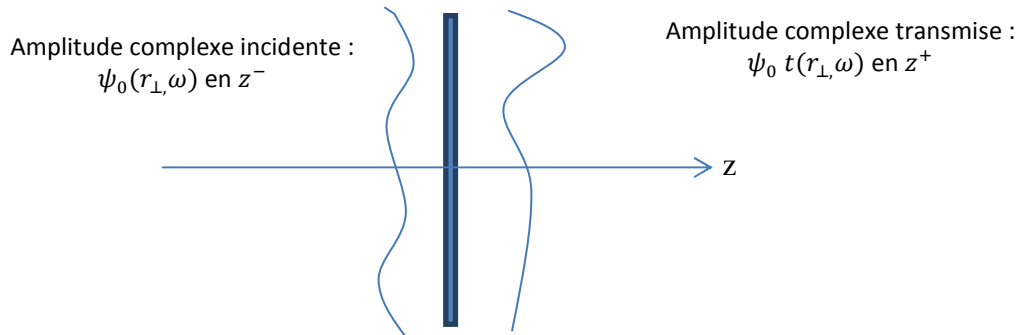


Figure 5.1 : Transmittance d'un objet sous l'approximation de projection.

Le cadre de validité de l'approximation de projection et ses implications concrètes seront détaillés dans la section 5.3. Il est à noter que cette approximation est souvent utilisée en optique. Elle consiste à considérer les optiques comme des masques de phase. Par exemple, l'hypothèse des lentilles minces en optique de Gauss (optique paraxiale).

5.2 Diffraction en champ lointain

L'onde transmise par l'échantillon, distribution du champ électromagnétique en sortie d'objet dans le plan transverse à la direction de propagation, est utilisée comme solution initiale à l'équation de propagation en espace libre. Pour une onde plane d'amplitude ψ_0 monochromatique de vecteur d'onde k_0 se propageant suivant z , incidente sur un objet de transmittance $t(r'_\perp)$ en $z = 0$, la solution de l'équation de propagation dans l'approximation paraxiale est (voir annexe) :

$$\psi(r_\perp, z) = -i \frac{k_0}{\sqrt{2\pi z}} e^{ik_0 z} \int d^2 r'_\perp \psi_0 t(r'_\perp) e^{i \frac{k_0 (r_\perp - r'_\perp)^2}{2z}}$$

Cette forme est identique à celle obtenue par l'intégrale de diffraction de Fresnel-Kirchhoff ou Rayleigh-Sommerfeld (au terme « d'obliquité » près) [4]. La variable r'_\perp représente les coordonnées transverses au niveau du plan objet en $z = 0$ et r_\perp celles dans le plan de détection. En omettant les termes de phase et les constantes devant l'intégrale, la solution se développe comme suit :

$$\psi(r_\perp, z) = \int dr'_\perp t(r'_\perp) e^{i \frac{k_0 (r'_\perp)^2}{2z}} e^{-i \frac{k_0 r_\perp \cdot r'_\perp}{z}}$$

Cette expression se présente comme une transformée de Fourier. Notons la variable associée à cette transformée :

$$k_\perp = \frac{k_0 r_\perp}{z}$$

La variable k_\perp est homogène à une fréquence spatiale, c'est la variable de l'espace réciproque. La solution devient :

$$\Psi(k_\perp, z) = \mathcal{F} \left[t(r'_\perp) e^{i \frac{k_0 (r'_\perp)^2}{2z}} \right]_{r'_\perp \rightarrow k_\perp = \frac{k_0 r_\perp}{z}}$$

Considérons un objet isolé, hypothèse fondamentale de l'imagerie sans lentille. Cela revient à avoir la transmittance de l'objet $t(r'_\perp)$ à support borné. La transmittance est non nulle seulement dans une région finie de l'espace qui correspond à la position de l'objet. La modulation de phase causée par l'exponentielle est maximum sur les bords de celui-ci. L'approximation dite de Fraunhofer consiste à supposer que cette modulation est suffisamment petite pour que le terme exponentiel puisse être supprimé dans l'équation ci-dessus. Si a correspond à une dimension caractéristique de l'objet, on exprime le « nombre de Fresnel » par :

$$n = \frac{a^2}{\lambda z}$$

L'approximation de Fraunhofer est valide dans le régime de champ lointain qui correspond à un nombre de Fresnel $n \ll 1$, ce qui implique :

$$z \gg \frac{a^2}{\lambda}$$

Finalement, l'amplitude du champ électromagnétique diffracté (on a omis le terme de phase quadratique) en champ lointain est identique (à des constantes près) à la transformée de Fourier de la transmittance de l'objet :

$$\Psi(k_{\perp}) = \mathcal{F}\{t(r'_{\perp})\}_{r'_{\perp} \rightarrow k_{\perp}}$$

Celle-ci s'exprime dans l'espace réel (espace de détection de l'image de diffraction) grâce au facteur d'homothétie $\frac{z}{k_0}$ (en m^2) :

$$\psi\left(r_{\perp} = k_{\perp} \frac{z}{k_0}, z \gg \frac{a^2}{\lambda}\right) = \Psi(k_{\perp}) \quad (5.2)$$

Il est important de respecter les conditions de validité de cette expression. La première condition est celle de champ lointain comme présenté ci-dessus. La deuxième concerne l'approximation paraxiale (voir annexe). Celle-ci implique que l'on peut considérer seulement une petite partie d'un « spectre angulaire » large, celle où les fréquences spatiales respectent $k_{\perp} \ll k_0$. Cette hypothèse valide la solution pour un faible angle de diffraction : $\frac{k_{\perp}}{k_0} < 1 \Rightarrow \frac{r_{\perp}}{z} = \tan \theta < 1$. Ceci justifie généralement le fait de remplacer, au premier ordre, les fonctions trigonométriques sinus et tangente par l'angle.

Remarque : il y a un abus de langage à définir k_{\perp} comme une « fréquence spatiale ». En réalité, on a :

$$k_{\perp} = 2\pi \sigma_{\perp}$$

Où σ_{\perp} est effectivement la fréquence spatiale, ce qui fait le parallèle avec la relation entre la pulsation ω et la fréquence ν dans le domaine temporel :

$$\omega = 2\pi \nu$$

5.3 Onde transmise et plan objet

Ce formalisme de la diffraction en champ lointain de l'onde transmise par un objet est valide quelle que soit l'hypothèse sur l'objet : « 3D » en diffusion simple ou dans l'« approximation de projection ». La question est finalement de savoir quelle information sur l'objet on peut avoir en connaissant l'amplitude complexe transmise par celui-ci. C'est dans ce sens qu'intervient l'approximation de projection. Il faut bien conserver à l'esprit que le principe de la microscopie est de connaître l'objet à partir de son « image », un terme qui inclut à peu près tout ce que l'on veut. Un des avantages de l'imagerie par diffraction, dans l'approximation de projection, est que *l'image représente la transmittance complexe de l'objet*.

La relation (5.2) issue de l'équation de la diffraction permet d'obtenir une relation de Fourier à deux dimensions, avec pour paire de Fourier $r_{\perp}' \Leftrightarrow k_{\perp}$. La distribution du champ transverse dans le plan de détection correspond à la transformation de Fourier de l'onde complexe transmise par l'objet, sous réserve que l'on respecte les hypothèses de détection en champ lointain sous une faible ouverture numérique : le régime de diffraction de Fraunhofer.

Intéressons-nous aux propriétés de l'onde transmise par l'objet, nommée aussi « exit wave ». Dans l'approximation de projection, l'onde transmise représente la transmittance à deux dimensions de l'objet, c'est-à-dire la projection de l'objet sur un plan. Sous cette hypothèse, l'objet est considéré seulement en deux dimensions avec une épaisseur négligeable. Les objets ayant une épaisseur finie, l'hypothèse de projection reste valide si l'on peut négliger la diffraction de l'onde incidente dans l'objet. Par exemple, considérons un objet constitué de deux plans, un plan d'entrée et un plan de sortie, séparés d'une épaisseur e . L'approximation de projection est valide si la diffraction du plan d'entrée dans le plan de sortie est négligeable. Il doit en être de même pour la « diffraction » du plan de sortie sur le plan d'entrée et, plus généralement, pour la « diffraction » de tous les éléments de l'objet sur un plan interne à l'objet et perpendiculaire à la direction de propagation. La diffraction dans l'objet est associée à la représentation de la sphère d'Ewald (voir annexe Figure 2). La quantité $q_z = (\kappa - k_0)$ (Figure 5.2) est la représentation dans l'espace réciproque de l'épaisseur de l'objet – le traitement rigoureux de la représentation en trois dimensions s'établit avec le modèle de la diffraction dans l'approximation de Born. Introduisons la notion de speckle, tache caractéristique constituant la figure de diffraction et associée à la cohérence et à l'interférence entre tous les points d'un objet. La taille des speckles est inversement proportionnelle aux dimensions de l'objet. Dans cette description, on considère l'approximation de projection valide quand la taille du speckle suivant la direction q_z est suffisamment importante pour ne pas influencer la distribution de la diffraction suivant les coordonnées transverses. Pour un objet d'épaisseur nulle, la distribution suivant q_z est uniforme.

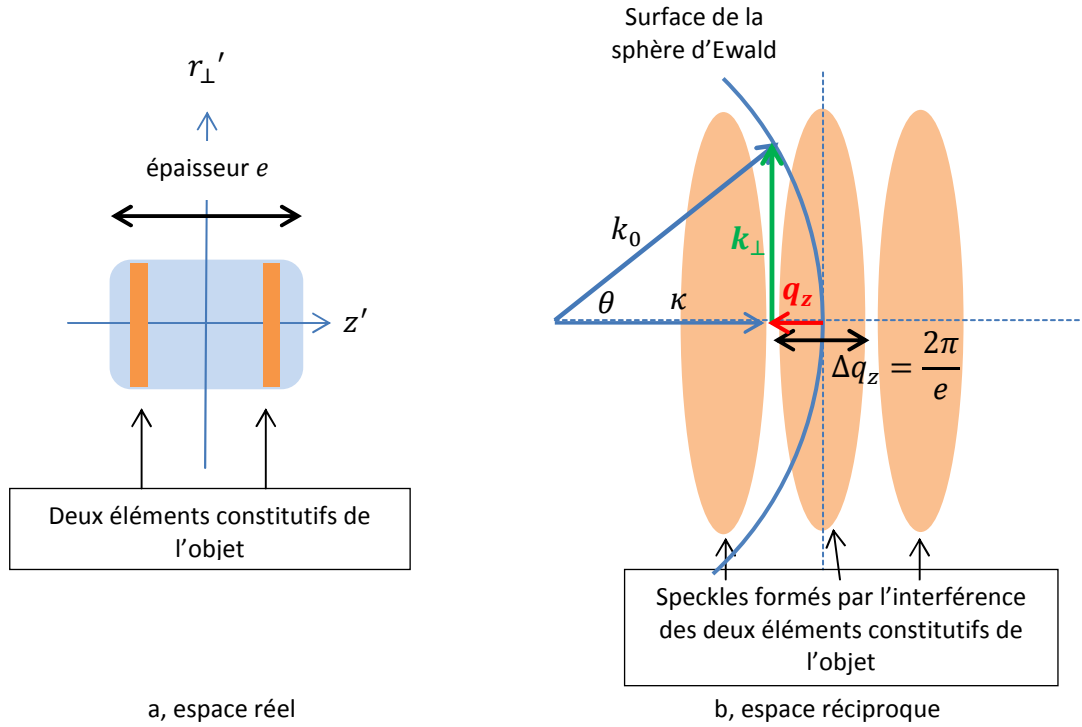


Figure 5.2 : illustration de l'effet d'épaisseur d'un objet avec la notion de speckle en trois dimensions. Ici, le signal diffracté pour l'ouverture θ est nul car il correspond à un zéro d'intensité dans l'interfrange créé par les deux éléments de l'objet.

La Figure 5.2 illustre l'effet d'épaisseur d'un objet avec une représentation en trois dimensions de l'espace réciproque. Les deux éléments qui constituent l'objet sont équivalents à deux fentes d'Young suivant la profondeur de l'objet et ils forment un interférogramme suivant la direction q_z avec une taille de speckle inversement proportionnelle à l'épaisseur e de l'objet. Il faut limiter l'étendue du signal de diffraction à exploiter pour éviter l'influence de l'épaisseur de l'objet, et rester dans l'approximation de projection. Ceci peut s'exprimer mathématiquement par :

$$\frac{\Delta q_z}{4} > |q_{z_{max}}| = |k_0(\cos \theta_{max} - 1)| \quad (5.3)$$

Avec $\Delta q_z = \frac{2\pi}{e}$ la taille du speckle et $q_{z_{max}}$ fonction de θ_{max} , l'ouverture maximum de diffraction qui limite l'étendue du signal considéré. Le critère $\frac{\Delta q_z}{4}$ provient de [81]. En utilisant le développement au premier ordre de κ dans le cadre de l'approximation paraxiale (voir annexe), on obtient :

$$|q_{z_{max}}| = \frac{k_{\perp_{max}}^2}{2 k_0}$$

La fréquence spatiale transverse maximum $k_{\perp max}$ est fonction de la résolution d que l'on souhaite obtenir sur l'image reconstruite de l'objet : $k_{\perp max} = \frac{\pi}{d}$. On obtient une relation entre l'épaisseur de l'objet, la longueur d'onde et la résolution de l'image :

$$e < \frac{2 d^2}{\lambda} \quad (5.4)$$

Le terme $\frac{2 d^2}{\lambda}$ exprime une profondeur de champ ou « depth of focus » (DOF) qui s'écrit aussi en fonction de l'angle de diffraction θ_{max} (5.3) :

$$DOF = \frac{2 \lambda}{\theta_{max}^2}$$

La profondeur de champ doit être supérieure à l'épaisseur de l'objet pour valider l'approximation de projection (Figure 5.3 (a)). Dans ce cas, l'onde transmise peut être associée à la projection de l'objet sur un plan unique. Dans le cas contraire (Figure 5.3 (b)), le plan objet n'est pas unique et l'image de ce plan présentera un défaut de mise au point (dé-focus). La mise au point sur différents plans pourra être effectuée dans la profondeur de l'objet par propagation (avec, par exemple, le propagateur de Fresnel) de l'onde transmise. Il faut noter que la profondeur de champ est associée à la « résolution longitudinale », de telle sorte que l'approximation de projection implique de ne pas résoudre l'objet dans son épaisseur.

Dans le cas où la profondeur de champ est inférieure à l'épaisseur de l'objet, la reconstruction ne sera pas unique : il y a indétermination du plan de reconstruction. La non-unicité du plan objet est un problème pour la reconstruction avec un algorithme itératif. La sélection du plan objet reconstruit peut s'effectuer au moyen d'une contrainte sur le support de l'objet comme cela est illustré dans [6]. Le support (voir section 7.1) de l'objet est la contrainte qui permet d'associer une phase unique à l'intensité diffractée. On mesure dans le plan de détection l'éclairement ou la fluence F qui est proportionnelle au module carré de la transformée de Fourier des distributions du champ électromagnétique au niveau des plans objets p_1 et p_2 :

$$F \propto |\mathcal{F}\{p_1\}|^2 = |\mathcal{F}\{p_2\}|^2 \quad (5.5)$$

On reconstruit les phases φ_1 et φ_2 avec les contraintes de support sup_1 et sup_2 associées aux plans p_1 et p_2 (Figure 5.3 (b)). Ce qui donne :

$$p_1 = \mathcal{F}\{\sqrt{F} e^{i\varphi_1}\}$$

Et

$$p_2 = \mathcal{F}\{\sqrt{F} e^{i\varphi_2}\}$$

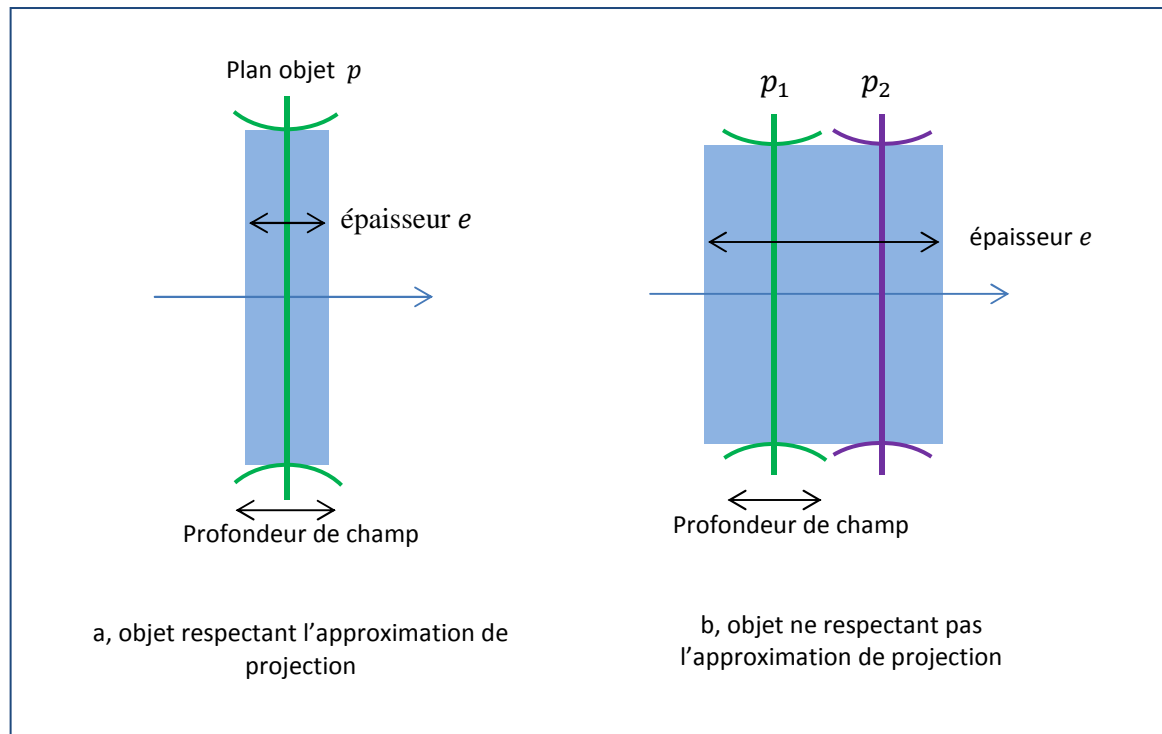


Figure 5.3 : illustration de la profondeur de champ.

Le support dans un plan donné peut-être déterminé expérimentalement par rapport à la construction de l'objet, par exemple en disposant un masque juxtaposé à l'objet [82]. Si aucun support fixe n'est défini, il existe des procédures algorithmiques comme le « Shinkwrap » [83] qui permettent de faire évoluer le support pour qu'il se réduise à la surface la plus petite possible, ce qui permet de faire correspondre le plan objet avec l'objet. Si l'épaisseur de l'objet est plus importante que la profondeur de champ, la procédure peut avoir des difficultés à sélectionner un et un seul plan objet. A partir de (5.5), on a :

$$\mathcal{F}\{F\} = p_1 \otimes p_1 = p_2 \otimes p_2 \quad (5.6)$$

Cette relation exprime que l'autocorrélation des plans objet est identique. Elle souligne le problème d'unicité du plan de reconstruction quand la phase est perdue. A partir de la relation (5.6), on remarque que dans un problème holographique, la reconstruction effectuée dans le plan de la référence (voir section 7.2) est unique puisque identique à tous les autres plans.

Dans les expériences sur la diffraction et sur l'holographie présentées dans la suite, on supposera valide l'hypothèse de la faible ouverture numérique de détection de la figure de diffraction (approximation paraxiale) et l'hypothèse de l'objet 2D compatible avec l'approximation de projection.

6. Conditions de l'imagerie sans lentille

6.1 Détection et échantillonnage

6.1.1 Enregistrer la figure de diffraction

La propriété d'intégration temporelle du détecteur, généralement présente dans tous les systèmes de détection optique, fait perdre toute information « temporelle », notamment la phase de la fonction complexe qui décrit la distribution du champ électromagnétique dans le plan de détection. C'est en cela que consiste le problème de la phase qui caractérise l'imagerie sans lentille. Le détecteur CCD placé dans le plan de détection est sensible au flux moyen du vecteur de Poynting pendant la durée de l'exposition. En conséquence, seule la distribution transverse d'éclairement du champ électromagnétique, intégrée sur le temps d'exposition, est enregistrée. L'éclairement pendant le temps d'exposition est appelé « exposition » en terme photométrique avec pour unité des Joules/m² ou nombre de photons/m². Dans la suite, on utilisera le terme anglo-saxon de « fluence ». En régime de diffraction de Fraunhofer, pour une faible ouverture numérique de détection (approximation paraxiale), on exprime la fluence à partir de la relation (5.2) (sans les constantes) :

$$F(r_{\perp}) = |\psi(r_{\perp})|^2 = |\Psi(k_{\perp})|^2 = \left| \mathcal{F}\{t(r'_{\perp})\}_{r'_{\perp} \rightarrow k_{\perp}} \right|^2 \quad (6.1.a)$$

Cette relation décrit la figure de diffraction, au moyen du facteur d'homothétie $\frac{k_0}{z}$ (attention : les constantes de normalisation sont omises), avec $r_{\perp} = k_{\perp} \frac{z}{k_0}$ la coordonnée transverse du plan de détection et $t(r'_{\perp})$ la transmittance de l'échantillon exprimée dans l'espace réel.

La relation (6.1.a) exprime l'« intensité » issue de la diffraction d'une onde monochromatique ω_0 avec $k_0 = \frac{\omega_0}{c}$. On peut écrire la distribution spatiale associée (avec $k_{\perp} = \frac{\omega_0 r_{\perp}}{zc}$) :

$$\psi_{\omega_0}(r_{\perp}) = \Psi_{\omega_0}(k_{\perp}) = \mathcal{F}\{t_{\omega_0}(r'_{\perp})\} \quad (6.1.b)$$

Considérons maintenant une illumination « spectralement large ». Si on illumine l'échantillon, la transmittance de l'objet en fonction du temps s'exprime comme la transformée de Fourier des différentes composantes spectrales transmises par l'objet :

$$t(r'_{\perp}, t) = \int t_{\omega}(r'_{\perp}) e^{i\omega t} d\omega$$

Le champ diffracté pour chaque composante spectrale $t_{\omega}(r'_{\perp})$ est (avec $k_{\perp} = \frac{\omega r_{\perp}}{zc}$) :

$$\psi_{\omega}(r_{\perp}) = \Psi_{\omega}(k_{\perp}) = \mathcal{F}\{t_{\omega}(r'_{\perp})\}$$

Ce qui permet d'obtenir le champ électromagnétique diffracté en fonction de l'espace et du temps :

$$\psi(r_{\perp}, t) = \int \psi_{\omega}(r_{\perp}) e^{i\omega t} d\omega$$

Finalement, la fluence sur le détecteur est donnée par l'intégration temporelle du flux moyen du vecteur de Poynting (toujours sans les constantes) :

$$F(r_{\perp}) = \int |\psi(r_{\perp}, t)|^2 dt$$

Et donc :

$$F(r_{\perp}) = \int |\psi_{\omega}(r_{\perp})|^2 d\omega = \int F_{\omega}(r_{\perp}) d\omega$$

En introduisant la distribution spectrale $s(\omega)$ (à valeur complexe) de l'impulsion qui illumine l'objet, on peut exprimer :

$$F(r_{\perp}) = \int |s(\omega)|^2 |\psi_{\omega}(r_{\perp})|^2 d\omega = \int |s(\omega)|^2 F_{\omega}(r_{\perp}) d\omega$$

La distribution de la figure de diffraction correspond à la « somme » des intensités diffractées par chaque composante spectrale. Il est très important de noter que chaque distribution $F_{\omega}(r_{\perp})$ est différente. Cette propriété correspond au phénomène de dispersion spectrale et est à la base des considérations sur la cohérence longitudinale. Dans la suite de ce chapitre, on considérera seulement le cas monochromatique.

6.1.2 Echantillonner la figure de diffraction

Le capteur CCD détecte et échantillonne la figure de diffraction qui est ensuite numérisée et enregistrée sur support numérique. La matrice de pixels du CCD correspond au plan de détection. Le pas d'échantillonnage est équivalent à la taille d'un pixel Δ_k . La [Figure 6.1](#) présente la relation entre les variables des 4 différents espaces associés à l'expérience d'imagerie. Le plan objet et le plan de détection sont les espaces « réels » de l'expérience, les deux autres sont des espaces numériques.

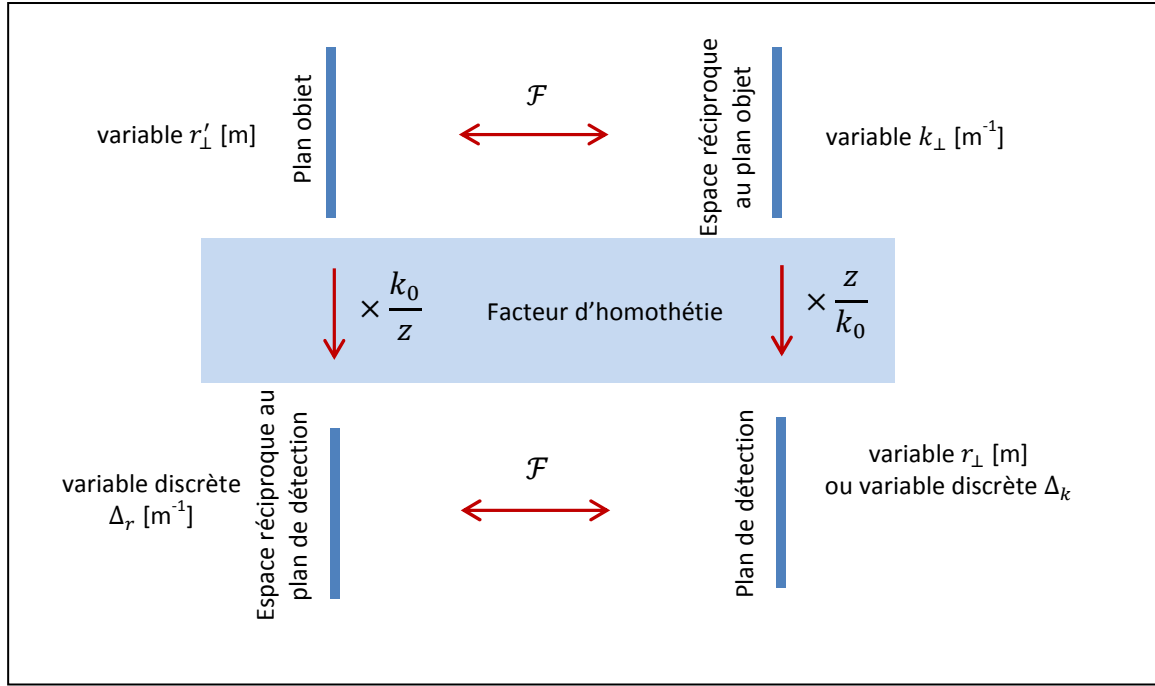


Figure 6.1 : définition des différents espaces dans une expérience de diffraction.

Supposons que le CCD contienne $N \times N$ pixels carrés, on peut introduire la transformée de Fourier discrète de la relation (6.1) :

$$F_{\Delta_k}(p; q) = |\psi_{\Delta_k}(p; q)|^2 = \left| \sum_{n,m}^{N-1} t_{\Delta_r}(n; m) e^{-i \frac{(pn+qm)}{N}} \right|^2 \quad (6.2)$$

La fonction discrétisée $F_{\Delta_k}(p; q)$ représente le signal détecté par une matrice à deux dimensions de $N \times N$ pixels indexés par p et q . La fonction discrétisée $t_{\Delta_r}(n; m)$ représente la transmittance de l'échantillon par une matrice à deux dimensions de $N \times N$ pixels indexés par n et m .

En effectuant la transformée de Fourier de la figure de diffraction, on obtient l'autocorrélation de la transmittance de l'échantillon. Dans le domaine discret, il vient :

$$A_{\Delta_r}(n; m) = (t \otimes t)_{\Delta_r}(n; m) = \sum_{p,q}^{N-1} F_{\Delta_k}(p; q) e^{i \frac{(pn+qm)}{N}} \quad (6.3)$$

La fonction discrétisée $A_{\Delta_r}(n; m)$ est représentée par une matrice de dimension identique à $t_{\Delta_r}(n; m)$. Il est à noter que $F_{\Delta_k}(p; q)$ est une fonction réelle, donc $A_{\Delta_r}(n; m)$ est une matrice complexe Hermitienne à deux dimensions. La relation entre la taille des pixels Δ_k du CCD et celle des pixels de la représentation discrète de la transmittance ou de l'autocorrélation de la transmittance Δ_r est donnée par :

$$\Delta_k = \frac{2\pi}{N \Delta_r} \quad (6.4)$$

Considérons la transmittance d'un objet de dimension $a \times a$. Sa représentation discrète est la fonction représentée par $n \times n$ pixels de valeur non nulle dans une représentation matricielle de $N \times N$ pixels. En considérant le facteur d'homothétie $\frac{k_0}{z}$, on a alors :

$$a \frac{k_0}{z} = n \Delta_r \quad (6.5)$$

Ce qui permet d'établir la relation entre les paramètres physiques du problème et la représentation discrète des fonctions.

6.1.3 Notion de sur-échantillonnage linéaire

La notion de sur-échantillonnage est essentielle dans un problème de reconstruction de la phase par un algorithme itératif. Cette question sera abordée dans le chapitre suivant. Intéressons-nous pour le moment à la détection de la figure de diffraction dans un problème d'imagerie sans lentille.

On a le champ de l'image ou « field of view » (FOV) correspondant aux N pixels de l'image dans laquelle la taille de l'objet est définie par n pixels. Le sur-échantillonnage linéaire est déterminé comme étant le rapport entre la taille de l'image (N de pixels) et la taille de l'objet (n de pixels) :

$$O = \frac{N}{n}$$

Avec la relation (6.4), on peut exprimer la taille du pixel dans l'espace objet en fonction du paramètre de sur-échantillonnage linéaire O et du nombre de pixels de l'image N :

$$a \frac{k_0}{z} = \frac{N}{O} \Delta_r$$

On obtient également, au moyen de la relation (6.3), la taille du pixel du détecteur CCD :

$$\Delta_k = \frac{\lambda z}{O a} \quad (6.6)$$

Dans une perspective de détection, l'échantillonnage de la figure de diffraction doit s'effectuer en respectant le théorème d'échantillonnage [84, 85]. En accord avec ce théorème, le pas d'échantillonnage Δ_k de la figure de diffraction doit respecter le critère de Nyquist, c'est-à-dire :

$$\Delta_k \leq \frac{2 \pi}{2 f_{max}}$$

Où f_{max} représente la fréquence maximum contenue dans la figure de diffraction. En accord avec la relation (6.3), la transformée de Fourier de la figure de diffraction est donnée par l'autocorrélation de l'objet. Donc, dans l'espace réciproque de la figure de diffraction, f_{max} est donnée par les dimensions de l'autocorrélation de l'objet. La propriété de l'autocorrélation d'une fonction est d'avoir une dimension linéaire équivalente au double de celle de la fonction elle-même. Donc si la fonction est représentée par $n \times n$ pixels de valeur non nulle dans une

représentation matricielle de $N \times N$ pixels, le signal d'autocorrélation aura une taille de $2n \times 2n$. Alors :

$$f_{max} = n \Delta_r$$

Et en utilisant la relation (6.4):

$$\Delta_k \leq \frac{2 \pi}{2 n \Delta_r} = \frac{\lambda z}{2 a}$$

Donc, si le paramètre de sur-échantillonnage linéaire satisfait $O \geq 2$, aucune information ne sera perdue pendant la détection de la figure de diffraction en accord avec le théorème d'échantillonnage. Il est important de savoir que, pour $O = 2$, la figure de diffraction n'est pas à proprement parler sur-échantillonnée selon Shannon, mais exactement échantillonnée. Le terme de sur-échantillonnage se définit par rapport à l'échantillonnage de Bragg correspondant à $O = 1$ en cristallographie. Il faut noter que, pour un paramètre de sur-échantillonnage linéaire supérieur à un, la représentation de $T_{\Delta_r}(n; m)$ après reconstruction est entourée de pixels de valeur nulle : c'est le « zéro padding » en traitement du signal. La reconstruction, donc l'objet, est à support fini, condition essentielle pour pouvoir définir sa transformée de Fourier (fonction de carré sommable). Cette zone de pixels nuls sera utilisée pour résoudre le problème de la phase.

6.1.4 Échantillonnage par fenêtre rectangulaire : le capteur CCD

Je précise ici quelques propriétés physiques liées à la détection et à l'échantillonnage d'un signal analogique en vue de sa numérisation. Le capteur CCD échantillonne du fait qu'il détecte et intègre le signal localement sur chaque pixel : il est considéré comme un *opérateur d'échantillonnage par fenêtre rectangulaire et intégration à l'aide d'un filtre moyennneur* [86] décrit par la relation suivante (pour une dimension) :

$$F_{\Delta_k}(p) = \sum_{p=1}^N \delta(r_{\perp} - p \Delta_k) \left[F(r_{\perp}) * \text{rect} \left(\frac{r_{\perp}}{\Delta_k} \right) \right]$$

La fonction rectangle $\text{rect} \left(\frac{r_{\perp}}{\Delta_k} \right)$ de largeur Δ_k est analogue à la taille d'un pixel. En considérant les pixels adjacents, la périodicité des pixels est identique à leur taille. L'effet d'intégration du signal sur un pixel est exprimé par la convolution de la distribution d'intensité dans le plan de détection du CCD par la fonction rectangle car :

$$\int_{r_0 - \Delta_k/2}^{r_0 + \Delta_k/2} F(r_{\perp}) d r_{\perp} = \int_{-\infty}^{+\infty} F(r_{\perp}) \text{rect} \left(\frac{r_{\perp} - r_0}{\Delta_k} \right) d r_{\perp} = \left[F(r_{\perp}) * \text{rect} \left(\frac{r_{\perp}}{\Delta_k} \right) \right]_{r_0}$$

Pour analyser les différentes propriétés de l'échantillonnage, passons dans l'espace réciproque de variable x , espace de reconstruction de l'objet. On a :

$$\mathcal{F}\{F_{\Delta_k}(p)\}(x) = \sum_{p=1}^N \delta \left(x - \frac{p}{\Delta_k} \right) * \left[\mathcal{F}\{F\}(x) \frac{\sin(x/\Delta_k)}{x/\Delta_k} \right]$$

Cette relation souligne deux caractéristiques principales liées à la détection par un CCD. La première concerne le repliement de spectre si la taille d'un pixel Δ_k ne respecte pas le théorème d'échantillonnage, comme précisé au paragraphe précédent. La deuxième concerne une perte d'information sur l'autocorrélation de l'objet $\mathcal{F}\{F\}(x)$ à cause d'une multiplication par un sinus-cardinal, résultat de l'intégration locale du signal diffracté sur chaque pixel. Cet effet a pour conséquences de limiter la possibilité de reconstruction et de dégrader l'image reconstruite. Ce problème est explicité dans Song et al. [87].

6.2 Cohérence en diffraction

Une figure de diffraction peut se représenter comme une figure d'interférence des ondes émises par toutes les sources secondaires qui constituent l'onde transmise par l'objet (principe de Huygens). Pour pouvoir discerner les speckles qui forment la figure de diffraction (nécessaire à son inversion), les sources secondaires doivent être cohérentes entre-elles (voir annexe).

6.2.1 Autocorrélation de l'objet et cohérence

Les propriétés de cohérence de l'illumination d'un objet sont présentées ici en exprimant l'autocorrélation, c.à d. la transformation de Fourier de la figure de diffraction. Les besoins en cohérence longitudinale ou transversale, pour enregistrer une figure de diffraction, sont relatifs à la propriété d'intégration temporelle pendant le processus de détection (voir section 6.1.1). Pour une illumination « spectralement large », la fluence enregistrée par le détecteur s'écrit :

$$F(r_{\perp}) = \int |\psi_{\omega}(r_{\perp})|^2 d\omega = \int F_{\omega}(r_{\perp}) d\omega$$

Où $F_{\omega}(r_{\perp})$ représente une distribution spatiale différente en r_{\perp} pour chaque composante spectrale ω qui respecte (6.1.b) :

$$\psi_{\omega}(r_{\perp}) = \Psi\left(k_{\perp} = r_{\perp} \frac{\omega}{zC}\right)$$

Je veux effectuer la transformation de Fourier inverse de la figure de diffraction $F(r_{\perp})$ dans la variable r_{\perp} pour d'obtenir l'autocorrélation de l'objet dans l'espace numérique de variable R . En accord avec la Figure 6.1, on a :

$$\mathcal{F}\{\psi_{\omega}(r_{\perp})\}_{r_{\perp} \rightarrow R} = \mathcal{F}\left\{\Psi\left(r_{\perp} \frac{\omega}{zC}\right)\right\}_{r_{\perp} \rightarrow R} = \frac{zC}{\omega} t_{\omega}\left(R \frac{zC}{\omega}\right)$$

On peut effectuer, en considérant les propriétés d'homothétie de la transformation de Fourier (voir annexe), la transformation :

$$\mathcal{F}\left\{\Psi\left(r_{\perp} \frac{\omega}{zC}\right)\right\}_{r_{\perp} \rightarrow R} = \frac{zC}{\omega} t_{\omega}\left(R \frac{zC}{\omega}\right)$$

Où t_{ω} représente la transmittance de l'objet (2D) dans les coordonnées de l'espace objet noté $X = R \frac{zC}{\omega}$. Les constantes multiplicatives seront omises par la suite.

Finalement, la transformation de Fourier de $F(r_{\perp})$ donne l'autocorrélation de la transmittance de l'objet, notée $A(R)$:

$$A(R) = \mathcal{F}\{F(r_{\perp})\}_{r_{\perp} \rightarrow R} = \int d\omega (t_{\omega} \otimes t_{\omega})\left(R \frac{zC}{\omega}\right)$$

Et en développant le produit de corrélation, il vient :

$$A(R) = \int d\omega \int dX' t_\omega(X') t_\omega^*(X' - X)$$

Maintenant, considérons $t_\omega(X)$ comme l'onde transmise par l'objet $o_\omega(X)$ illuminé par une onde électromagnétique $E_\omega(X)$: dans l'approximation de projection, $t_\omega = o_\omega E_\omega$. Dans un cas général, la transmission de l'objet est fonction de la longueur d'onde (voir section 5.1).

On écrit :

$$A(R) = \int d\omega \int dX' o_\omega(X') o_\omega^*(X' - X) E_\omega(X') E_\omega^*(X' - X)$$

Maintenant, introduisons l'espérance mathématique d'obtenir l'autocorrélation de l'objet $\langle A(R) \rangle$ comme :

$$\langle A(R) \rangle = \int d\omega \int dX' o_\omega(X') o_\omega^*(X' - X) \langle E_\omega(X') E_\omega^*(X' - X) \rangle$$

Ce qui permet d'introduire la « cross-spectral density function » (voir annexe):

$$W_\omega(X', X' - X) = \langle E_\omega(X') E_\omega^*(X' - X) \rangle$$

$W_\omega(X', X' - X)$ représente le degré de cohérence transversale entre les points de l'espace objet X' et $X' - X$ pour chaque composante spectrale ω . La fonction de cohérence spectrale s'exprime aussi au moyen de la densité spectrale de puissance $|s(\omega)|^2$:

$$W_\omega(X', X' - X) = |s(\omega)|^2 \mu_\omega(X', X' - X)$$

On obtient finalement la reconstruction de l'autocorrélation de l'objet o après transformation de Fourier de la figure de diffraction enregistrée en illuminant cet objet par une impulsion de distribution spectrale $s(\omega)$ et de degré de cohérence spectrale $\mu_\omega(X', X' - X)$:

$$\langle A(R) \rangle = \int d\omega |s(\omega)|^2 \int dX' o_\omega(X') o_\omega^*(X' - X) \mu_\omega(X', X' - X) \quad (6.7)$$

Cette relation permet d'estimer les propriétés d'inversion d'une figure de diffraction en fonction du degré de cohérence de l'illumination.

6.2.2 Etude de cas

- 1) Pour une onde monochromatique (longitudinalement cohérente), $|s(\omega)|^2 = \delta(\omega - \omega_0)$, la relation (6.7) devient :

$$\langle A(R) \rangle = \int dX' o_{\omega_0}(X') o_{\omega_0}^*(X' - X) \mu_{\omega_0}(X', X' - X)$$

Dans un cas général, chaque valeur en $X = R \frac{zc}{\omega_0}$ de l'autocorrélation correspond à l'intégration de $o_{\omega_0}(X') o_{\omega_0}^*(X' - X)$ pour tout X' pondéré par la valeur du degré de cohérence μ_{ω_0} .

Quand l'onde incidente sur l'objet est totalement cohérente, $\mu_{\omega_0} = 1$ quelles que soient les positions transverses X' et $X' - X$, et on obtient simplement l'autocorrélation de l'objet :

$$\langle A \rangle = A = (o \otimes o)$$

- 2) Pour une figure de diffraction enregistrée avec une onde totalement incohérente, le degré de cohérence spectrale a pour valeur zéro sauf pour deux points identiques, mathématiquement représentés par une distribution de Dirac : $\mu_\omega = \delta(X)$. Il vient :

$$\langle A(R) \rangle = \delta(R) \int d\omega |s(\omega)|^2 \int dX' |o_\omega(X')|^2$$

La reconstruction est représentée par une distribution de Dirac pondérée par le flux transmis par l'échantillon. Dans ce cas, la figure de diffraction associée ne présente aucune structure spatiale, elle est complètement uniforme.

- 3) Pour le cas spatialement cohérent, on a :

$$\langle A(R) \rangle = \int d\omega |s(\omega)|^2 \int dX' o_\omega(X') o_\omega^*(X' - X)$$

On peut écrire :

$$\langle A(R) \rangle = \int d\omega |s(\omega)|^2 A_\omega \left(X = R \frac{zC}{\omega} \right)$$

Dans ce cas, la reconstruction représente la « somme » des figure d'autocorrélation (identiques si l'objet est indépendant de la longueur d'onde) qui ont subi une homothétie $\frac{zC}{\omega}$.

Par exemple, si $A(X) = \delta(X - X_1)$, on a :

$$\langle A(R) \rangle = \left| s \left(R \frac{zC}{X_1} \right) \right|^2$$

Avec un spectre centré sur ω_0 de largeur $\Delta\omega$ et $A(R)$ centré sur R_1 : $\omega_0 = R_1 \frac{zC}{X_1}$ et $\Delta\omega = \Delta R \frac{zC}{X_1}$

On obtient : $\frac{\Delta R}{R_1} = \frac{\Delta\omega}{\omega_0}$

La conséquence de cette dernière expression est qu'un point de l'autocorrélation situé en R_1 a un élargissement proportionnel à la largeur spectrale. Donc, en quelque sorte, la résolution ΔR de ce point en R_1 est limitée par la largeur spectrale et est donnée par $\Delta R = R_1 \frac{\Delta\omega}{\omega_0}$. Plus le point est éloigné de l'origine, plus la résolution sera limitée. Considérons un objet de dimension a , la résolution minimum des points situés aux extrémités de l'autocorrélation de l'objet est :

$$\Delta R = a \frac{\Delta\omega}{\omega_0} = a \frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} \quad (6.8)$$

Si on associe cette résolution à celle souhaitée sur la reconstruction de l'objet, on obtient le besoin en cohérence longitudinale en fonction de la taille de l'objet. Cela permet aussi de définir

la taille de la cellule élémentaire de cohérence longitudinale a dans le plan objet qui a permis de construire le speckle situé à une distance $L = \frac{\lambda_0 z}{\Delta R}$ du centre de la figure de diffraction [78]:

$$a = \frac{\lambda_0^2 z}{\Delta \lambda L}$$

4) Exemple de l'interférogramme d'Young.

Pour un interférogramme d'Young, avec un objet d'écrit mathématiquement par $o(X) = \delta\left(X - \frac{X_1}{2}\right) + \delta\left(X + \frac{X_1}{2}\right)$, on a :

$$\langle A(R) \rangle = \int d\omega |s(\omega)|^2 \left[2 \delta(X) + \delta(X - X_1) \mu_\omega\left(\frac{X_1}{2}, -\frac{X_1}{2}\right) + \delta(X + X_1) \mu_\omega^*\left(-\frac{X_1}{2}, \frac{X_1}{2}\right) \right]$$

Que l'on peut écrire en utilisant le changement de variables $\delta(X - X_1) = \delta\left(R \frac{zC}{X_1} - \omega\right)$:

$$\langle A(R) \rangle = \int d\omega |s(\omega)|^2 \left[2 \delta(X) + \delta\left(R \frac{zC}{X_1} - \omega\right) \mu_{X_1}(\omega) + \delta\left(R \frac{zC}{X_1} + \omega\right) \mu_{X_1}^*(\omega) \right]$$

Ce qui donne :

$$\langle A(R) \rangle = 2 \delta\left(R \frac{zC}{\omega}\right) \int d\omega |s(\omega)|^2 + \left|s\left(R \frac{zC}{X_1}\right)\right|^2 \mu_{X_1}\left(R \frac{zC}{X_1}\right) + \left|s\left(-R \frac{zC}{X_1}\right)\right|^2 \mu_{X_1}^*\left(-R \frac{zC}{X_1}\right)$$

Avec $\int d\omega |s(\omega)|^2 = I_0$, on peut encore écrire cela sous la forme :

$$\langle A(R) \rangle = 2 I_0 \delta\left(R \frac{zC}{\omega}\right) + W_{X_1}\left(R \frac{zC}{X_1}\right) + W_{X_1}^*\left(-R \frac{zC}{X_1}\right)$$

La transformée de Fourier d'un interférogramme d'Young permet d'obtenir de l'information sur la densité spectrale de l'impulsion et le degré de cohérence. On peut obtenir ce dernier à partir de l'intégration des deux derniers membres de l'expression précédente [35]. On peut écrire :

$$\frac{\left| \int dR \left|s\left(R \frac{zC}{X_1}\right)\right|^2 \mu_{X_1}\left(R \frac{zC}{X_1}\right) \right|}{2 I_0 \int \delta\left(R \frac{zC}{\omega}\right) dR} = \frac{\left| \int d\omega |s(\omega)|^2 \mu_{X_1}(\omega) \right|}{2 I_0} = \frac{|\Gamma_{X_1}(\tau = 0)|}{2 I_0} = \frac{|\gamma_{X_1}(\tau = 0)|}{2}$$

Avec les relations entre variables : $R \frac{zC}{X_1} = \omega$ et $r \frac{X_1}{zC} = \tau$, où r représente la variable spatiale de l'interférogramme.

Remarque : le degré de cohérence $|\gamma_{X_1}(\tau = 0)|$ correspond à la visibilité des franges de l'interférogramme en son centre $r = 0$. De plus, pour un spectre centré sur ω_0 , on exprime l'interfrange $i = \frac{2\pi c z}{\omega_0 X_1} = \frac{\lambda_0 z}{X_1}$.

7. Construction des images

La première partie de ce chapitre introduit le problème de la phase « perdue » (non mesurée directement) pendant l'acquisition de la figure de diffraction et l'utilisation d'un algorithme itératif de reconstruction. Cette partie ne sera pas exhaustive, ce sujet étant largement présenté dans des travaux de thèse [88, 89] et des publications sur l'imagerie par diffraction cohérente (CDI). La seconde présente le principe de l'holographie par transformée de Fourier (FTH).

7.1 Problème de la phase et algorithme de reconstruction

7.1.1 Le problème de la phase et l'oversampling

Comme indiqué précédemment, l'expérience d'imagerie sans lentille ne permet pas de détecter la phase du champ électromagnétique diffracté : on enregistre seulement l'information sur l'amplitude. La problématique de la reconstruction est donc de retrouver l'objet sans l'information sur la phase dans l'espace réciproque. Le principe réside dans un échantillonnage suffisant des données de diffraction. Contrairement à un problème cristallographique où les seuls échantillons connus correspondent à un échantillonnage à la fréquence de Bragg, la diffraction sur un objet unique et isolé permet d'obtenir une figure de diffraction continue qui peut être échantillonnée finement. C'est la dimension finie de l'objet (notion de support de l'objet), associée à un échantillonnage suffisant de la figure de diffraction, qui est à la base de la résolution du problème de la phase. C'est l'idée développée par Sayre et Bates [90, 91] basée sur la démonstration théorique de l'unicité de la phase dans un problème de dimension supérieure à un (de nombreuses références sur ce sujet sont données dans [92]). En effectuant un échantillonnage linéaire de la figure de diffraction à la fréquence de Nyquist, avec une périodicité d'échantillonnage double de celle de Bragg, on ne perd pas d'information sur la détection de l'amplitude diffractée. De plus, une solution unique peut être trouvée pour une fonction contrainte par un support fini.

A partir de ces principes, Miao, Sayre et Chapman ont présenté une autre explication de la résolution du problème de la phase par l'oversampling [92]. Par exemple, si on réduit le problème à une dimension, le signal est échantillonné sur un vecteur de N pixels. Dans le cas d'une transmittance réelle, le nombre de variables inconnues (ou à déterminer) est égal à N (les N pixels de l'objet), alors que, du fait de la centro-symétrie du module de la transformée de Fourier, on dispose seulement de $N/2$ équations indépendantes, correspondant aux $N/2$ pixels d'information indépendants sur la CCD. Le problème n'est pas soluble : c'est la conséquence de la perte de la phase. Le sur-échantillonnage linéaire ($O = 2$) permet d'obtenir 2 fois $N/2$ équations indépendantes. L'objet lui reste codé sur N pixels (on a donc toujours N inconnues). Le nombre d'équations est maintenant identique au nombre d'inconnues et le problème peut théoriquement être résolu. Pour un problème à une dimension, le paramètre de sur-échantillonnage linéaire doit être au moins de deux. En suivant le raisonnement ci-dessus, cela n'est pas nécessaire pour un problème à dimension multiple. La condition d'oversampling est satisfaite si le nombre de pixels nuls autour de l'objet est au moins identique au nombre de pixels

non-nuls qui définissent l'objet [93]. Il y a une distinction à faire entre la notion de sur-échantillonnage ou oversampling et celle de sur-échantillonnage linéaire.

7.1.2 Reconstruction de la phase par algorithme itératif

L'imagerie par diffraction cohérente repose sur une reconstruction de la phase associée à l'amplitude diffractée. La phase est reconstruite par un algorithme numérique itératif appelé algorithme de « phase retrieval ». Ce type d'algorithme reconstruit de façon simultanée la phase dans l'espace réciproque (plan de diffraction) et la transmittance complexe de l'objet. La reconstruction consiste en une multitude d'itérations entre l'espace objet et l'espace réciproque, ces deux espaces étant reliés par une relation de Fourier. La convergence de l'algorithme est assurée par une (ou des) contrainte(s) appliquée(s) dans chacun des espaces. La plupart des algorithmes se basent sur une contrainte connue dans chaque espace : les données de diffraction fixent la valeur de l'amplitude dans l'espace réciproque et l'objet est contenu dans un support. En fonction des expériences, le support peut être ou non connu avec précision. Dans tous les cas, on sait que l'objet est supporté par son autocorrélation. Très brièvement, voici la procédure générale des algorithmes de reconstruction de la phase, décrite en quatre étapes (Figure 7.1) :

- (1) TF de l'objet (g) après contrainte (obtention de la phase Φ)
- (2) Application de la contrainte sur l'amplitude diffractée (G)
- (3) TF inverse de l'estimation du champ diffracté
- (4) Application de la contrainte sur l'objet

Une solution est trouvée quand elle satisfait toutes les contraintes (minimise l'erreur). L'algorithme débute en appliquant une phase Φ aléatoire.

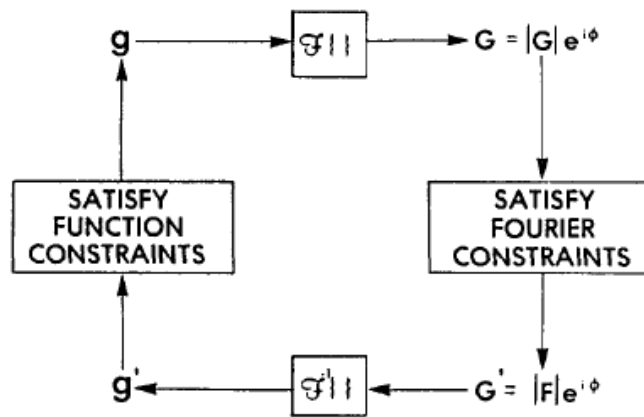


Figure 7.1 : Schéma de principe de l'algorithme de reconstruction de la phase. D'après Fienup [94].

En 1972, Gerchberg et Saxton développent un algorithme qui permet de reconstruire un objet à partir d'une mesure en intensité dans l'espace réel $|f|$ et de la mesure du module de Fourier $|F|$ de l'objet [95]. L'algorithme converge en itérant entre les domaines « objet » et Fourier et

utilise la contrainte des modules dans chaque domaine tout en conservant à chaque itération la phase calculée. Quelques années plus tard, Fienup modifie la contrainte appliquée dans l'espace objet de l'algorithme de Gerchberg-Saxton. Cela permet la reconstruction de l'objet à partir d'une simple mesure du module de Fourier $|F|$ d'un objet (figure de diffraction) sans la mesure de $|f|$ plus difficilement accessible à l'expérience [96, 97]. Il propose de prendre comme « input », avant contrainte de Fourier lors de l'itération $k + 1$, l'entrée g_{k+1} donnée par :

$$g_{k+1}(x) = \begin{cases} g_k(x); & x \notin \gamma \\ g_k(x) - \beta g_k'(x); & x \in \gamma \end{cases}$$

Où γ est la région qui inclut tous les points pour lesquels $g_k'(x)$ viole la contrainte dans l'espace objet. Le paramètre β peut être ajusté pour favoriser la convergence de l'algorithme. L'algorithme de Fienup (HIO) est le plus utilisé mais, plus récemment, Elser a généralisé une approche appelée « *difference map* ». Cet algorithme repose sur la projection sur des espaces de contraintes [98] qui peuvent être par exemple le module de Fourier, le support de l'objet, mais d'autres contraintes peuvent être adaptées.

Les reconstructions qui seront présentées dans ce manuscrit utilisent plusieurs approches implémentées dans le code « *Hawk* » [99] développé par notre collaborateur Filipe Maia du groupe du Prof. Janos Hajdu à Uppsala, notamment les algorithmes Hybrid Input-Output (HIO) et Relaxed Average Alternating Reflector (RAAR) [100]. Pierre Thibault, du groupe du Prof. Veit Elser, Cornell University, nous a fourni un code adapté à nos données expérimentales, basé sur l'algorithme « *difference map* ».

7.2 Holographie par transformée de Fourier

7.2.1 Introduction et concept de l'holographie

Le principe de l'holographie a été proposé par Dennis Gabor en 1948 [101] comme moyen de reconstruction du front d'onde. L'objectif est d'enregistrer l'amplitude et la phase de l'onde se propageant de l'objet au plan de l'hologramme. Ce codage, comme l'étymologie grecque du mot holographie l'indique (« holos » tout, « graphein » écrire), contient toute l'information sur l'onde. Le schéma holographique consiste à enregistrer les interférences entre l'onde diffractée par l'objet et une onde de référence. Il existe de nombreuses configurations pour créer l'onde de référence. Elles se divisent en deux classes définies par la position du point source de l'onde de référence : sur l'axe optique pour l'holographie « in-line », hors de l'axe optique pour l'holographie « off-axis ». L'holographie par transformée de Fourier (acronyme anglais FTH) est une approche holographique « off-axis » où la reconstruction est effectuée par simple transformation de Fourier de l'hologramme [102]. Expérimentalement, elle nécessite de placer la source ponctuelle de l'onde de référence à une distance appropriée de l'objet. Le champ de l'objet interfère avec l'onde de référence produite par cette source pour former l'hologramme. La résolution de l'image obtenue par FTH est limitée par la taille du point source référence.

Dans la gamme spectrale UV-X, les difficultés proviennent de la création de la source ponctuelle qui doit être placée dans le voisinage de l'objet. Dans l'expérience de McNulty [7], la référence est obtenue par focalisation dans le plan de l'objet. Une autre approche [18] utilise un masque

perforé, dans le plan de l'objet, pour créer la source ponctuelle. Typiquement, la résolution finale de cette technique est en général moins bonne qu'une reconstruction itérative par « phase retrieval », notamment à cause de la nécessité de disposer d'une source ponctuelle résolvente par focalisation à ces longueurs d'onde X. Dans le cas du masque perforé, c'est la brillance de l'onde de référence qui limite le contraste des franges d'interférence et donc le signal enregistré dans l'hologramme. Généralement, l'obtention d'un contraste important nécessite d'avoir une « source large », ce qui du même coup limite les résolutions accessibles. Néanmoins, l'holographie par transformée de Fourier est attractive pour de nombreuses applications grâce à sa simplicité et pour sa reconstruction directe et sans ambiguïté (contrairement à l'approche itérative de la reconstruction CDI). De nombreux travaux ont été réalisés depuis pour pouvoir utiliser une référence étendue tout en conservant la possibilité de haute résolution. On notera une application de la déconvolution [103], un schéma basé sur des références ponctuelles multiples [104], un cas particulier d'utilisation d'un URA [105], ainsi qu'une combinaison du schéma holographique et de la reconstruction par phase retrieval [106]. Récemment un schéma utilisant une référence rectangulaire (non ponctuelle) a été proposé par Podorov et al. [107]. Cette approche a ensuite été généralisée par Guizar et al. [108] à des références de formes multiples avec une approche appelée « Holography with Extended Reference by Autocorrelation Linear Differential Operator (HERALDO) ». Les expériences d'holographie présentées dans la suite de ce Mémoire, utiliseront cette dernière technique. De plus, des considérations sur le « signal » enregistré dans les hologrammes seront développées.

7.2.2 Principe de l'holographie par transformée de Fourier

Considérons la fonction de transmission (exprimée sans dimension) t de l'échantillon constitué par l'objet o et par la référence r . On a :

$$t = o + r$$

En régime de diffraction de champ lointain et pour une faible ouverture numérique de détection (approximation paraxiale), on a sur le plan de détection la figure de diffraction ou l'hologramme (6.1):

$$H = |\mathcal{F}\{t\}|^2 = |T|^2$$

Avec les transformations de Fourier de l'objet $\mathcal{F}\{o\} = O$ et de la référence $\mathcal{F}\{r\} = R$, on a aussi :

$$|T|^2 = |O + R|^2 \quad (7.1)$$

L'hologramme est ensuite détecté et échantillonné par le CCD comme cela est précisé dans le chapitre 6.1. Toute l'analyse qui suit l'enregistrement de l'hologramme s'effectue sur les signaux discrets au moyen d'outil informatique. J'utilise ici une description analytique qui est suffisante pour la description du principe de reconstruction. La reconstruction est obtenue par la transformation de Fourier (inverse) de l'hologramme (se reporter aux relations en annexe) :

$$\mathcal{F}^{-1}\{H\} = \mathcal{F}^{-1}\{|\mathcal{F}\{t\}|^2\} = t \otimes t$$

La transformation de Fourier de l'hologramme, en accord avec la relation (6.3), correspond à l'autocorrélation de la transmittance de l'échantillon. En développant la transmittance, il vient :

$$t \otimes t = o \otimes o + r \otimes r + o \otimes r + r \otimes o \quad (7.2)$$

Ce sont les deux derniers termes de cette expression qui correspondent à la reconstruction holographique. Ces deux termes, complexes conjugués l'un de l'autre, représentent le produit de corrélation entre l'objet (complexe) et la référence. Cette dernière expression explicite la caractéristique du schéma holographique par TF : la résolution est limitée par les dimensions de la référence. Une reconstruction holographique peut s'écrire comme le produit de convolution de l'objet par la référence, cette dernière jouant un rôle équivalent de celui de la « fonction d'étalement du point » (point spread function, PSF) d'un système optique.

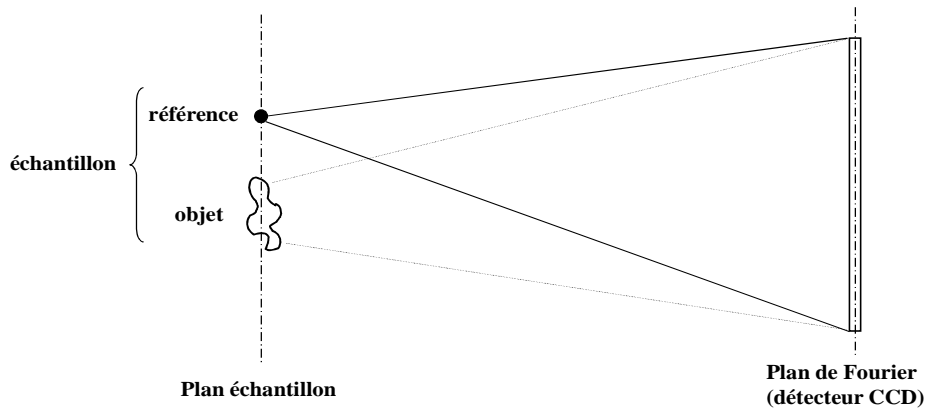


Figure 7.2 : Principe du schéma holographique par transformée de Fourier

La condition, inhérente à l'holographie off-axis est la séparation « spatiale » des termes de l'expression (7.2). Cette séparation est liée à la séparation spatiale entre le point source référence et l'objet (Figure 7.2). En considérant le problème à une dimension spatiale, la transmittance de l'objet s'écrit :

$$t(x) = o(x) + r(x - x_0)$$

La distance x_0 représente l'écart entre l'objet et la référence. L'hologramme se décrit alors comme (7.1) :

$$H = |O(k) + R(k)e^{-ikx_0}|^2 = |O(k)|^2 + |R(k)|^2 + O^*(k)R(k)e^{-ikx_0} + O(k)R^*(k)e^{ikx_0}$$

Où $O(k)$ et $R(k)$ sont complexes, avec $O(k) = |O(k)|e^{i\varphi_O(k)}$ et $R(k) = |R(k)|e^{i\varphi_R(k)}$. Finalement:

$$H = |O(k)|^2 + |R(k)|^2 + 2|O(k)||R(k)|\cos(\varphi_O(k) - \varphi_R(k) - kx_0)$$

Le dernier terme (terme hétérodyne) de cette expression est celui qui est à l'origine de l'interférence entre objet et référence. Il représente le codage de l'amplitude et de la phase de l'objet (et aussi de la référence) dans les modulations de l'hologramme. En appliquant la transformation $k = \frac{r k_0}{z}$ (espace réciproque k – espace de détection r), les modulations de l'hologramme ont une périodicité de $\frac{\lambda z}{x_0}$. La reconstruction de cet hologramme donne :

$$\mathcal{F}^{-1}\{H\} = o(x) * o(x) + r(x) * r(x) + o^*(-x) * r(x - x_0) + o(x) * r^*(x + x_0)$$

Qui peut encore s'écrire comme (7.2):

$$\mathcal{F}^{-1}\{H\} = [o \otimes o](x) + [r \otimes r](x) + [o \otimes r](x - x_0) + [r \otimes o](x + x_0)$$

Alors que les « termes centraux » sont centrés sur l'origine, les deux images sont situées de part et d'autre de l'origine à une distance x_0 . Il y a séparation holographique (avec une référence ponctuelle) si cette distance est supérieure à 1,5 fois la dimension de l'objet (Figure 7.2).

8. Signal, bruit et efficacité de diffraction

En principe, l'imagerie sans lentille est « limitée par diffraction », c.-à-d. limitée par la configuration de détection (ouverture numérique de détection) et par la longueur d'onde. En réalité, les limitations concernent principalement le signal enregistré et contenu dans la figure de diffraction, notamment du fait de l'angle maximum de diffraction pour lequel le rapport signal sur bruit (SNR) permet d'extraire l'information nécessaire à la reconstruction (diffraction intensity-limited resolution). La qualité et la résolution accessibles sur l'image reconstruite, à partir d'une figure de diffraction ou d'un hologramme, sont reliées à la quantité/qualité du signal de diffraction enregistré et utilisable par le processus de reconstruction. La technique d'imagerie sans lentille a l'avantage de ne pas être limitée physiquement par un système d'imagerie. Cependant, les limitations proviennent du processus algorithmique de reconstruction qui se substitue au système physique. Outre les limitations inhérentes aux processus de reconstruction, que sont la capacité à reconstruire la phase pour le CDI ou les propriétés de la référence pour le FTH, la limitation fondamentale provient des défauts sur la mesure. Ces défauts peuvent être issus d'erreurs sur la mesure comme le manque de données (bloqueur de faisceau direct) ou bien un défaut de cohérence de l'illumination des échantillons. Les autres défauts majeurs sont les bruits pendant l'acquisition des données de diffraction, et notamment le bruit de photon. Le bruit de photon est inversement proportionnel au nombre de photons détectés. Le nombre de photons incidents sur le détecteur dépend du nombre de photons incidents sur l'échantillon (la dose) et des propriétés de diffraction de ce dernier, notamment l'efficacité de la diffraction. Une expérience de diffraction sera alors dimensionnée en fonction des propriétés de l'échantillon qui détermineront la source de l'illumination à utiliser : longueur d'onde, durée et nombre d'impulsion, et bien entendu la brillance de la source. L'estimation du nombre de photons incidents sur le détecteur – en fonction des propriétés de l'échantillon, de la relation entre l'exposition (la dose) et la résolution accessible sur l'image – ont fait l'objet de nombreux travaux [109-112]. Je reprends ici quelques notions sur la contribution des éléments d'un échantillon au signal diffracté pour introduire le bénéfice de l'utilisation de référence étendue dans les expériences d'holographie présentées dans la troisième partie.

8.1 Limitation par le signal et rapport signal sur bruit (SNR)

8.1.1 Le rapport signal sur bruit (SNR) et bruit de photon

Toute détection d'un signal, quel qu'il soit, s'accompagne d'un bruit, enregistré en même temps que le signal et s'y superposant. Le rapport signal sur bruit permet de quantifier la qualité de cette détection. Considérons un signal bruité :

$$S(t) = \langle S(t) \rangle + X_1(t) + X_2(t)$$

Où $\langle S(t) \rangle$ représente le signal idéal non bruité, $X_1(t)$ et $X_2(t)$ sont deux processus de bruit indépendants (non-corrélés) d'espérance nulle $\langle X_1(t) \rangle = \langle X_2(t) \rangle = 0$. La variance de chaque processus de bruit (d'espérance nulle) est donnée par le moment d'ordre 2 : $\langle X_1^2(t) \rangle$

et $\langle X_2^2(t) \rangle$; la variance de la somme de deux processus non-corrélés est égale à la somme des variances de chaque processus : $\langle (X_1(t) + X_2(t))^2 \rangle = \langle X_1^2(t) \rangle + \langle X_2^2(t) \rangle$.

Le rapport signal sur bruit (SNR) du signal mesuré $S(t)$ est défini comme :

$$SNR = \frac{\langle S(t) \rangle}{\sqrt{\langle X_1^2(t) \rangle + \langle X_2^2(t) \rangle}}$$

Les bruits, pendant le processus de détection, proviennent de trois sources différentes : le bruit de photons, le bruit de détecteur et le signal parasite. Le bruit de photons provient du processus intrinsèque à la détection de particules quantifiées, ici les photons. La statistique associée est celle de Poisson, de variance égale au nombre de photo-événements incidents sur le détecteur. La propriété statistique du bruit de photons est directement liée au nombre de photons détectés : c'est un bruit signal-dépendant. Les bruits de détecteur sont relatifs au système de détection. Je mentionne principalement le bruit dû à l'agitation thermique des porteurs de charge, « dark charge », et le bruit associé au processus de lecture-amplification électronique, « readout noise ». Enfin, le signal parasite, comme son nom l'indique, provient des sources de photons parasites à la mesure.

La propriété énergétique du rayonnement UV-X fait prévaloir les propriétés quantiques de l'échange d'énergie, et donc le bruit de photons. Généralement les autres sources de bruit sont de moindre importance. Le bruit de photon est prépondérant dans toutes les expériences de diffraction dans le domaine de longueur d'onde UV-X, ce qui n'est pas le cas, par exemple, pour le bruit de lecture-échantillonnage. En fonction du domaine de longueur d'onde, le système de détection a une sensibilité différente aux diverses sources de bruit. Le nombre n de photons détectés par pixel est proportionnel à la fluence F sur le détecteur. Si l'on associe la fluence sur le détecteur au signal, le rapport signal sur bruit est donné par :

$$SNR = \frac{F}{\sqrt{F}} = \frac{n}{\sqrt{n}}$$

A partir du rapport signal sur bruit, on peut introduire le critère de Rose selon lequel le signal se distingue du bruit quand le rapport est supérieur ou égal à 5 [113, 114]. Suivant ce critère, quand, par exemple, seul le bruit de photon est considéré, le nombre minimum de photons par pixel doit être de 25. Ce critère permet de donner un ordre de grandeur de la dose nécessaire sur l'échantillon pour enregistrer une figure de diffraction reconstituée, pour un élément de résolution donné [111]. Généralement appliqué aux reconstructions itératives, ce critère permet d'estimer la limite dans laquelle l'algorithme de reconstruction peut extraire de l'information de la mesure.

8.1.2 Image et résolution limitée par le signal enregistré

La figure de diffraction, qui représente le module carré de la transformée de Fourier de l'onde transmise par l'objet, est une fonction de carré sommable. De ce fait, les composantes associées aux hautes fréquences spatiales tendent vers zéro. Le signal à enregistrer diminue à mesure que l'on étend la gamme fréquentielle. Pour cette raison, l'influence du bruit est toujours plus

importante sur les hautes composantes fréquentielles d'une image. Comme dans tout système optique de formation des images, la résolution des images est directement reliée à la valeur des composantes fréquentielles accessibles, et donc à l'ouverture de diffraction. De ce fait, la limitation sur la reconstruction sera principalement une limitation sur la résolution.

En régime de diffraction de Fraunhofer (approximation paraxiale), la relation entre l'étendue de la figure de diffraction L et les composantes fréquentielles maximum représentées σ_{max} est donnée par :

$$L = \lambda z (2 \sigma_{max})$$

Avec z la distance objet-détecteur et λ la longueur d'onde. En s'appuyant sur le théorème d'échantillonnage, on définit un critère de résolution dit de la demi-période (« half period resolution »).

$$r = \frac{1}{2 \sigma_{max}} = \frac{\pi}{k_{\perp max}} \quad (8.1)$$

Ce critère fait la correspondance entre la fréquence spatiale maximum détectée sur la figure de diffraction $\sigma_{\perp max}$ et la résolution sur l'image reconstruite : la résolution est définie comme la demi-période de la composante fréquentielle maximum présente sur la figure de diffraction. On obtient alors :

$$r = \frac{\lambda z}{L}$$

On obtient aussi, en exprimant L en fonction du nombre N de pixels considéré sur la figure de diffraction et de leur taille Δ_k :

$$r = \frac{\lambda z}{N \Delta_k}$$

Cette dernière relation sera souvent utilisée par la suite pour estimer la résolution en fonction du « signal » présent dans la figure de diffraction.

La limitation sur la résolution provient de la limite de vraisemblance des détails reconstruits sur l'objet. Statistiquement, la vraisemblance des composantes bruitées est faible. Une fonction qui représente le SNR d'une figure de diffraction peut être utilisée pour estimer la résolution, puisque le SNR quantifie la vraisemblance de la mesure de la figure de diffraction. Généralement, pour obtenir une image de l'objet avec une « bonne fidélité », on peut effectuer la somme de différentes reconstructions « indépendantes », obtenues par exemple avec une reconstruction CDI. La statistique aura pour effet d'atténuer les fréquences spatiales bruitées et ainsi obtenir une meilleure estimation de la résolution « réelle ».

8.2 Distribution de l'éclairement

8.2.1 Fluence sur le détecteur d'un élément de résolution

L'objectif de cette partie est d'estimer, de façon plus ou moins grossière, l'efficacité de diffraction d'un objet en fonction de ses propriétés, dimensions, transmission et de la résolution souhaitée sur l'image reconstruite de celui-ci. L'efficacité de diffraction se quantifie par la « fluence » dans le plan de détection ou par le nombre de photons par pixel du détecteur. La fluence F exprime le nombre de photons, par unité de surface et pendant le temps d'exposition, accumulé sur le capteur CCD. C'est la mesure d'intérêt pour l'évaluation du signal de détection. On définit F_r comme une estimation du nombre n de photons diffractés sur la zone d'intérêt de la figure de diffraction (fluence moyenne). Cette zone est celle qui permet de résoudre l'objet avec la résolution r ; elle est limitée par l'angle de diffraction et l'étendue de la figure de diffraction L . On définit alors l'« élément de résolution » r comme la cellule élémentaire que l'on peut résoudre – appelé aussi « voxel » pour un problème à 3 dimensions. On définit la surface de détection utile $s^2 = \frac{\lambda^2 z^2}{r^2}$ sur le détecteur (CCD) situé à une distance z de l'échantillon sous illumination de longueur d'onde λ . On obtient alors :

$$F_r = \frac{n}{s^2} = \frac{n r^2}{\lambda^2 z^2}$$

On définit :

- La section efficace de diffusion comme $\sigma_s = |T|^2 r^2$ avec T la transmission moyenne de l'élément de résolution. Cette transmission représente le rapport des contrastes entre l'objet diffractant et son environnement.
- Le nombre de photons diffractés $n = \sigma_s F_{inc}$ avec F_{inc} la fluence incidente sur l'échantillon.

On a alors :

$$n = |T|^2 r^2 F_{inc} \propto r^2$$

Qui représente le nombre de photons diffractés proportionnel à la surface de l'élément de résolution ou de l'élément diffractant. Cette expression est identique à la référence [111] dans laquelle les auteurs expriment la transmission moyenne en fonction de la densité électronique d'un « voxel ».

Finalement, la fluence moyenne sur le détecteur pour un élément de résolution est :

$$F_r = \frac{F_{inc} |T|^2 r^4}{\lambda^2 z^2} \propto r^4$$

Pour une résolution souhaitée r , il y a une évolution proportionnelle à r^4 de la fluence sur le détecteur. Cela provient de deux effets, l'un lié au nombre de photons diffractés et l'autre à l'angle de diffraction délimitant la zone de signal permettant de résoudre l'élément de résolution. Il faut remarquer que cette relation est identique aux constantes du calcul de la diffraction d'une ouverture carrée de dimension r et de transmission T :

$$F(x, y) = \frac{F_{inc}|T|^2 r^4}{\lambda^2 z^2} \left[\frac{\sin\left(\frac{xr}{\lambda z}\right)}{\left(\frac{xr}{\lambda z}\right)} \frac{\sin\left(\frac{yr}{\lambda z}\right)}{\left(\frac{yr}{\lambda z}\right)} \right]^2$$

Ou d'une ouverture circulaire de diamètre r :

$$F(\rho) = \frac{F_{inc}|T|^2 r^4}{\lambda^2 z^2} \left[2 \frac{J_1\left(\frac{\pi \rho r}{\lambda z}\right)}{\left(\frac{\pi \rho r}{\lambda z}\right)} \right]^2$$

8.2.2 Considérations pour un échantillon à 2 dimensions

On traite ici le problème en considérant l'objet dans l'« approximation de projection » (objet en 2 dimensions). La transmittance $t(r_{\perp})$ de l'échantillon (voir chapitre 5.1) est représentée comme une distribution transverse d'éléments de résolution r de transmission moyenne T . Considérons le signal d'une figure de diffraction d'un objet de dimension a que l'on veut résoudre avec une résolution r : si on considère l'objet constitué de N_b « éléments de résolution » (briques de base) de dimension r , le nombre de briques de base est proportionnel à la dimension de l'objet élevée au carré : $N_b = \frac{a^2}{r^2}$.

La fluence moyenne peut s'exprimer par :

$$F_a = N_b F_r = \frac{F_{inc}|T|^2 a^2 r^2}{\lambda^2 z^2} \propto a^2 \quad (8.2)$$

Cette relation s'obtient aussi comme le nombre de photons n diffractés par l'objet de dimension a ($n = F_{in}|T|^2 a^2$) divisé par la surface de détection utile s^2 .

Le gain de fluence pour une étendue de fréquence spatiale déterminée correspondant à une résolution r est proportionnel à la surface de l'objet. Il faut noter que la relation $\frac{\lambda z}{a}$ est relative à la taille du grain de speckle, la plus petite entité à détecter sur la figure de diffraction, qui détermine notamment la taille du pixel du détecteur. Si on considère maintenant le nombre de photons diffractés par pixel du capteur CCD, on obtient :

$$n = \Delta_k^2 F_a = \frac{F_{inc}|T|^2 r^2}{o^2} \quad (8.3)$$

Avec $\Delta_k = \frac{\lambda z}{o a}$ (6.5) la taille d'un pixel du CCD et O le paramètre de sur-échantillonnage linéaire (voir section 6.1.3). Finalement, le nombre moyen de photons par pixel est indépendant de la taille de l'objet représenté par une transmittance à 2 dimensions et de la longueur d'onde. Ce résultat se retrouve (aux constantes près) dans la référence [112] relation (13) où la transmission $|T|^2$ est exprimée par $|T|^2 = r_e^2 \lambda^2 |\tilde{\rho}_r|^2 r^2$ et $\tilde{\rho}_r$ est la densité électronique d'un « voxel ». Ici, contrairement à la considération du « voxel » d'un problème en trois dimensions, la transmission moyenne $|T|^2$, de l'objet à 2 dimensions, est indépendante des dimensions.

Le calcul précédent, comme dans *Shen et al.* [112], est basé sur une contribution incohérente des différents éléments de résolution de l'objet. Comme dans le cas d'une illumination incohérente

de l'objet, il n'y a pas d'information structurelle dans la figure de diffraction associée à une structuration particulière de l'objet. On a juste une estimation de la fluence moyenne sur le détecteur proportionnelle à la taille de l'élément de résolution que l'on souhaite résoudre.

Il est important de noter que la structuration de l'objet, sous une illumination ayant une cellule de cohérence transverse et longitudinale supérieure à la dimension de l'objet, implique une structuration importante de la figure de diffraction associée. En termes de capacité de détection et de SNR, cette structuration de la figure de diffraction joue un rôle important et doit être considérée pour une expérience d'imagerie sans lentille.

Les constructions cohérentes « internes » de la figure de diffraction, appelées speckle, sont issues d'interférences entre les différentes briques de base. Pour un objet de structuration complexe, la distribution du speckle sera complexe : il n'y a pas de « structuration simple » de la figure de diffraction. De ce fait, l'information sur la position de chaque brique de base nécessaire à la construction de l'objet est dépendante du moindre speckle. Donc, dans les considérations de l'équation (8.3), même si la fluence et le signal global sont proportionnellement accrus avec le nombre de briques de base, l'information nécessaire à la reconstruction de l'objet reste proportionnelle à la taille des briques de base. Autrement dit, il est nécessaire d'avoir un SNR suffisant pour chaque brique de base individuelle pour pouvoir reconstruire l'objet. Cette notion est explicitée dans le paragraphe suivant. Certaines configurations et dispositions des briques de base permettent des configurations plus « déterministes », comme cela est le cas, par exemple, pour des échantillons avec une structure périodique (diffraction cristallographique standard). Un objet structuré permet une distribution additive des speckles identiques et additive, avec un nombre moindre de configurations [115]. Ceci justifie l'utilisation de nano-cristaux pour les premières expériences sur LCLS [22].

L'effet de la « complexité » de structuration de l'objet sur sa capacité de reconstruction sera illustré dans la partie expérimentale, section 9.2.

8.3 Contribution de l'échantillon au signal

8.3.1 Avantage du terme hétérodyne

L'objectif est de qualifier l'impact « signal » sur la figure de diffraction d'une partie localisée d'un échantillon par rapport à sa globalité. Pour cela, on va considérer le signal diffracté par l'échantillon composé de deux contributions, une provenant de ce que l'on appellera par la suite l'objet o et l'autre d'une « référence » r , même si l'on n'est pas forcément dans un problème holographique. L'objet « référence » r peut correspondre à un détail de l'échantillon, un élément de résolution ou au contraire à un objet diffractant important. On détecte l'éclairement et plus particulièrement la fluence associée à la diffraction de l'échantillon :

$$F = |\mathcal{F}\{o + r\}|^2 = |O|^2 + |R|^2 + O^*R + OR^* \quad (8.4)$$

Où R et O sont respectivement les amplitudes diffractées issues de la référence et de l'objet. Ils représentent les distributions spatiales des amplitudes diffractées (les variables sont omises). La question principale est : comment intervient, dans le signal diffracté par l'échantillon, la contribution de l'élément « r » via son amplitude diffractée « R » ? Cette contribution est fonction des propriétés physiques de la référence, notamment sa transmission et ses dimensions.

L'expression de la fluence (8.4) est constituée de 2 termes homodynes $|O|^2$ et $|R|^2$, et du terme hétérodyne $2|O||R| \cos \Delta\varphi$. Le terme hétérodyne correspond à l'interférence entre l'objet et la référence reliée à la construction cohérente de la figure de diffraction. Dans un problème holographique, le terme hétérodyne contient l'information nécessaire à la construction de l'image de l'objet. Dans ce cas, le signal contenu dans la figure de diffraction est proportionnel à l'amplitude des modulations du terme hétérodyne.

La valeur du terme hétérodyne, pour une contribution objet donnée, peut être amplifiée par une contribution importante de la référence. Il y a amplification du signal du terme hétérodyne par le signal issu de la référence. La présence d'une référence étendue permet de profiter de ce qui est appelé « heterodyne advantage » [116, 117] : l'« amplification » du signal diffracté par l'objet à travers son interférence avec le signal diffracté par la référence. C'est la présence de ce terme qui explique, dans un premier temps, l'amélioration du signal de diffraction enregistré avec une référence qui a une contribution importante à la figure de diffraction.

8.3.2 SNR du terme hétérodyne.

Le signal diffracté par l'échantillon est analysé ici en utilisant le rapport signal sur bruit. Ce rapport permet de quantifier plus précisément l'information contenue dans une figure de diffraction. Pour établir ce rapport, il est important de déterminer la partie signal, c'est-à-dire l'information que l'on souhaite acquérir, et les sources de bruit pendant le processus de détection. Dans ce qui suit, on considérera seulement la contribution du bruit de photons, bruit signal-dépendant de $SNR = \sqrt{F}$. Les autres sources de bruit, telles que le bruit de lecture-amplification, ne sont pas considérées ici.

Le rapport signal sur bruit est très dépendant du signal que l'on considérera comme « utile » (contenant de l'information) pour la construction de l'image. Si l'on considère l'échantillon dans sa totalité, objet et référence, le rapport est donné par :

$$SNR = \frac{|O|^2 + |R|^2 + 2|O||R| \cos \Delta\varphi}{\sqrt{|O|^2 + |R|^2 + 2|O||R| \cos \Delta\varphi}} = \sqrt{|O|^2 + |R|^2 + 2|O||R| \cos \Delta\varphi} \quad (8.5)$$

Un rapport qui est supérieur à celui de l'objet seul et qui croît avec la contribution de la référence.

Si l'on considère maintenant que le « signal utile » à la reconstruction provient seulement du terme hétérodyne, comme cela est le cas en holographie, le SNR associé s'exprime :

$$SNR_h = \frac{OR^* + O^*R}{\sqrt{|O|^2 + |R|^2 + OR^* + O^*R}}$$

En exprimant seulement l'amplitude des modulations du signal issu du terme hétérodyne, cela devient :

$$SNR_h = \frac{2|O||R|}{\sqrt{|O|^2 + |R|^2 + 2|O||R|}}$$

Analysons différents cas extrêmes pour quantifier l'influence des différentes contributions objet et référence au SNR. Premièrement, la référence et l'objet ont des contributions quasiment égales au signal diffracté :

$$|O| \approx |R|$$

On peut simplifier l'expression du SNR précédente:

$$SNR \approx |O| \approx |R|$$

Dans ce cas, le SNR sera proportionnel à la contribution au signal diffracté de l'objet ou de la référence.

Considérons maintenant l'utilisation d'une référence comme un objet diffractant fort par rapport à un objet faiblement diffractant, de telle sorte que l'on peut négliger la contribution de l'objet au signal diffracté. Dans ce cas, on considère la contribution au bruit provenant seulement de la référence. On obtient :

$$SNR \approx \frac{2|O||R|}{\sqrt{|R|^2}} \approx |O| \quad (8.6)$$

Le SNR est limité par la contribution de l'objet faiblement diffractant. Ce résultat, qui constitue une approximation grossière, met en défaut la possibilité d'augmenter, par le terme hétérodyne, la capacité de détection d'un objet faiblement diffractant.

De façon similaire, si la contribution de l'objet est plus importante que la référence, comme cela est le cas dans les expériences d'holographie par transformée de Fourier, on a :

$$SNR \approx \frac{2|O||R|}{\sqrt{|O|^2}} \approx |R| \quad (8.7)$$

En conclusion, malgré l'amplification du « signal faible » par le « signal fort » dans le terme hétérodyne, le rapport signal sur bruit dans une statistique de Poisson du bruit de photons, semble toujours limité par le « signal faible » [118, 119], et ceci à cause d'une contribution importante au bruit du « signal fort ». Le SNR semble toujours limité par la contribution « faiblement diffractante » d'un échantillon. Pour une référence de faible contribution à la figure de diffraction, le SNR est limité par cette contribution. Pour une référence de forte contribution, le SNR reste limité par le signal diffracté par l'objet. Cela est en désaccord avec l'effet de « l'hétérodyne avantage » évoqué précédemment.

8.3.3 Référence étendue et reconstruction.

Tout d'abord, considérons la contribution, sur la figure de diffraction, d'un objet en fonction de sa structuration. Par exemple, si l'objet est constitué de N_b « éléments de résolution », sa fluence sur le détecteur sera de :

$$F_a = N_b F_d = N_b \frac{F_{inc} |T|^2 d^4}{\lambda^2 z^2}$$

Avec F_d la fluence d'un élément de résolution. Si cet objet n'a pas de structuration particulière, avec les considérations précédentes, dans une statistique de Poisson du bruit de photons, chaque élément constituant l'échantillon a sa propre contribution F_d utile pour la reconstruction dans le signal total diffracté F_a [118]. Le signal utilisé pour reconstruire un élément de l'objet est limité par la seule contribution de cet élément à la diffraction. Le SNR associé est :

$$SNR \propto \frac{F_d}{F_a} \propto \frac{1}{N_b}$$

Maintenant, si l'objet est de structuration simple, il en sera de même pour sa figure de diffraction. On peut isoler un élément de configuration unique dont la contribution à la diffraction serait :

$$F_e = N_e \frac{F_{inc} |T|^2 d^4}{\lambda^2 z^2}$$

Où N_e correspond au nombre de briques de base pour constituer l'élément. Le SNR sur la détection de cet élément est alors amélioré d'un facteur N_e :

$$SNR \propto \frac{F_e}{F_a} \propto \frac{N_e}{N_b}$$

Il faut noter que la structuration de cet élément peut provenir d'un meilleur contraste en transmission avec $|T_e|^2 = N_e |T|^2$ ou d'une juxtaposition « simple » (agencement dans le plan objet) d'éléments de résolution, pour former un élément macroscopique de forme simple comme un cercle ou un carré. Donc, cet élément est un élément fortement diffractant de contribution unique et structurée sur la figure de diffraction. Il peut être un élément de contraste en

transmission important ou un élément étendu de surface importante : j'utiliserai le terme de référence étendue.

Maintenant, quelle pourrait être l'influence d'un élément fortement diffractant dans le processus d'imagerie sans lentille ? Si l'on considère l'échantillon constitué d'un objet et d'une référence étendue, le SNR du signal utile (l'information sur l'objet) enregistré dans la figure de diffraction serait au mieux limité par le signal transmis par l'objet. Considérons les deux méthodes d'imagerie sans lentille, la CDI avec reconstruction itérative de la phase et l'holographie par transformée de Fourier (FTH).

Les potentialités de l'utilisation d'une référence étendue dans le cas d'une reconstruction itérative sont discutées en conclusion de l'article de Boutet et al. [120]. L'algorithme de reconstruction de la phase utilise le signal diffracté dans son ensemble, pour retrouver la phase associée à la figure de diffraction. L'algorithme reconstruit aussi bien l'objet que la référence. L'argument est : la présence d'un élément d'efficacité de diffraction importante permet d'améliorer la convergence de l'algorithme. En quelque sorte, cela permet au processus de reconstruction d'optimiser l'extraction de l'information sur l'objet pour sa reconstruction. La référence étendue a seulement une influence post-détection pour optimiser la reconstruction. La qualité de la reconstruction n'en reste pas moins limitée par le signal transmis par l'objet (Figure 8.1).

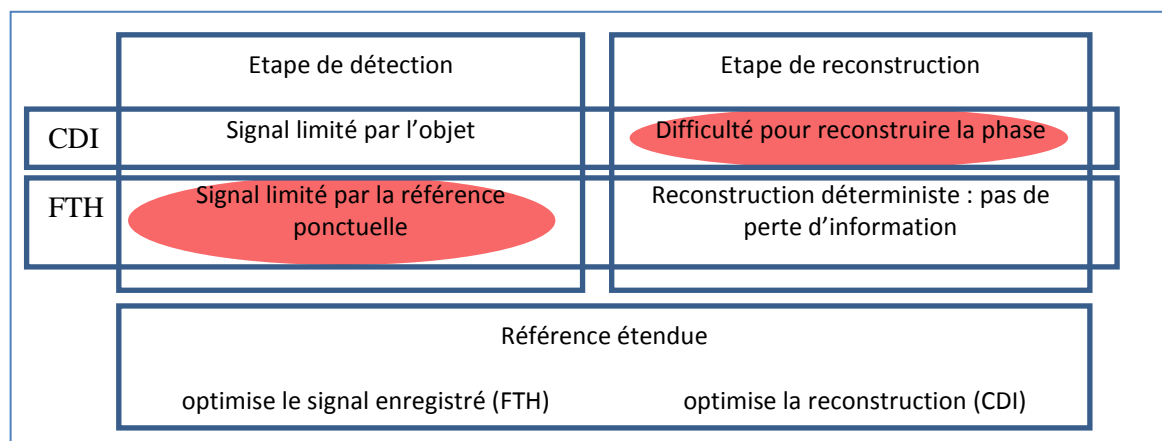


Figure 8.1 : schéma qui résume les étapes de détection et de reconstruction pour une configuration CDI et FTH. Les zones en rouge correspondent aux points où se situe généralement la difficulté de chaque configuration.

Dans le cadre de l'holographie, c'est l'utilisation d'une référence ponctuelle qui constitue une limitation au signal enregistré contenant l'information sur l'objet comme cela est exprimé par la relation (8.7). L'utilisation d'une référence étendue permet d'augmenter la valeur de l'amplitude du terme hétérodyne qui contient l'information sur l'objet. L'idéal est de pouvoir retrouver une situation de limitation du signal par l'objet. L'important dans ce genre de configuration, est de conserver le principe d'une reconstruction déterministe propre à l'holographie par transformée de Fourier. La structuration de la référence a un double rôle. Le premier est de permettre l'optimisation de l'enregistrement holographique. Le deuxième est de conserver le principe

d'une reconstruction directe déterministe. Ce sont ces deux objectifs qui font l'objet de recherche sur l'optimisation du schéma holographique [104, 105]. Dans la suite, je présente des résultats et une analyse sur l'efficacité du schéma HERALDO, notamment sur l'influence de la structuration de la référence étendue sur le recouvrement objet/référence des termes hétérodynes.

Conclusion de la partie II

Cette partie théorique propose une synthèse des différents points théoriques de l'imagerie par diffraction qui se sont révélés pertinents dans mon travail. Ceci permet d'introduire et d'approfondir les notions nécessaires à la compréhension du schéma expérimental présenté dans la suite et à l'analyse des données. Les premiers chapitres présentent de façon générale les schémas de diffraction et de détection. Ensuite ont été introduits, de façon succincte, les deux schémas de reconstruction CDI et FTH, le premier directement utilisé pour les premières reconstructions, le deuxième constituant la base des reconstructions holographiques par transformée de Fourier. Le dernier chapitre développe les notions d'efficacité de diffraction. Ce sont des notions centrales, la problématique expérimentale étant de savoir si la source harmonique est suffisamment « brillante » pour l'imagerie simple tir, c'est-à-dire, si le signal diffracté en une acquisition est suffisant pour reconstruire une image de l'objet avec une haute résolution.

Partie III : Résultats expérimentaux de l'expérience d'imagerie sans lentille.

Les expériences menées pendant cette thèse ont visé à démontrer qu'il était possible d'utiliser une source « harmonique », avec une configuration d'imagerie sans lentille en simple tir, pour obtenir des images résolues au nanomètre. Ce programme associait un travail sur la source, présenté dans la première partie de ce manuscrit, et les expériences de diffraction présentées ici. La problématique expérimentale est d'obtenir un signal suffisant, pour une acquisition simple tir de la figure de diffraction, qui permet l'obtention d'une image avec une résolution de l'ordre de la centaine de nanomètres. Je présente dans la suite, ce qui a constitué la majeure partie du travail expérimental. Cela concerne « l'optique » du faisceau harmonique, les échantillons et la détection des figures de diffraction.

Trois principales campagnes expérimentales ont été effectuées. La première expérience consistait à démontrer la possibilité d'imagerie par diffraction cohérente (CDI) avec une acquisition simple tir de la figure de diffraction. Elle intègre la conception de l'objet test, l'acquisition des données de diffraction et la reconstruction de l'image avec un algorithme de reconstruction de la phase. La deuxième était d'expérimenter le schéma holographique avec référence étendue HERALDO. Tout d'abord, vérifier sa compatibilité avec les contraintes expérimentales de la source harmonique, puis sa capacité à reconstruire une image à partir d'une acquisition simple tir. La dernière consistait à analyser les résultats expérimentaux du schéma HERALDO concernant l'efficacité de diffraction et la qualité des reconstructions. Pour finir, deux résultats préliminaires seront présentés sur des applications concrètes de notre dispositif d'imagerie.

9. Démonstration expérimentale de l'imagerie par diffraction cohérente sur la ligne harmonique

9.1 Setup expérimental

9.1.1 L'échantillon

Les échantillons utilisés pour les expériences de diffraction cohérente ou d'holographie ont la principale caractéristique d'être des masques opaques perforés. La zone perforée constitue l'objet. Ces échantillons tests peuvent être considérés comme les complémentaires d'échantillons « réels » en accord avec le principe de Babinet. De ce fait, un objet « réel » est constitué de matière et localisé dans un espace vide. La figure de diffraction de cet objet « réel » sera la somme d'un faisceau direct et de la distribution des photons diffractés par l'objet. Le faisceau direct est constitué des photons qui ne passent pas par l'objet ou qui n'interagissent pas avec lui. Les masques opaques perforés constituent des objets binaires. Pour ces objets binaires, l'objet est constitué des parties de valeur « 1 », et l'espace « vide » correspond aux parties opaques. Par définition, ces objets interagissent fortement avec le rayonnement – ils ne sont pas « optiquement mince ». Ce type d'échantillon apporte de nombreux avantages expérimentaux. Tout d'abord, il n'y a pas de faisceau direct sur la figure de diffraction. Mais le principal avantage est que l'objet est par définition isolé. La principale caractéristique de l'imagerie par diffraction cohérente est de disposer un objet isolé dans un espace d'étendue reliée au besoin de sur-échantillonnage. Pour un objet réel, cet espace vide doit être illuminé de façon homogène par le faisceau incident, et les conditions de cohérence transverse et longitudinale doivent être respectées [93]. Pour les objets tests, l'espace vide correspond aux parties opaques du masque, ce qui supprime les contraintes sur l'illumination de l'objet. On doit se contenter d'illuminer de façon homogène avec une onde cohérente seulement les parties perforées qui transmettent l'onde incidente et qui constituent l'objet. On considère les objets tests comme des objets en deux dimensions théoriquement représenté par une transmittance binaire. Pour des questions de rapport d'aspect, on cherche à respecter le critère d'épaisseur (5.4) pour les membranes utilisées pour graver les objets.

Les échantillons sont supportés par un porte-échantillon monté sur une platine motorisée suivant les trois axes de translation. La résolution du positionnement de ce système est de un micron. La partie la plus délicate expérimentalement est de disposer les motifs gravés au foyer du faisceau harmonique. Pour ce faire on effectue un pré-alignement de l'échantillon avec un faisceau HeNe aligné sur le faisceau laser de génération. Ce pré-alignement permet de localiser les membranes de 250 μm de côté contenant les objets et de les disposer sur l'axe optique, axe du faisceau harmonique. Une auto-collimation vérifie que la membrane est perpendiculaire à l'axe optique pour que l'épaisseur apparente de l'objet soit inférieure à la profondeur de champ (voir chapitre 5.3). Après mise sous vide de l'enceinte et génération du faisceau harmonique, on effectue une recherche des objets présents sur la membrane en la balayant et en détectant le moindre signal incident sur la caméra CCD UV-X. La position finale de l'objet par rapport au foyer harmonique, dans les trois dimensions de l'espace, est celle qui optimise le signal diffracté.

Fabrication.

Les échantillons sont gravés dans des membranes de carbure de silicium (SiC) ou de nitrure de silicium (Si₃N₄) d'épaisseur variable en fonction des membranes utilisées, de 50 nm à 150 nm. L'opacité de ces membranes est assurée par un dépôt d'or en face avant d'une épaisseur minimum de 50nm dont la transmission pour une longueur d'onde de 32 nm est inférieure à 10⁻³. Les membranes sont supportées par un « cadre » de silicium. La zone active est généralement de 250 x 250 μm². La [Figure 9.1](#) présente la géométrie des échantillons.

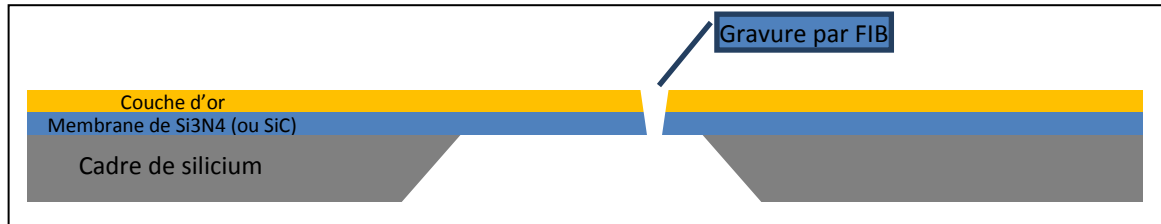


Figure 9.1 : géométrie des échantillons. Les échelles ne sont pas respectées.

La gravure des échantillons est effectuée par faisceau d'ions focalisé (FIB). Ce système généralement couplé à un microscope électronique à balayage (MEB), permet de graver (ou déposer) de la matière à une échelle nanométrique. Le principe de fonctionnement est basé sur l'accélération et la focalisation d'ions galium (Ga⁺). Il utilise l'énergie cinétique des ions pour arracher les atomes à la surface. La résolution de gravure est de l'ordre de 50 nm, fonction de la profondeur de gravure et des matériaux utilisés. Les premiers objets ont été fabriqués par Eric Bourhis, de l'équipe de Dominique Mailly, au Laboratoire de Photonique et Nanostructure de Marcoussis. Ces premiers objets ([Figure 9.2](#)) sont ceux utilisés dans la première campagne d'expérience d'imagerie par diffraction.

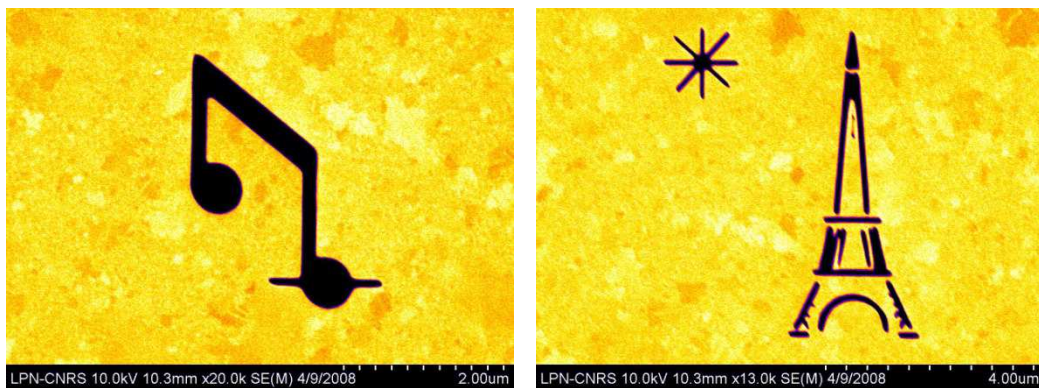


Figure 9.2 : image (en fausse couleur), coté dépôt d'or, de la gravure FIB effectuée par microscope électronique à balayage (SEM). Les parties noires correspondent aux parties perforées sur la membrane.

Dans un second temps, les gravures sont effectuées sur le FIB du CSNSM à Orsay, système sous la responsabilité de Franck Fortuna. Le système du CSNSM est composé d'une colonne MEB et d'une colonne FIB à 60°, dont les faisceaux correspondants doivent coïncider sur la surface de la membrane à graver. Le porte-échantillon permet de disposer les membranes perpendiculaires au faisceau d'ions pour la gravure ; il est possible de suivre son évolution avec les images MEB prises sous 60° d'angle par rapport à la normale. Les ions sont émis, à partir d'une source de gallium liquide, par une pointe avec un courant d'extraction régulé à 2 μ A. Ces ions sont ensuite accélérés dans la colonne par une tension de 30 KV. Le courant du faisceau d'ions sur l'échantillon est régulé par différents diaphragmes. La gravure s'effectue par un balayage du faisceau d'ion point par point sur la surface de la membrane. Sur chaque point est déposée une dose d'ions qui est fonction des conditions de courant et du temps de pose par point. Ce sont les principaux paramètres à régler suivant la résolution désirée sur les échantillons. Pour les gravures effectuées, le courant généralement utilisé est de l'ordre de la dizaine de pico-ampère avec un temps de pose de l'ordre de la milliseconde par pixel. L'image du motif à graver est représentée par une matrice de 512 x 512 pixels balayés en plusieurs fois par le faisceau d'ion. Chaque pixel de cette image représente un point de gravure.

9.1.2 Le détecteur CCD UV-X

Le type de détecteur utilisé dans la gamme spectrale VUV jusqu'aux rayons X durs dépend de l'énergie des photons. Pour une détection UV-X (10-100 nm), les systèmes multicanaux utilisés généralement sont : soit les *galettes de micro-canaux (MCP) couplées à un écran phosphore* avec détection sur un CCD visible, soit un *détecteur CCD* en illumination directe. Les avantages d'un système sont généralement ce qui manque à l'autre. L'imagerie et la microscopie X préfèrent le CCD qui présente une meilleure efficacité de détection et une très bonne résolution spatiale. L'inconvénient majeur est sa forte sensibilité au rayonnement IR, contrairement aux galettes de micro-canaux. Son utilisation avec une source harmonique requière un soin particulier à la suppression des photons IR du laser de génération (voir chapitre 4).

On utilise une CCD UV-X PI-MTE pour la détection des figures de diffraction. Ce détecteur est largement utilisé dans la communauté diffraction X. Il est également utilisé dans le senseur de front d'onde Shack-Hartmann. C'est une caméra dite « à tête déportée » où le bloc caméra compact, de 116 x 80 x 60 mm, est compatible avec un vide de 10^{-7} . Les dimensions de la matrice CCD sont de 2048 x 2048 pixels carrés de 13.5 μ m de côté. Le CCD peut être refroidi à -40°C au moyen d'une cellule Peltier avec un système d'évacuation de la chaleur par circulation d'eau.

Conversion photons-ADU.

Le nombre moyen de paires électron-trou γ_e généré pour un photon incident sur la couche active du CCD est donné par la relation :

$$\gamma_e = \frac{E_{ph}[eV]}{3.65}$$

L'interaction d'un photon avec le silicium produit un électron par tranche de 3,65 eV de l'énergie du photon incident. Un photon à 39 eV de l'harmonique h25 à 32 nm produit $\gamma_e = 10$ paires électron-trou. Le nombre de photo-événements créés doit prendre en considération la probabilité effective d'interaction du photon incident avec la couche active sur le CCD : c'est l'efficacité quantique du détecteur. Pour maximiser l'efficacité quantique, la technologie dite d'illumination en face arrière (back illumination) permet une interaction directe des photons avec la couche active sans traverser la matrice d'électrodes. Pour la caméra PI-MTE utilisée, l'efficacité quantique est de 40% dans une plage de 30 à 100 eV. On obtient le nombre de photo-événements en fonction du nombre de photons N_{ph} incidents sur le CCD :

$$N_e = \gamma_e Q N_{ph}$$

Où Q est l'efficacité quantique du CCD. L'information numérique est donnée par la caméra sous forme d'un événement numérique « ADU » ou « count ». Pour une caméra 16 bits, un pixel est codé (en niveau de gris) de 0 à 65535 ADU. Si l'on admet que tous les photo-électrons N_e , créés par l'incidence de N_{ph} photons, sont collectés sur un même pixel, la valeur en ADU de ce pixel est donnée par :

$$ADU = \frac{N_e}{G} = \frac{\gamma_e Q N_{ph}}{G}$$

Où G représente le gain de conversion photo-électrons/ADU de l'étage lecture-amplification de la matrice CCD. Pour le CCD utilisé, le gain de conversion est de 1.3 électron/ADU (lecture à 1 MHz), réglé et mesuré en usine (réglage interne au capteur). La capacité d'un pixel (dynamique) est de 80000 électrons, ce qui correspondra à la valeur de saturation. Cette valeur est un peu inférieure à la capacité de codage sur 16 bits.

Bruit de lecture-amplification.

Le bruit de détecteur et les sources parasites se superposent au signal. On peut obtenir leur caractéristique par une acquisition sans signal du « bruit de fond ». Pour la CCD UV-X PI-MTE utilisée pour l'expérience, avec le « chip CCD » refroidi à -40°C , le bruit de détecteur est principalement influencé par le bruit de lecture-amplification électronique. Pour une température du capteur de -40°C , le constructeur donne une valeur de charge d'obscurité (« dark charge ») de 0.05 e^- par pixel pour un temps de pose de 100 secondes. Le bruit de lecture-amplification électronique est caractérisé par un écart-type moyen de la variation du signal pixel par pixel. Le constructeur donne une valeur $\sigma_l = 8.8 e^-$ pour une fréquence de lecture de 1MHz. Avec une conversion 1.3 e^- /ADU, on obtient une valeur de $\sigma_l = 6.8$ ADU qui est à comparer avec la valeur mesurée Figure 9.3 de 8.9 ADU. On considérera les propriétés statistiques (moyenne et écart type) du bruit de lecture-amplification identique sur toute la fenêtre de détection.

Si l'on considère la variance du bruit de lecture exprimée en photoélectrons, $\sigma_l \sim 10 e^-$, dans les expériences de diffraction que l'on effectue avec un rayonnement à 39 eV (32 nm), elle est équivalente à la variance du bruit de photons (voir section 8.1.1) pour la détection de un photon – un photon génère 10 photoélectrons. Le bruit de lecture est équivalent au bruit de la détection, sur la couche active, de un photon. Le bruit de lecture-amplification n'est pas négligeable à cette

longueur d'onde contrairement à un rayonnement plus énergétique (synchrotron), d'énergie supérieure à la centaine d'eV. Il ne faut pas oublier que les fonctions de distribution entre ces deux statistiques sont différentes. Celle du bruit de lecture-amplification est essentiellement gaussienne (Figure 9.3), alors que le bruit de photon suit une loi de Poisson d'écart type $\sqrt{QN_{ph}}$ avec N_{ph} le nombre de photons incident sur le détecteur et Q l'efficacité quantique. Le rapport signal sur bruit (SNR) d'une acquisition englobant une source de bruit de photons et un bruit au moment de la lecture-amplification du CCD est exprimé en photons détectés par :

$$SNR = \frac{Q N_{ph}}{\sqrt{Q N_{ph} + \left(\frac{\sigma_l}{\gamma_e}\right)^2}}$$

Et en photoélectrons par :

$$SNR = \frac{N_e}{\sqrt{\gamma_e N_e + \sigma_l^2}} \quad (9.1)$$

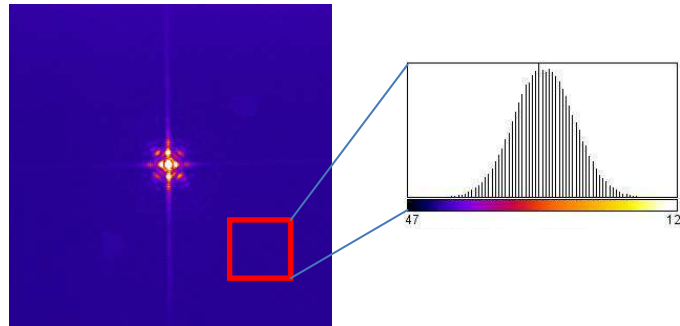


Figure 9.3 : image d'une acquisition (en fausse couleur) avec représentation de la distribution statistique dans une zone hors signal. La déviation standard (écart type) de cette distribution est de 8.9 ADU.

Le « binning ».

Le « binning » consiste à regrouper le signal de plusieurs pixels adjacents d'une image en un seul pixel. Deux options de « binning » peuvent être utilisées sur la caméra PI-MTE : le « software binning » et le « hardware binning ». Le software binning n'a pas vraiment d'intérêt pendant le processus de détection puisqu'il consiste à effectuer un binning logiciel post acquisition. Cette opération est équivalente à un filtrage spatial des données de diffraction par convolution avec une fonction rectangle de largeur égale aux nombre de pixels que l'on souhaite regrouper. Cette opération constitue un « lissage local » des données avec pour conséquence d'améliorer le SNR d'un facteur égal à la valeur du binning : $B = \sqrt{b}$, avec b le nombre de pixels regroupés. Il est cependant très important de noter que le software binning ne modifie en rien les propriétés statistiques intrinsèques de la figure de diffraction et de l'information qu'elle contient. La transformation de Fourier de la figure de diffraction donne l'autocorrélation de l'objet. Le filtrage ou le binning, qui a un effet sur les bords de l'image, ne doit pas affecter la partie qui contient de l'information, c'est à dire, la zone contenant l'autocorrélation. Cela

démontre bien que le software binning, à condition qu'il soit appliqué convenablement, n'intervient en rien sur le signal utile contenant l'information sur l'objet.

Au contraire, le hardware binning, aura un impact sur l'information contenue dans les données enregistrées. Il intervient pendant la lecture de la matrice CCD, et plus précisément, avant le processus de lecture-amplification. Le hardware binning permet, en combinant les photo-événements de plusieurs pixels adjacents, d'augmenter le nombre de photo-événement du pixel résultant. Il faut noter que la variance du bruit de lecture-amplification de ce même pixel reste elle inchangée. Considérons le nombre N_e de photo-événements pour une acquisition, identique pour chaque pixel regroupé, et B la valeur du hardware binning. Le SNR associé au processus de lecture-amplification s'exprime (en photo-événement) comme :

$$SNR = \frac{N_e}{\sigma_l/B^2}$$

Le hardware binning permet une évolution en B^2 (égale au nombre de pixels groupés) du SNR de la figure de diffraction. Il est très important de noter que le hardware binning, effectué après la détection des photons, n'a aucune influence sur les propriétés statistiques associées. Le hardware binning n'influence pas la statistique du bruit de photon tout comme le software binning n'influence pas la statistique globale de la figure de diffraction. Sous ces considérations, j'introduis le terme de « *SNR effectif* » qui prend seulement en considération la statistique de l'information contenue dans la figure de diffraction enregistrée. Le *SNR effectif* d'une figure de diffraction enregistrée avec un hardware binning B est donnée par :

$$SNR_{effectif} = \frac{N_e}{\sqrt{\gamma_e N_e + (\sigma_l/B^2)^2}}$$

Sans hardware binning ($B = 1$), cette dernière relation est équivalente à la relation (9.1). D'une façon générale, pour modifier les propriétés statistiques de l'information enregistrée dans un processus de détection, il faut intervenir avant que le processus en question prenne effet.

Optimisation de la détection.

L'optimisation de la détection d'une figure de diffraction, en considérant seulement le bruit de photons et le bruit de lecture, comprend deux parties.

Premièrement, il faut optimiser le SNR associé au bruit de photon. Le SNR évolue en racine carré du nombre de photons détectés, donc il faut maximiser le nombre de photons détectés par pixel. Outre les considérations sur l'efficacité de diffraction de l'échantillon (voir chapitre 8) ou le temps d'exposition, il faut optimiser l'échantillonnage de la figure de diffraction en respectant les conditions de sur-échantillonnage (voir chapitre 6) et les conditions de détection, notamment le champ lointain (voir chapitre 5). Expérimentalement, on peut intervenir sur les conditions de sur-échantillonnage en modifiant la distance échantillon-CCD, ou bien en choisissant une taille de pixel de caméra adéquate.

Deuxièmement, concernant le bruit de lecture-amplification (le readout noise), l'écart-type associé à sa statistique dépend seulement de la fréquence de la chaîne de lecture CCD-amplification. Le SNR lié au bruit de lecture du CCD peut être optimisé par :

- la diminution de la vitesse de lecture du chip : 100 kHz contre 1MHz. Augmentation du SNR avec la diminution de l'écart-type du bruit de lecture : $\sim 8.8e^-$ pour 1MHz et $4e^-$ pour 100 kHz (données constructeur).
- l'utilisation de l'option *hardware binning*. Comme précisé précédemment, augmentation du SNR proportionnellement au nombre de pixels regroupés par l'addition du signal provenant de plusieurs pixels en un pixel effectif avant lecture.

Le graphe ci-dessous permet de définir séquentiellement les différentes étapes de l'acquisition-traitement numérique d'une image et les sources de bruit associées.

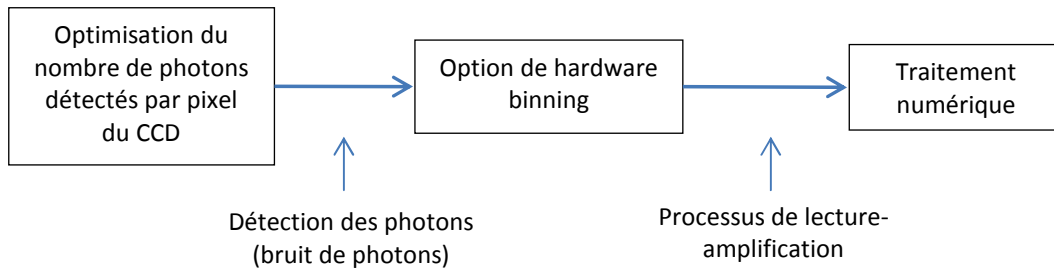


Figure 9.4 : processus séquentiel de détection.

9.2 Résultats de diffraction cohérente

9.2.1 Caractéristiques de l'expérience de diffraction

Le schéma de diffraction est présenté Figure 9.5 suivi d'un récapitulatif des paramètres de l'illumination sur l'échantillon Tableau 9.1 et des paramètres de diffraction Tableau 9.2. Le dispositif de diffraction est constitué de l'échantillon et du détecteur CCD qui enregistre la figure de diffraction. L'illumination de l'échantillon est obtenue après focalisation par l'optique parabolique (section 4.1).

Les expériences de diffraction (et d'holographie) sont effectuées sous les hypothèses suivantes (section 5.2 et 5.3) :

- échantillons sous approximation de projection caractérisés par des transmittances en 2 dimensions.
- diffraction dans le régime de Fraunhofer où la figure de diffraction est proportionnelle au module carré de la transformée de Fourier de la transmittance de l'objet.

Le régime de Fraunhofer doit satisfaire deux contraintes que sont la détection en champ lointain et l'approximation de faible ouverture de diffraction (approximation paraxiale). La condition de champ lointain est respectée si le nombre de Fresnel est inférieur à un. Avec les caractéristiques du dispositif de diffraction utilisé, cette condition est satisfaite et le nombre de Fresnel est de l'ordre de 0.025 pour un rayonnement de 32 nm. La validité de l'approximation paraxiale est estimée en considérant l'erreur relative sur le développement de $\kappa = \sqrt{k_0^2 - k_\perp^2}$ (voir annexe) pour l'ouverture de diffraction maximum, c'est-à-dire la valeur maximum des fréquences spatiales $k_{\perp\max} = 2\pi \sigma_{\max}$ détectées sur la figure de diffraction. En utilisant le critère de résolution de la demi-période (relation 8.1) :

$$r = \frac{1}{2 \sigma_{\max}} = \frac{\pi}{k_{\perp\max}}$$

On peut estimer l'erreur relative en fonction de la résolution souhaitée sur les images reconstruites. Si on se limite à 60 nm de résolution avec une illumination à 32 nm de longueur d'onde, l'erreur relative sur le développement de κ est inférieure à 1/1000 ce qui valide l'approximation paraxiale de même que le régime de diffraction de Fraunhofer. La résolution est reliée aux paramètres physiques de la configuration de diffraction par la relation :

$$r = \frac{\lambda z}{L}$$

L'angle d'ouverture de diffraction θ est donnée par : $\tan \theta = \frac{L}{2z}$

Etant donné que l'on est dans approximation paraxiale, on considérera : $\tan \theta \sim \theta \sim \sin \theta$

L'ouverture maximum de diffraction pour une résolution de 60 nm est de 15.5°.

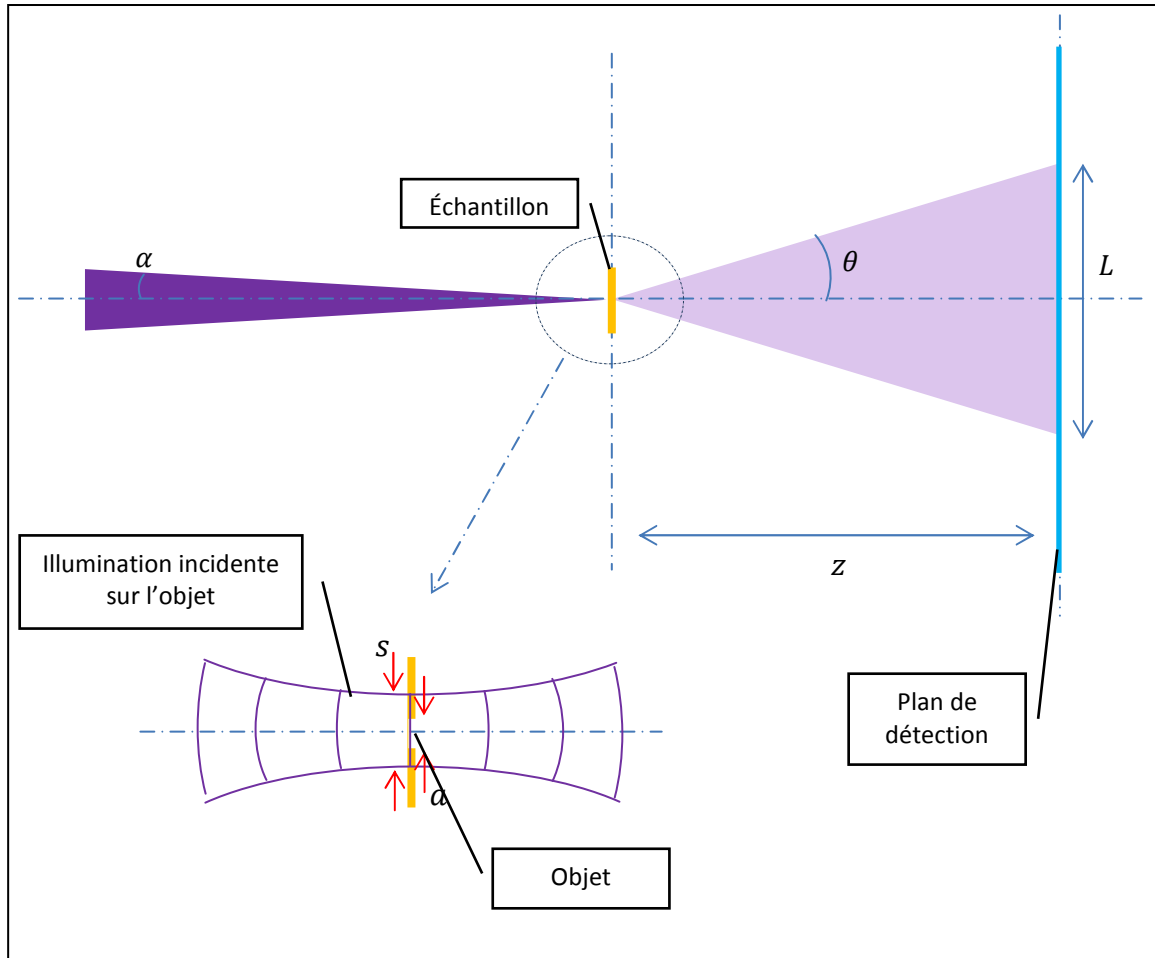


Figure 9.5 : Schéma de la géométrie de diffraction. Le détecteur est situé à une distance z de l'échantillon. L'angle θ représente l'ouverture de diffraction qui couvre une étendue L sur le détecteur.

Nombre de photons	(mesure) $\sim 10^8$
Taille du spot focal	(mesure) $s \approx 5 \mu\text{m}$
Eclairement sur l'échantillon	(estimation) 10^{12} W/cm^2
Fluence sur l'échantillon	(estimation) 20 mJ/cm^2
Largeur spectrale	(mesure) $\lambda/\Delta\lambda \sim 50$
cohérences transverse	(mesure) 85 % sur $5 \mu\text{m}$
Divergence du faisceau	(estimation) $\alpha = 9 \text{ mrad}$
Durée d'impulsion	(estimation) 20 fs
Taux de répétition	20 Hz
Distance parabole-plan focal	22 cm

Tableau 9.1 : principaux paramètres de la source

Taille moyenne des objets	$a = 4 \mu\text{m}$
Demi-angle soutenu par le CCD	35°
Demi-angle soutenu pour 60 nm de résolution	15.5°
Distance objet-CCD	$\sim 20 \text{ mm}$
Sur-échantillonnage linéaire	11
Nombre de Fresnel	0.025

Tableau 9.2 : principaux paramètres de diffraction

L'aspect particulièrement important pour le dispositif d'imagerie par diffraction concerne les propriétés de l'illumination de l'échantillon. Trois points sont à considérer : l'homogénéisation en amplitude et en phase de l'onde incidente, la cohérence et la fluence. Le signal transmis et diffracté par l'échantillon est proportionnel à la fluence de l'illumination sur cet échantillon (chapitre 8). Cela constitue un aspect important dans la mesure où l'objectif des expériences présentées dans la suite est l'imagerie simple tir, ce qui implique un signal diffracté important. Pour pouvoir maximiser la fluence sur l'échantillon, on focalise le rayonnement harmonique sur une tache focale de faible dimension. Cette dimension va restreindre la surface des échantillons utilisés, c'est à dire la zone perforée sur les membranes. Ces dimensions devront être inférieures à la taille du spot focal, de l'ordre de $4 \times 4 \mu\text{m}$, pour pouvoir assurer une homogénéisation de l'illumination.

Ensuite, vient la détermination du paramètre de sur-échantillonnage linéaire (section 6.1). Le paramètre de sur-échantillonnage va conditionner les paramètres physiques du dispositif de diffraction. On cherchera à limiter sa valeur pour optimiser la détection (section 9.1.1) tout en respectant le besoin associé au processus de reconstruction de la phase (section 7.1.1). La taille des pixels du CCD utilisé induit une valeur importante du paramètre de sur-échantillonnage. Il est inutile d'avoir un paramètre de sur-échantillonnage trop important car cela diminue le nombre de photons par pixels, et donc le SNR de l'enregistrement. Bien que le nombre de Fresnel nous le permette, des contraintes expérimentales d'encombrement nous empêchent de diminuer la valeur du sur-échantillonnage par une diminution de la distance échantillon-CCD.

Le faisceau incident sur l'échantillon est théoriquement considéré comme un faisceau gaussien transversalement cohérent. Si l'on considère l'échantillon disposé dans le plan de focalisation de ce faisceau gaussien, le front d'onde sur l'échantillon est plan. La divergence du faisceau après focalisation est estimée à 9 mrad pour un paramètre confocal de l'ordre de 2.5 mm. Expérimentalement, les aberrations et autres défauts sur la focalisation (section 4.2) font que le paramètre confocal est très réduit. De ce fait, les conditions de l'illumination vont varier rapidement en fonction de la position des échantillons par rapport au plan focal. Expérimentalement, la disposition des échantillons suivant les trois axes est effectuée en optimisant le signal diffracté. Comme on le verra dans la suite, certaines particularités sur l'illumination et la stabilité du front d'onde sur les échantillons vont contraindre les capacités de reconstruction. Les défauts de cohérence vont avoir pour effet de limiter la capacité de reconstruction, particulièrement avec l'algorithme de reconstruction de la phase, et la qualité/résolution des reconstructions. Notamment, la cohérence longitudinale constitue une limitation théorique importante sur la résolution (voir relation 6.8). En considérant la largeur spectrale de l'harmonique h_{25} , cette limite de résolution est de l'ordre de 80 nm pour un échantillon de dimension $4 \mu\text{m}$ et 60 nm pour un échantillon de $3 \mu\text{m}$.

9.2.2 Acquisition de la figure de diffraction

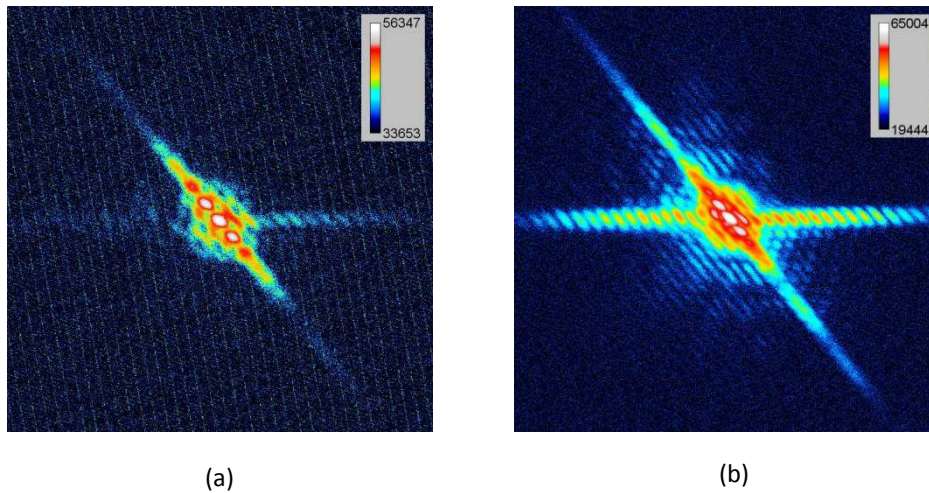


Figure 9.6 : figures de diffraction (échelle logarithmique en ADU) de l'acquisition (a) simple tir sur une fenêtre de 790 x 790 pixels et (b) 40 tirs sur une fenêtre de 1024 x 1024 pixels.

Les premières figures de diffraction reconstruites par algorithme de restitution de la phase ont été obtenues pour l'objet « note » (Figure 9.2). La Figure 9.6 présente deux figures de diffraction résultant d'acquisitions que l'on nommera « simple tir » et « multi-tirs », respectivement. Les photons incidents sur le CCD pour l'acquisition dite « simple tir » proviennent de la diffraction par l'échantillon d'une seule impulsion d'une durée de l'ordre de 20 fs issue de la source harmonique. Le temps pendant lequel l'échantillon va diffracter le rayonnement est donc égal à la durée de l'impulsion. Cela correspond au temps d'intégration pendant lequel on sonde l'échantillon, on mesure ses propriétés physiques /dynamiques. Dans une expérience pompe-sonde, permettant de déterminer l'évolution temporelle d'un processus, la durée de la sonde déterminera la résolution temporelle accessible. Il faut noter que l'on peut caractériser la mesure pompe-sonde comme la convolution entre le processus d'intérêt et la sonde qui joue alors un rôle équivalent à la PSF d'un système optique.

Le détecteur CCD est toujours actif et sensible aux photons incidents, même pendant sa lecture. Le taux de répétition de la source étant de 20 Hz, pour pouvoir isoler une seule impulsion et permettre au détecteur d'enregistrer l'acquisition, on utilise un obturateur mécanique sur le laser de génération. Les acquisitions multi-tirs correspondent à l'accumulation sur le CCD du signal provenant de la diffraction de plusieurs impulsions incidentes sur l'objet.

Les figures de diffraction Figure 9.6 représentent le signal (échelle logarithmique) enregistré en ADU par le CCD après soustraction du fond (voir section 9.1). Le nombre total de photons incidents sur le détecteur pour enregistrer la figure de diffraction en simple tir est de l'ordre de $5.1 \cdot 10^5$ photons. Il est de $7.4 \cdot 10^6$ photons pour une acquisition accumulant le signal de 40 impulsions, correspondant à un temps d'intégration de 2 secondes (temps d'ouverture de l'obturateur mécanique). On remarquera qu'il y a seulement un rapport de 14.5 entre les

nombres de photons incidents pour les deux acquisitions, en simple et multi-tirs. La différence provient simplement du fait que l'acquisition en simple tir a été sélectionnée pour son signal important parmi de nombreuses mesures, alors que l'enregistrement en multi-tirs est plus représentatif du signal moyen diffracté, multiplié par le nombre de tirs.

La figure de diffraction en simple tir est représentée dans une fenêtre de 790 x 790 pixels correspondant à une demi-largeur en fréquence spatiale égale à $\sigma = 8.3 \mu\text{m}^{-1}$, qui est donnée par :

$$\sigma = \frac{N \Delta}{2 \lambda z}$$

Avec une taille de pixel de $\Delta = 13.5 \mu\text{m}$ et une distance échantillon-CCD de $z = 20 \text{ mm}$. La résolution maximale accessible, équivalente à la taille du pixel sur l'image reconstruite, est estimée à 60 nm (critère de la demi-période). Pour la figure de diffraction sur 40 tirs, on a $\sigma = 10.8 \mu\text{m}^{-1}$ pour une taille de pixel sur l'image reconstruite de 46 nm.

9.2.3 La reconstruction par algorithme itératif

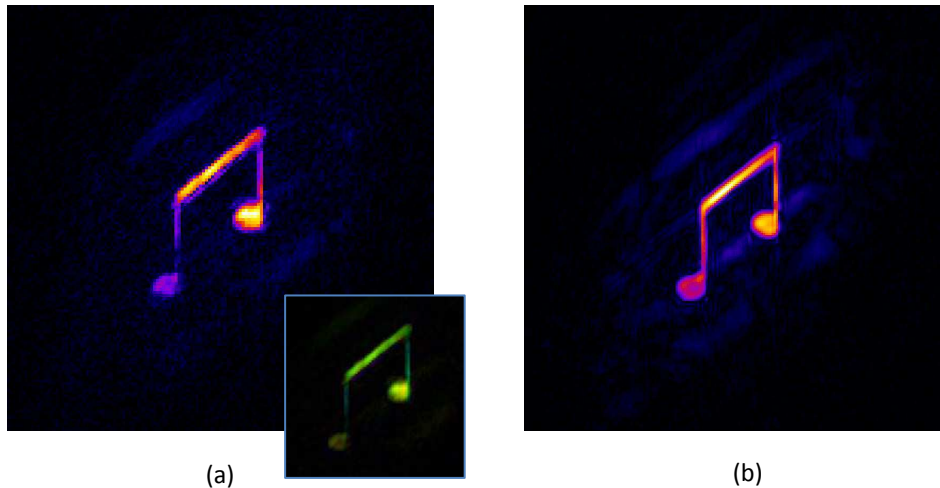


Figure 9.7 : reconstruction de l'objet « note » à partir des figures de diffraction Figure 9.6 (a) en simple tir et (b) en 40 tirs.

Les reconstructions de l'objet « note » Figure 9.7 ont été effectuées par Filipe Maia (Uppsala, Suède) en utilisant un programme de reconstruction, nommé HAWK [99], qu'il a développé pendant ses travaux de Thèse. La procédure de reconstruction appliquée sur les deux figures de diffraction simple et multi-tirs comprend une étape de filtrage des données et deux étapes de reconstructions. Le filtrage a pour objectif de supprimer un maximum de bruit sur la figure de diffraction. Il est effectué par application d'un filtre passe-bas qui, dans l'espace réciproque de la figure de diffraction, correspond aux contours de l'autocorrélation. Une première reconstruction est effectuée en utilisant l'algorithme HIO avec la procédure « shrinkwrap » qui détermine un

support le plus compact possible, c'est-à-dire très proche des contours de l'objet. Cette reconstruction est très « réactive » mais peu finalisée. Elle permet d'obtenir un support de l'objet relativement bien défini sachant que, pour nos objets binaires, le support est théoriquement équivalent à la reconstruction en elle-même. Ensuite, 80 reconstructions indépendantes sont effectuées avec l'algorithme RAAR en utilisant le support préalablement défini comme support fixe pour chaque itération. La reconstruction de l'objet est obtenue comme la moyenne du résultat de ces 80 reconstructions.

La [Figure 9.7](#) représente la magnitude des reconstructions complexes de l'objet. L'encart sur la [Figure 9.7 \(a\)](#) représente la phase de la reconstruction en simple tir. Comme cela doit être, la qualité et la résolution apparente de la reconstruction en 40 tirs sont meilleures que dans la reconstruction en simple tir. Cependant, toutes les caractéristiques présentes dans la reconstruction multi-tirs se retrouvent dans la reconstruction simple tir, ce qui valide la fidélité des reconstructions, notamment en simple tir. La principale caractéristique que l'on voit sur ces reconstructions concerne un contraste plus faible d'une partie de l'objet. Cela est dû à une dégradation de celui-ci comme on le précisera dans la suite.

9.2.4 Le PRTF et l'estimation de la résolution

L'image obtenue par reconstruction itérative de la phase comporte toujours une indétermination. Le résultat de chaque itération est différent bien qu'il converge généralement vers la solution, que l'on espère unique. Les différences d'une itération à l'autre portent principalement sur les détails de l'objet qui demandent une résolution importante. L'algorithme a en effet du mal à trouver une valeur de phase « correcte » aux composantes spectrales élevées, qui sont généralement les plus bruitées. Pour approcher la solution réelle, il est nécessaire de combiner plusieurs reconstructions. Statistiquement, les artefacts de reconstruction vont diminuer, ainsi que la résolution. Donc, la résolution des images reconstruites est limitée par la reconstruction de la phase par l'algorithme itératif, limité lui-même par le signal de la figure de diffraction.

Le PRTF, pour « phase retrieval transfer function », consiste à comparer la figure de diffraction reconstruite à la figure de diffraction expérimentale. Le PRTF s'exprime comme le rapport entre la transformation de Fourier de la reconstruction complexe Ψ et la donnée de diffraction I :

$$PRTF(\sigma) = \frac{|\mathcal{F}\{\Psi\}|}{\sqrt{I}}$$

Cette fonction est censée refléter la fidélité de la reconstruction de la phase. Elle intègre du même coup les « défauts » de l'acquisition des données (bruit, donnée perdue, etc.) et de la reconstruction [81, 88]. Cela représente alors une estimation de la fonction de transfert du système optique que constitue le schéma d'imagerie sans lentille CDI. Les fonctions PRTF pour les reconstructions précédentes sont présentées [Figure 9.8](#). L'axe des abscisses est gradué en fréquence spatiale (σ). À partir d'un critère de coupure en $1/e$, on définit une fréquence spatiale maximum nous permettant d'estimer la résolution maximale de la reconstruction en utilisant le critère de la demi-période $r = 1/(2 \sigma_{max})$. Cela nous donne une résolution de 115 nm pour la reconstruction simple tir et de 61 nm pour la reconstruction 40 tirs.

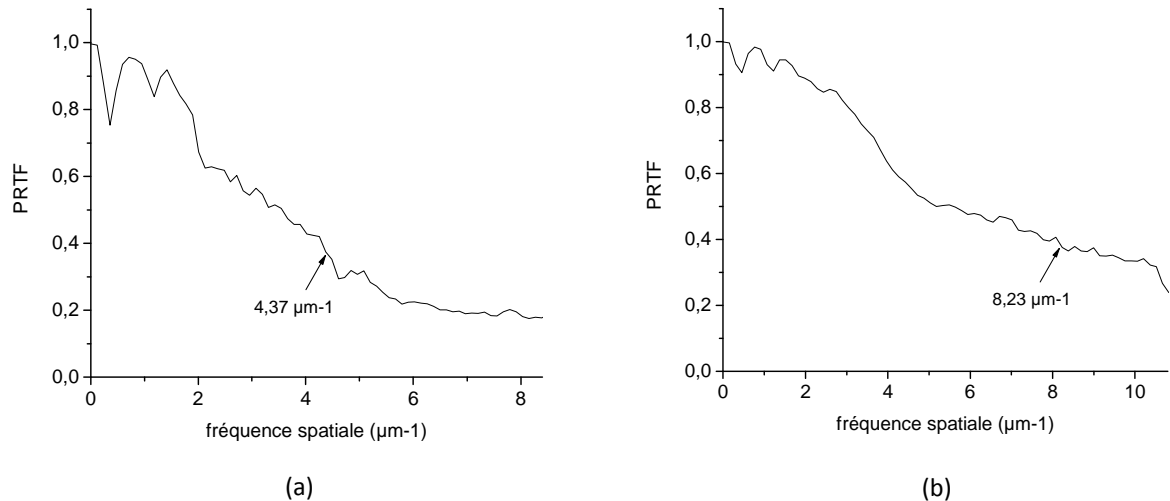


Figure 9.8 : PRTF des reconstructions précédentes (a) en simple tir et (b) en 40 tirs.

9.2.5 Retour sur les propriétés de l'illumination

Les reconstructions de l'objet « note » en simple et multi-tirs nous apporte des informations sur l'objet lui-même et son évolution pendant la campagne expérimentale mais aussi sur les conditions d'illumination, notamment la stabilité du faisceau. La comparaison du nombre de photons incidents entre l'acquisition simple tir et multi-tirs nous renseigne sur les fluctuations en intensité des impulsions UV-X. Le nombre moyen de photons incident sur le CCD, pour l'acquisition multi-tirs, est de l'ordre de $1.9 \cdot 10^5$ photons ; l'acquisition simple tir ($5.1 \cdot 10^5$ photons) peut donc être associée une limite haute du flux UV-X. On en déduit des fluctuations en intensité relativement faibles sur l'échantillon.

Pour l'acquisition multi-tirs, le phénomène le plus important concerne la stabilité du pointé du faisceau sur l'échantillon. La stabilité en intensité et en phase est cruciale pour pouvoir effectuer une acquisition sur plusieurs tirs laser. La figure de diffraction résultant d'une acquisition multi-tirs correspond à la somme des intensités diffractées pour chaque tir, qui est par conséquent une somme incohérente. Si l'onde transmise par l'objet pour chaque impulsion est différente, il y a une somme incohérente de contributions différentes, avec pour conséquence la diminution de la visibilité des speckles. Si l'on effectue la transformation de cette figure de diffraction, on obtient une distribution qui est incompatible avec l'autocorrélation de l'objet, sauf sur la définition de son support qui est identique au support de l'autocorrélation de l'objet. Cela provient d'une propriété de nos objets test qui constituent en eux-mêmes un support indépendant de l'illumination. Cependant, bien que la fonction ait un support très compact et identique au support de l'autocorrélation de l'objet, cela ne garantit pas que l'algorithme de phase détermine un bon support pour la reconstruction. Il est impossible pour l'algorithme de phase de satisfaire les deux contraintes sur le support et sur une phase unique associée à la somme des intensités diffractées. Quand l'acquisition correspond à un nombre de tirs important et/ou une forte instabilité du pointé, la reconstruction échoue systématiquement. Dans une situation moins critique, la reconstruction est instable mais possible. L'algorithme défini mal le support de

l'objet qui a tendance à rester identique à celui de l'autocorrélation de l'objet. Donc la reconstruction présente un bruit important lui-même borné par l'autocorrélation de l'objet (Figure 9.9). Il faut noter que ce défaut de reconstruction peut être intrinsèque à l'algorithme de reconstruction. Cela pourrait alors expliquer le fait que l'on observe un effet similaire sur la reconstruction en simple tir. Cependant, l'effet est relativement moins important que sur la reconstruction multi-tirs, malgré la difficulté que l'algorithme doit avoir à exploiter l'information de la figure de diffraction en simple tir (Figure 9.9 (c)). Pour expliquer la similitude simple tir/multi-tirs, il faut considérer que la somme incohérente des intensités diffractées est équivalente à un défaut de cohérence transverse de l'illumination. Le défaut sur les reconstructions pourrait donc être globalement attribué à un problème de cohérence transverse de l'illumination. Dans ce cas, la « cohérence équivalente » pour un enregistrement sur 40 tirs est plus mauvaise que la cohérence, estimée à 85%, de l'illumination simple tir.

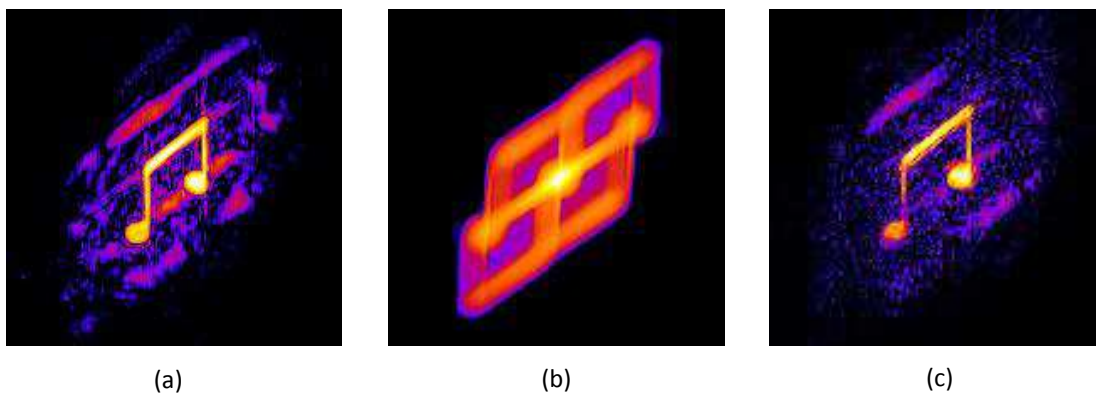


Figure 9.9 : (a) la reconstruction représentée en échelle logarithmique et (b) la transformée de Fourier de la figure de diffraction pour l'acquisition sur 40 tirs. (c) représentation (en échelle logarithmique) de la reconstruction en simple tir.

9.2.6 Dommages aux échantillons

Les images reconstruites de l'objet permettent d'obtenir une information sur l'évolution des échantillons au cours de la campagne expérimentale. L'échantillon initial (Figure 9.2) a subi une modification que l'on peut observer sur l'image reconstruite de l'acquisition multi-tirs, mais aussi simple tir. Ces modifications sont vérifiées a posteriori par microscopie MEB. Les modifications se caractérisent par un « remplissage » des parties initialement débouchantes de l'échantillon, phénomène inverse de l'ablation. Il semble que les bords de la membrane de SiC débordent et obstruent les parties gravées sur l'objet. On observe, en accord avec les images MEB, que les parties affectées correspondent à celles où le contraste est limité sur les images reconstruites.

Pendant l'expérience de diffraction, l'échantillon est exposé à des impulsions de 20 fs, à un taux de répétition de 20 Hz (fréquence du laser), ou bien à la fréquence d'un tir toutes les 5 secondes (fréquence d'acquisition du CCD), pendant plusieurs minutes jusqu'à l'heure, avec répétition sur

plusieurs jours. Les images MEB [Figure 9.10](#) illustrent l'évolution de l'échantillon pour trois durées d'exposition différentes.

Une analyse des dommages causés à un échantillon par l'irradiation LEL a été effectuée dans des conditions similaires aux nôtres, soit pour une exposition à 15 impulsions de 25 fs à 32.5 nm [121]. Cette analyse donne un seuil de dommage pour le SiC de 140 mJ/cm², estimé en analysant les modifications des surfaces irradiées. Les auteurs remarquent qu'à faible fluence par tir, l'échantillon subit ce qu'ils appellent une « extrusion », c'est-à-dire que la surface « gonfle ». Ce comportement est tout à fait équivalent à celui que l'on observe avec le rayonnement harmonique. Dans le régime de faible fluence, les effets thermiques qui prédominent sont du type fusion et mouvement fluide sur des échelles de temps supérieures à 1 ps.

Dans notre cas, on peut estimer un éclaircissement crête sur les échantillons de 10¹² W/cm², ce qui correspond à une fluence par impulsion de ~ 20 mJ/cm² au maximum. Si l'on se base sur une fluence moyenne par impulsion de l'ordre de 10 mJ/cm², cela signifie, en accord avec [121], que les premières modifications notables ([Figure 9.10](#)) interviendraient rapidement après une dizaine d'expositions. L'estimation du nombre d'expositions pendant la campagne d'expérience atteint facilement les 3000, ce qui explique l'évolution importante de l'échantillon.

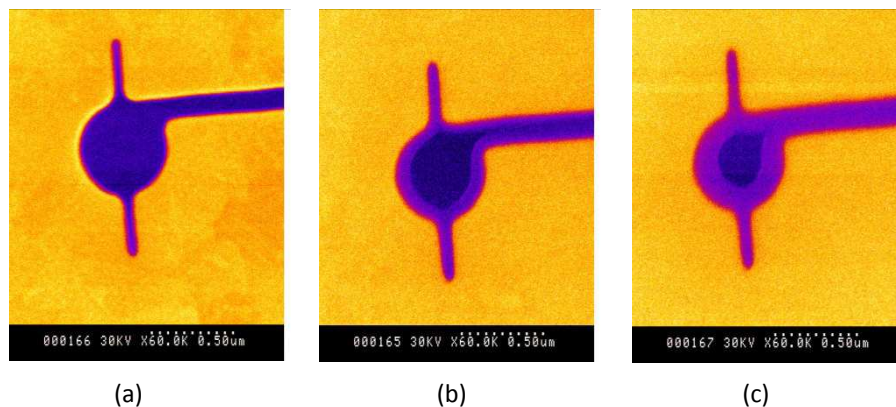


Figure 9.10 : évolution, de (a) à (c), de l'échantillon en fonction de la durée d'exposition.

9.2.7 Autres reconstructions

Objet « Eiffel ».

Des figures de diffraction ont été acquises pour l'échantillon « Eiffel » ([Figure 9.2](#)). La reconstruction à partir de ces figures est plus difficile que pour l'objet « note ». La figure de diffraction de l'objet « Eiffel » présente un signal de diffraction, un « SNR moyen », plus faible que pour l'objet note. Le nombre de photons transmis par l'objet « Eiffel » est cependant du même ordre que celui de l'objet « note », l'objet « Eiffel » étant plus grand (6 x 4 μm contre 3 x 3 μm). La différence tient à une configuration et une distribution des speckles bien plus complexes, l'objet lui-même étant plus « complexe ». En accord avec les considérations

théoriques du chapitre 8, la complexité de l'objet entraîne une complexité de sa figure de diffraction. L'objet « note » diffracte principalement dans deux directions, alors que l'objet « Eiffel » diffracte de façon plus homogène dans les deux dimensions de l'espace. En conséquence, la fluence moyenne par pixel s'en trouve diminuée ainsi que le SNR. Contrairement à l'objet Eiffel, l'objet note a été dessiné pour optimiser une diffraction exploitable en simple tir et permettre une reconstruction.

En conséquence, une acquisition simple tir n'est pas exploitable pour l'objet Eiffel, seule une acquisition sur un temps de pose important permet d'obtenir suffisamment d'information pour l'algorithme de reconstruction. Néanmoins, l'instabilité du pointé fait que la plupart des acquisitions qui ont suffisamment de signal sont inexploitable, la sensibilité au pointé étant accentuée par la taille plus importante de l'objet et donc plus petite de ses speckles. Une reconstruction, effectuée par Pierre Thibault, a quand même été possible pour une acquisition sur 400 tirs (Figure 9.11). Sur l'autocorrélation, on distingue l'image de la tour Eiffel par sa corrélation avec le motif juxtaposé qui représente un soleil (ou une étoile). La reconstruction, effectuée avec une procédure HIO, permet de distinguer relativement bien tout l'objet malgré la reconstruction « moyenne » du « soleil ». Il faut noter que cela peut refléter les dégradations subies par ce motif, plus fin que le reste de l'objet, pendant son exposition.

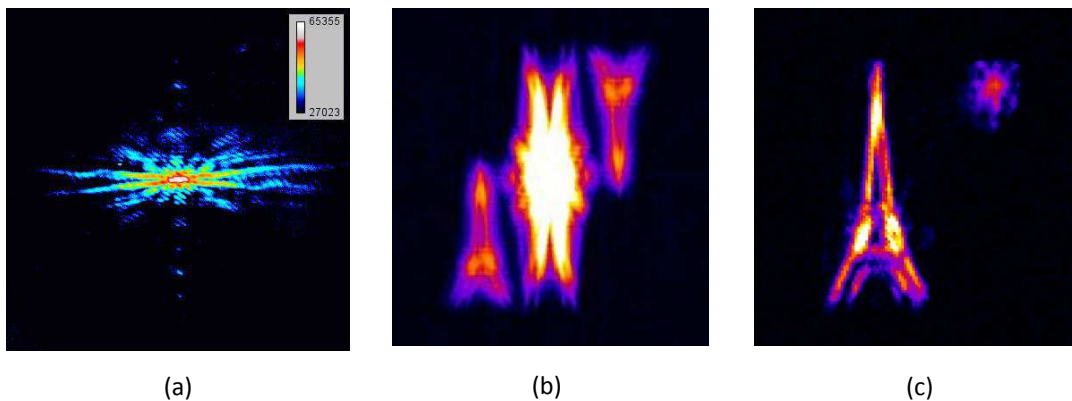


Figure 9.11 : (a) figure de diffraction de l'objet « Eiffel » pour une acquisition sur 20 secondes (400 tirs). La figure présentée est « binnée » par 4 et renormalisée sur 65355 ADU. (b) transformation de Fourier de la figure de diffraction et (c) reconstruction de l'objet.

Objet « lambda ».

La dernière reconstruction concerne l'objet « lambda » (Figure 9.12). Ses dimensions sont de $2.58 \times 4.1 \mu\text{m}$. Cette dernière expérience en configuration CDI a été réalisée dans l'objectif d'améliorer la résolution obtenue pour une reconstruction à partir d'une acquisition de la figure de diffraction en simple tir. Elle intervient après une optimisation de la focalisation sur l'échantillon et une amélioration du transport optique du faisceau harmonique. De plus, le dessin peu complexe de l'échantillon a pour objectif de simplifier la distribution des speckles sur la figure de diffraction et donc de maximiser le signal enregistré.

La figure de diffraction (Figure 9.12 (a)) est enregistrée en simple tir avec $2.2 \cdot 10^6$ photons incidents sur le détecteur. La reconstruction finale (Figure 9.12 (b)) correspond à la moyenne des 30 meilleures reconstructions indépendantes obtenues en utilisant l'algorithme RAAR. 3000 itérations sont effectuées pour chaque reconstruction avec une variation du paramètre beta (voir section 7.1.2) de 0.9 à 0.6 après 2000 itérations. Le support initial de l'objet, comme pour la reconstruction de la note, est obtenu en utilisant la combinaison de la méthode SHRINWRAP avec l'algorithme HIO.

La résolution de la reconstruction en utilisant le critère en $1/e$ sur la fonction de transfert PRTF est de 78 nm. Cette résolution est à comparer avec la limitation théorique de 80 nm, conséquence de la largeur spectrale de l'illumination (voir section 9.2.1 et relation 9.1). On remarque sur la reconstruction que l'illumination de l'objet n'était pas uniforme au moment de l'acquisition de la figure de diffraction. Une estimation de la taille du spot focal à partir des dimensions de l'objet conduit à une taille équivalente à celle mesurée par le senseur de front d'onde (chapitre 4.2).

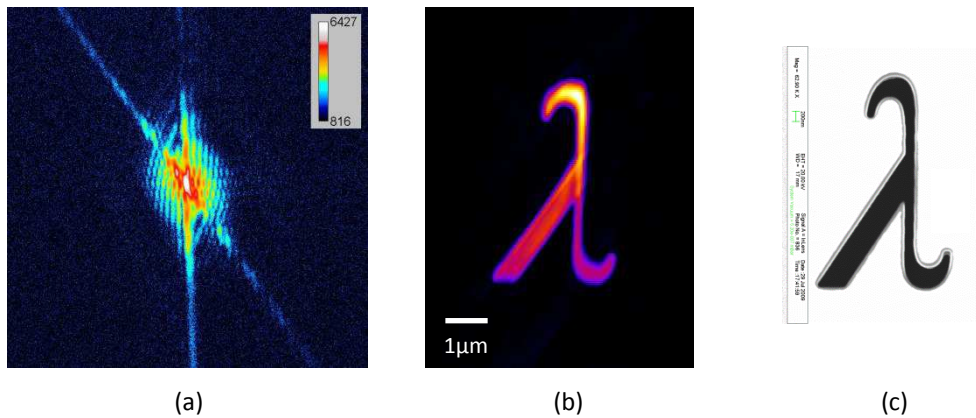


Figure 9.12 : (a) figure de diffraction (790 pixels, échelle logarithmique en ADU) mesurée en simple tir de l'objet « lambda » (c) image MEB) et sa reconstruction (b).

En comparaison avec la résolution donnée par le PRTF, j'introduis ici le critère de résolution « 10-90% ». Ce critère de résolution correspond à la transition d'intensité de 10% à 90% d'un bord de l'image. Il provient du critère de résolution d'un système optique donné par Rayleigh [122, 123]. Ce critère sera utilisé dans la suite pour estimer la résolution des reconstructions holographiques. Et cela parce qu'il n'y a pas d'équivalent au PRTF pour un schéma holographique, il est donc difficile d'estimer une fonction de transfert. La résolution s'estime comme étant le nombre de pixels n entre 10% et 90% sur le profil de l'intensité d'un bord de l'image multiplié par la taille d'un pixel de la reconstruction. Par exemple, la taille du pixel sur la reconstruction de l'objet « lambda » est de 45 nm. Avec une transition de l'ordre de 2 pixels, cela donne une résolution de 90 nm. On constate qu'il y a un accord sur la résolution donné par le critère sur le PRTF et le critère de transition « 10-90% ». Accord suffisant au vu de l'arbitraire de la définition des critères et de l'erreur sur la mesure.

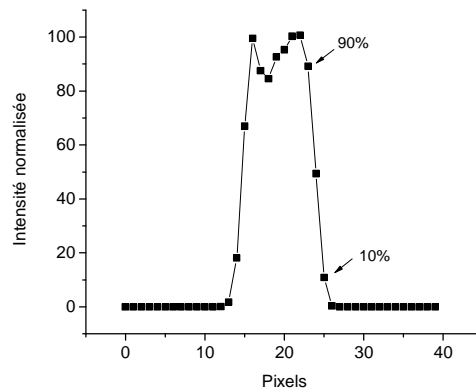
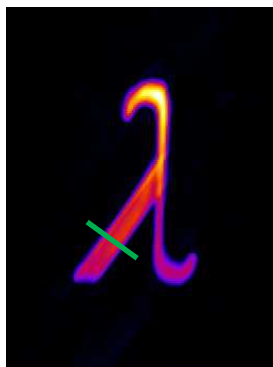


Figure 9.13 : transition 10-90% sur un bord de la reconstruction de l'objet.

10. Holographie avec référence étendue : HERALDO

10.1 Principe de la reconstruction HERALDO

HERALDO, pour « Holography with Extended Reference by Autocorrelation Linear Differential Operator », est la généralisation à de multiples formes de référence d'une nouvelle technique holographique proposée par Podorov *et al.* [107]. La procédure HERALDO a été développée par Manuel Guizar-Sicairos [108], avec lequel nous avons collaboré par la suite pour cette application sur la source harmonique. HERALDO est un schéma holographique par transformée de Fourier où la référence ponctuelle est remplacée par une référence en forme de polygone (triangles, rectangles, carrés, lignes etc.). C'est une configuration d'imagerie sans lentille sous approximation paraxiale, où la référence et l'objet constituent la transmittance à deux dimensions de l'échantillon. C'est dans cette configuration que ce schéma a été développé et expérimenté. Mais il serait possible de le généraliser à un objet en trois dimensions. Dans ce cas, le polygone deviendrait un polyèdre.

Le principe de reconstruction est basé sur l'application d'un opérateur différentiel linéaire à la figure d'autocorrélation obtenue par transformation de Fourier de l'hologramme. La combinaison de l'opérateur différentiel et de la forme de la référence, utilisée pour enregistrer l'hologramme, permet d'obtenir l'image de l'objet. Cette extension de l'holographie par transformée de Fourier, utilisant des références de formes plus diverses, conserve toutes les propriétés de la reconstruction directe, caractéristiques de l'holographie.

Le schéma HERALDO présente l'avantage de diminuer les contraintes associées à la référence holographique. Ces contraintes peuvent être « antagonistes » : nécessité d'une référence ponctuelle dont l'amplitude de diffraction est importante. Les dimensions de la référence constituent une limite intrinsèque à la résolution de l'image (voir chapitre 7.2) ; son efficacité de diffraction constitue une limite au signal enregistré, et donc indirectement à la résolution accessible après reconstruction (voir chapitre 8). L'utilisation d'une référence étendue rend plus efficace l'enregistrement de l'hologramme, dans lequel la contribution de la référence ne constitue plus une limitation (chapitre 8). Idéalement, la résolution est uniquement limitée par la qualité de fabrication des angles/bords de la référence, qui correspondent, après application de l'opérateur différentiel, à la taille du point source référence dans le schéma FTH classique. Ce dernier point sera plus amplement discuté dans le chapitre suivant.

Supposons que l'on sélectionne une référence étendue $r(x, y)$ et un opérateur différentiel linéaire $L^{(n)}\{.\}$, tels que lorsqu'on applique $L^{(n)}\{.\}$ à $r(x, y)$, on obtient entre autres une somme de fonctions de Dirac:

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

Où A est une constante de valeur complexe arbitraire, $L^{(n)}\{.\} = \sum_{k=0}^n a_k \frac{\partial^n}{\partial x^{n-k} \partial y^k}$ est un opérateur différentiel d'ordre n , a_k sont des coefficients constants. Le terme $g(x, y)$ peut être une autre fonction Dirac ou n'importe quelle fonction étendue. En appliquant l'opérateur linéaire à l'autocorrélation, on obtient :

$$L^{(n)}\{f \otimes f\} = L^{(n)}\{o \otimes o\} + L^{(n)}\{r \otimes r\} + [o \otimes L^{(n)}\{r\}] + (-1)^n [L^{(n)}\{r\} \otimes o]$$

En appliquant la propriété suivante (voir annexe):

$$L^{(n)}\{d \otimes g\} = [d \otimes L^{(n)}\{g\}] = (-1)^n [L^{(n)}\{d\} \otimes g]$$

On obtient :

$$L^{(n)}\{f \otimes f\} = L^{(n)}\{o \otimes o\} + L^{(n)}\{r \otimes r\} + o \otimes g + (-1)^n g \otimes o + A^* o(x + x_0, y + y_0) + (-1)^n A o^*(x_0 - x, y_0 - y)$$

Les deux derniers termes de cette équation nous permettent de retrouver l'objet original. Comme pour l'holographie par transformée de Fourier classique, on reconstruit l'image translaturée $o(x + x_0, y + y_0)$, de l'objet et l'image jumelle, $o^*(x_0 - x, y_0 - y)$, qui est le terme complexe conjugué de l'objet et inversé par rapport à l'origine. La translation permet d'assurer la séparation holographique.

La dérivation du champ d'autocorrélation $f \otimes f$ dans l'espace réel (x, y) correspond à la multiplication de l'hologramme $H(k_x, k_y) = \mathcal{F}\{f\} \mathcal{F}^*\{f\} = \mathcal{F}\{f \otimes f\}$ par une fonction des fréquences spatiales conjuguées k_x, k_y dans l'espace de Fourier. Par exemple :

$$\mathcal{F} \left[\frac{\partial^n}{\partial x^{n-k} \partial y^k} \{f \otimes f\} \right] = i^n k_x^{n-k} k_y^k \mathcal{F}\{f \otimes f\} = i^n k_x^{n-k} k_y^k H$$

La référence définit donc un « filtre de fréquence » ou « masque », que nous notons M , dans l'espace de Fourier :

$$M = i^n \sum_{k=0}^n a_k k_x^{n-k} k_y^k$$

On peut noter que le filtre de fréquences est de type « passe-haut » : la multiplication par les fréquences spatiales k_x, k_y favorise la région des hautes fréquences de l'hologramme.

Nous admettrons que, comme $L^{(n)}\{r\}$ est essentiellement une somme de fonctions de Dirac, le produit $MR = \mathcal{F}[L^{(n)}\{r\}] \equiv 1$, où $R(k_x, k_x) = \mathcal{F}\{r\}$ est l'hologramme formé par la référence seule. Cette relation sera utilisée dans la suite (chapitre 11).

Reconstruction de la référence « fente »

L'holographie conventionnelle, dans le cas d'une référence idéale, est un cas particulier de cette formule, où $r(x, y) = A\delta(x - x_0)\delta(y - y_0)$, $g(x, y) = 0$ et $L^{(0)}\{.\}$ est l'opérateur identité. L'extension naturelle d'une référence ponctuelle est une fente dont la largeur est inférieure à la résolution souhaitée. Tout d'abord, considérons le cas où la fente est parallèle à l'axe x' (obtenu par rotation d'angle α à partir de l'axe x) dans un système de coordonnées adapté à l'axe x' . Dans ce cas, la référence peut être décrite comme une ligne Dirac de longueur L .

$$r(x', y') = A\delta(y') \text{rect} \left(\frac{x'}{L} \right) = A\delta(y') \left[H \left(x' + \frac{L}{2} \right) - H \left(x' - \frac{L}{2} \right) \right]$$

Où $H(x)$ est la fonction de Heaviside et $rect(x)$ est la fonction rectangulaire. En effectuant la dérivation partielle sur x' , on obtient :

$$\frac{\partial}{\partial x'} r(x', y') = A \delta(y') \left[\delta\left(x' + \frac{L}{2}\right) - \delta\left(x' - \frac{L}{2}\right) \right]$$

car $\frac{d}{dx} H(x) = \delta(x)$.

On obtient alors deux deltas de Dirac aux extrémités de la fente. Les différents signes des deltas Dirac sont dus à des transitions positives et négatives de $r(x', y')$ suivant l'axe x' . Pour généraliser ce résultat à une fente faisant un angle α par rapport à l'axe x , on explicite la relation entre (x, y) et (x', y') :

$$x = x' \cos \alpha - y' \sin \alpha$$

$$y = x' \sin \alpha + y' \cos \alpha$$

Dans ce cas, $\hat{\alpha} \equiv \hat{x}' = \hat{x} \cos \alpha + \hat{y} \sin \alpha$, et

$$L^{(1)}\{.\} = \frac{\partial}{\partial x'} = \cos \alpha \frac{\partial}{\partial x} + \sin \alpha \frac{\partial}{\partial y} = \hat{\alpha} \cdot \nabla$$

Ainsi, nous obtenons deux deltas de Dirac comme références ponctuelles situées à l'extrémité de la fente d'axe $\hat{\alpha}$ en effectuant une dérivée directionnelle suivant $\hat{\alpha}$.

Les calculs précédents considèrent une référence idéale qui, après application de l'opérateur différentiel, donne des fonctions de Dirac localisées aux extrémités. En pratique, la fabrication de la référence ne le permet pas, en particulier dans le cas de la fente qui a toujours une certaine largeur. De plus, cette largeur est nécessaire pour que la fente soit réellement une référence étendue, ayant une transmission non nulle. Dans ce cas, la fente se décrit comme :

$$r_d(x', y') = A \left[\delta(y') \text{rect}\left(\frac{x'}{L}\right) \right] * d(x', y') = A \left[\delta(y') \left[H\left(x' + \frac{L}{2}\right) - H\left(x' - \frac{L}{2}\right) \right] \right] * d(x', y')$$

La fonction $d(x', y')$ modélise l'imperfection de la référence, par exemple la largeur finie de la fente. Après différentiation il vient :

$$\frac{\partial}{\partial x'} r_d(x', y') = A \left[d\left(x' + \frac{L}{2}, y'\right) - d\left(x' - \frac{L}{2}, y'\right) \right] \quad (10.1)$$

La résolution de l'image obtenue sera limitée par la largeur (en particulier suivant y') de la fonction $d(x', y')$. Dans le cas d'une fente, le choix de la largeur résulte d'un compromis entre son étendue et la résolution. Cependant, en comparaison avec le schéma FTH, on obtient un rapport étendue/résolution plus favorable avec le schéma HERALDO.

10.2 Résultats expérimentaux

Les expériences HERALDO ont été effectuées en utilisant le même montage expérimental et dans des conditions équivalentes à celles décrites précédemment pour l'imagerie par diffraction cohérente. Les échantillons diffèrent seulement par la juxtaposition de références autour de l'objet. Le schéma HERALDO nous a permis d'obtenir l'image reconstruite de l'objet de manière rapide et directe, ce qui le rend attractif par rapport l'approche itérative utilisée en CDI.

Dans la membrane, objet et référence sont gravés côte à côte en respectant la condition de séparation holographique, c'est-à-dire une séparation objet-référence au moins égale à 1.5 fois les dimensions de l'objet. La taille globale de chaque échantillon (avec ses références) est de $4 \times 4 \mu\text{m}$, compatible avec la taille d'une cellule de cohérence du faisceau harmonique (tache focale), assurant une illumination homogène de l'objet et de la référence. Les images MEB (Microscopie Électronique à Balayage) suivantes présentent les motifs réalisés (Figure 10.1).

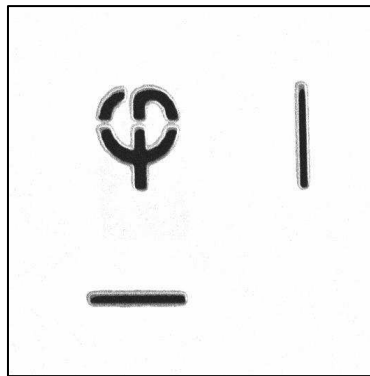


Figure 10.1 : image MEB de l'échantillon holographique HERALDO constitué de l'objet « phi » et de deux références « fente » de $2.1 \mu\text{m}$ de longueur.

L'objet « phi » est entouré de deux références « fente » qui doivent permettre d'effectuer 4 reconstructions, chacune associée à une extrémité. La longueur de chaque fente est de $2.1 \mu\text{m}$ avec une largeur de 130 nm pour la plus fine et 145 nm pour la plus large. La figure (Figure 10.2) présente deux hologrammes enregistrés avec cet échantillon pour des acquisitions simple tir et 10 tirs correspondant à un nombre de photons incidents de $3.8 \cdot 10^6$ et $2.9 \cdot 10^7$, respectivement.

On remarque sur l'hologramme une forte contribution des deux références suivant les directions horizontale et verticale. Nous observons ensuite des modulations interférométriques qui contiennent l'information de phase qui permettra de reconstruire l'objet. La figure en simple tir présente un signal plus faible mais les interférences ont une modulation suffisamment contrastée. On observe plus nettement les modulations liées aux interférences du champ transmis et diffracté par les fentes et l'objet.

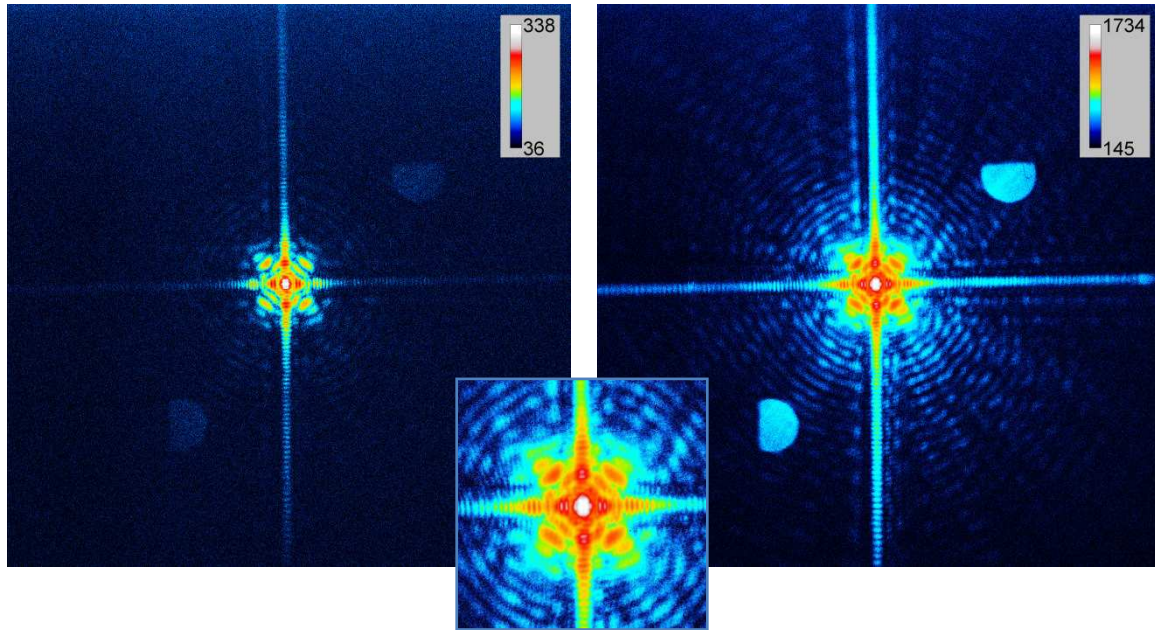


Figure 10.2 : Hologrammes (intensité en échelle logarithmique) enregistrés en simple tir (à gauche) et en 10 tirs (à droite). Affichage sur 2048 x 2048 pixels de la caméra CCD. L'image centrale est un agrandissement sur 600 x 600 pixels de l'hologramme enregistré avec 10 tirs. Les deux formes circulaires diamétralement opposées sur ces images sont du signal parasite.

L'autocorrélation de l'échantillon est obtenue en effectuant la transformée de Fourier de l'hologramme (Figure 10.3). L'autocorrélation se compose d'une partie centrale, de parties correspondant au produit de corrélation de l'objet par chaque référence (située de part et d'autre du centre) et du produit de corrélation d'une référence avec l'autre (les 2 carrés irrégulièrement contrastés suivant la diagonale). En effectuant la dérivation suivant la direction de chacune des fentes, qui est symbolisée par les flèches jaunes et vertes (Figure 10.3), on obtient les images de l'objet localisé à chaque extrémité des fentes. Notons que, dans les reconstructions (effectuées par Manuel Guizar-Sicairos), l'hologramme est tout d'abord filtré afin de sélectionner les fréquences spatiales ayant un rapport signal sur bruit suffisant. Ensuite, l'hologramme est multiplié par un polynôme dans le domaine de Fourier. Cette opération, équivalente à une dérivée directionnelle dans l'espace objet, facilite le calcul à des angles arbitraires. L'utilisation des deux fentes, respectivement horizontale et verticale, permet d'obtenir 4 reconstructions indépendantes (une pour chaque extrémité des deux fentes) et 4 images conjuguées. Nous remarquons que, près de l'objet, chaque extrémité de fente reconstruit aussi l'autre fente de référence. De l'autocorrélation et des reconstructions, nous pouvons aussi déduire la distribution d'intensité sur l'échantillon et les fentes. Il semble que l'illumination sur l'échantillon soit relativement homogène, ce qui n'est pas le cas pour les fentes, notamment la fente verticale. Les moitiés extérieures des fentes sont moins illuminées que les moitiés intérieures, ce qui se retrouve déjà dans la corrélation des deux fentes et comme dans la reconstruction. Il faut noter que cet effet pourrait être amplifié par un défaut de cohérence transverse plus important à la périphérie de l'échantillon qu'en son centre. Plus particulièrement, la reconstruction associée à la fente verticale est fortement bruitée, ce qui confirme l'irrégularité – en amplitude et en phase – de l'illumination de la fente verticale. L'opération de dérivation, assimilable à un filtre passe haut, est très sensible à ces fluctuations.

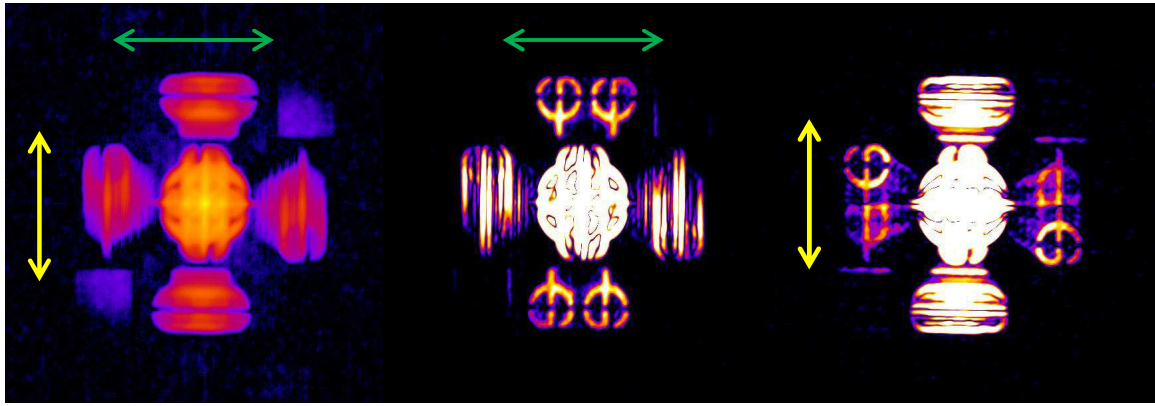


Figure 10.3 : Champ d'autocorrélation donné par la transformée de Fourier inverse de l'hologramme (10 tirs). Les quatre termes de corrélation croisée de l'objet avec les références se situent autour de la partie centrale, ainsi que les termes de corrélation croisée des deux fentes. La dérivation du champ d'autocorrélation selon les deux directions des fentes (indiquées par les flèches jaunes et vertes) permettent de reconstruire l'objet (représentation du module). Nous obtenons sur chaque figure deux reconstructions indépendantes.

La figure (Figure 10.4) présente une reconstruction obtenue en calculant la moyenne en amplitude et en phase (dans l'espace réciproque) des 4 reconstructions indépendantes obtenues en simple tir et en 10 tirs. Cette procédure permet d'augmenter la qualité de l'image. Nous avons estimé la résolution à partir du critère de Rayleigh (transition de 10 à 90%) sur un bord de l'objet à 105 nm en simple tir, soit ~ 3.4 fois la longueur d'onde. Cette valeur est en bon accord avec la limitation imposée par le rapport signal sur bruit aux grands angles de diffraction. En effet, au-delà de la fréquence spatiale de $4.76 \mu\text{m}^{-1}$ (correspondant aux 105 nm de résolution théorique sur le détecteur), le signal devient faible devant le bruit et il est difficile d'extraire le signal diffracté par l'objet.

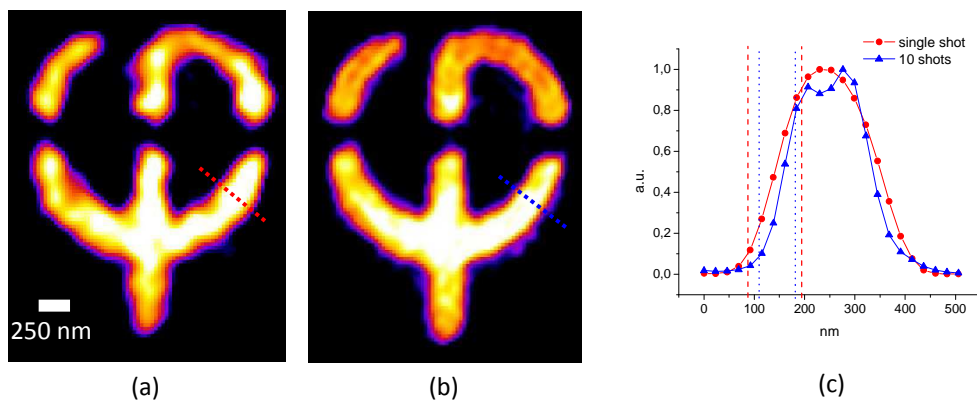


Figure 10.4 : Module de l'image finale reconstruite en prenant la moyenne des 4 reconstructions indépendantes obtenues en simple tir (a), et en accumulant sur 10 tirs (b). (c), profil en intensité mesuré sur l'image reconstruite en simple tir (ligne rouge) et en 10 tirs (ligne bleue) montrant des résolutions respectivement de 105 et 74 nm.

En utilisant le même critère de résolution que pour le simple tir, nous estimons la résolution en multi-tirs à 80 nm. Notons que les franges de l'hologramme figure (Figure 10.2) sont bien résolues et contrastées avec un bon rapport signal sur bruit jusqu'à de hautes fréquences spatiales, $\sim 7.63 \mu\text{m}^{-1}$. Cette valeur est supérieure à la fréquence spatiale de $4.55 \mu\text{m}^{-1}$ équivalente à la résolution de 80 nm dans le plan objet.

Cette limitation sur la résolution est liée à la limitation associée à la largeur des fentes. A partir des images MEB des fentes, on peut obtenir de façon indirecte, une forme approchée du point source équivalent après application de l'opérateur différentiel (la fonction $d(x',y')$ relation (10.1)). La Figure 10.5 représente le résultat de cette opération. La forme particulière de ce point source fait que son influence sur la résolution ne sera pas isotrope [124]. On peut estimer l'influence de ce point source équivalent sur la résolution d'un bord en utilisant le critère de transition 10-90 %. La dimension la plus importante du point source dégrade la résolution d'une quantité de 80 à 90 nm, correspondant à la résolution de l'image obtenue de l'hologramme enregistré sur 10 tirs.

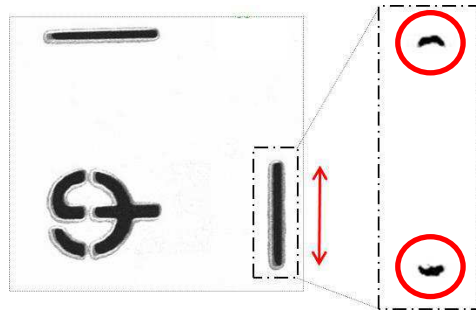


Figure 10.5 : représentation du point source équivalent (encerclé en rouge) après application de l'opérateur différentiel sur la fente.

11. HERALDO : analyse signal sur bruit

11.1 Analyse théorique

L'objectif d'un schéma holographique qui utilise une référence étendue est de maximiser le contraste des franges d'interférence entre l'objet et la référence. Le contraste des franges d'un hologramme est donné par :

$$C_{p,q} = \frac{2|O_{p,q}||R_{p,q}|}{|O_{p,q}|^2 + |R_{p,q}|^2}$$

Où $|O_{p,q}|$ et $|R_{p,q}|$ représentent les modules de la distribution du champ diffracté dans le plan de détection de l'hologramme, respectivement, de l'objet et de la référence, indexé par le pixel (p, q) . On omettra dans la suite l'indexation sur les pixels de l'hologramme (p, q) .

En considérant seulement la statistique de Poisson du bruit de photons, on peut exprimer le « SNR moyen » en fonction du contraste comme :

$$SNR_m = C \sqrt{|O|^2 + |R|^2} = \frac{2|O||R|}{\sqrt{|O|^2 + |R|^2}}$$

Ce SNR moyen n'intègre pas les modulations locales de l'hologramme, c'est-à-dire les franges. Il ne prend en considération que les distributions de l'objet et de la référence dans l'hologramme. Le SNR moyen (lié au contraste) est alors une fonction des amplitudes diffractées $|O|$, $|R|$ et de leur recouvrement $|O||R|$. Pour un schéma holographique standard où la référence est circulaire et de dimension réduite, le recouvrement est maximal avec l'objet, mais il y a une différence entre les amplitudes $|O|$ et $|R|$. Dans le schéma HERALDO, la référence doit être « angulaire », et la diffraction se produit donc dans des directions privilégiées : le recouvrement spatial dans l'hologramme entre la référence et l'objet peut alors être réduit.

Considérons le SNR moyen, sur l'hologramme, après le processus de reconstruction HERALDO. La reconstruction appliquée à l'hologramme est équivalente à multiplier l'hologramme par un filtre passe haut (dérivation dans l'espace réel) ou masque que nous avons appelé M , tel que $MR \equiv 1$ (voir chapitre 10.1). Dans la suite, on pourra supposer que M est réel ($|M| = M$, ou imaginaire pur, $L^{(n)}$ ne contient qu'un seul terme pour $n = 1$). Rigoureusement, suivant le type de référence, la reconstruction donne plusieurs points sources équivalents. Pour une fente, il y en a deux (somme de sinus dans l'espace hologramme). Dans l'espace de Fourier, la reconstruction à partir du terme holographique $S = |O||R|$ est équivalente à :

$$|M| |O||R| \equiv |O|$$

Maintenant, considérons le terme holographique en présence de bruit, soit le bruit de photons et le bruit de lecture-amplification du détecteur. Le signal bruité s'écrit :

$$S = |O||R| + B_p + B_l$$

Où B_p et B_l représentent respectivement le bruit de photons et de lecture. La variance du bruit de photons est donnée par :

$$\langle |B_p|^2 \rangle = |O|^2 + |R|^2$$

Et celle du bruit de lecture-amplification (voir section 9.1.2) :

$$\langle B_l^2 \rangle = \sigma_l^2$$

Le SNR moyen du terme holographique, avec le bruit de lecture, devient :

$$SNR_h = \frac{|O||R|}{\sqrt{|O|^2 + |R|^2 + \sigma_l^2}} \quad (11.1)$$

En appliquant le processus de reconstruction HERALDO au signal bruité, on obtient :

$$|M| S = |O| + |M| |B_p| + |M| B_l$$

Sur cette dernière expression, on notera que les sources de bruit sont amplifiées par la valeur du masque. La variance du bruit sur l'hologramme est donnée par :

$$\langle |M B_p|^2 \rangle + \langle |M B_l|^2 \rangle = 1 + M^2 |O|^2 + M^2 \sigma_l^2 \quad (11.2)$$

Regardons ce qu'il en est du SNR de l'hologramme après l'étape de reconstruction ; le SNR peut alors s'exprimer :

$$SNR_{recons} = \frac{|O|}{\sqrt{1 + M^2 |O|^2 + M^2 \sigma_l^2}}$$

On a une expression du SNR moyen en fonction du masque. Il faut noter que, par définition même du processus de reconstruction, l'expression ci-dessus est équivalente à l'expression (11.1) avant reconstruction puisque l'on considère $MR \equiv 1$. On conserve l'influence de la structuration de la référence dans la distribution du masque. Donc, le processus de reconstruction HERALDO, qui consiste en une multiplication de l'hologramme, ne change rien à la statistique du signal de celui-ci. En conclusion, la reconstruction HERALDO, quel que soit le bruit considéré, n'a en principe pas d'effet sur le SNR de l'hologramme enregistré.

Considérons maintenant l'effet du recouvrement entre l'objet et la référence. On peut principalement s'intéresser à deux parties de l'hologramme, une où la contribution de la référence est importante, et l'autre où la contribution de la référence est faible. La zone de forte contribution de la référence est associée à une faible valeur du masque. Le SNR est alors limité par la contribution de l'objet :

$$\lim_{M \rightarrow 0} \left\{ \frac{|O|}{\sqrt{1 + M^2 |O|^2 + M^2 \sigma_l^2}} \right\} \rightarrow |O|$$

Cette dernière relation justifie l'avantage de la référence étendue. Par contre, sur les parties de l'hologramme où la contribution de la référence est faible, on obtient :

$$\lim_{M \rightarrow \infty} \left\{ \frac{|O|}{\sqrt{1 + M^2 |O|^2 + M^2 \sigma_l^2}} \right\} \rightarrow \frac{|O|}{|M| \sqrt{|O|^2 + \sigma_l^2}} \quad (11.3)$$

Pour ce dernier cas, le SNR se trouve limité par la référence (à travers M), mais aussi par l'influence du bruit de lecture-amplification. Si on compare avec le schéma FTH, pour lequel on peut considérer que la contribution de la référence est faible par rapport à l'objet sur tout l'hologramme (contrairement à HERALDO), le SNR s'exprime alors comme :

$$SNR_{FTH} \approx \frac{|O||R_{FTH}|}{\sqrt{|O|^2 + \sigma_l^2}}$$

La valeur du SNR donné par cette dernière relation peut être considérée comme étant du même ordre de grandeur que le SNR, sur une partie de l'hologramme où le recouvrement de la référence étendue est faible pour le schéma HERALDO (puisque $MR \equiv 1$ sur la relation (11.3)). Le défaut du recouvrement de la référence étendue sur l'hologramme constitue le principal inconvénient du schéma HERALDO.

Analyse du bruit dans l'espace image.

Jusqu'à maintenant, l'analyse du signal a porté sur l'information enregistrée sur l'hologramme avant et après application du masque de reconstruction. Considérons maintenant la variance du bruit sur l'image reconstruite – obtenue après transformation de Fourier de l'hologramme multiplié par le masque de reconstruction. On définit la variance du bruit sur l'image $\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle$, pour chaque pixels de l'image reconstruite indexés par n, m , comme :

$$\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle = \sum_{p,q} \langle |B_{p,q}|^2 \rangle$$

Où $\langle |B_{p,q}|^2 \rangle$ correspond à la variance du bruit sur chaque pixel p, q de l'hologramme, et la somme porte sur tous les pixels de l'hologramme. Dans cette relation, $\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle$ est indépendante de la position sur l'image, donc du pixel considéré, et est identique pour chaque pixel. Cette relation est vraie seulement si le bruit sur l'hologramme n'est pas corrélé d'un pixel à l'autre. En conséquence, la variance du bruit sur l'image $\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle$ affecte de façon uniforme l'image reconstruite [89]. Le bruit sur l'hologramme $\langle |B_{p,q}|^2 \rangle$ est donnée par la relation (11.2) (on omettra par la suite l'indexation p, q) :

$$\langle |B_{p,q}|^2 \rangle = 1 + M_{p,q}^2 |O_{p,q}|^2 + M_{p,q}^2 \sigma_l^2$$

La variance du bruit sur l'image reconstruite pour le schéma HERALDO correspond alors à :

$$\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle = \sum_{p,q} [1 + M^2 |O|^2 + M^2 \sigma_l^2] \quad (11.4)$$

La relation (11.4) permet d'estimer la quantité de bruit sur l'image en fonction de la variance des sources de bruit sur l'hologramme après le processus de reconstruction HERALDO. Cette somme diverge avec l'extension du domaine où elle s'effectue, à cause du terme $\{1 + M^2 \sigma_l^2\}$. De ce fait, pour limiter le bruit sur l'image reconstruite, il sera nécessaire de limiter l'extension de l'hologramme, notamment là où la valeur du masque de reconstruction M est importante. On

effectue cela en multipliant l'hologramme par un filtre qui supprimera les hautes fréquences spatiales fortement bruitées. La variance du bruit sur la reconstruction, après la multiplication de l'hologramme par un filtre passe-bas F , devient :

$$\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle = \sum_{p,q} [F^2 (1 + M^2|O|^2 + M^2\sigma_l^2)] \quad (11.5)$$

Bien entendu, l'action de ce filtre aura pour conséquence de diminuer la résolution accessible sur l'image reconstruite. Dans le cas où le bruit de lecture-amplification est négligeable, il a été démontré [89, 124] que le schéma HERALDO permettait de reconstruire des images de qualité et de résolution plus élevée que un schéma FTH.

11.2 Résultats expérimentaux

Plusieurs configurations holographiques HERALDO ont été expérimentées en utilisant diverses formes de références étendues. L'objectif de ces expériences était, i) de comparer les possibilités de reconstruction, la qualité et la résolution des images obtenues à partir d'un hologramme enregistré en utilisant les principales formes et dispositions possibles de la référence étendue, et ii) de faire une comparaison avec le schéma holographique FTH et les reconstructions CDI. La qualité de la reconstruction HERALDO sera conditionnée principalement par la qualité de « fabrication » des angles de la référence, l'homogénéisation de l'illumination de la référence et les bruits pendant la détection de l'hologramme. Les analyses suivantes s'intéressent principalement à l'influence du bruit sur les reconstructions HERALDO.

La « qualité de l'image » est déterminée par la vraisemblance de l'information qu'elle contient. Celle-ci peut être quantifiée par le rapport signal sur bruit. Pour des questions de normalisation, on utilisera ici le rapport entre les « énergies » signal et bruit [89]. Pour une reconstruction de l'objet représentée sur N pixels, on définit ce rapport comme :

$$S = \frac{\sum_{n,m}^N |o_{n,m}|^2}{N \langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle} \quad (11.6)$$

Où $|o_{n,m}|^2$ représente le module carré de la reconstruction de l'image indexé par n, m et $\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle$ correspond à la variance du bruit sur l'image donnée par (11.4). La variance du bruit $\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle$ sera estimée, sur la représentation en module carré de la reconstruction de l'image (à valeur complexe), comme la valeur moyenne d'une partie de cette image qui ne contient pas la reconstruction de l'objet. La « moyenne du module carré du bruit » s'exprimera alors comme une puissance de bruit sur la représentation de l'image.

L'objet utilisé pour cette analyse, identique pour chaque configuration, est inspiré de la mire optique USAF 1951. Ses dimensions sont de l'ordre de $1 \times 1 \mu\text{m}$. Les résultats de seulement deux formes de référence seront présentés dans la suite, une référence « carrée » et une « fente ». Les caractéristiques de l'objet sont choisies pour « éprouver » le schéma de reconstruction HERALDO, identifier ses avantages et surtout ses inconvénients. Deux points sont importants : d'une part, le problème du recouvrement entre les champs diffractés respectivement par l'objet et par la référence, d'autre part, la question de l'intérêt du terme hétérodyne présenté au chapitre 8. Pour le premier point, l'objet est composé de « sous-éléments », comme les « disques » et les 2 « rectangles penchés », dont les directions de diffraction privilégiées ne coïncident pas avec les directions de diffraction des références étendues utilisées. Pour le deuxième point, considérons l'objet comme une somme de « sous-éléments » qui vont interférer avec la référence. Dans la logique du raisonnement chapitre 8, une référence étendue est inutile pour enregistrer le signal des trois petits « disques ». Selon la même logique, la référence la plus adaptée pour ces « disques » est la référence ponctuelle. De ce fait, l'objet dessiné ici constitue un objet difficile pour le schéma HERALDO.

11.2.1 Filtrage des données avant reconstruction

On s'intéresse ici à l'influence, sur la puissance du bruit contenu sur l'image, de la largeur du filtre passe-bas « F » appliqué à l'hologramme avant reconstruction HERALDO (relation (11.5)). Pour cela on utilisera l'hologramme Figure 11.1 enregistré à partir d'une acquisition simple tir d'un échantillon avec une référence étendue « carrée ». L'hologramme est enregistré dans une fenêtre de 600 x 600 pixels après un hardware binning qui regroupe 2 x 2 pixels, ce qui donne une taille effective de pixel de 2 x 13.5 μm ; 4.8 10^6 photons sont incidents sur le CCD.

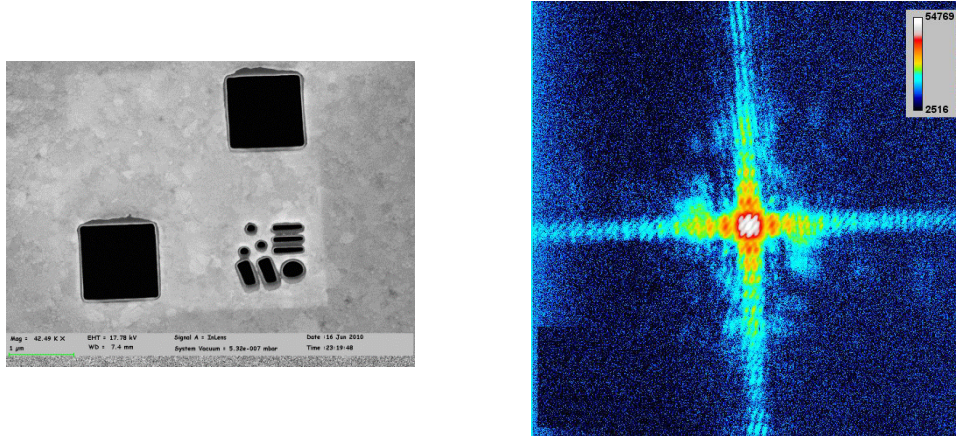


Figure 11.1 : échantillon test avec deux références étendues et l'hologramme (intensité en échelle logarithmique) enregistré à partir de la diffraction de ce dernier.

On utilise, pour limiter la puissance du bruit sur les reconstructions, un filtre passe-bas de type super-gaussien d'ordre 3. Les deux filtres super-gaussiens utilisés ont des largeurs de 80 et 160 pixels (le rayon du filtre : HWHM), ce qui limitera approximativement la résolution des reconstructions respectivement à 150 nm et 75 nm. La reconstruction numérique consiste à créer un « masque de reconstruction » qui combine le filtre multiplicatif de reconstruction HERALDO « M » et le filtre passe-bas « F » (Figure 11.2). La reconstruction HERALDO s'effectue alors par transformation de Fourier de l'hologramme multiplié par ce masque de reconstruction (Figure 11.3). L'image obtenue contient quatre reconstructions de l'objet pour chaque référence, ce qui fait au total huit reconstructions indépendantes. Cependant, les reconstructions correspondant à une des références sont de mauvaise qualité, reflétant une mauvaise illumination de la référence considérée. Les deux images Figure 11.3 permettent de rendre compte de l'effet du filtre sur la résolution apparente, et du bruit sur la reconstruction de l'objet. Un filtrage important de l'hologramme limite fortement la résolution, mais permet d'obtenir une image peu bruitée. De ce fait, cela permet de qualifier l'influence des autres défauts comme la qualité de fabrication des angles de la référence et surtout son illumination. En utilisant un filtre de rayon plus important, on obtient une image de l'objet qui est très résolue mais fortement dégradée.

Sur les images, la variance du bruit $\langle |\sigma_{n,m}|^2 \rangle$ est estimée comme la puissance moyenne dans une zone de l'image (en module carré) qui ne contient pas de reconstruction de l'objet. Les images [Figure 11.3](#) représentent le module carré des reconstructions à valeur complexe. La puissance du bruit pour le filtre de largeur 80 pixels est de 5.1 (valeur relative définie sans dimension) contre 108 pour le filtre de largeur 160 pixels. La puissance du bruit est relative à la vraisemblance de l'information sur l'objet. Plus le rayon du filtre est important, plus l'on intègre les hautes fréquences spatiales de l'hologramme pour reconstruire l'objet. Bien que cela améliore la résolution, cela dégrade l'image du fait que les hautes fréquences spatiales sur l'hologramme présentent un mauvais SNR. Le compromis entre la résolution et la qualité des reconstructions conditionne le choix du filtre.

L'énergie signal pour une reconstruction obtenue avec un filtre de largeur 80 pixels est de $1.6 \cdot 10^6$ (valeur relative définie sans dimension) contre $2.6 \cdot 10^6$ pour le filtre de largeur 160 pixels. L'énergie signal diminue à mesure que l'on réduit le rayon du filtre puisque l'on perd le signal des hautes fréquences. Le rapport « S » entre l'énergie signal et le bruit (défini relation (11.6)) est de 132 (80 pixels) contre 10 (160 pixels).

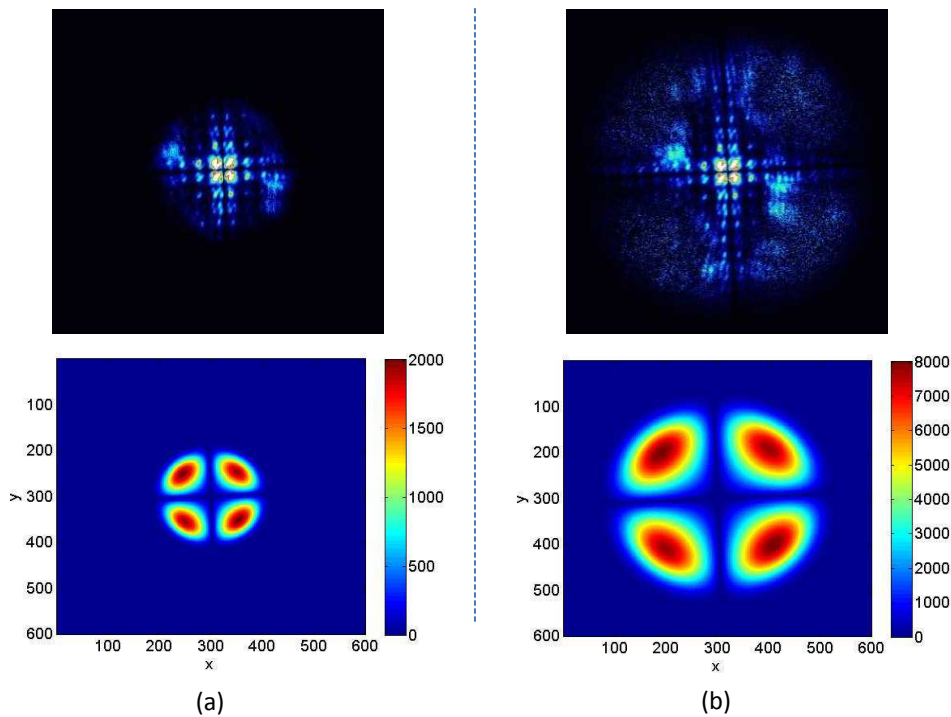


Figure 11.2 : hologramme précédent [Figure 11.1](#) après la multiplication par le masque de reconstruction. Les filtres de reconstruction (représentés en dessous) combinent le filtre multiplicatif de reconstruction HERALDO et le filtre passe-bas super-gaussien. (a) filtre super gaussien d'ordre 3 de largeur 80 pixels et (b) 160 pixels. Les figures sont représentées en valeur absolue.

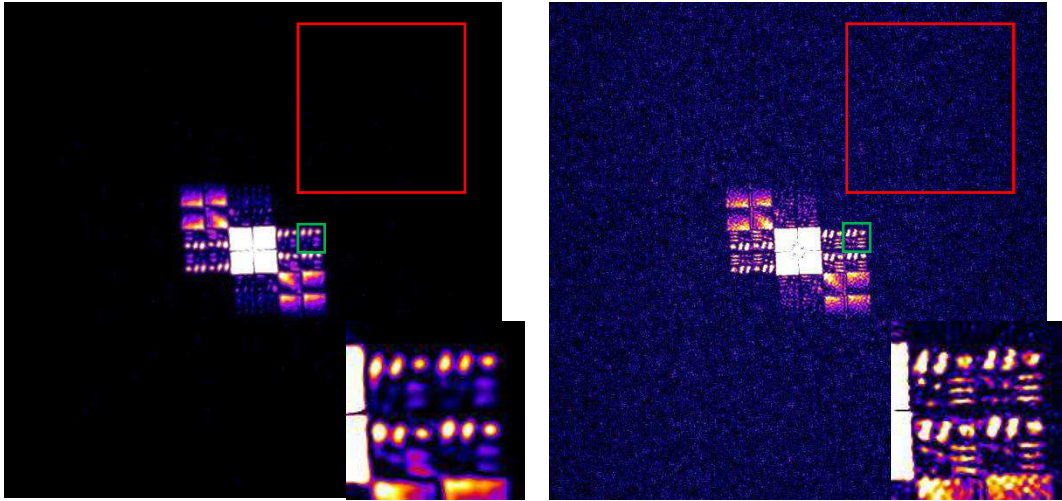


Figure 11.3 : reconstruction après transformation de Fourier des figures précédentes (représentation du module carré des reconstructions à valeur complexe). La puissance du bruit est estimée comme la moyenne d'une zone de l'image hors reconstruction (zone encadrée rouge). L'énergie signal est estimée en sommant la valeur des pixels pour une reconstruction de l'objet correspondant à la zone encadrée en vert de 48×48 pixels.

11.2.2 Influence du bruit de lecture-amplification sur la reconstruction

Pour pouvoir considérer l'influence du bruit de lecture-amplification, on va utiliser deux hologrammes (Figure 11.4) enregistrés avec une vitesse de la chaîne de lecture et amplification du détecteur CCD différente. Le premier hologramme est obtenu avec une vitesse de lecture de 1MHz auquel correspond un écart type du bruit sur l'hologramme de $8.8 e^-$. Le deuxième hologramme est obtenu avec une vitesse de lecture de 100 kHz et un écart type de $4 e^-$. Les nombres de photons incidents sur le détecteur sont équivalents ($4.8 \cdot 10^6$ pour 1MHz et $5 \cdot 10^6$ pour 100KHz) ; les autres conditions sont identiques à celles déjà définies. La largeur du filtre passe-bas super-gaussien d'ordre 3 utilisé sur ces deux hologrammes a un rayon de 120 pixels, ce qui limitera approximativement la résolution des reconstructions à 100 nm. Après application du masque de reconstruction, on peut remarquer l'influence différente du bruit de lecture dans une zone de l'hologramme où il y a peu de signal provenant de la référence ou de l'objet (Figure 11.4).

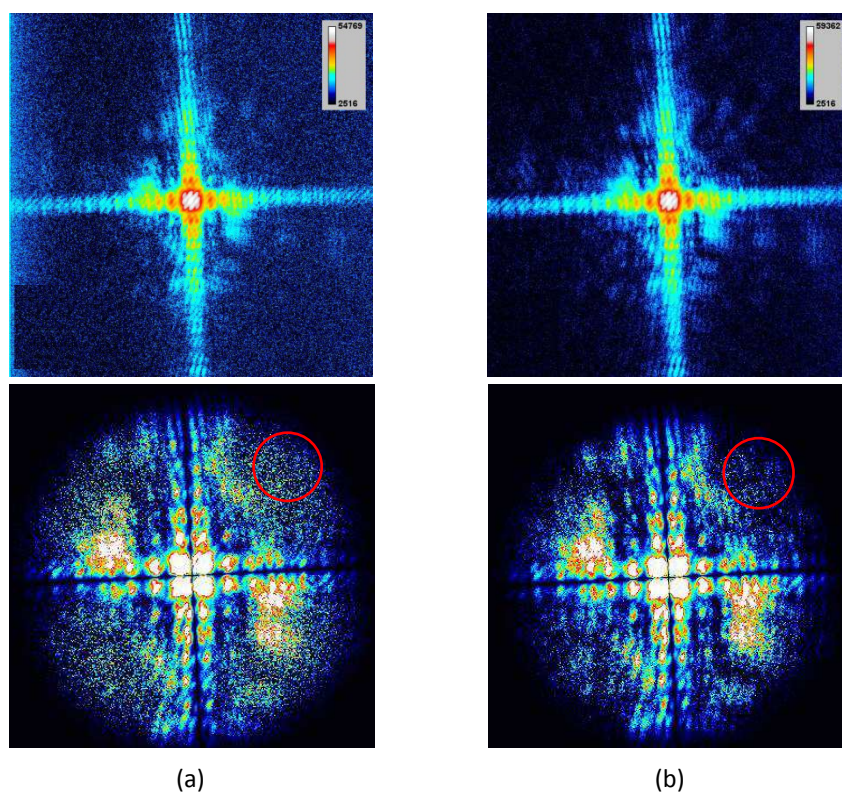


Figure 11.4 : hologrammes enregistrés, et hologramme après multiplication par le masque de reconstruction, pour une fréquence de la chaîne de lecture-amplification de 1MHz (a) et 100 kHz (b). La zone cerclée en rouge est fortement influencée par le bruit de lecture.

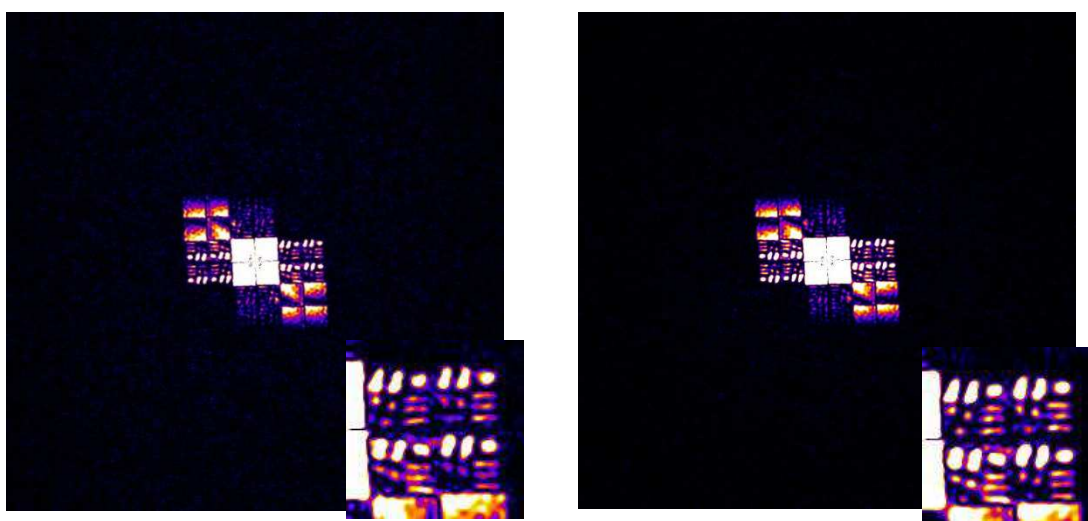


Figure 11.5 : images reconstruites des hologrammes précédents .

On estime la puissance du bruit, après application d'un filtre passe-bas de rayon 120 pixels, à 30 pour la reconstruction issue de l'enregistrement à 1 MHz contre 15 pour l'acquisition à 100 kHz.

Les énergies signal associées sont respectivement de $2 \cdot 10^6$ et $2.5 \cdot 10^6$. Elles restent équivalentes, pour des nombres de photons incidents sur le détecteur également équivalents. On obtient un rapport « S » de 29 contre 73.

A partir de la différence observée sur la puissance du bruit (rapport de 2), on peut estimer l'influence relative des bruits de photons et de lecture dans la reconstruction. Le rapport entre la variance du bruit de lecture pour une acquisition à 1 MHz et à 100 kHz est pratiquement de 5. En accord avec la relation (11.5), on peut représenter la contribution du bruit de lecture à la puissance de bruit comme :

$$L_{1MHz} = \sum_{p,q} F^2 M^2 \sigma_{1MHz}^2$$

Et

$$L_{100kHz} = \sum_{p,q} F^2 M^2 \sigma_{100kHz}^2$$

Où la somme porte sur tous les pixels (indexés par p, q) de l'hologramme. La contribution du bruit de photons s'écrit :

$$P = \sum_{p,q} F^2 [1 + M^2 |O|^2]$$

Le « rapport 2 » entre les puissances de bruit des deux acquisitions permet d'écrire :

$$\frac{P + L_{1MHz}}{P + L_{100kHz}} = 2$$

On obtient les relations suivantes :

$$\frac{L_{1MHz}}{P} = \frac{5}{3}$$

Et

$$\frac{L_{100kHz}}{P} = \frac{1}{3}$$

On peut en conclure que dans cette configuration de référence étendue, avec un filtre passe-bas de rayon 120 pixels, l'influence du bruit de lecture est équivalente, voire supérieure à celle du bruit de photons. Le bruit de lecture devient le facteur dominant à mesure que l'on augmente le rayon du filtre passe-bas. Il faut noter que le bruit de lecture sur l'hologramme a une variance équivalente à la détection de 1 photon (voir section 9.1.2). Donc, si l'influence du bruit de lecture est plus importante, c'est que la reconstruction intègre des zones de l'hologramme où, après filtrage, il n'y a pas de signal provenant de l'objet ou de la référence. Ces zones sont comprises hors des directions de diffraction des références. C'est le problème du recouvrement des références. Remarque : le filtre passe bas devrait être défini de façon à limiter l'influence de ces zones où l'information sur l'hologramme est fortement bruitée.

11.2.3 Acquisition multi-tirs et hardware binning

On peut estimer l'influence du bruit de photons en comparant les hologrammes précédents avec un hologramme issu d'une acquisition en 5 tirs à une vitesse de lecture de 1MHz reconstruit avec un filtre passe-bas de 120 pixels de rayon (Figure 11.6). Pour cet hologramme, le nombre de photons incident sur le détecteur est de $1.8 \cdot 10^7$. Cela fait une augmentation de l'ordre de 3.75 du nombre de photons pour enregistrer cet hologramme sur 5 tirs par rapport au précédent sur une acquisition en simple tir Figure 11.4 (a). Les caractéristiques de la reconstruction sont une puissance du bruit de 95 et une énergie signal de $3 \cdot 10^7$, cette dernière étant difficile à estimer à cause de l'artefact causé par la saturation au centre de l'hologramme, qui dégrade une partie des images. Le rapport « S » est pour cette acquisition sur 5 tirs de 135.

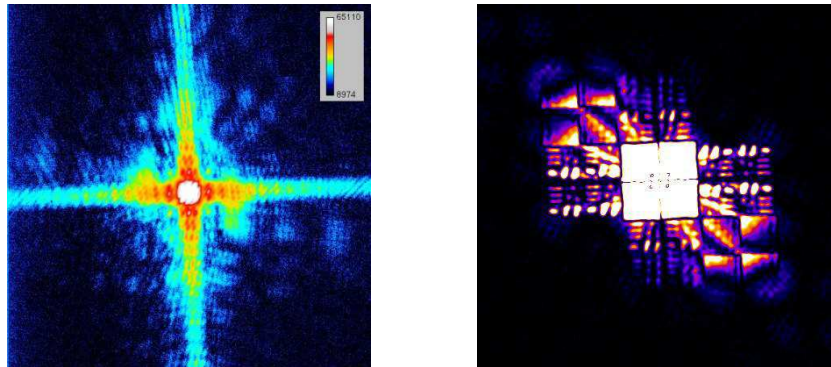


Figure 11.6 : hologramme enregistré en 5 tirs et sa reconstruction après un filtre passe-bas de 120 pixels de rayon.

Considérons maintenant l'acquisition d'un hologramme en utilisant un hardware binning de valeur 3, consistant à regrouper 3×3 pixels avant lecture-amplification. L'hologramme Figure 11.7 provient de la diffraction de l'objet précédemment utilisé où $3.8 \cdot 10^6$ photons sont incidents sur le détecteur. Le rayon du filtre passe-bas est de 80 pixels, permettant d'obtenir un équivalent du filtre de 120 pixels appliqué sur un hologramme enregistré avec un binning de valeur 2. De ce fait, la fenêtre numérique représentant l'image de la reconstruction a une taille différente des reconstructions précédentes. L'objet de la figure suivante est représenté sur 5329 pixels contre 2304 pixels pour les reconstructions issues d'enregistrement avec une valeur de binning de 2.

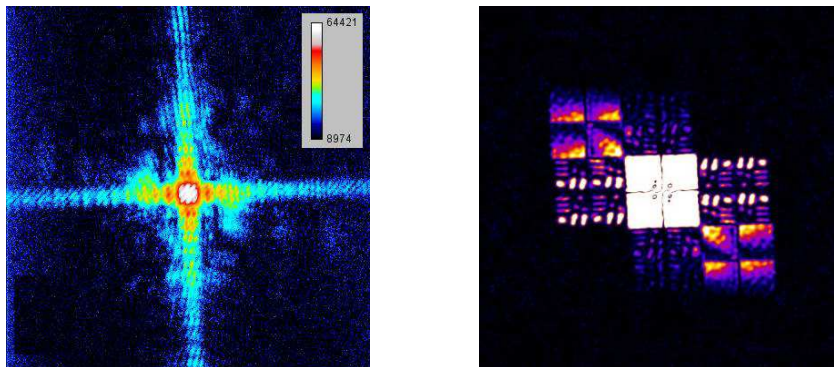


Figure 11.7 : hologramme (400 x 400 pixels) enregistré avec un hardware binning de 3 et sa reconstruction après application d'un filtre de 80 pixels de rayon.

La puissance du bruit sur cette reconstruction est de 3.8 avec une énergie signal de (sur 5329 pixels) $7.4 \cdot 10^5$. Ces valeurs ne peuvent pas être directement comparées avec celles obtenues pour les reconstructions issues d'un hologramme en binning 2. Seul peut être comparé le rapport « S » qui est ici de 37. Si l'on effectue une acquisition avec un hardware binning de $B = 3$ au lieu de $B = 2$, il a une diminution d'un facteur 5 de la variance effective du bruit de lecture, donnée par la relation $(\sigma_l/B^2)^2$. On devrait alors retrouver un rapport « S » équivalent à la reconstruction issue de l'hologramme enregistré à 100 kHz qui était de 79. L'écart entre facteurs « S » ($37 / 79$) pourrait provenir du nombre différents de photons incidents sur le CCD entre ces deux acquisitions.

11.2.4 Comparaison FTH / HERALDO

Dans nos conditions expérimentales, nous avons comparé le schéma FTH et le schéma holographique HERALDO pour deux formes particulières de référence étendue. Nous considérons pour cela trois reconstructions provenant d'hologrammes enregistrés, respectivement, avec une référence ponctuelle (FTH), une « fente » et un « carré » (HERALDO). Les hologrammes présentés sont enregistrés avec un hardware binning de 3 à une fréquence de l'étage de lecture-amplification du CCD de 1 MHz.

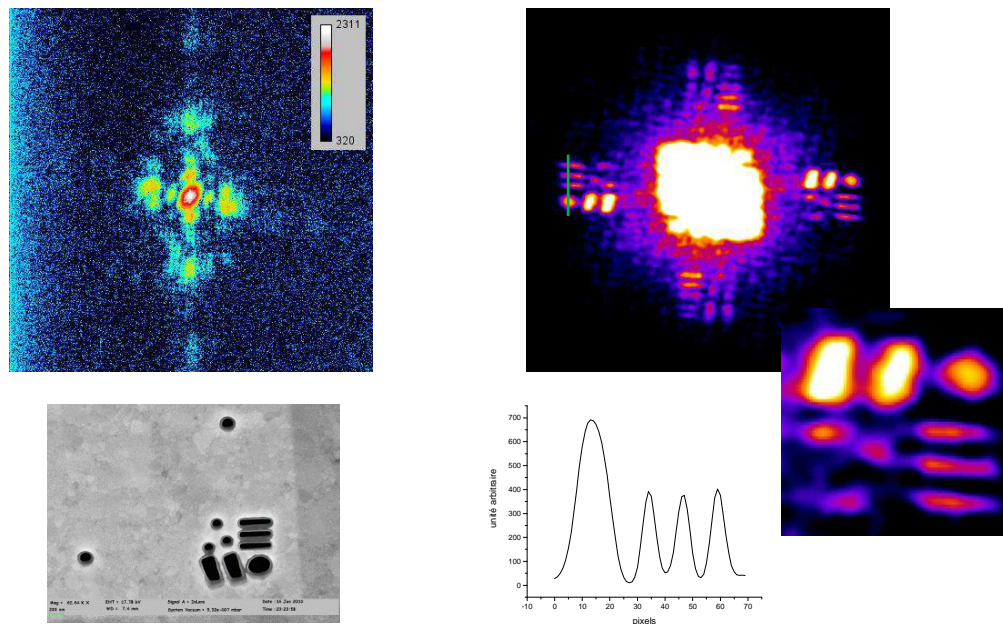


Figure 11.8 : configuration objet avec deux références holographiques ponctuelles et sa reconstruction FTH. La référence a un diamètre de 145 nm. Le filtre passe-bas appliqué pour cette reconstruction est de 120 pixels de rayon. Le profil est pris suivant la ligne verte sur la reconstruction.

Le résultat pour le schéma FTH est présenté [Figure 11.8](#). La référence ponctuelle utilisée a un diamètre de ~ 145 nm ce qui conduira une limite en résolution sur les images de l'ordre 100 nm. L'hologramme est enregistré avec $2.5 \cdot 10^5$ photons incidents sur le CCD. La reconstruction est

obtenue par transformation de Fourier de l'hologramme après multiplication par un filtre passe-bas super-gaussien d'ordre 3 et de rayon 120 pixels (binning par 3). Contrairement au schéma HERALDO, la valeur minimum accessible de la résolution est imposée par construction de la référence ponctuelle. De ce fait, la largeur du filtre influence faiblement la résolution si elle est supérieure à 80 pixels, correspondant à une résolution de 100nm. La reconstruction présente deux images indépendantes de l'objet dont une est dégradée à cause d'une mauvaise illumination de la référence. Le « halo central » qui affecte une partie des reconstructions provient du faisceau direct sur l'hologramme. Le rapport énergie signal « S » est de 44 avec le filtre de largeur 120 pixels. Il faut noter que l'on pourrait augmenter cette valeur en utilisant un filtre moins large (jusqu'à typiquement une centaine de pixels) sans pour autant affecter la résolution. Cela signifie que l'on a suffisamment de signal provenant de la référence, et que l'on pourrait, en diminuant ses dimensions, optimiser la résolution des reconstructions. Pour vérifier cela, on enregistre dans les mêmes conditions un hologramme avec une référence de 110 nm de diamètre (résolution limitée à 80 nm).

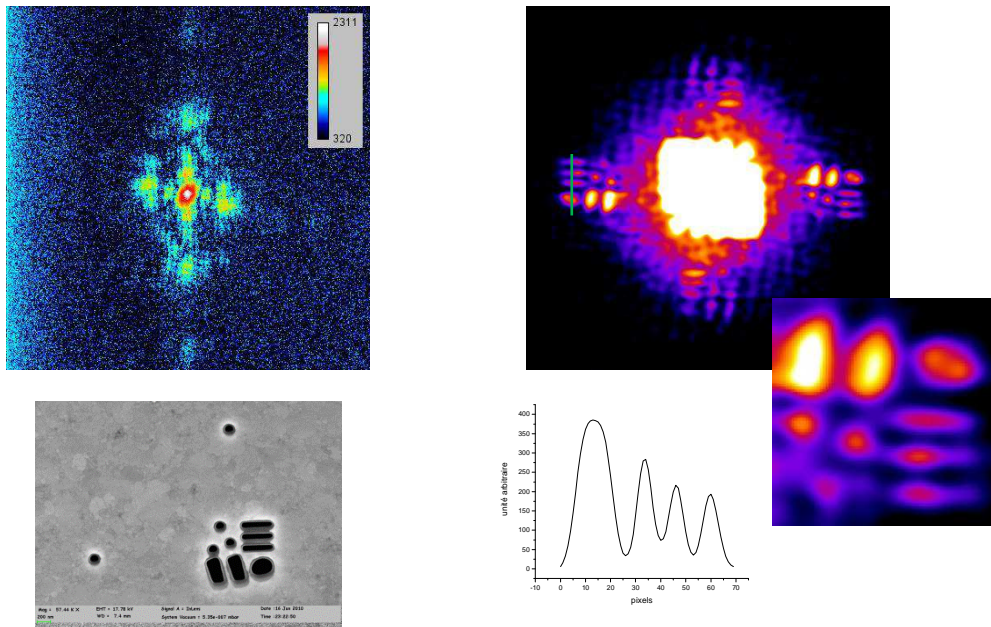


Figure 11.9 : configuration objet avec deux références holographiques ponctuelles et sa reconstruction FTH. La référence a un diamètre de 110 nm. Le filtre passe-bas appliqué pour cette reconstruction est de 80 pixels de rayon. Le profil est pris suivant la ligne verte sur la reconstruction.

L'hologramme [Figure 11.9](#) est enregistré avec $3.3 \cdot 10^5$ photons sur le CCD. Le filtre utilisé a un rayon de 80 pixels, suffisamment fermé pour restreindre la puissance du bruit sur l'image et obtenir un rapport « S » de 42. Dans ce cas, c'est principalement la largeur du filtre passe-bas qui limite la résolution à approximativement 100 nm. Cependant, la reconstruction semble moins bien résolue que la précédente, avec une limitation équivalente provenant de la largeur de la référence. Il faut noter que les estimations de résolution en fonction de la largeur du filtre peuvent être surévaluées.

Comparer la résolution des différentes reconstructions semble difficile, la qualité visuelle fournissant le principal critère. Pour quantifier la résolution, on peut utiliser la succession des trois traits horizontaux de l'objet et comparer le contraste du « réseau » ainsi formé. Le contraste estimé à partir des profils [Figure 11.8](#) et [Figure 11.9](#) donne 80% contre 65% respectivement, ce qui confirme que la résolution de la première reconstruction FTH est meilleur que cette dernière.

La troisième reconstruction ([Figure 11.10](#)) est celle présentée précédemment pour l'étude du hardware binning. La reconstruction après application d'un filtre de rayon 80 pixels conduit à un rapport « S » de 37. Le contraste des « trois traits » sur le profil est estimé à 75%. La particularité de cette reconstruction est le rapport de l'amplitude entre les éléments « fins » de l'objet et les éléments plus épais. Il y a une perte importante du signal sur les éléments « fins » de l'objet, bien qu'ils conservent un bon contraste.

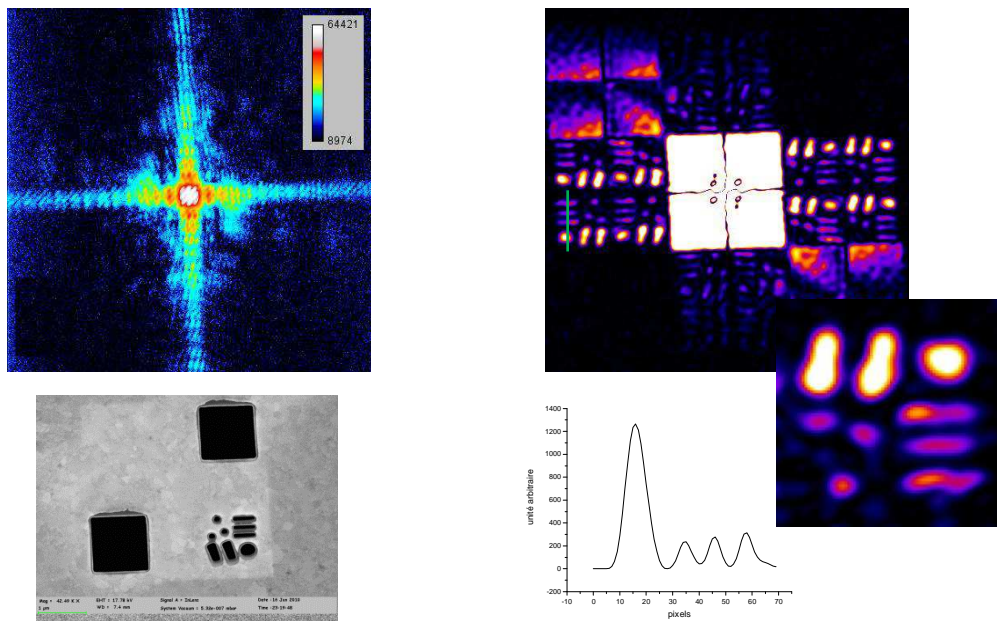


Figure 11.10 : configuration avec deux références holographiques « carrées » et la reconstruction HERALDO. Le filtre passe-bas appliqué pour cette reconstruction a un rayon de 80 pixels. Le profil est pris suivant la ligne verte sur la reconstruction.

La dernière reconstruction ([Figure 11.11](#)) est issu de l'hologramme enregistré avec deux références « fentes ». Le nombre de photons sur le CCD est de $1.1 \cdot 10^6$. Le filtre utilisé a un rayon de 90 pixels permettant d'obtenir un rapport « S » de 40. Cette reconstruction présente un très bon contraste proche de 100% sur le profil des « trois traits ». En se basant sur le contraste de ces motifs comme référent de la résolution, on conclut que cette dernière reconstruction est mieux résolue que les précédentes. Les trois traits forment une sorte de réseau, de période 190 nm, à partir duquel on peut définir la résolution en utilisant le critère de la demi-période. Le contraste proche de 100% de ce réseau permet d'estimer que la résolution, sur cette partie de la reconstruction, est inférieure à 95 nm. Cependant, il faut noter que la forme du point source équivalent (voir [Figure 10.5](#)) pour une référence fente privilégie la résolution dans une direction

par rapport à une autre. Le profil précédent est pris dans la direction où la résolution est la moins dégradée par la largeur de la fente. La largeur de la fente est de 115 nm. On estime que cette largeur limite la résolution à approximativement 70-80 nm. Valeur inférieure à la limitation induite par le filtre estimée à 90 nm. En comparaison, la largeur de la fente a une influence limitée. Cela se confirme sur la définition de la partie de l'objet constitué de trois « petits points ».

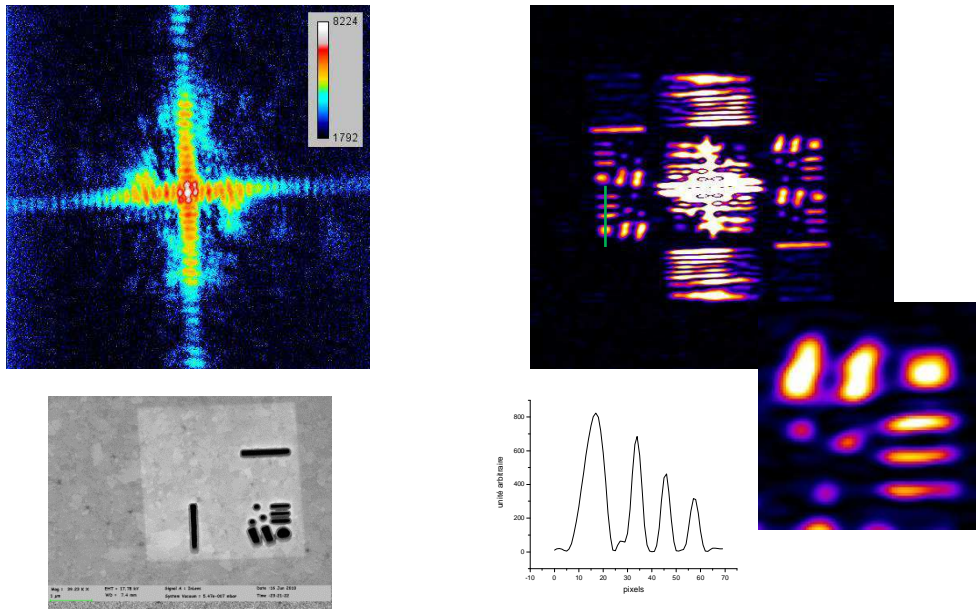


Figure 11.11 : configuration avec deux références holographiques « fentes » et la reconstruction HERALDO. La largeur de la fente est de 115 nm. Le filtre passe-bas appliqué pour cette reconstruction a un rayon de 90 pixels. Le profil est pris suivant la ligne verte sur la reconstruction.

11.2.5 Reconstruction CDI avec références étendues

Des acquisitions de diffraction de l'objet seul reconstruit avec l'algorithme itératif, ainsi que des reconstructions itératives sur des données holographiques ont été effectuées pendant une première campagne expérimentale. Les objets gravés pour cette campagne présentaient un défaut de fabrication pour pouvoir être utilisé dans un schéma holographique. Une sorte de « capsule » obstruait partiellement les références étendues, résultant de la « découpe » avec le FIB (Figure 11.12). Malgré une légère différence de construction, les caractéristiques de l'objet de cette première campagne sont équivalentes à ceux utilisés sur la seconde campagne présentée précédemment.

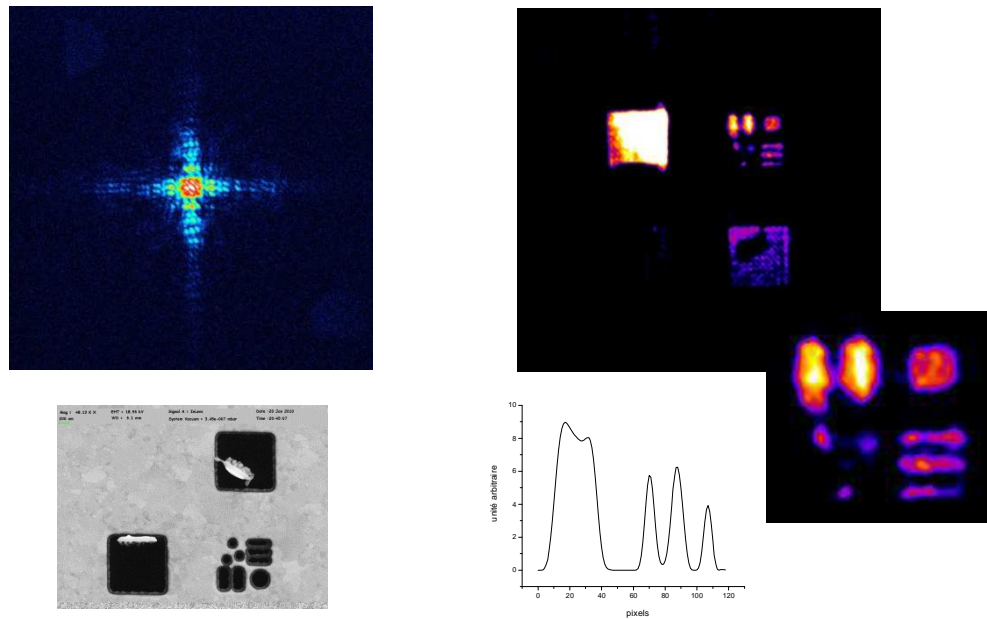


Figure 11.12 : reconstruction « CDI » sur un échantillon avec deux références carrées qui ont un défaut de gravure.

Les reconstructions CDI sur l'objet seul (sans référence) non pas abouties. Aucune convergence de l'algorithme sur aucune solution n'a été possible pour différentes acquisitions de diffraction. Le signal diffracté étant très faible, il n'y a pas suffisamment d'information exploitable pour une convergence de l'algorithme itératif. L'objet a été conçu dans ce sens. Par contre des résultats de reconstruction ont été obtenus avec l'algorithme itératif sur les données de diffraction de l'objet entouré par les deux références. Les données de diffraction ont été enregistrées sans aucune option de hardware binning contrairement aux précédentes acquisitions holographiques. Malgré cela, la reconstruction fonctionne particulièrement bien, notamment celle des deux références. Cette reconstruction correspond à la somme de 37 « bons résultats » d'itération d'une procédure HIO. La figure de diffraction, ainsi que la reconstruction, est présentée sur une fenêtre de 1200 x 1200 pixels. Le contraste des « trois barres » est de 95%. On retrouve sur cette reconstruction la propriété de l'illumination non homogène qui désavantage une référence, mais aussi le défaut de

gravure de façon très similaire à l'image MEB. On peut remarquer sur cette reconstruction que le « gros rond » est plutôt de forme carrée et que la distance entre celui-ci et les « trois barres » est bien plus importante sur la reconstruction que sur l'image MEB, ce qui pourrait refléter le problème d'unicité de la solution en CDI.

Ce résultat peut confirmer l'avantage d'une référence étendue dans un schéma CDI comme cela est présenté à la fin du chapitre 8. L'influence de la référence expliquerait notamment la forme carrée du « gros rond ».

11.2.6 Conclusion

Cette étude a permis de mettre en valeur l'influence et les effets du bruit de lecture dans le processus de reconstruction HERALDO. Le principe même du schéma HERALDO rend la reconstruction peu sensible au bruit de photons, celui-ci provenant principalement du signal important diffracté par la référence étendue. L'application de l'opérateur différentiel compense toute l'influence de la référence et, du même coup, le bruit associé. La difficulté réside dans les autres bruits présents pendant la détection de l'hologramme et notamment, dans notre configuration expérimentale, le bruit de lecture-amplification.

L'opérateur différentiel, équivalent à un filtre passe-haut, amplifie sur l'hologramme le signal fortement impacté par le bruit de lecture, ce qui augmente la proportion de bruit sur la reconstruction. Pour limiter ce problème il faut limiter l'ordre de l'opérateur différentiel, c'est-à-dire le nombre de dérivation. La reconstruction d'un hologramme enregistré avec la référence « fente » implique une seule dérivation. Le bruit sur l'image est moins important que pour la reconstruction d'un hologramme enregistré avec une référence « carrée », nécessitant « 2 dérivation » (opérateur différentiel d'ordre deux). Ceci explique une meilleure qualité de reconstruction avec la référence « fente ». En conséquence, notre configuration expérimentale (le couple détecteur et longueur d'onde du rayonnement) impose de privilégier la référence « fente ».

La comparaison des reconstructions, obtenues par un schéma FTH et celle obtenues par un schéma HERALDO avec référence « carrée », montre des résultats similaires sur la qualité et la résolution des images. Aucun avantage ne semble ressortir de l'utilisation d'une référence carrée. Cependant, la référence « carrée » permet de conserver la possibilité de faire évoluer « post-expérience » la résolution en fonction du bruit accepté sur la reconstruction. Par contre, l'utilisation d'une référence « fente » permet, à qualité d'image équivalente, une meilleure résolution des images reconstruites par rapport à l'utilisation d'une référence ponctuelle.

12. Perspective d'applications

12.1 Imagerie 3D « stéréo »

12.1.1 Objectifs

Sur un objet en 2 dimensions caractérisé par sa transmittance, une image est obtenue en reconstruisant l'onde transmise par de l'objet. Cette reconstruction est réalisée à partir de la détection d'une acquisition unique de la diffraction de l'onde transmise. Pour un objet qui présente une géométrie en trois dimensions, une acquisition unique n'est généralement pas suffisante pour obtenir une information complète sur l'objet. La reconstruction complète de l'objet en trois dimensions nécessite des données de diffraction en trois dimensions dans l'espace réciproque [9], données qui sont obtenues par une méthode d'acquisition « tomographique » [77]. L'acquisition de ces données est effectuée par de multiple prise de vue pour différents angles sur l'objet. Une expérience pompe sonde, afin d'obtenir une information sur l'évolution temporel d'un objet en 3 dimensions, nécessite d'avoir différentes répliques identiques de celui-ci. Cela va à l'encontre du principe de l'acquisition unique sur un objet unique. L'idée ici était de proposer une reconstruction stéréographique d'un objet trois dimensions par une acquisition simultanée de deux prises de vues séparées par l'angle stéréographique. Deux figures de diffraction sont enregistrées correspondantes à l'incidence de deux impulsions arrivant simultanément sur l'objet. Bien entendu, ces deux figures de diffraction ne permettent pas une reconstruction complète de l'objet en 3 dimensions. On a cependant accès à beaucoup plus d'information sur les caractéristiques de l'objet qu'avec une seule prise de vue.

12.1.2 Reconstructions préliminaires

Les résultats suivants ne constituent que des tests sur la faisabilité d'une expérience d'imagerie « stéréographique ». Ils nous ont permis de prendre connaissance des difficultés de la mise en place expérimentales d'un tel schéma. Cela a permis aussi de mettre en pratique les différentes hypothèses sur l'objet et les différentes approximations associées à l'acquisition des données présentées chapitre 5.3.

L'objet utilisé pour cette expérience est fabriqué avec deux membranes de Si₃N₄, opacifié avec une couche de 50 nm d'or, disposée parallèlement et espacées de 2 μ m. Un motif identique est gravé simultanément par FIB sur ces deux membranes. L'objet « grille » (Figure 12.1 (a)) représente typiquement une grilles gravées sur chaque membrane. L'image MEB de l'objet « chevron » Figure 12.1 (b) est prise avec un angle de 10° par rapport à la normale des membranes. Cette image permet de rendre compte de l'aspect « tridimensionnel » de l'objet ainsi fabriqué, notamment grâce à la différence des contrastes. L'objectif est de pouvoir obtenir cet aspect de l'objet en détectant la diffraction de l'onde transmise pour une acquisition à incidence normal par rapport aux membranes puis avec un angle.

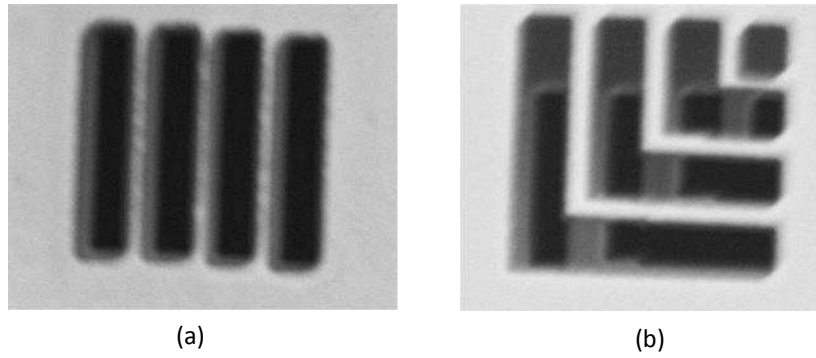


Figure 12.1 : image MEB des objets (a) « grille » et (b) « chevron ». Les trois niveaux de contrast gris clair, gris foncé et noir sur ces images correspondent respectivement à la première membrane, la deuxième membrane et la partie « débouchante ».

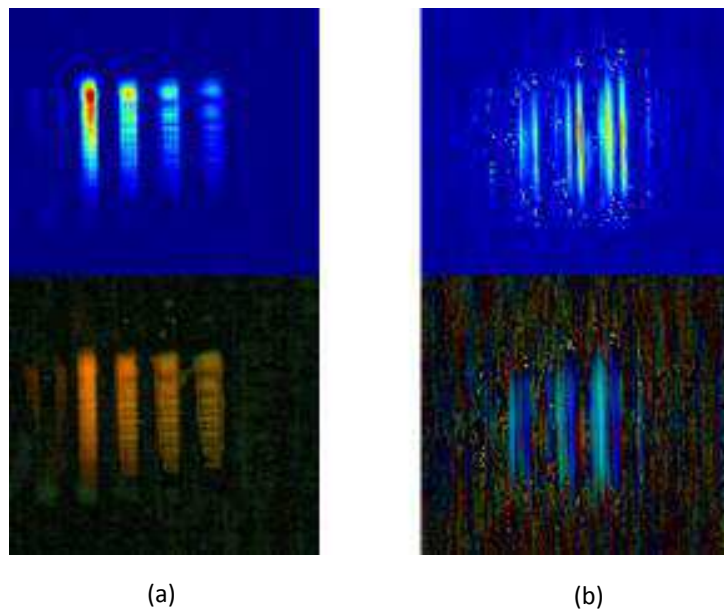


Figure 12.2 : reconstruction de deux projections sur l'objet « grille ». (a) incidence normale par rapport au membranes et (b) incidence de 7.5° . Représentation de la partie réelle au dessus et représentation de la phase en dessous.

L'expérience a consisté à enregistrer une figure de diffraction pour chaque incidence du rayonnement harmonique sur l'échantillon. Deux résultats de reconstruction de l'onde transmise par l'objet « grille » sont présentés Figure 12.2. La Figure 12.2 (a) représente la transmission des deux grilles en incidence normale. C'est une reconstruction préliminaire obtenu par l'algorithme HIO. Aucun PRTF n'est effectué ici. La Figure 12.2 (b) représente la transmission de la grille pour une incidence de 7.5° par rapport à la normal. Cette reconstruction donne une information tout à fait différente de la précédente que l'on peut expliquer avec le schéma présenté Figure 12.3. Sur cette figure, le plan de projection représente la transmittance de l'objet si l'hypothèse de projection est valide, c'est-à-dire si l'épaisseur équivalente « e » est inférieure à la profondeur de champ (voir relation 5.13 chapitre 5.3). L'objet a été conçu pour pouvoir respecter cette

condition tout en permettant l'accès à des résolutions de l'ordre de 200 nm, suffisante pour résoudre le dédoublement du pas du réseau formé pour une incidence de 10° . Les reconstructions semblent valider cette hypothèse. On retrouve plusieurs informations de cette deuxième reconstruction. La première est le rapport 3 entre les largeurs de grille. Cependant, l'image MEB semble montrer que la première grille a une largeur du double de la deuxième, bien que l'on distingue mal cette dernière. La deuxième information est le rapport entre l'angle d'incidence et la distance « d » entre les deux membranes. Il y a une relation entre le sinus de l'angle d'incidence et le rapport « périodicité de la grille » – que l'on obtient facilement de la première reconstruction – et distance entre les deux membranes. On estime alors cette distance de l'ordre de $3.2 \mu\text{m}$, à comparer avec les $4.2 \mu\text{m}$ estimé à partir des images MEB, et les $2 \mu\text{m}$ que l'on souhaitait par construction. Il faut noter que la séparation entre les deux membranes a pu évoluer au cours des différentes manipulations de l'échantillon.

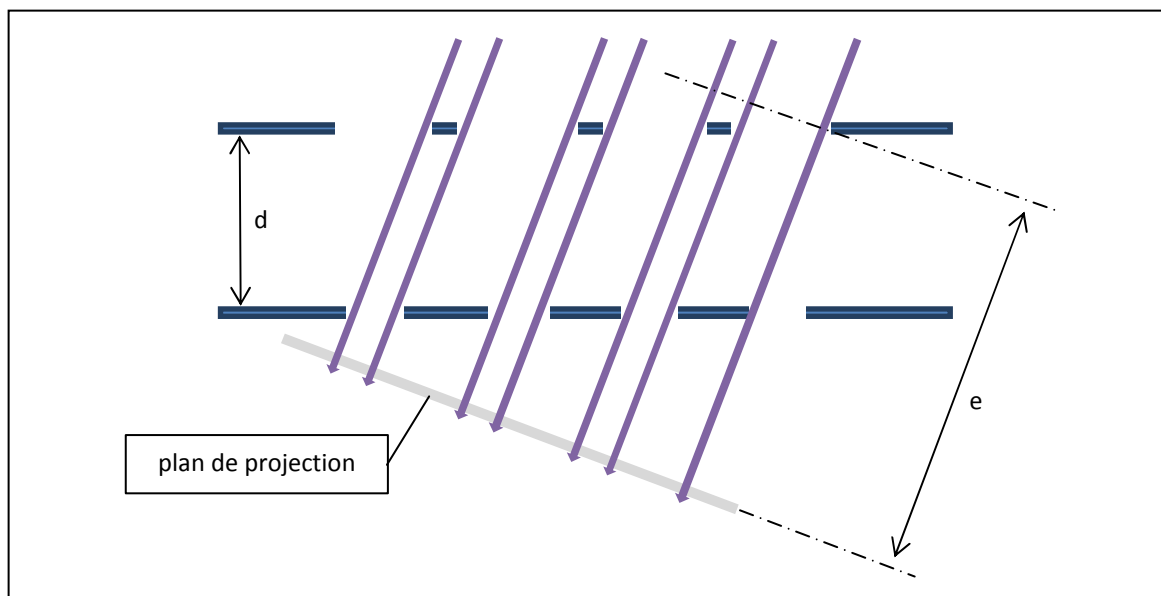


Figure 12.3 : vue schématique de la projection.

12.1.3 Perspectives

De nombreux points restent à résoudre pour valider ce schéma d'imagerie. Le premier est de vérifier que l'on peut faire une reconstruction stéréoscopique avec ces deux prises de vue. Ensuite, la conception du montage d'imagerie à deux faisceaux reste une partie non négligeable du travail expérimental. Et enfin, il faut résoudre les problèmes associés à une application aux « objets réels », notamment celui du faible signal diffracté. Une collaboration est en cours pour une application sur des objets micro-structurés en volume avec Tobias Vockerodt et Milutin Kovacev de l'université de Hanovre. Pour finir, il serait intéressant de combiner ce schéma « stéréo » avec une reconstruction « Ankylographique » [125]. La reconstruction « Ankylographique », selon les auteurs, permet de faire une reconstruction complète des 3 dimensions d'un objet, avec une seule acquisition de diffraction. Une condition pour la réussite

de cette méthode est qu'il faut enregistrer le signal sur une ouverture de diffraction importante. Deux prises de vue sur un même objet doublent l'information de diffraction, ce qui pourrait augmenter la capacité et la convergence de cette méthode, notamment quand la condition précédente n'est pas respectée. De plus, une reconstruction « Ankylographique » permet de supprimer la contrainte sur la condition de projection de chaque prise de vue stéréoscopique. Cette hypothèse de projection est difficilement vérifiée pour notre expérience, à cause d'une profondeur de champ très limitée quand l'on souhaite résoudre un objet à la centaine de nanomètres avec une longueur d'onde d'une dizaine de nanomètres.

12.2 Imagerie de domaines magnétiques

12.2.1 Objectifs

L'imagerie de domaines magnétiques représente une réelle application de la possibilité de reconstruire un objet à partir de l'acquisition de sa figure de diffraction en simple tir. Les propriétés à « imager » sur cet objet sont les modifications de la structuration spatiale des domaines magnétiques en fonction du temps. Les échelles considérées pour cette expérience sont, la centaine de nanomètres pour résoudre la structuration des domaines, et la dizaine de femtosecondes concernant l'évolution temporelle de l'échantillon. Cette échelle temporelle est celle correspondant au processus de désaimantation de l'échantillon par l'effet de thermalisation des électrons [126]. La dynamique d'aimantation peut aussi révéler d'autres effets sur la dynamique de spin des matériaux magnétiques [127].

Les échantillons magnétiques, pour les expériences d'imagerie envisagées, sont généralement constitués de Cobalt et de Palladium (ou Platine), en alliages ou en dépôts multicouches. Le contraste des domaines magnétiques provient d'un effet résonnant du dichroïsme magnétique au seuil de résonance du Cobalt [128]. Les modes propres de la polarisation de cette interaction magnéto-optique sont les polarisations circulaires. L'objectif principal de l'expérience d'imagerie de domaine magnétique est de mettre en place une expérience pompe-sonde, où la sonde UV-X permettrait d'enregistrer une figure de diffraction en simple tir [129].

12.2.2 Résultats de diffusion

La première expérience effectuée concerne la mesure de la diffusion de l'onde incidente par les structures qui constituent l'échantillon magnétique (Figure 12.4). Cette expérience a pour objectif premier de quantifier le signal diffusé par l'échantillon pour pouvoir estimer les possibilités d'acquisition de la figure de diffraction en simple tir. La diffusion (scattering en anglais) et la diffraction sont issues du même processus d'interaction entre l'onde incidente et l'objet. La figure de diffusion nous renseigne sur les propriétés statistiques de l'objet alors que la figure de diffraction, contrairement à la figure de diffusion, est inversible, c'est-à-dire que l'on peut avoir une information complète sur l'objet. L'enregistrement d'une figure de diffraction

doit respecter diverses contraintes de cohérence de l'illumination, d'échantillonnage, etc., qui ne sont pas nécessaire pour l'acquisition d'une figure de diffusion. Dans notre expérience, la différence entre diffusion et diffraction est principalement causé par la taille importante de l'illumination des échantillons (taille apparente de l'objet), ce qui provoque un défaut sur l'échantillonnage de la figure (voir section 6.1.3) et un défaut de cohérence longitudinale (6.2.2). Les figures de diffraction présentées dans la suite sont sous-échantillonnées, et la cellule équivalente de cohérence longitudinale est plus petite que la taille du faisceau sur l'échantillon. Le sous-échantillonnage permet de maximiser le nombre de photons par pixel et donc le signal enregistré.

Les échantillons magnétiques sont placés dans le plan focal d'un miroir torique. La tache focale (conjuguée de la source harmonique) intégrant quelques aberrations est estimée à $150\ \mu\text{m}$ sur des échantillons de $250 \times 250\ \mu\text{m}$. La sélection spectrale d'une harmonique, parmi le peigne de fréquence, est effectuée en utilisant une configuration torique-réseau. On sonde les échantillons en utilisant un rayonnement d'énergie proche du seuil M (60eV) de transition du Cobalt. Les deux harmoniques correspondantes sont h37 et h39, centrées respectivement sur $57.77\ \text{eV}$ et $60.9\ \text{eV}$. L'intérêt de cette expérience était aussi de déterminer l'harmonique présentant la meilleure efficacité de diffusion et décider ensuite de la bande passante du multicouche à déposer sur le miroir parabolique. L'efficacité de diffusion est meilleure pour l'harmonique h39. Le miroir parabolique permettra de mettre en œuvre l'expérience d'imagerie par diffraction. La tache de focalisation réduite, obtenu avec ce dernier, permettra de retrouver une bonne condition d'échantillonnage.

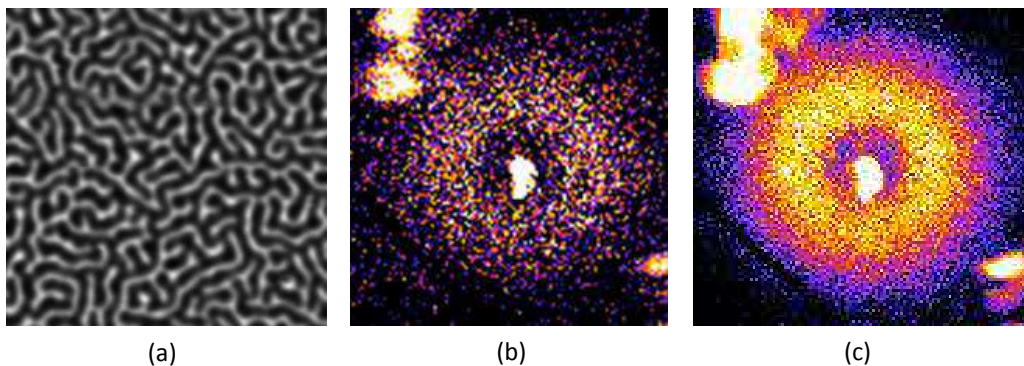


Figure 12.4 : (a) image par microscopie à force magnétique (MFM) d'un échantillon magnétique multicouche [Co/Pd]. La taille des domaines magnétiques est de l'ordre de $150\ \text{nm}$. (b) figure de diffusion avec h37 en simple tir. (c) figure de diffusion pour 10 tirs. Les figures de diffusion sont constituées d'un « faisceau direct », signal non diffusé, au centre de l'anneau de diffusion correspondant aux photons diffusés par l'échantillon. Les autres structures correspondent à du bruit parasite IR.

L'efficacité de diffusion est calculée comme le rapport entre le nombre de photons dans le faisceau diffusé, i.e. dans l'anneau de diffusion et le nombre de photons dans le faisceau direct (signal non diffusé) (Figure 12.4). Cette efficacité a été estimée à partir des mesures à environ $3 \cdot 10^{-3}$ pour l'harmonique h37. Estimation difficile sur les premiers résultats du fait du faible signal dans la figure de diffusion en simple tir et de la saturation du faisceau direct sur l'acquisition

multi-tirs. Cela peut être une conséquence possible de l'écart significatif avec la valeur théorique calculée de l'efficacité, donnée au maximum à $5 \cdot 10^{-4}$. Ces résultats préliminaires de diffusion sont actuellement en cours de validation.

12.2.3 Perspectives

L'échéance proche concernera la diffraction en simple tir utilisant la configuration imagerie de la ligne harmonique. Différentes possibilités sont envisagées : reconstruction CDI ou holographique avec référence étendue [130]. Ces expériences nécessiteront la modification de l'état de polarisation des photons harmoniques, initialement linéaire, pour correspondre à l'état de polarisation circulaire propre à l'interaction avec l'échantillon magnétique. La mise en place d'un système polariseur basé sur la modification de l'état de polarisation à la réflexion permettra d'obtenir une polarisation circulaire des harmoniques [131]. Cependant, l'efficacité de ce système a été mesurée à 3.6% de transmission de photons 100% polarisé circulairement. Cette configuration, nécessaire pour un schéma holographique ou la référence n'est pas « magnétique », pourrait être évitée avec une configuration CDI [132]. Et finalement, à la suite de ces expériences simple tir (et en fonction de leurs succès), la mise en place du montage pompe-sonde pourra être envisagée.

Conclusion de la partie III

Cette partie expérimentale présente la mise en œuvre de deux techniques d'imagerie sans lentille par diffraction cohérente, respectivement dans une configuration où l'image est obtenue par une procédure itérative et dans une configuration holographique avec référence étendue. Des images reconstruites à partir d'acquisition de diffraction en simple-tir et multi-tirs sont obtenues avec des résolutions d'une centaine de nanomètres. Ces expériences démontrent la capacité de l'imagerie nanométrique ultra-rapide par diffraction d'impulsions produites par une source de génération d'harmoniques d'ordre élevé. Notamment, l'utilisation de la source harmonique, combinée avec le schéma holographique HERALDO, a montré la possibilité de reconstruire simplement et rapidement (relativement par rapport à l'utilisation de l'algorithme itératif) l'image d'un objet test, de structuration « complexe », avec une résolution d'une centaine de nanomètres pour une exposition simple tir.

Conclusion générale

Les travaux contenus dans ce manuscrit présentent la mise en application à l'imagerie par diffraction, ou imagerie sans lentille, d'une source de rayonnement UV-X issue du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé. Ils ont intégrés différents aspects, de l'amélioration du mode laser de génération aux questions de l'efficacité de diffraction d'un schéma holographique avec références étendues. La ligne directrice de ces travaux étant la démonstration de l'imagerie ultra-rapide nanométrique.

Dans la première partie sont présentés les résultats sur l'optimisation de la ligne harmonique – du laser à l'échantillon – ce qui inclut le dispositif de filtrage modal, l'optimisation des paramètres de génération, le transport optique et la focalisation du faisceau harmonique dans le plan de l'échantillon. L'optimisation de la ligne harmonique s'est basée principalement sur la mise en place du dispositif de filtrage modal sur le laser LUCA. Les résultats expérimentaux sur ce dispositif montrent une importante modification et amélioration du mode laser initial. Le filtrage modal permet d'homogénéiser le profil spatial du mode laser par suppression des hautes et des basses fréquences spatiales, ainsi qu'une réduction des aberrations présentes dans le mode initial. De plus, ce système a montré une grande robustesse à la dégradation en entrée de fibre sous l'impacte du laser, ce qui le rend particulièrement avantageux par rapport au trou de filtrage spatial. Le filtrage modal a démontré son efficacité, si bien que le mode laser filtré est actuellement distribué sur une majorité des lignes du serveur laser LUCA. Concernant son utilisation pour la génération d'harmoniques en géométrie longue focale, des mesures en champ lointain sur le faisceau pour l'harmonique h25, généré dans l'argon, et h37 généré dans le néon, ont montré une amélioration significative des propriétés spatiales du faisceau harmonique ainsi qu'une amélioration importante de l'efficacité de génération.

Cette première partie se poursuit par une caractérisation du profil spatial du faisceau, et de la cohérence, dans ce qui correspond au plan de l'objet de l'expérience d'imagerie par diffraction. Premièrement, des mesures avec le capteur de front d'onde UV-X ont permis de caractériser la distribution de l'illumination après focalisation par l'optique parabolique hors axe. Les reconstructions dans le plan focal montrent une tache de 4 à 5 μm de diamètre et mettent en évidence deux défauts majeurs – contraintes pour l'expérience de diffraction – que sont l'instabilité de pointé et l'évolution très rapide de la distribution d'intensité hors du plan focal. Deuxièmement, les mesures de cohérence avec une paire de trous d'Young espacés de 5 μm montrent une cohérence spatiale de l'ordre de 85%. Ces résultats mettent aussi en évidence les propriétés de sélection spectrale du multicouche déposé sur l'optique parabolique.

La deuxième partie du manuscrit développe les concepts théoriques nécessaires à la compréhension de la physique mise en œuvre dans les expériences présentées dans la troisième partie. Ces expériences reposent sur l'obtention de l'image d'un objet, résolu à la centaine de nanomètres, par reconstruction de la phase d'une figure de diffraction acquise en simple tir. Cette expérience nécessite un nombre de photons cohérents par impulsion suffisamment important pour enregistrer l'information de l'objet dans la figure de diffraction. Ce résultat démontre que la source harmonique à haute énergie laser du CEA-Saclay satisfait à cette

condition. En premier lieu, les caractéristiques des échantillons et du détecteur sont détaillées, ainsi que la configuration du dispositif de diffraction, en accord avec les considérations théoriques de la deuxième partie du manuscrit. Il a été mis en avant deux points importants : l'efficacité de diffraction des objets utilisés indispensable à l'optimisation du signal diffracté et les paramètres optimum de détection. La compréhension des différents processus de bruit qui interviennent pendant la détection nous a permis de déterminer quelles étaient les particularités de notre configuration. Différentes solutions sont présentées, notamment l'option « hardware binning » du détecteur permettant d'améliorer l'impact non négligeable du bruit de lecture équivalent à la détection de un photon d'énergie 40 eV.

Les premiers résultats de diffraction cohérente – dans la configuration imagerie sans lentille « CDI » – sont obtenus après reconstruction de la phase des données de diffraction avec un algorithme itératif. Deux figures de diffraction sont enregistrées en simple tir et en multi-tirs. La reconstruction de la phase de ces deux figures de diffraction a permis d'obtenir une image de l'objet test utilisé pour diffracter le rayonnement de l'harmonique h₂₅ à 32 nm. Les résolutions obtenues sur ces images sont respectivement de 115 nm et 61 nm. Le résultat en simple tir démontre l'aptitude de la combinaison, source UV-X de table et algorithme itératif, à l'imagerie ultra-résolu spatialement et temporellement. Le dernier résultat présenté confirme cette aptitude avec la reconstruction d'un objet, de caractéristiques similaires au précédent, avec 78 nm de résolution. Bien que l'algorithme de reconstruction soit performant – performance illustrée par la reconstruction de l'objet « note » en simple tir – c'est un procédé de reconstruction non-déterministe basé sur un processus aléatoire.

La configuration holographique permet une reconstruction déterministe de l'image d'un objet. Nous avons démontré la reconstruction directe de l'image d'un objet, d'une acquisition holographique en simple tir, avec une résolution de 105 nm en utilisant le nouveau schéma holographique HERALDO. Le procédé de reconstruction HERALDO, utilisé sur la donnée holographique, a consisté simplement en une dérivation directionnelle de la transformée de Fourier de l'hologramme enregistré en utilisant une référence en forme de « fente ». Le schéma HERALDO, équivalent à l'holographie par transformée de Fourier, permet d'utiliser une référence étendue juxtaposée à l'objet. L'objectif de l'utilisation d'une référence étendue est de diminuer la contrainte d'une référence ponctuelle, principalement sur l'amplitude de son signal diffracté. Le signal enregistré sur l'hologramme est alors maximisé par rapport aux sources de bruit intervenant pendant le processus de détection. Cela permet idéalement d'obtenir une acquisition holographique limitée seulement par le signal diffracté par l'objet et non par la référence.

L'étude expérimentale du schéma holographique HERALDO a permis d'analyser son comportement par rapport aux sources de bruit. Cette étude montre un effet néfaste du bruit de lecture-amplification pendant le processus de reconstruction. Cela est la conséquence d'un recouvrement non homogène de l'hologramme par le signal diffracté par la référence étendue en forme de polyèdre. Le procédé de reconstruction HERALDO amplifie l'influence du bruit de lecture principalement sur les parties de l'hologramme ne contenant que peu ou pas de signal provenant de l'objet ou de la référence. Cependant, il est montré que l'on peut optimiser, en multipliant l'hologramme par un filtre passe-bas de largeur variable, soit la qualité des reconstructions, soit leur résolution. Cette analyse se termine par la comparaison entre une reconstruction FTH (référence ponctuelle) et deux reconstructions HERALDO avec une

référence « carré » et une référence « fente ». Ces résultats démontrent un avantage à l'utilisation du schéma HERALDO utilisant une référence étendue de type « fente » par rapport au schéma FTH. Une image de résolution estimée inférieure à 100 nm a été obtenue pour une acquisition simple tir sur un objet de structuration complexe en utilisant une référence « fente ». Par contre aucun avantage ne semble ressortir de l'utilisation d'une référence de type « carré » par rapport à une référence ponctuelle « choisie judicieusement ».

Les dernières expériences réalisées présentent des applications concrètes à l'imagerie de la source harmonique. Elles sont illustrées par deux résultats préliminaires. La première considère une expérience d'imagerie stéréoscopique en simple tir où l'objectif est d'obtenir de l'information sur un objet en trois dimensions par acquisition simultanée de deux vues stéréoscopiques. Le résultat préliminaire obtenu a mis en évidence les contraintes et les solutions à envisager pour cette application. La deuxième montre des résultats de diffusion du rayonnement harmonique à 60 eV sur une structuration spatiale de domaine magnétique. Malgré une faible efficacité théorique de diffusion, une acquisition simple tir a été possible. Ce résultat permet tout d'abord d'envisager une expérience de diffraction en simple tir, puis ensuite un setup pompe-sonde pour imager, à haute résolution spatiale et temporelle, la dynamique de structuration de domaines magnétiques.

Annexes

A. Transformée de Fourier, convolution et corrélation : notations et propriétés utiles

Pour des fonctions $g(x)$ et $f(x)$ de carré intégrable dans \mathbb{C} , on a les propriétés suivantes :

Définition de la transformation de Fourier :

$$\mathcal{F}\{g(x)\}_{x \rightarrow k} = G(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} g(x) e^{-i k x} dx$$

Avec la relation de réciprocity : $g(x) \stackrel{\mathcal{F}}{\Leftrightarrow} G(k)$

Transformée de $g^*(-x)$:

$$g^*(-x) \stackrel{\mathcal{F}}{\Leftrightarrow} G^*(k)$$

Homothétie :

$$g(ax) \stackrel{\mathcal{F}}{\Leftrightarrow} \frac{1}{|a|} G\left(\frac{k}{a}\right)$$

Propriété de symétrie de la TF :

Fonctions	Transformée de Fourier
Hermitienne	Réelle
Réelle et paire	Réelle et paire
Imaginaire et paire	Imaginaire et paire
Réelle et impaire	Imaginaire et impaire

Définition du produit de convolution :

$$f(x) * g(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x') g(x - x') dx'$$

Propriété de dérivation du produit de convolution :

$$\frac{d}{dx} [f(x) * g(x)] = g(x) * \frac{d}{dx} [f(x)] = f(x) * \frac{d}{dx} [g(x)]$$

Définition du produit de corrélation :

$$[f \otimes g](x) = \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(x') g(x' + x) dx' = \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(x' - x) g(x') dx'$$

Relation entre le produit de convolution et le produit de corrélation :

$$f^*(-x) * g(x) = [f \otimes g](x)$$

On obtient de même la dérivation du produit de corrélation :

$$\frac{d}{dx} [f(x) \otimes g(x)] = (-1) \left(\frac{d}{dx} [f(x)] \right) \otimes g(x) = f(x) \otimes \frac{d}{dx} [g(x)]$$

Le produit d'autocorrélation :

$$[f \otimes f](x) = f^*(-x) * f(x)$$

Le produit d'autocorrélation est hermitien.

Attention, bien que le produit de convolution soit commutatif (et associatif), ce n'est pas le cas du produit de corrélation, puisque :

$$f^*(-x) * g(x) = [f \otimes g](x) \text{ est différent de } f(x) * g^*(-x) = [g \otimes f](x)$$

Le produit d'autocorrélation est bien entendu lui commutatif.

Relations de Fourier avec la convolution :

$$f(x) * g(x) \stackrel{\mathcal{F}}{\Leftrightarrow} F(k) G(k)$$

Relations de Fourier avec la corrélation :

$$[f \otimes g](x) \stackrel{\mathcal{F}}{\Leftrightarrow} F^*(k) G(k)$$

Puisque :

$$[f \otimes g](x) = f^*(-x) * g(x) \stackrel{\mathcal{F}}{\Leftrightarrow} F^*(k) G(k)$$

B. Propagation et diffraction sous approximation paraxiale

1. L'équation de Helmholtz et solutions

La propagation, dans le cas général, est solution des équations de Maxwell. Dans un problème de diffraction, on s'intéresse seulement à la distribution spatiale du champ électromagnétique associé à une composante monochromatique de longueur d'onde λ et de vecteur d'onde dans le vide k_0 . Cette description s'effectue par la fonction scalaire $\psi(x, y, z)$ solution de l'équation d'Helmholtz en espace libre:

$$\Delta \psi(x, y, z) + k_0^2 \psi(x, y, z) = 0$$

L'amplitude du champ dans l'espace est décomposée comme une description dans un plan transverse à la direction de propagation principale z . On sépare les coordonnées transverse (x et y) et longitudinale (z), l'équation d'Helmholtz s'écrit :

$$\Delta_{\perp} \psi(r_{\perp}, z) + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \psi(r_{\perp}, z) + k_0^2 \psi(r_{\perp}, z) = 0 \quad (\text{B.1})$$

On effectue la transformé de Fourier $\tilde{\psi}(k_{\perp}, z)$ de l'équation (B.1) suivant la coordonnée transverse r_{\perp} :

$$-k_{\perp}^2 \tilde{\psi}(k_{\perp}, z) + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{\psi}(k_{\perp}, z) + k_0^2 \tilde{\psi}(k_{\perp}, z) = 0$$

La solution générale de cette équation est :

$$\tilde{\psi}(k_{\perp}, z) = \tilde{\psi}^+(k_{\perp}, 0)e^{i\kappa z} + \tilde{\psi}^-(k_{\perp}, 0)e^{-i\kappa z}$$

Avec $\kappa = \sqrt{k_0^2 - k_{\perp}^2}$.

On considèrera seulement la solution qui se propage suivant les z positifs : $\tilde{\psi}^+(k_{\perp}, 0)e^{i\kappa z}$.

La condition initiale est donnée par la transformée de Fourier de la dimension transverse de l'amplitude complexe en $z = 0$, et finalement la solution dans l'espace direct est donné par la transformé de Fourier inverse de $\tilde{\psi}(k_{\perp}, z)$:

$$\psi(r_{\perp}, z) = \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{\psi}^+(k_{\perp}, 0)e^{i\kappa z}\} \quad (\text{B.2})$$

Cette solution exacte ne fait appel à aucune hypothèse simplificatrice et prend en compte toutes les fréquences k_{\perp} du spectre angulaire (Figure 2). Celles qui se propagent (respectent l'inégalité $k_0^2 - k_{\perp}^2 > 0$), et celles qui ne se propagent pas (les ondes évanescentes).

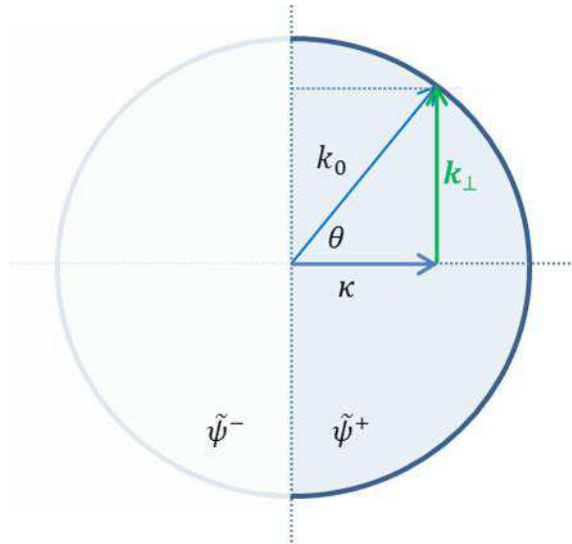


Figure 2 : spectre angulaire, représenté avec la sphère d'Ewald, qui d'écrit la distribution angulaire du vecteur d'onde « diffracté » de valeur en module $\|k_0\|$ dans l'espace réciproque. La sphère d'Ewald permet une représentation du vecteur d'onde « diffracté » en accord avec la conservation de l'énergie (diffusion élastique, loi des réseaux).

La relation (B.2) décrit un phénomène de dispersion des composantes du spectre angulaire pendant la propagation. On a le spectre en fonction de z : $\tilde{\psi}(k_{\perp}, z) = \tilde{\psi}^+(k_{\perp}, 0)e^{i\kappa z}$

Avec pour module : $|\tilde{\psi}^+(k_{\perp}, 0)|$ et pour phase : $\varphi(k_{\perp}, z) = \arg\{\tilde{\psi}^+(k_{\perp}, 0)\} + \kappa z$.

Le terme de phase fonction de z , $\frac{\partial \varphi(k_{\perp}, z)}{\partial z} = \kappa$ n'est pas une fonction linéaire en k_{\perp} . Il y a dispersion des composantes du spectre angulaire pendant la propagation suivant z . On peut définir une pseudo vitesse de groupe de ces composantes (sans dimensions) :

$$k_{\perp} r_{\perp} - \kappa z \Rightarrow r_{\perp} - \frac{\kappa}{k_{\perp}} z \Rightarrow \frac{1}{v_g} = \frac{\partial \kappa}{\partial k_{\perp}}$$

Qui décrit bien la dispersion des fréquences spatiales (divergence de la vitesse de groupe v_g négative) pendant la propagation suivant z . Le retard spatial transverse (r_{\perp}) des composantes spectrales importantes par rapport aux basses : les basses au centre, les hautes sur les bords. Séparation progressive suivant z et complète en $z = \text{infini}$, en analogie avec le phénomène de dispersion temporelle, la variable temporelle étant remplacée ici par la variable spatiale.

2. Approximation paraxiale

L'approximation paraxiale est l'hypothèse d'une faible variation de l'enveloppe spatiale du champ pendant sa propagation (enveloppe spatiale lentement variable). Cela est associé à une faible divergence du champ électromagnétique pendant sa propagation, donc en d'autre terme, à un faible effet de diffraction.

Il existe trois méthodes, « équivalentes » par leur résultat, pour obtenir ce qui est généralisé sous le terme « approximation paraxiale ». La première est effectuée sur l'équation de Helmholtz en exprimant le champ par une enveloppe et une porteuse. Elle consiste à négliger la dérivée seconde de l'enveloppe du champ par rapport à la direction de propagation z . La seconde est celle de Fresnel pour développer l'intégrale de Fresnel-Kirchhoff ou celle de Rayleigh-Sommerfeld. La dernière consiste à effectuer un développement limité (analogie avec le traitement de la dispersion temporelle) au premier ordre du terme « κ ». Le développement au premier ordre :

$$\kappa = k_0 - \frac{k_{\perp}^2}{2k_0}$$

L'approximation paraxiale implique de considérer que le spectre angulaire du champ respecte $k_{\perp} \ll k_0$. A posteriori, notamment dans le cadre de la diffraction en champ lointain, on peut estimer l'étendue des valeurs de k_{\perp} pour lesquelles la solution est valide (l'erreur sur le DL).

A partir de l'expression (B.2), la solution devient :

$$\psi(r_{\perp}, z) = \mathcal{F}^{-1} \left\{ \tilde{\psi}^+(k_{\perp}, 0) e^{-i \frac{k_{\perp}^2}{2k_0} z} \right\} e^{ik_0 z} \quad (\text{B.3})$$

Expression identique à celle du développement paraxial de l'équation d'Helmholtz (première méthode). Cette dernière expression est la forme TF du propagateur de Fresnel qui s'exprime :

$$\psi(r_{\perp}, z) = -i \frac{k_0}{z\sqrt{2\pi}} e^{ik_0 z} e^{i \frac{k_0}{2z} r_{\perp}^2} * \psi(r_{\perp}, 0) \quad (\text{B.4})$$

Et encore :

$$\psi(r_{\perp}, z) = -i \frac{k_0}{z\sqrt{2\pi}} e^{ik_0 z} \int d^2 r'_{\perp} \psi(r'_{\perp}, 0) e^{i \frac{k_0 (r_{\perp} - r'_{\perp})^2}{2z}} \quad (\text{B.5})$$

Une forme identique à celle obtenue avec l'approximation de Fresnel et démontre une équivalence avec l'approximation paraxiale. Cette dernière expression, qui représente la solution de l'équation de propagation sous approximation paraxiale, porte souvent le nom d'intégrale de la diffraction ou d'intégrale de Fresnel, dans le sens où la propagation est équivalente à de la diffraction. Elle permet de calculer le champ électromagnétique en tout point de l'espace sous l'approximation paraxiale. Un problème de propagation consiste à résoudre l'équation (B.4) ou (B.5), ce qui est généralement fait numériquement en utilisant la version TF, équation (B.3).

Dans le cadre générale de l'optique de Fourier, on cherche à exprimer (B.5) comme une simple relation de Fourier avec pour paire de Fourier $r'_{\perp} \Leftrightarrow \frac{k_0 r'_{\perp}}{z}$ entre la fonction source en $z = 0$ et le champ en z . En développant (B.5), on a effectivement :

$$\psi(r_{\perp}, z) = -i \frac{k_0}{z\sqrt{2\pi}} e^{ik_0 z} e^{i \frac{k_0 r_{\perp}^2}{2z}} \int d^2 r'_{\perp} \psi(r'_{\perp}, 0) e^{i \frac{k_0 (r'_{\perp})^2}{2z}} e^{-i \frac{k_0 r_{\perp} r'_{\perp}}{z}}$$

Qui s'exprime au moyen d'une TF :

$$\psi(r_{\perp}, z) = -i \frac{k_0}{z\sqrt{2\pi}} e^{ik_0 z} e^{i\frac{k_0 r_{\perp}^2}{2z}} \mathcal{F} \left\{ \psi(r'_{\perp}) e^{i\frac{k_0 (r'_{\perp})^2}{2z}} \right\}_{k_{\perp} = \frac{k_0 r_{\perp}}{z}} \quad (\text{B.6})$$

Pour cela, on se place dans des configurations qui annulent l'influence du terme de phase quadratique dans l'intégrale. C'est ce qui est effectué dans le développement en champ lointain (voir chapitre 5) ou au foyer d'une optique convergente.

Pour une propagation en « champ intermédiaire » ou proche du foyer d'une optique convergente, on utilise cette dernière relation avec ses termes de phase quadratique. Le terme de phase quadratique hors intégrale représente le focus et permet de déterminer la position absolue du plan source (solution initial). Le terme de phase quadratique dans l'intégrale est responsable d'une modification de la forme de la solution en fonction de la distance de propagation z . Ce terme de phase quadratique est exactement la transformée de Fourier du terme dans l'expression (B.3). Ce sont ces termes de phase qui pose problème lors d'une résolution numérique – problème d'échantillonnage du terme de phase correspondant à un problème d'adaptation de la grille numérique de calcul. Pour un calcul en champ proche, on utilisera préférentiellement l'expression (B.3) et pour un calcul en champ lointain, on utilisera l'expression (B.6), bien que ces deux relation soit mathématiquement rigoureusement identique.

Une généralisation des relations de propagation dans des systèmes optiques linéaires est établie dans le formalisme de Collins [133]. Celui-ci utilise la matrice de transfert (optique matricielle) du système optique. Le produit de convolution dans l'expression (B.4) permet d'exprimer la propagation comme un système optique linéaire où le propagateur est la fonction de transfert. Ceci est à la base de la théorie de la formation des images par les systèmes optiques linéaires. Dans cette théorie, le lien est fait entre l'optique de Gauss (optique mince et paraxiale) et la notion de transmittance suivie d'une propagation paraxiale.

3. Relation entre vecteur d'onde et phase.

On définit la différence de phase entre deux point a et b comme :

$$\varphi_b - \varphi_a = \varphi_{a \rightarrow b} = \oint_a^b \vec{k}(r') \cdot \vec{dl}$$

Ou bien : $\varphi(r) = \oint_0^r \vec{k}(r') \cdot \vec{dl}$

Et on a :

$$\vec{k}(r) = \vec{\nabla} \varphi(r)$$

Ce qui correspond à la relation standard entre champ (vecteur d'onde) et potentiel (phase).

Dans un problème en une dimension z (ou bien si on néglige la diffraction), on a :

$$\varphi(z) = \int_0^z k(z') dz'$$

Cette relation est utilisée par exemple pour calculer les transmittances d'objet sous approximation de projection (voir chapitre 5).

C. Notions sur la cohérence

On définit le degré de cohérence comme la « ressemblance » entre deux points de l'espace séparés transversalement (cohérence transverse ou spatiale) et longitudinalement (cohérence longitudinale ou temporelle) à la direction de propagation [134, 135]. Ce degré de corrélation est défini par la fonction de cohérence mutuelle, qui correspond à la corrélation du second ordre des champs (sous-entendu qu'il y a des ordres supérieurs) ou encore à la covariance des champs. La fonction de cohérence mutuelle pour deux points P_1 et P_2 de la section transverse d'un faisceau est donnée par (la covariance) :

$$\Gamma_{12}(\tau) = \langle E_1(t + \tau)E_2^*(t) \rangle$$

Où $\langle \dots \rangle$ désigne la moyenne temporelle (plutôt l'espérance mathématique. De plus, l'utilisation de « τ » implique des signaux stationnaires. Ici, il n'y a pas rigoureusement de stationnarité sauf pour une quasi-monochromaticité, ou bien en considérant que la durée d'impulsion sera supérieure au temps de cohérence, ce qui est généralement (toujours) vrai). La version normalisée de la fonction de cohérence mutuelle est le degré complexe de cohérence :

$$\gamma_{12}(\tau) = \frac{\Gamma_{12}(\tau)}{\sqrt{\Gamma_{11}(0)\Gamma_{22}(0)}}$$

Le module du degré complexe de cohérence est appelé le degré de cohérence : $|\gamma_{12}(\tau)|$

La cohérence temporelle est déterminée par $\gamma_{11}(\tau)$ et la cohérence spatiale par $\gamma_{12}(0)$. Il est intéressant de noter que $\gamma_{12}(0)$ est associé aux variations temporelles du champ, plus précisément à la relation de phase entre deux points (variation temporelle de la phase). Donc, le terme le plus approprié pour $\gamma_{12}(0)$ est celui de cohérence transverse.

La « cross-spectral density function » est donnée par :

$$W_{12}(\omega) = \mathcal{F}\{\Gamma_{12}(\tau)\}_{\tau \rightarrow \omega} = |s(\omega)|^2 \mu_{12}(\omega)$$

Où $|s(\omega)|^2$ représente le spectre de puissance (densité spectrale de puissance ou d'énergie) et $\mu_{12}(\omega)$ est le degré de cohérence spectrale qui représente la cohérence transverse en fonction de la composante spectrale.

Quelques relations :

$$|s(\omega)|^2 = \mathcal{F}\{\Gamma_{11}(\tau)\}_{\tau \rightarrow \omega}$$

Ce qui implique que la cohérence longitudinale est associée à la largeur spectrale de l'impulsion. La phase spectrale n'intervient pas dans la cohérence longitudinale. Pour une onde monochromatique, on a $|s(\omega)|^2 \delta(\omega - \omega_0)$ et donc:

$$\Gamma_{11}(\tau) = e^{i\omega_0\tau}$$

Ce qui implique $|\gamma_{11}(\tau)| = 1$, donc bien entendu, l'onde monochromatique est longitudinalement cohérente.

La cohérence spatiale entre deux points « 1 » et « 2 » est déterminée par :

$$\Gamma_{12}(0) = \mathcal{F}\{S(\omega)\mu_{12}(\omega)\}_{\omega \rightarrow 0} = \int d\omega S(\omega)\mu_{12}(\omega)$$

D. Publications

- 1) “*Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser-Harmonics Source*”
Ravasio, A.; Gauthier, D.; Maia, F. R. N. C.; Billon, M.; Caumes, J.-P.; Garzella, D.; Géléoc, M.; Gobert, O.; Hergott, J.-F.; Pena, A.-M.; Perez, H.; Carré, B.; Bourhis, E.; Gierak, J.; Madouri, A.; Mailly, D.; Schiedt, B.; Fajardo, M.; Gautier, J.; Zeitoun, P.; Bucksbaum, P. H.; Hajdu, J. & Merdji, H.
Physical Review Letters **103**, 028104 (2009)

- 2) “*Single-shot femtosecond X-ray holography using extended references*”
D. Gauthier, M. Guizar-Sicairos, X. Ge, W. Boutu, B. Carré, J. R. Fienup, H. Merdji
Physical Review Letters **105**, 093901 (2010)

- 3) “*Spatial quality improvement of a Ti:Sa laser beam by Modal Filtering*”
B. Mahieu, D. Gauthier, M. Perdrix, X. Ge, F. Lepetit, F. Wang, W. Boutu, B. Carré, T. Auguste, O. Gobert, H. Merdji, D. Garzella
(en préparation)

Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser-Harmonics Source

A. Ravasio,¹ D. Gauthier,¹ F. R. N. C. Maia,² M. Billon,¹ J-P. Caumes,¹ D. Garzella,¹ M. Géléoc,¹ O. Gobert,¹ J-F. Hergott,¹ A-M. Pena,¹ H. Perez,¹ B. Carré,¹ E. Bourhis,³ J. Gierak,³ A. Madouri,³ D. Mailly,³ B. Schiedt,³ M. Fajardo,⁴ J. Gautier,⁵ P. Zeitoun,⁵ P. H. Bucksbaum,⁶ J. Hajdu,^{2,6} and H. Merdji^{1,6,*}

¹*Commissariat à l'Energie Atomique, Service des Photons, Atomes et Molécules, Bâtiment 522, Centre d'Etude de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France*

²*Laboratory of Molecular Biophysics, Department of Cell and Molecular Biology, Uppsala University, Husargatan 3 (Box 596), SE-751 24 Uppsala, Sweden*

³*Laboratoire de Photonique et Nanostructures, CNRS-UPR20, Route de Nozay, F-91460 Marcoussis, France*

⁴*Instituto de Plasmas e Fusão Nuclear, Instituto Superior Técnico, Avenida Rovisco Pais, 1049-001 Lisboa, Portugal*

⁵*Laboratoire d'Optique Appliquée, Ecole Nationale Supérieure de Technique Avancées, Ecole Polytechnique, CNRS UMR7639, Chemin de la Lumière, 91761 Palaiseau Cedex, France*

⁶*PULSE Institute, Stanford Linear Accelerator Center, Stanford University, 2575 Sand Hill Road, Menlo Park, California 94025, USA*
(Received 30 January 2009; published 8 July 2009)

Coherent x-ray diffractive imaging is a powerful method for studies on nonperiodic structures on the nanoscale. Access to femtosecond dynamics in major physical, chemical, and biological processes requires single-shot diffraction data. Up to now, this has been limited to intense coherent pulses from a free electron laser. Here we show that laser-driven ultrashort x-ray sources offer a comparatively inexpensive alternative. We present measurements of single-shot diffraction patterns from isolated nano-objects with a single 20 fs pulse from a table-top high-harmonic x-ray laser. Images were reconstructed with a resolution of 119 nm from the single shot and 62 nm from multiple shots.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.028104

PACS numbers: 87.59.-e, 41.50.+h, 42.65.-k

Imaging individual objects, with a few nanometer resolution in space and a few femtosecond resolution in time, is of fundamental importance in many areas of science and represents today a fascinating challenge. In such context, advances in coherent diffraction using new coherent ultrashort x-ray sources are actually demonstrating a high potential. Coherent diffraction imaging (CDI) overcomes many restrictions in imaging offering a means to produce images of noncrystalline objects at a resolution, in principle, limited by the wavelength only. In this “lensless” technique a spatially coherent x-ray beam illuminates an isolated sample (surrounded by a zero-scattering area), and the far-field diffraction pattern of the object is recorded on an area detector. Since the detector records only the diffracted intensities the “real image” is retrieved from the amplitude and phase diffraction pattern using an iterative algorithm based on Fourier transforms [1]. This imaging technique can be scaled all the way down to atomic resolution. Since its demonstration, many researchers have taken large steps in this direction using soft and hard x-ray synchrotron radiation [2–6]. However, although atoms can be imaged in space, the conventional synchrotron sources do not allow accessing the fastest processes in matter, which is the new frontier of femtosecond to attosecond time resolution. It is only recently that this perspective has emerged thanks to the first demonstration of single-shot coherent diffraction imaging using a femtosecond soft x-ray free electron laser (FEL) [7].

Following this work Barty and collaborators have then validated the time resolved approach in coherent diffractive imaging by capturing laser induced plasma expansion of a nanopatterned sample on picosecond time scales [8]. The key issue in such nonrepetitive experiments consists in recording diffraction patterns in a single shot with an ultrashort soft x-ray pulse. Indeed it has been proposed to use femtosecond or even shorter x-ray pulses to overcome the damage problems that would degrade x-ray images of individual nanoparticles: If a single ultrashort x-ray pulse has enough x rays to form a good diffraction image of a nanoscale object, then the inertial confinement of the atoms during the ultrabrief exposure will prevent blurring, even if the x-ray flux is sufficient to destroy the sample [9]. However, this necessitates a very high coherent x-ray flux so far only available at large-scale limited-access FEL facilities [10]. This requirement limits the wide spread of ultrafast coherent diffraction imaging at the moment.

High-harmonic generation (HHG) would represent an excellent alternative since such sources are widely available and show the required properties [11–17] to perform ultrafast CDI: high spatial coherence, regular wave front, temporally coherent beam, and ultrashort pulse duration (femtosecond down to about 100 as). Moreover, HHG pulses are synchronized on subfemtosecond time scale with the driving infrared femtosecond laser, allowing a vast flexibility in time resolved experiments. Up to now HHG, like other laser based coherent soft x-ray sources, could not provide enough coherent flux to collect single-

shot diffraction data. Their application was thus restricted to the investigation of nondestructive phenomena, where weak signals had to be accumulated over long time period (hours) [18,19].

Here we report the first results on single-shot coherent diffraction imaging from a femtosecond table-top HHG source. Our approach is based on a significant improvement of the soft x-ray yield from high-harmonic generation in gases. The experiment was performed at the LUCA laser facility at CEA Saclay, France. The Ti:sapphire laser system delivers up to 50 mJ energy pulses at 800 nm with a pulse duration of 50 fs at a repetition rate of 20 Hz. A high intensity soft x-ray coherent beam is obtained using a loose focusing geometry, which allows coupling a very high amount of laser energy in the HHG process [20–22]. At a given laser intensity we increase the focal volume and scale up the number of “atomic harmonic converters” that will macroscopically radiate under improved phase matching conditions. Using a long gas cell and a long focal length lens (7.5 m), the emitting volume can be increased by orders of magnitude as compared to standard HHG setups. This approach allows reaching more than 10 μJ per shot in the whole harmonic frequency comb and up to 1 μJ (1.6×10^{11} photons) for the 25th ($\lambda = 32$ nm) harmonic considered in this work. For the CDI experiment a laser energy of ~ 35 mJ and a 5.5 m focal length lens were used. The soft x-ray beam parameters were optimized by adjusting the gas pressure, the cell length, and the laser beam aperture. The beam was focused into a 10 cm, 2 mbar argon gas cell before the entrance of the cell. The maximum soft x-ray output was 0.6 μJ . Thanks to a preferential on axis phase matching associated to the short quantum path [17], the beam has a low divergence (500 μrad) and a high degree of spatial coherence, up to 92% as measured in single shots using a Young double slit arrangement.

The schematic arrangement of our table-top CDI beam line at CEA Saclay is shown in Fig. 1. After generation of the soft x-ray beam, it propagates together with the main infrared (IR) laser which is then rejected using an IR antireflective mirror. The residual IR is eliminated using a 150 nm thick aluminum filter. A 22.5° off axis parabola of 200 mm focal length focuses the soft x rays to a 20 μm focal spot (full width at half maximum). The 25th harmonic is selected from the harmonic frequency comb using a $\text{B}_4\text{C}/\text{Si}$ multilayer coating deposited on the parabola surface. The resulting beam has a spectral linewidth of $\lambda/\Delta\lambda \sim 150$ and a temporal duration of ~ 20 fs. The total optic line transmission from the high-harmonic source to the sample is 1% corresponding to 10^9 useful photons per shot at 32 nm in a 20 μm focal spot. The intensity on the sample is estimated to be 10^{11} W/cm 2 . The sample is placed at the focus of the parabolic mirror and diffracts the coherent soft x rays. The samples were micrometer-sized “harmonic notes” with sub-100 nm details [see Figs. 1 and 4(a)]. To obtain a pure amplitude object an opaque 100 nm thick gold layer was deposited on a 70 nm thick SiC membrane before patterning using a sub-10 nm

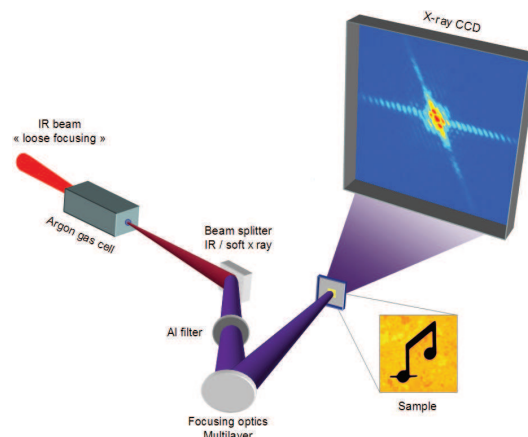


FIG. 1 (color online). Tabletop soft x-ray diffractive imaging beam line. The soft x-ray laser harmonics are produced by the interaction of the loose focused infrared laser beam in an argon gas cell. The infrared beam is removed after the soft x-ray generation by a SiO_2 beam splitter that reflects most of the soft x-ray. An antireflective coating rejects most of the infrared laser light. The residual infrared light is totally suppressed with a 150 nm thin aluminum filter. The 25th harmonic order, at a wavelength of 32 nm, is selected and focused onto the sample using a multilayer coated off axis parabola. The sample is positioned at the focus where it scatters the soft x-ray beam. The diffraction pattern is collected on a backilluminated soft x-ray CCD at 20 mm distance from the sample. With a 3 μm sample size the diffraction pattern is measured in the Fraunhofer regime.

resolution focused ion beam. The diffraction pattern is collected on a backilluminated CCD camera in the Fraunhofer regime (at a distance $z = 20$ mm from the sample), where it is proportional to the Fourier transform of the sample’s transmission function (the sample exit wave). The full chip contains 2048×2048 square pixels with a size of $p = 13.5$ μm .

To demonstrate the potential of our CDI beam line we have first considered multiple exposure diffraction patterns of the sample. A diffraction pattern of the harmonic notes is shown in Fig. 2(a). The data are recorded over 40 shots (2 s acquisition time), i.e., 10^7 times less shots than what has been done previously using HHG. The image represents the coherent intensity pattern of the sample Fourier transform. In our experiment the use of a beam blocker was not necessary so that we have full access to low frequencies. This increases the amount of information for image reconstruction. The main diffracted features are distributed on two axes associated to the preferential directions in the sample structure. A 30 pixel period modulation can be seen on the horizontal direction. This is related to the interference of the diffracted waves from two similar features placed at a distance of 1.5 μm in the sample design. The modulation is also observed at the largest diffracted angles. Practically it means that the diffracted beams overlap in time even at high angles. This is consistent with the spectral bandwidth and the pulse duration.

Since only the intensity of the diffracted coherent wave is measured, the phase information is missing and must be recovered to reconstruct the object. Figure 2(b) shows the reconstructed image from the diffraction pattern given in Fig. 2(a). Image reconstruction was carried out using iterative transform phase retrieval techniques. Here, we used the HAWK code iterative procedure [23]. For both reconstructions, the experimental image was low pass filtered by applying a tight filter around the autocorrelation to remove most of the image noise. The support of the object was then determined using the SHRINKWRAP algorithm combined with hybrid input-output (HIO) algorithm. Using the relaxed averaged alternating reflectors (RAAR) algorithm and the support previously obtained, 80 reconstructions were run with random starting points.

In the Fraunhofer approximation, the maximal detectable spatial frequency in the sample's transmission function is calculated according to $\sigma_{\max} = (Np/2)/(\lambda z)$, where N represents the pixel number of the chip area considered. For the 40 shot exposure, an array of $N = 1024 \times 1024$ pixels is used for the reconstruction corresponding to a diffraction angle of 19° at the midpoint of the

edge of the array. The image resolution (based on Rayleigh criteria) corresponds to the half-period length of the highest frequency in the diffraction pattern. According to this definition the diffraction limited resolution [$r = 1/(2\sigma_{\max})$] gives a pixel size of 46 nm. The effective image resolution could be worse than r depending on the accuracy with which the phases are retrieved. An effective half-period resolution is therefore estimated after reconstruction by computing the phase retrieval transfer function (PRTF) [4,7]. It is defined as the value where the PRTF drops to a value $1/e$. According to this criteria, a 62 nm resolution length is obtained as shown in Fig. 2(c).

On the basis of this result, we have progressively lowered the exposure time from 2 s to 20 fs corresponding to a single-shot acquisition. The measured diffraction pattern is shown in Fig. 3(a). In this case, the useful signal occupies a smaller region of the detector with less scattered photons on the detector compared to the multishot case. This limits the signal-to-noise ratio, and high frequencies are less evidenced. Signal-to-noise ratio limits the useful chip area for the reconstruction algorithm to an array of $N = 800 \times 800$ pixels corresponding to a diffraction angle 15°

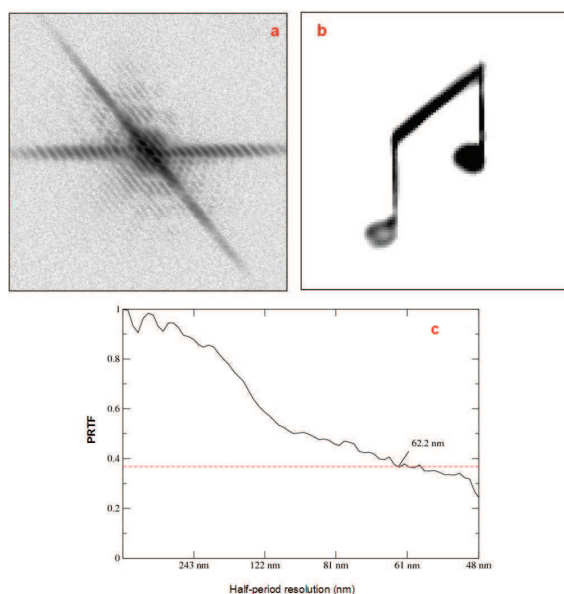


FIG. 2 (color online). Multishot coherent soft x-ray diffraction patterns and the reconstructed image. (a) Measured diffracted intensity (magnitude square of diffracted wave) from the sample, in logarithmic scale, obtained in 40 shots acquisition (2 s exposure time). The maximal spatial frequency (σ_{\max}) at the edge of the diffraction pattern is $10.8 \mu\text{m}^{-1}$. (b) Reconstructed object amplitude obtained with a 46 nm pixel size. The reconstruction reveals the modification due to the damage that occurred to the object during the experimental campaign, in particular, at the round of the left harmonic note. (c) PRTF function of the image reconstructed in which the criteria value of $1/e$ provides a half-period resolution length image of 62 nm.

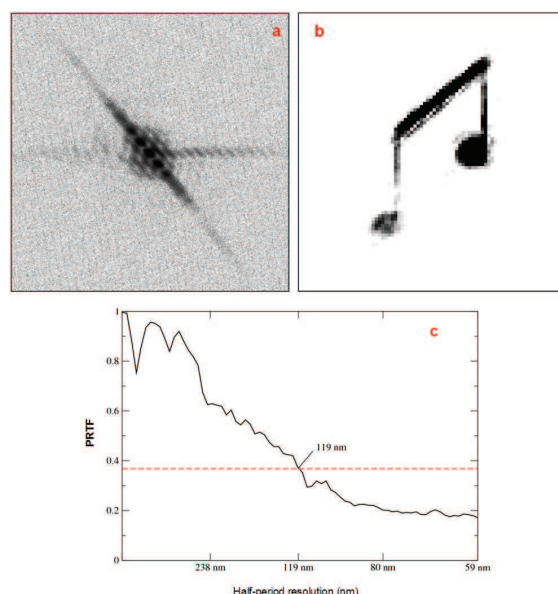


FIG. 3 (color online). Single-shot coherent soft x-ray diffraction patterns and the reconstructed image. (a) Measured diffracted intensity from the sample, in logarithmic scale, obtained in single-shot acquisition (20 fs exposure time). The maximal spatial frequency at the edge of the diffraction pattern is $8.4 \mu\text{m}^{-1}$. (b) Image of reconstructed object amplitude obtained with 59 nm pixel size. Despite less quality, the single-shot object reconstruction shows a qualitative agreement with the multishot reconstruction. In particular, the amplitude transmission is lower on the round of the left harmonic note. (c) PRTF function of the reconstructed image. The $1/e$ criteria value provides a half-period resolution length image of 119 nm.

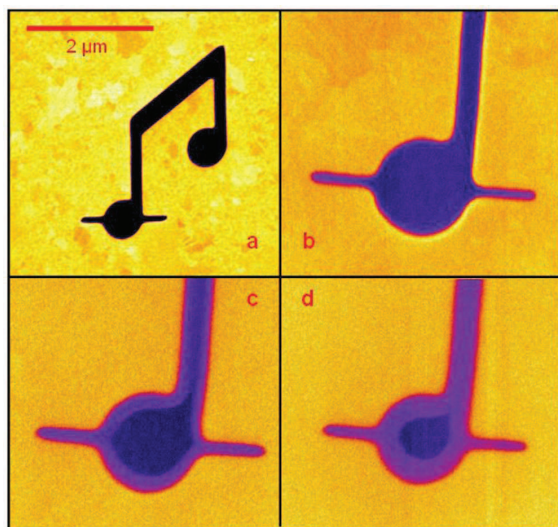


FIG. 4 (color online). “Harmonic notes” SEM images and details on the structure modification. Panel (a) shows the initial test object used at our table-top coherent imaging beam line. Panels (b)–(d) show a detail of the structure modification of the object at different steps during the experiment. These steps, respectively, correspond to a low (b), medium (c), and high (d) soft x-ray dose. The dark (purple) area corresponds to a full transmission of the soft x-ray whereas the bright (purple) area corresponds to a partial transmission. Panel (c) corresponds to the sample used to collect the diffraction patterns shown in Figs. 2(a) and 3(a).

at the midpoint of the edge of the array. However, the quality of the data is high enough to allow a reconstruction shown in Fig. 3(b). The features already evidenced in the multiexposure case are here similarly reconstructed. The PRTF function gives a resolution length of 119 nm [see Fig. 3(c)]. For both single and multishot images, there is a qualitative consistency with the scanning electron microscopy (SEM) image shown in Fig. 4(a). In particular, the two notes are well defined, as well as the upper bar (horizontally tilted thick line). However, the save line never appears, even if its thickness (75 nm) is larger than the multiexposure resolution. This is explained by considering the radiation damages progressively induced during the whole experimental campaign. While damages do not occur on single or few tens shots, the irradiation over thousands of shots (i.e., repetitive measurements) does affect the sample. In Figs. 4(b)–4(d) we show SEM images of the sample submitted to different radiation doses at different stages of the experiment. The evolution of the save line feature is pointed out. At the beginning of the experiment [Fig. 4(b)], the note is fully transmitting. When increasing the dose the transmitting area is progressively reduced as shown, respectively, in Figs. 4(c) and 4(d). The image shown in Fig. 4(c) corresponds to sample condition at the time when the diffraction pattern shown in Figs. 2(a)

and 3(a) have been measured. The transmitting area is now much reduced, affecting both the circle diameter and the vertical line thickness. Moreover, the save line is completely blocked, in agreement with the reconstructed images in Figs. 2(b) and 3(b). These observations underline the importance of recording the full information before the sample is modified [9]. Single-shot femtosecond imaging allows data collection faster than relevant damages processes occur. This possibility, first demonstrated at the FLASH FEL, is now available on a table-top laser harmonic source.

In this Letter we have shown that HHG can deliver coherent intense x rays at the microjoule level. Our laboratory scale source offers an inexpensive approach, complementary to FEL facilities. We have demonstrated the capability of visualizing in single-shot nonperiodic nanoscale objects using femtosecond coherent diffractive imaging. This opens fascinating perspectives in imaging dynamical phenomena to be spread over a large scientific community. Investigation of ultrafast phase transitions in mesoscopic systems, ultrafast spin reversals of magnetic nanodomains, or large molecule rearrangements in biological environments are some examples. The natural synchronization of high-harmonic generation with the driving laser allows subfemtosecond time jitter that would significantly facilitate time resolved studies.

Shorter wavelengths already demonstrated in HHG should soon allow reaching sub-10 nm spatial resolution in coherent diffractive imaging. Exciting future prospects also come from intense harmonics generated from laser-plasma surfaces [24,25]. This coherent source holds the promise of generating very intense subnanometer subfemtosecond coherent x rays suitable for ultrafast coherent diffractive imaging.

We acknowledge financial support from the European Union (TUIXS, NEST-012843), the EU-FP6 XTRA (MRTN-CT-2003-505138), and LASERLAB (RII3-CT-2003-506350) programs. We also acknowledge support from the U.S. Department of Energy through the Stanford PULSE Center. Additional support comes from the Triangle de la Physique, NanoSciences Ile-de-France, DFG Cluster of Excellence at the Munich Centre for Advanced Photonics, from the Virtual Institute Program of the Helmholtz Society, and from the Swedish Research Council. We are grateful to Elsa Abreu, Thierry Auguste, Stefan Haessler, Jacek Krzywinski, and Pascal Salières for help and discussions.

*hamed.merdji@cea.fr

- [1] J. W. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, and D. Sayre, *Nature* (London) **400**, 342 (1999).
- [2] I. K. Robinson *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 195505 (2001).
- [3] J. W. Miao *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **100**, 110 (2003).

-
- [4] D. Shapiro *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **102**, 15 343 (2005).
- [5] M. A. Pfeifer, G. J. Williams, I. A. Vartanyants, R. Harder, and I. K. Robinson, Nature (London) **442**, 63 (2006).
- [6] B. Abbey *et al.*, Nature Phys. **4**, 394 (2008).
- [7] H. N. Chapman *et al.*, Nature Phys. **2**, 839 (2006).
- [8] A. Barty *et al.*, Nat. Photon. **2**, 415 (2008).
- [9] R. Neutze *et al.*, Nature (London) **406**, 752 (2000).
- [10] W. Ackerman *et al.*, Nat. Photon. **1**, 336 (2007).
- [11] P. Salières, A. L'Huillier, Ph. Antoine, and M. Lewenstein, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **41**, 83 (1999).
- [12] T. Ditmire *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 4756 (1996).
- [13] L. Le Deroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux, and D. Phalippou, Phys. Rev. A **61**, 043802 (2000).
- [14] R. Bartels *et al.*, Science **297**, 376 (2002).
- [15] P. B. Corkum and F. Krausz, Nature Phys. **3**, 381 (2007).
- [16] J. Gautier *et al.*, Eur. Phys. J. D **48**, 459 (2008).
- [17] H. Merdji *et al.*, Phys. Rev. A **74**, 043804 (2006).
- [18] R. L. Sandberg *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 098103 (2007).
- [19] R. L. Sandberg *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **105**, 24 (2008).
- [20] J. F. Hergott *et al.*, Phys. Rev. A **66**, 021801 (2002).
- [21] E. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, Opt. Lett. **27**, 1920 (2002).
- [22] E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obara, and K. Midorikawa, Phys. Rev. A **66**, 021802 (2002).
- [23] Details about the Hawk code iterative procedure can be found at <http://xray.bmc.uu.se/~filipe/?q=hawk/whatishawk>.
- [24] B. Dromey *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 085001 (2007).
- [25] C. Thaury *et al.*, Nature Phys. **4**, 631 (2008).

Single-shot Femtosecond X-Ray Holography Using Extended References

D. Gauthier,¹ M. Guizar-Sicairos,² X. Ge,¹ W. Boutu,¹ B. Carré,¹ J. R. Fienup,² and H. Merdji^{1,3,*}

¹CEA-Saclay, IRAMIS, Service des Photons, Atomes et Molécules, 91191 Gif-sur-Yvette, France

²The Institute of Optics, University of Rochester, Rochester, New York, 14627, USA

³PULSE Institut for Ultrafast Energy Science, Stanford Linear Accelerator Center,
Stanford University, 2575 Sand Hill Road, Menlo Park, California 94025, USA

(Received 4 February 2010; revised manuscript received 15 July 2010; published 24 August 2010)

In the context of x-ray lensless imaging, we present a recent approach for Fourier transform holography based on the use of extended references. Major advances shown here rely on a high signal efficiency and on the direct image reconstruction of the object performed by a simple linear derivative. Moreover, the extended holographic reference is easy to manufacture and can be applied to a variety of imaging experiments. Here we demonstrate single-shot imaging with a table-top, laser-based coherent soft x-ray source. A spatial resolution of 110 nm was obtained with an integration time of 20 fs.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.093901

PACS numbers: 42.40.-i, 42.30.Wb, 87.59.-e

Lensless imaging using coherent x rays has demonstrated great potential in recent years especially with new ultrafast coherent x-ray sources, the free electron laser (FEL) [1–4], and high harmonics generation (HHG) [5–7]. This technique has attracted much attention due to its application in ultrafast nanoscale imaging. Indeed, these bright flashes of x-ray light can capture snapshots of dynamical processes even in dense matter and at a mesoscopic scale [4]. In this context, various lensless coherent imaging schemes have been explored using x rays, including, for example, coherent diffractive imaging [8], keyhole diffractive imaging [9], and Fourier transform holography [10–12].

Imaging without image forming optics is based on the measurement of the intensity diffracted from an object illuminated by a coherent x-ray beam. In this technique the two-dimensional complex-valued object transmissivity can be retrieved from the measured far-field scattered amplitude using either iterative phase retrieval or direct holographic techniques. For Fourier transform holography (FTH) a point source in the vicinity of the object generates a reference wave that interferes with the object's scattered wave at the detector plane [10–13]. Thus, the phase and amplitude information of the object are encoded in the intensity of the holographic diffraction pattern, the hologram.

One advantage of FTH is that the complex-valued image is retrieved in a noniterative and unambiguous fashion with a simple reconstruction algorithm, namely, an inverse Fourier transform of the hologram. This is a valuable alternative to computationally intensive iterative algorithms which attempt to solve the phase retrieval problem of reconstructing an image from coherent diffractive imaging (CDI) data [8,14]. The possibility of reliably retrieving a closed-form, unique solution makes holography an attractive lensless configuration and holds potential in the recent context of ultrafast single-shot imaging using

an x-ray free electron laser or a table-top high harmonic source.

In the x-ray regime, various schemes have been proposed to go beyond the limitations imposed in standard holography, as, for example, the use of complicated references [15], large references [16], or multiples references [17]. More recently a holographic scheme based on a uniformly redundant array of references was successfully demonstrated at the Hamburg FLASH soft x-ray free electron laser [18]. Although this scheme increases the signal to noise ratio (SNR) of the reconstruction, the direct inversion of the hologram relies on quantitative knowledge of this reference structure. The latter is significantly affected by the difficult manufacturing process. Such an approach is also difficult to scale down to fine resolution accessible at hard x-ray wavelengths where a reference and a reconstruction procedure robust to manufacturing errors should be used.

In standard FTH there is a compromise in the determination of the size of the reference point source between the two requirements: (i) the resolution given by the reference size, and, (ii) the flux through the reference for observing interference fringes with a good contrast [15,16]. The hologram fringe visibility depends on the relative amplitudes of the fields diffracted by the object and the reference, respectively, and is clearly maximum when these amplitudes are equal. The use of extended references allows increasing the fringe visibility, especially at larger scattering angles (which correspond to higher resolution) where the scattering signal may be weak. The hologram is subsequently more efficiently recorded than in standard FTH. This improves the image reconstruction with substantially enhanced quality and resolution as compared with a point source reference.

In this Letter we demonstrate single-shot femtosecond x-ray holography using a recently developed approach; holography with extended reference by autocorrelation

linear differential operation (HERALDO) [19–21]. This lensless imaging scheme preserves the deterministic reconstruction properties of FTH. The analytical uniqueness of the solution directly retrieved as a complex-valued image from the hologram. HERALDO is a more general approach to FTH, using boundary waves of more general extended objects as holographic references. The reconstruction procedure is robust and simple to implement. It is based on the application of linear differential operators to the field autocorrelation, i.e., the inverse Fourier transform of the hologram. In our setup, the extended references used around the nanoscale test object “ φ ” are linear slits [see Fig. 1]. The directional derivative (in the direction of the slit) is applied during the reconstruction process, which then provides two independent reconstructions of the object “ φ ”, each associated with the slit extremities [Figs. 1 and 2]. As in FTH, each reconstruction has an associated twin image that does not provide additional information. The HERALDO image processing is indicated by the $\frac{d}{dx} F^{-1}\{\text{hologram}\}$ symbol in Fig. 1.

The test object and the linear reference slits were patterned using a focused ion beam at a resolution of about 20 nanometers on a freestanding Si_3N_4 membrane of 225 nm thickness. A 50 nm layer of gold was deposited on the membrane so that the sample has a pure amplitude transmittance. The test object “ φ ” has a $2\ \mu\text{m} \times 1.7\ \mu\text{m}$ overall size, with 200 nm to sub-100 nm details [Fig. 2(a)]. The horizontal and vertical reference slits have a width of, respectively, 130 and 145 nm. The two slits are slightly

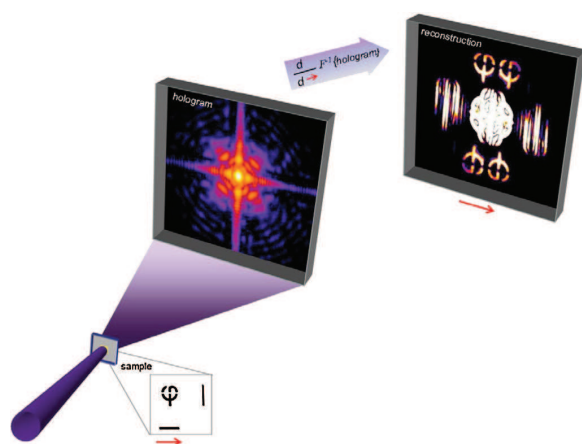


FIG. 1 (color online). Schematic view of the HERALDO experimental setup. Hologram acquisition from sample (“ φ ” object + reference slits) scattering using a soft x-ray coherent high harmonic beam at 32 nm wavelength. The reconstruction is straightforwardly obtained by computing the directional derivative along the reference slit direction (red arrow) of the inverse Fourier transform of the hologram (i.e., the autocorrelation of the sample transmission). The reconstruction process is symbolized by the operator $\frac{d}{dx} F^{-1}\{\text{hologram}\}$.

longer than the object dimensions, and they are etched at sufficient distance from the object to satisfy the separation conditions for a holographic reconstruction [19]. Each reference slit has a scattering area of about $\sim 0.3\ \mu\text{m}^2$ which is about 1/3 that of the object.

For the experiment, the sample was illuminated with the 25th harmonic ($\lambda = 32\ \text{nm}$) of the table-top infrared femtosecond laser LUCA (Laser Ultra Court Accordable) at the CEA-Saclay research center, France. The source delivers up to 4×10^{10} photons ($0.25\ \mu\text{J}$) per pulse, within a spectral bandwidth $\lambda/\Delta\lambda = 150$ and ~ 20 fs pulse duration [5]. The soft x-ray beam transport and focalization has been optimized using an x-ray wave front sensor [22]. Typically, 2×10^9 photons hit the sample within a focal spot of $5\ \mu\text{m}$ in diameter, corresponding to an intensity of $\sim 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$. The transverse and longitudinal coherence lengths at the sample are $\sim 10\ \mu\text{m}$ and $\sim 5\ \mu\text{m}$, respectively. These are well within the requirements for holography.

We measured the far-field diffraction pattern of the sample exit wave, the hologram, using an x-ray CCD camera [Fig. 1] placed at a distance $z = 20\ \text{mm}$ from the sample. The full CCD chip contains 2048×2048 square pixels with a size $p = 13.5\ \mu\text{m}$. The number of incident

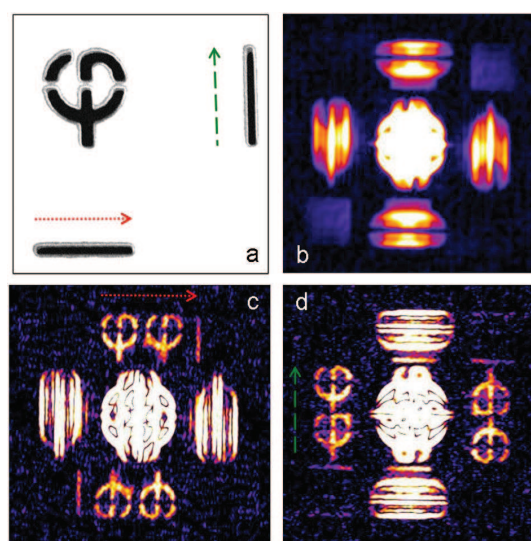


FIG. 2 (color online). Image reconstruction. (a) Scanning electron micrograph (SEM) of the sample showing the “ φ ” test object and the two references slits ($2.1\ \mu\text{m}$ slit length). (b) Field autocorrelation given by the inverse Fourier transform of the hologram. The four cross-correlations of the “ φ ” object with the references surrounds the central part, as well as the cross-correlation of the two references slits. (c),(d) Numerical derivatives of the field autocorrelation along the two slit directions (indicated by red dotted and green dashed arrows) which lead to the reconstruction of the “ φ ” object. We obtain two independent images from each extremity of the slit references.

photons diffracted by the sample and detected by the CCD (quantum efficiency of 40% at 32 nm) is about $\sim 2 \times 10^7$ in single shot.

A typical measured hologram is shown in Fig. 3(d). We clearly see the scattering from the two reference slits in the vertical and horizontal axes of the hologram which shows coherent interference with the field scattered from the object. The field autocorrelation [see Fig. 2(b)] is computed from the single-shot hologram through an inverse Fourier transform. The image reconstructions shown in Figs. 2(c) and 2(d) are obtained by computing the derivatives of the field autocorrelation. The design with 2 slits, respectively, horizontal and vertical, provides 4 independent reconstructions, one for each slit extremity, and 4 twin images. Notice that, next to the reconstructed object, each slit end reconstructs also the other reference slit.

From Figs. 2(c) and 2(d) and the field autocorrelation, we get insight into the x-ray intensity distribution on the sample. In particular, the 4 independent reconstructions of the object and the reference exhibit different contrasts, higher for derivation along the horizontal than the vertical slit. Moreover, the references are better illuminated on their inner part (e.g., right side of horizontal slit).

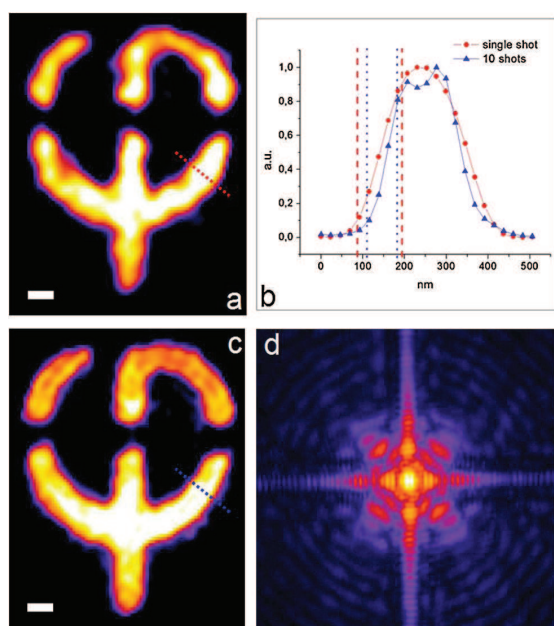


FIG. 3 (color online). Modulus of the final reconstructed image obtained by averaging the 4 independent reconstructions of (a) single shot and (c) 10 shots acquisition. The scale bar is 200 nm and pixel size is 23 nm. (b) Plot profile of the single shot (red line) and 10 shots (blue line) results showing, respectively, a resolution of 105 and 74 nm. (d) Measured hologram of the 10 shots acquisition displayed in logarithmic scale on a 720×720 pixels square which corresponds to $7.63 \mu\text{m}^{-1}$ maximum spatial frequency.

This inhomogeneous contrast is attributed to the slightly different patterns (slightly different widths) of the two slits, and a decreasing x-ray intensity from the center to the sample periphery. The object however is uniformly illuminated.

In the reconstruction process the hologram was first filtered to select the spatial frequencies with sufficient SNR. A polynomial product was then applied in the Fourier domain [19,20]. This operation, equivalent to a directional derivative in the object space, facilitates differentiation at arbitrary angles. The image quality was improved by subpixel registration [23] and by averaging of the 4 individual complex-valued reconstructions to increase the SNR [17]. Care was also taken to match a global phase between the reconstructions to maximize the signal constructive interference. The final high quality reconstructed image is shown in Fig. 3(a). Using a 10% to 90% edge transition criterion on different edges of the object [see Fig. 3(b) for a typical plot profile], we determined a spatial resolution of 110 nm ($\sim 3.4\lambda$) for the single-shot image. This is in good agreement with the SNR limitation of our measurement at the high scattering angles. The equivalent half period resolution of 110 nm corresponds to a maximum spatial frequency of $4.55 \mu\text{m}^{-1}$ in the hologram (i.e. a half scattering angle of 144 mrad) above which the scattered signal cannot be extracted due to the noise.

We have performed multishot reconstruction [Fig. 3(c)] by accumulation of 10 shots of 20 fs duration each (the x-ray CCD camera exposure was set to half a second) [see recorded data on Fig. 3(d)]. This was possible because the single-shot exposure is below the damage threshold of the sample. We have estimated, with the multishot reconstruction, the resolution limit given by the manufacturing of the feature size of the reference structures. Using the same resolution criteria as the single-shot we obtained a resolution of 80 nm for the multishot reconstruction [Fig. 3(c)]. Note that the holographic fringes are well resolved and that the scattered signal is observed at a spatial frequency up to $7.63 \mu\text{m}^{-1}$. This is above the spatial frequency of $6.25 \mu\text{m}^{-1}$ (equivalent to 80 nm resolution in the object plane). Practically, the manufacture resolution limit can be estimated by calculating the point spread function (PSF) of the reconstruction using the derivative of the scanning electron micrograph (SEM) image of the slit. This gives us an equivalent resolution limit of 80 nm that is the limit imposed by our HERALDO reference design. We conclude that the resolution for 10 shots acquisition is limited by the slit width designed for the single-shot experiment. But this setup is versatile so that, beyond this experimental demonstration, the width of the reference slit can be easily adjusted to various experimental requirements.

This work enables an efficient future use of holography to capture snapshots of ultrafast phenomena at a nanometer scale using harder x rays. This technique goes beyond the

limitation imposed by conventional Fourier transform holography, in particular, because of the high signal contribution of the reference and effective noise filtering (especially for Poisson limited data) from the reconstruction procedure. The potential for this technique for higher resolution lies in its ability to be scaled down to shorter wavelength. Higher resolution can be obtained by using crystal edges, carbon nanotubes, or metallic nanowires as references to image viruses, cells or nanostructures. For these configurations having a method that is robust against reference defects and nonuniform illumination will be crucial. Our results show that HERALDO has the required robustness and gives good quality reconstructions under significantly inhomogeneous reference illumination and defects. Moreover, the combination of HERALDO with the design of a very large scattering reference [19] could be appropriately used to image weak scatterers such as biomolecules [24,25]. The single-shot demonstration of HERALDO using a soft x-ray femtosecond source also opens other possibilities. First, our femtosecond x-ray flash can take a snapshot of the object before radiation damage occurs. Second, dynamical imaging of nonreproducible ultrafast phenomena at the nanoscale can be performed. The noniterative and unambiguous image reconstruction process makes HERALDO robust to capture space and time amplitude and phase variations associated to complex physical or biological processes. Investigation of ultrafast phase transitions in mesoscopic systems, ultrafast spin reversals of magnetic nanodomains, or large molecule rearrangements in biological environments are some examples of accessible dynamics. Shorter HHG wavelength down to the water window and magnetic L edges can be used for such applications [26–28].

We acknowledge financial support from the EU-LASERLAB (RII3-CT-2003-506350) programs, from French ministry of research through the 2009 ANR grants “I-NanoX” and “Femto-X-Mag”, from the “Triangle de la Physique” through the COX grant and the C’NANO research program through the X-NANO grant and also support from the U.S. Department of Energy through the Stanford PULSE Center. We acknowledge Marc Billon,

Cédric Baumier, Mike Bogan, Phil Bucksbaum, Franck Fortuna, Julien Gautier, D. Garzella, O. Gobert, J.-F. Hergott, Xiaochi Liu, Jan Lüning, Stefano Marchesini, Alessandra Ravasio, and Philippe Zeitoun for grateful discussion and support.

*hamed.merdji@cea.fr

- [1] H. Chapman *et al.*, *Nature Phys.* **2**, 839 (2006).
- [2] H. Chapman *et al.*, *Nature (London)* **448**, 676 (2007).
- [3] A. P. Mancuso *et al.*, *New J. Phys.* **12**, 035003 (2010).
- [4] A. Barty *et al.*, *Nat. Photon.* **2**, 415 (2008).
- [5] A. Ravasio *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 028104 (2009).
- [6] R. L. Sandberg *et al.*, *Opt. Lett.* **34**, 1618 (2009).
- [7] J. Schwenke *et al.*, *J. Mod. Opt.* **55**, 2723 (2008).
- [8] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, and D. Sayre, *Nature (London)* **400**, 342 (1999).
- [9] B. Abbey *et al.*, *Nature Phys.* **4**, 394 (2008).
- [10] I. McNulty *et al.*, *Science* **256**, 1009 (1992).
- [11] S. Eisebitt *et al.*, *Nature (London)* **432**, 885 (2004).
- [12] A. S. Morlens *et al.*, *Opt. Lett.* **31**, 3095 (2006).
- [13] G.W. Stroke, *Introduction to Coherent Optics and Holography* (Academic Press, New York, 1969).
- [14] J.R. Fienup, *Appl. Opt.* **21**, 2758 (1982).
- [15] A. Szoke, *J. Imaging Sci. Technol.* **41**, 332 (1997).
- [16] H. He *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 2454 (2004).
- [17] W.F. Schlotter *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 163112 (2006).
- [18] S. Marchesini *et al.*, *Nat. Photon.* **2**, 560 (2008).
- [19] M. Guizar Sicaïros and J.R. Fienup, *Opt. Express* **15**, 17592 (2007).
- [20] M. Guizar Sicaïros and J.R. Fienup, *Opt. Lett.* **33**, 2668 (2008).
- [21] S.G. Podorov, K.M. Pavlov, and D.M. Paganin, *Opt. Express* **15**, 9954 (2007).
- [22] J. Gautier *et al.*, *Eur. Phys. J. D* **48**, 459 (2008).
- [23] M. Guizar-Sicaïros *et al.*, *Opt. Lett.* **33**, 156 (2008).
- [24] S. Boutet *et al.*, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **166–167**, 65 (2008).
- [25] T. Shintake, *Phys. Rev. E* **78**, 041906 (2008).
- [26] J. Seres *et al.*, *Nature (London)* **433**, 596 (2005).
- [27] J. Seres *et al.*, *Nature Phys.* **6**, 455 (2010).
- [28] P. Arpin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 143901 (2009).

Spatial quality improvement of Ti:Sa laser beam by Modal Filtering

B. Mahieu^{a,b,c}, D. Gauthier^a, M. Perdrix^a, X. Ge^a, F. Lepetit^a, F. Wang^a, W. Boutu^a, B. Carré^a, T. Auguste^a, O. Gobert^a, H. Merdji^{a,d}, D. Garzella^a

^a*Service des Photons Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, Centre d'Etudes de Saclay, Bâtiment 522, 91191 Gif-sur-Yvette, France*

^b*Sincrotrone Trieste Elettra, S.S.14 - km 163.5 in AREA Science Park, 34149 Basovizza, Italy*

^c*University of Nova Gorica, Vipavska 11c, 5270 Ajdovščina, Slovenia*

^d*Stanford PULSE Center, SLAC, Menlo Park, California 94025, USA*

Abstract

The study and characterizations of a setup aimed at spatial quality improvement of an amplified Ti:Sa laser beam are presented. The technique used, called modal filtering, consists in the selection of the EH_{11} mode, close to the TEM_{00} one, by propagating the beam over a short distance in a hollow-core fiber. The output beam exhibits a stable and nearly gaussian transverse intensity profile and its wavefront is significantly flattened, while the temporal distribution is not affected. High-order Harmonic Generation in gas, a highly nonlinear process, which is phase matching dependent, was used to test the effect of the filter and showed a clear improvement of the generation. Overall, the qualities demonstrated by the beam make the modal filtering technique of prime interest for many other experiments.

Introduction

Laser beams from amplified Ti:Sa chains, commonly used for the production of high peak power femtosecond pulses, often suffer from bad spatial quality. Aberrations resulting from anisotropic thermal dissipation in the amplification media [1], self-phase modulation during propagation of such intense pulses in the air or in materials [2], intracavity beam distortions [3] and imperfections in optical components involve a deterioration of both wavefront and transverse intensity profile. Hence the laser beam cannot be considered as a TEM_{00} mode, the fundamental mode of a laser cavity [4]. A common technique to recover a good spatial quality is to focus the laser through a pinhole. The lens used to focus the beam does a Fourier transform of the field in the plane of the pinhole where there is a one to one mapping between transverse position and spatial frequencies. This allows filtering of high spatial frequencies [5]. However the beam keeps its low spatial frequencies distortions and a significant amount of energy may be lost. Moreover, unless specific conic pinhole is used [6], any misalignment of the laser beam can permanently damage the pinhole. Other or complementary techniques include the use of a saturable absorber [7] or a deformable mirror [8] and diffraction from Bragg gratings [9]. Moreover, active filtering can be achieved through nonlinear processes like second harmonic generation via nonlinear crystal [10] or plasma mirror [11] and cross-polarized wave generation (XPW) [12].

A scheme based on the theory of propagation of an electromagnetic wave in a cylindrical dielectric waveguide is considered here. In the field of ultrafast lasers, it has been initiated by the post compression technique used to generate sub-10fs laser pulses, where a mJ-level femtosecond laser beam propagates over a short distance in a capillary filled with gas [13]. When propagating into the capillary, the electromagnetic field of the laser beam is decomposed on the modes specific to this waveguide. Choosing appropriate parameters, the beam couples preferentially into the EH_{11} mode, very similar to the TEM_{00} one, and other guided modes suffer from higher attenuation. Therefore, if the capillary is sufficiently long, a modal filtering is made on the laser beam. The latter keeps the Gaussian shape of EH_{11} during subsequent free propagation. Thus a setup aimed at spatial quality improvement of a laser beam can

Email address: benoit.mahieu@cea.fr (B. Mahieu)

be conceived by propagation in a carefully chosen waveguide. Modal filtering techniques have already been used in other frames than ultrafast lasers, for instance stellar interferometry [14].

A modal filtering setup has been built on the LUCA facility of CEA Saclay (France), a Ti:Sa chirped pulse amplified [15] laser source. The chosen cylindrical waveguide has been a straight, 30cm-long hollow-core fiber in silica with a core radius $a = 125\mu\text{m}$. The purpose of the article is to provide a comprehensive characterization of this modal filtering setup and the demonstration of its practical prominence for numerous applications. The initial motivation of present work was the general optimization of the generation of high-order harmonics (HHG [16]) in loose-focusing geometry [17] on the beamline dedicated to experiments of coherent diffraction imaging [18, 19]. Thereby, after a presentation of the theoretical background, a description of the setup and the analysis of the measurements, first successful results of HHG optimization are also discussed at the end of this article.

1. Propagation and mode-matching in a hollow-core fiber

The equation (in cylindrical coordinates) of propagation of electromagnetic waves in cylindrical structures, such as the used fiber, has been expressed in [20]. The functions (electric and magnetic field components over each coordinate) that are solutions of this equation correspond to the modes of propagation into this waveguide. Doing some approximations, simple analytical solutions are found [21, 22]. These solutions can be divided in three families: transverse electric TE_{0m} , transverse magnetic TM_{0m} and hybrid EH_{nm} modes. Hybrid modes can also be considered as transverse, since the longitudinal component of their electric field is negligible. Thus, in the frame of this study, each mode can be reduced to three main characteristics: a radial and azimuthal equation for the transverse electric field (depending mainly on Bessel functions), an attenuation coefficient α and a phase constant β . The less attenuated mode (lowest α) is called the fundamental one. This mode will be the one “selected” by the modal filtering, due to higher attenuation of other modes. Modes having the same β are degenerate and their linear combinations form other possible modes, called composite modes, such as $\text{EH}_{2m} + \text{TM}_{0m}$ or $\text{EH}_{2m} + \text{TE}_{0m}$.

The vertical polarization of the laser beam matches vertically polarized waveguide modes, which can be denominated as follows:

- for $n=1$: EH_{1m}
- for $n=2$: $\text{EH}_{2m} + \text{TM}_{0m}$ and $\text{EH}_{2m} - \text{TE}_{0m}$
- for $n \geq 3$: $\text{EH}_{nm} + \text{EH}_{(2-n)m}$ and $\text{EH}_{nm} - \text{EH}_{(2-n)m}$

Every linearly polarized electromagnetic wave inside the fiber propagates as a linear combination of these modes [25]. The symmetry of the electric field of composite modes with respect to the transverse vertical axis arises two families: symmetric (convention of a “+” sign within the composition) and antisymmetric (“-” sign) modes. Intensity patterns of some of these modes are plotted in Fig.1. One has to note that, since degenerate modes EH_{2m} , TM_{0m} and TE_{0m} have different attenuations, the polarization of their composite modes does not remain identical along the waveguide. In our case, this effect can be neglected.

If the refraction index of the cladding is smaller than 2, EH_{11} is the fundamental mode. It is around 1.5 for silica, making EH_{11} the fundamental mode of the used fiber. This choice is not innocent: the shape of EH_{11} is similar to a Gaussian mode both in near and far field (Fig.2). The transverse amplitude of its electric field inside the core of the fiber is given by the radial-dependent function $E(r) = J_0(2.405r/a)$ where J_0 is the Bessel function of zeroth order, a is the radius of the fiber core and r the radial coordinate. For $r > a$, as for other guided modes, the amplitude is assumed to be zero, due to the absorption in the silica. Hence the electric field is truncated in $r = a$, which is also the first zero of J_0 . It gives rise, according to the diffraction theory within the paraxial approximation, to a ring in the far field amplitude profile. The central lobe of the far field profile contains 99.2% of the total energy of the beam.

To favor as much as possible EH_{11} , one also have to optimize the coupling conditions. Indeed, when the laser beam is injected into the fiber, its energy is distributed between the different modes. The proportion of energy coupled into a mode depends on the mode-matching at the entrance of the fiber between the injected laser beam and this mode. For every mode, the quality of this mode-matching can be quantified by the following overlap function [23]:

$$\eta = \frac{(\iint E_{inj}^* E_{mode} dS)^2}{\iint |E_{inj}|^2 dS \cdot \iint |E_{mode}|^2 dS} \quad (1)$$

2

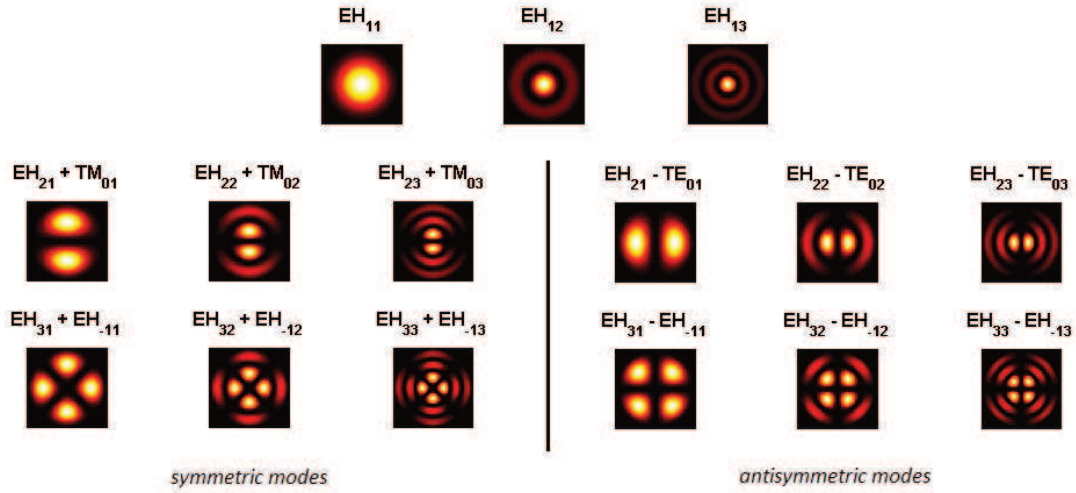


Figure 1: Intensity patterns and denomination of linearly polarized modes for $n=1,2,3$ (respectively first, second and third line) and $m=1,2,3$. For $n=1$, modes are centrosymmetric EH_{1m} . For $n>1$, two families can be distinguished: modes having their electric field symmetric (left part) or antisymmetric (right part) with respect to the transverse vertical axis.

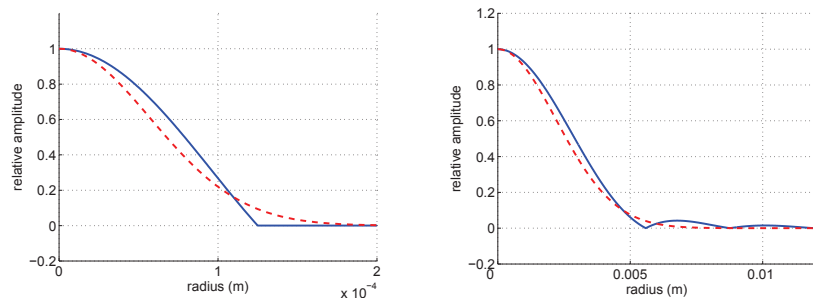


Figure 2: Left side: comparison of radial electric field amplitudes of EH_{11} (full line) and Gaussian (dotted line) modes inside the fiber for $w_0 = 0.65a$. Right side: after one meter of propagation in free space.

η is called the coupling efficiency. The integrals are taken over the whole transverse plane of the fiber entrance, i.e. where the injected laser beam couples into the fiber modes. E_{inj} and E_{mode} are the complex electric fields of respectively the injected laser beam and the considered fiber mode, e.g. EH_{11} . Technically, the shape of the electric field of the injected laser beam will have to match as much as possible the shape of the mode to couple.

For a Gaussian beam, i.e. $E_{inj}(r) = e^{-\frac{r^2}{w_0^2}}$, one can calculate using Eq. 1 the optimal value of the waist size w_0 in order to maximize the coupling efficiency in EH_{11} (Fig.3). The optimal condition appears to be around $w_0 = 0.65a$,

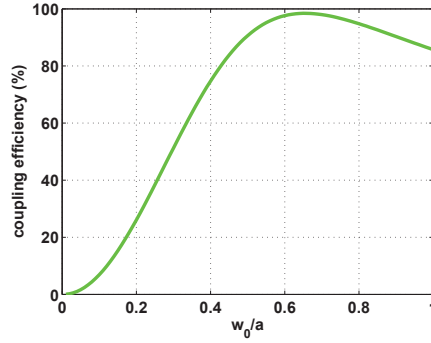


Figure 3: Coupling efficiency of a Gaussian beam of radius w_0 in the EH_{11} mode of a fiber of radius a . The maximum is found for $w_0 = 0.65a$.

where the coupling efficiency is close to 98.5%. Moreover, it remains above 80% for $w_0 > 0.43a$. Of course, this condition is valid only for a perfect Gaussian transverse intensity distribution with a flat phase. Nevertheless it gives a first insight of the optimum beam size at the entrance of the fiber.

2. Layout of the experiment

In order to reduce nonlinear effects due to the propagation of an intense laser beam in the air, the fiber has been put under vacuum ($\sim 10^{-3}$ mbar). For the same reason, the whole modal filtering setup has been placed before the pulse compression stage of the chirped-pulse amplified Ti:Sa chain, i.e., where the pulse has been stretched to a duration of about 200 ps. The latter choice is also motivated by the larger inconvenience of the femtosecond regime for optical elements, where higher peak power facilitates their degradation. In the picosecond regime, most troubles are linked to thermal effects, which can easily be handle experimentally. The central wavelength of the LUCA source is 795 nm, the repetition rate is 20 Hz and the pulses have a maximum energy of 180 mJ before pulse compression. Such a high energy per pulse justifies the choice of a hollow-core waveguide, allowing to overcome thermal, dispersion and nonlinear effects into the core.

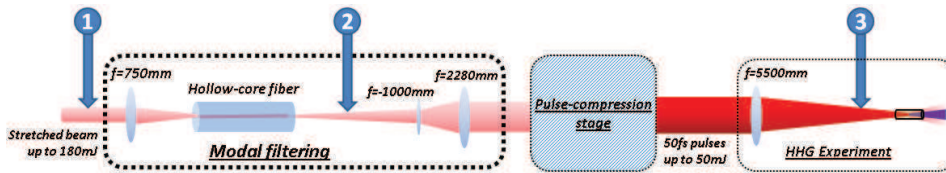


Figure 4: Beamline layout with modal filtering setup and three main positions of measurements. The picosecond laser beam, of radius 3.5 mm, is focused into the fiber with a 750 mm focal-length lens. In order to adjust the coupling conditions, the fiber is mounted on x-y translation stages and the lens on a z translation stage. A control loop has been implemented for correcting the beam pointing at the fiber entrance. By means of a set of two lenses, the output beam is collimated to a radius of 16 mm and sent to the compression stage. It is then used for a HHG experiment, being loosely focused into a gas cell filled with argon.

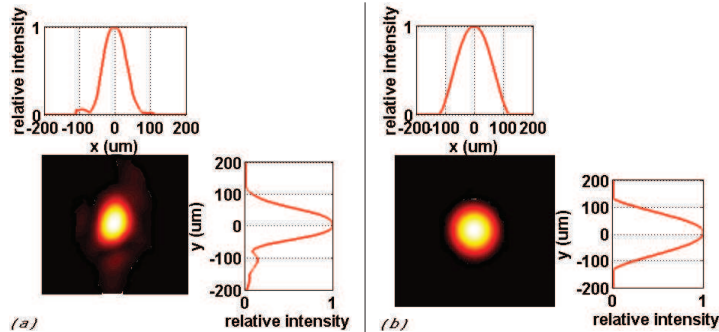


Figure 5: Intensity patterns and profiles before (a) and after (b) modal filtering ($r \approx 100 \mu\text{m}$).

A maximum fiber transmission of 78% has been measured. Since the transmission of the compression stage is around 40%, the total energy available for the HHG experiment is of the order of 50mJ, which is enough to generate a μJ extreme-ultraviolet beam [24].

The characterizations have been performed mainly for 3 different positions: before the modal filtering system (position 1 Fig.4), after the fiber (position 2), and on the HHG-path, 4 meters downstream the lens of focal 5500 mm (position 3). Initially, using a beam profiler, intensity patterns have been measured at the focus of a lens of focal 500 mm placed in position 1, and similar measurements have been done after a 4f-system placed in position 2, imaging the output of the fiber. The purpose of this first set of measurements was to characterize the typical transverse intensity pattern of the beam at the focus of a short-focal lens and to compare the divergence of the filtered/unfiltered beam. In a second step, in positions 1, 2 and 3, a Shack-Hartmann sensor has been used to retrieve both the wavefront and the transverse intensity of the beam, leading to the knowledge on the spatial phase and the amplitude of the transverse electric field. In position 2, a lens of focal 1000 mm was placed in order to collimate the beam to a diameter smaller than 1.5cm, which is the size of the entrance pupil of the sensor. The complete information on the transverse electric field provided by the Shack-Hartmann measurements enables to simulate its propagation for retrieving its properties in any position along the propagation axis. Especially, it has been done at the input of the fiber, the output of the fiber and the focal spot in the HHG gas cell.

In addition to these spatial characterizations, SPIDER measurements [26] have also been performed after the stage of pulse compression, providing a comprehensive information on the spectral and temporal characteristics of the femtosecond pulses. All these characterizations are described within the two next sections.

3. Modal filtering characterization

3.1. Beam profiler measurements

Before the fiber (Fig.5a), the beam is elliptic, and moreover “twisted” along the longitudinal axis (general astigmatic beam). After the fiber (Fig.5b), astigmatism and high spatial frequencies are mainly suppressed, so that the transverse beam profile can be assimilated to a Gaussian one. These first characterizations already show an improvement of the spatial quality of the beam in near-field. Since on Fig.5a (i.e. at the focus of a lens of focal 500 mm) the mean radius of the beam is measured to be $95 \mu\text{m}$, it is estimated to be 1.5 times larger at the entrance of the fiber (i.e. at the focus of a lens of focal 750 mm), hence $142.5 \mu\text{m}$.

Furthermore, such characterizations enable to calculate the M^2 factor of the beam [27]. It has been done with the standard technique which considers the measurements of the second moment widths of the beam [28, 29]. The second moment width corresponds to 4 times the standard deviation σ of the transverse intensity distribution at a given position z along the propagation axis. This is the beam diameter definition used in this paper. For a Gaussian beam, it matches the parameter w ($2w = 4\sigma$, including 95% of the beam energy). Fig.6 shows the evolution of the mean diameter of the beam around the waist and the one of a Gaussian beam with same width at focus. The ratio of their divergences gives the M^2 of the beam: it is equal to 2.1 before the fiber (Fig.6a) and 1.4 after the fiber (Fig.6b).

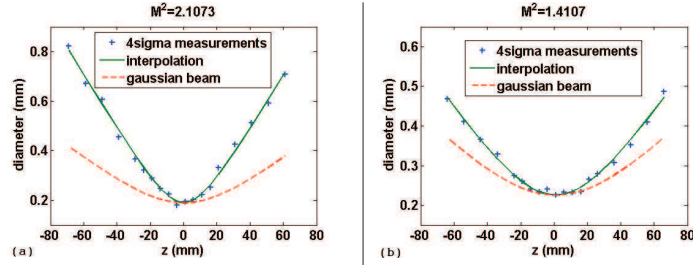


Figure 6: Evolution of the beam mean diameter along the propagation axis before (a) and after (b) the fiber. Crosses are experimental values and full-line curves their interpolations. The dashed curve represents the diameters of a Gaussian beam of same size at focus.

Table 1: Measurements of the wavefront amplitude of the laser beam before and after modal filtering. Peak-to-valley and RMS mean amplitudes of the wavefront are indicated with the standard deviation of the series of measurements. The central wavelength of the laser beam from the LUCA source is 795nm.

Wavefront amplitude	Before modal filtering	After modal filtering
Peak-to-valley (nm)	414.75 ± 17.94	82.84 ± 13.33
RMS (nm)	66.13 ± 2.30	13.80 ± 1.87

This diminution of M^2 after the propagation in the fiber is a second clear indication of the enhanced spatial quality of the laser beam. Using M^2 as a correction factor of propagation laws for Gaussian beams, the laser beam radius at the output of the fiber is found to be $105\mu\text{m}$.

3.2. Shack-Hartmann measurements

The Shack-Hartmann wavefront sensor displays a phase map calculated by integration of the local wavefront tilt. The knowledge of the wavefront gives access to the quantitative phase distortions of the beam in comparison to the ideal plane wave. This section focuses only on the measurements performed on the collimated beam before the injection and after the exit of the fiber. At these positions, and thanks to the wavefront knowledge, the efficiency of the modal filtering setup is clearer. Before the fiber (Fig.7a), the beam is non-circular and the wavefront highly distorted, whereas a non-aberratic beam should have a flat wavefront when collimated. The transverse intensity is roughly top-hat with three hot points forming a triangle, corresponding to peaks in the wavefront profile. After filtering (Fig.7b), the wavefront exhibits no huge aberration any more, and the transverse intensity is closer to that of a Gaussian beam. The beam is rather circular, only a weak ellipticity is observed making the beam longer in the vertical direction. Besides, experimentally one can see a ring surrounding the main lobe of the pattern, which is in agreement with the theory of far-field propagation of EH_{11} evoked in previous section. Only a small part of the energy is included in this ring, too small for the sensitivities of both beam profiler and Shack-Hartmann sensor. During the subsequent propagation, this ring is cut by the mounts of the optics.

The measurements are summarized in Table 1. The amplitude of the wavefront is about 5 times smaller after the propagation in the fiber. Indeed, considering peak-to-valley values, the amplitude is decreased from more than $\lambda/2$ to $\lambda/8$. In addition, the RMS amplitude of the filtered beam is more than 4 times smaller than $\lambda/14$, which according to the Maréchal's criterion is the value qualifying a diffraction limited beam [30]. Thereby, thanks to the benefit of modal filtering, the laser beam can be considered as free of aberration.

3.3. Simulation of beam propagation

The back-propagation of the transverse electric field at the focal plane is performed in the paraxial approximation with diffraction formalism. Data filtering is made to prevent artefact from noise and the $1/e^2$ intensity cut off of the wavefront sensor measurements. The simulated intensity patterns and wavefront are presented in Fig.8, at the entrance of the fiber (a) and at its output (b). The simulated intensity patterns are similar to typical measured ones (Fig.5). Moreover, as in previous measurements on the collimated beam, the peak-to-valley amplitude of the wavefront becomes 5 times smaller after the fiber (from $169\text{ nm} \approx \lambda/5$ to $34\text{ nm} \approx \lambda/25$). It has been measured on the central part

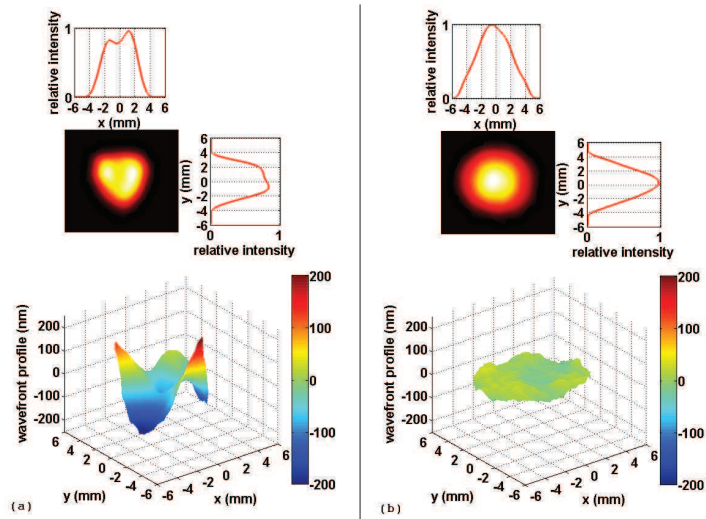


Figure 7: Reconstructions of the transverse intensity and the wavefront from the measurements performed by the Shack-Hartmann sensor before (a) and after (b) the fiber on the collimated beam ($r \approx 5\text{mm}$).

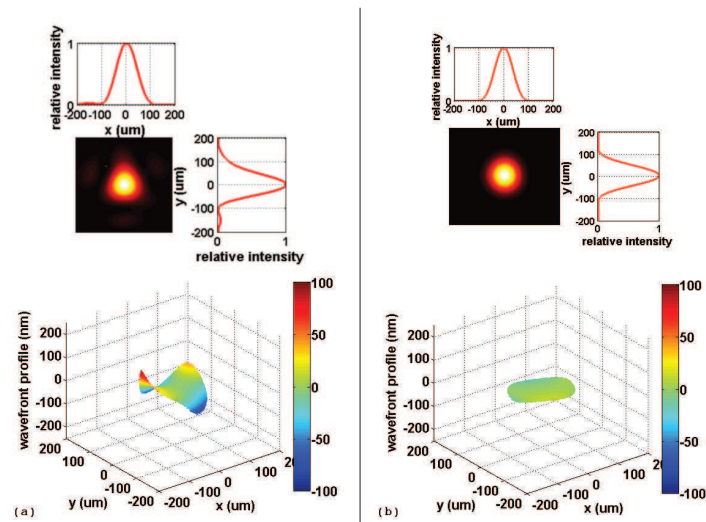


Figure 8: Retrieved transverse intensity and wavefronts at the entrance (a) and at the output (b) of the fiber. The wavefront is displayed only on a diameter of $190\mu\text{m}$.

Table 2: Mode matching at the fiber input and fiber output. First column: modes of interest; second column: coupling efficiency calculated from the simulated electric field of the beam at the fiber entrance; third column: output proportion of each mode according to their coupling efficiencies and attenuation in the fiber; fourth column: output proportion of each mode directly calculated with the electric field at the fiber output simulated from the wavefronts measurements.

Mode	Coupling efficiency (%)	Output rate 1 (%)	Output rate 2 (%)
EH_{11}	88.64	91.40	95.01
EH_{12}	3.96	3.72	3.15
$EH_{21} + TM_{01}$	0.97	0.95	0.45
$EH_{31} + EH_{-11}$	1.46	1.39	0.96
$EH_{41} + EH_{-21}$	2.03	1.83	0.03
$EH_{21} - TE_{01}$	0.24	0.24	0.03
$EH_{31} - EH_{-11}$	0.48	0.46	0.01
$EH_{41} - EH_{-21}$	0.03	0.03	0.02

of the beam, where the amount of energy is meaningful. From these simulations, one finds that the mean radius of the beam at the entrance of the fiber is $160 \mu\text{m}$. Similarly, at the output of the fiber, the radius is $89 \mu\text{m}$. These values are close to previous estimations ($142.5 \mu\text{m}$ at the fiber entrance and $105 \mu\text{m}$ at its output).

With the overlap integral defined in Section 1, the full knowledge of the transverse electric field brought by these simulations enables the calculation of the mode-matching at the entrance and the output of the fiber. The results are summarized in Table 2. The good coupling proportion into EH_{11} and its low attenuation ($\sim 2\%$) regarding higher-order modes result in an output beam mostly composed of EH_{11} ($>90\%$). From these results, the theoretical transmission through the fiber is $\sim 83\%$, while a maximum of 78% is found experimentally. The slight difference stems probably from the uncertainty on the transverse beam position, losses during beam propagation and thermal effects at the edges of the core of the fiber. Indeed, as stated before, the injected beam is larger than the core of the fiber: relying on previous simulations, 11.5% of the laser energy is outside the fiber-core radius, which leads to an observable deterioration of the fiber entrance. Increasing the input power emphasizes these thermal effects and the transverse beam instability, resulting in a decrease of the energy transmission in the fiber.

Due to the vertical symmetry of the initial beam in the transverse plane, modes having such symmetry are favoured. Antisymmetric modes could thus be neglected within the decomposition of modes in the fiber. It is worth noting that high-order modes may be under-estimated, since the Shack-Hartmann measurements do a sharp filtering of the beam in $1/e^2$, thus cancelling some high spatial frequencies.

4. Characteristics after pulse compression

4.1. SPIDER characterization

The pulses compressed down to the femtosecond level to reach final beam characteristics have been spectrally characterized by a SPIDER apparatus. The results are summarized in Table 3. Three measurements have been done, with respectively 4, 18 and 42 mJ of IR energy after the pulse compression stage. For the two first measurements, the flatness of the spectral phase leads, in the time domain, to a laser pulse near the Fourier-Transform limit, with a pulse duration smaller than 50 fs i.e., what was usually reached without modal filtering. In terms of the standard deviations of the temporal intensity σ_t and the spectral intensity $\sigma_\omega = 2\pi c\sigma_\lambda/\lambda^2$, this limit is the one of the time-bandwidth product $\sigma_t\sigma_\omega$ which minimizes the pulse duration according to the wideness of the spectrum. This limit cannot be less than 0.5, accessible to Gaussian intensity shapes. For the spectrum of LUCA laser beam, the limit of the time-bandwidth product is around 0.6. Increasing the beam energy up to the maximum accessible value results in a decrease of the spectral beam quality, leading to pulses much farther from the Fourier-transform limit, which is seen in the last measurement reported in Table 3. This deterioration can be due to a too high fluence on the compression gratings, inducing self-phase modulation.

4.2. Shack-Hartmann measurements and beam propagation

The wavefront measurements highlight a deterioration of the beam in the compression stage (Fig. 9). Defects in the gratings induces the presence of a hole in the wavefront of the filtered beam (Fig. 9b). However the non-filtered

Table 3: Summary of SPIDER measurements. First column: beam energy after pulse compression; second column: full width at half maximum of the temporal intensity; third column: ratio of the measured time-bandwidth product and its Fourier-transformed limit, calculated with standard deviations values of the spectral and temporal intensities.

IR energy	Pulse duration (FWHM)	Ratio vs. Fourier limit
4 mJ	47 fs	1.33
18 mJ	43 fs	1.28
42 mJ	65 fs	2.68

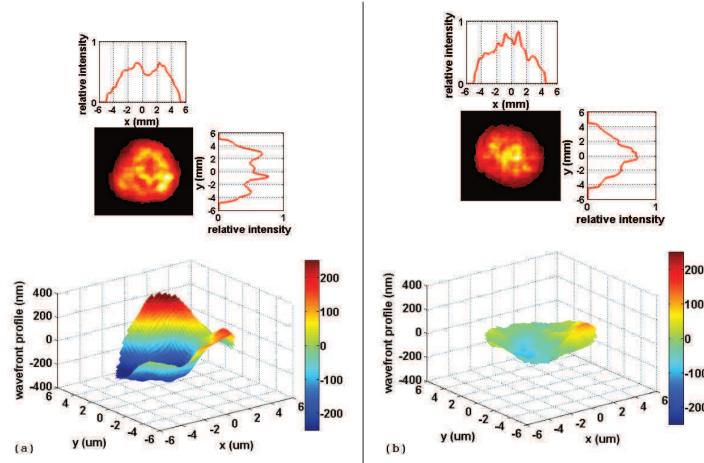


Figure 9: Measured intensity patterns and wavefronts after pulse compression, without (a) and with (b) modal filtering ($r > 5$ mm). In both cases, the beam mean intensity is similar (~ 15 TW/cm²).

beam remains much more aberrated (Fig. 9a). Obviously, the high laser intensities in these measurements (more than 50 mJ at a femtosecond level in a diameter less than 20 mm) likely instigate spatial distortions.

Hence, the results summarized in Table 4 show that the wavefront amplitude is ~ 2.5 times smaller for the filtered beam after pulse compression, twice less than before pulse compression. Placing an iris on the beam path allows an improvement of the beam quality by filtering its high spatial frequencies.

For the need of its user's application, the beam is then focused by a lens of focal $f=5500$ mm. Relying on the previous Shack-Hartmann measurements, the beam characteristics have been retrieved at the focal point (Fig. 10). These simulations show that the modal filtering allows to provide a beam where the astigmatism and the amount of high spatial frequencies have been strongly reduced, in comparison with the standard setup. This benefit is well illustrated by the Strehl ratio, which evaluates the beam quality by comparison of the transverse intensity distribution beside the Airy disk [31]: it is ~ 2.5 times better for the benefit of modal filtering (0.83 vs. 0.33). The importance of this spatial quality improvement for the particular case of our HHG experiment is stressed in the next subsection.

4.3. Application to HHG

On the experimental point of view of HHG, spatial phase is crucial for the macroscopic construction of high-order harmonics. Moreover, in loose-focusing geometry, the interaction with the gas occurs on a long distance (some

Table 4: Measurements of the wavefront amplitude of the laser beam after the compression stage, with and without modal filtering. Peak-to-valley and RMS mean amplitudes of the wavefront are indicated with the standard deviation of the series of measurements.

Wavefront amplitude	Without filtering	With filtering
Peak-to-valley (nm)	681.00 ± 45.19	288.00 ± 49.68
RMS (nm)	146.75 ± 9.71	54.40 ± 11.08

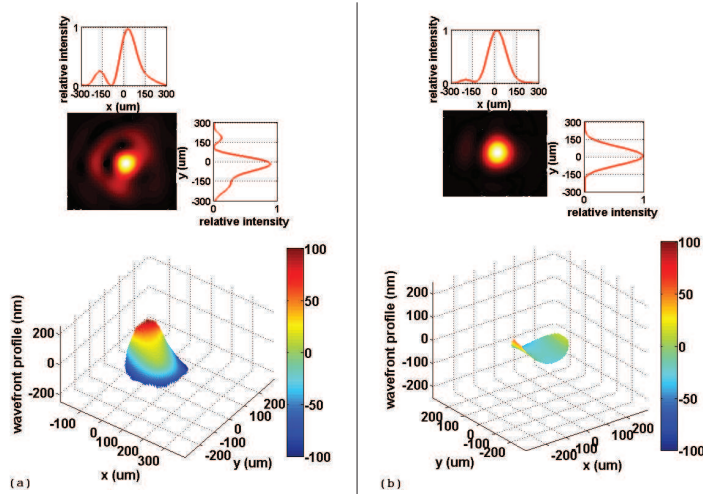


Figure 10: Retrieved intensity patterns and wavefront at the focus spot of the laser beam in the HHG gas cell, without (a) and with (b) modal filtering. The wavefront is displayed only on a diameter of $250\ \mu\text{m}$, on which the peak-to-valley amplitudes are respectively $245\ \text{nm}$ and $104\ \text{nm}$.

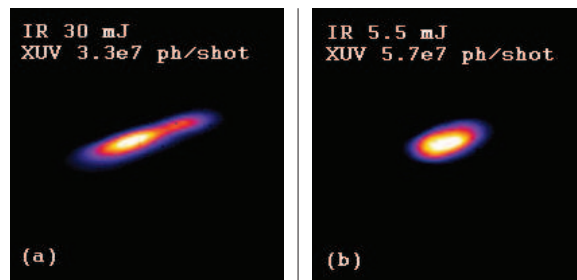


Figure 11: Spatial profiles of the twenty-fifth harmonic ($32\ \text{nm}$) without (a) and with modal filtering (b). In both cases, the iris is closed (respectively to a diameter of 25 and $19.5\ \text{mm}$) so as to filter the outer part of the beam. Harmonic were generated in a gas cell filled with argon at a backing pressure of $10\ \text{mbar}$. Patterns are measured on a CCD camera placed at the plane where a $2f$ - $2f$ system images the XUV beam at the end of the gas cell. The energy of the drive IR beam is the one after the iris; the number of photons per shot is measured on the CCD.

centimeters) compared to the wavelength of the fundamental beam ($795\ \text{nm}$), which makes its spatial quality even more important. That is why simulations of the transverse electric field at the focal spot in the gas cell, presented above, are of prime interest. The profile in the case of the unfiltered beam includes a non-negligible amount of high spatial frequencies (Fig. 10a), which are not engaged in the HHG process and thus represent a waste of IR energy. On the other hand, the filtered beam is Gaussian-like at its focus (Fig. 10b).

As a consequence, similarly to what was observed by Bandulet et al. [32], the first HHG results show a significant improvement of the harmonic conversion efficiency (Fig. 11) together with an enhancement of the stability and an improvement of the spatial quality of the harmonic beam. These advantages make insignificant the drawback of the loss of $\sim 30\%$ of IR energy within the modal filtering stage.

Conclusion

We demonstrated, by means of comprehensive characterizations, the significant spatial quality improvement of a Ti:Sa laser beam using the simple technique of modal filtering. A good agreement has been found between direct measurements, simulation and theory. The filtered beam can be assimilated to a Gaussian one which, together with its

stability, makes the setup very attractive for experiments. In particular, using it for driving HHG involves a strong enhancement of the process. Further SPIDER measurements on the infrared beam, spatial and spectral characterizations of high-order harmonics and overall setup improvements will thus be pursued.

Acknowledgements

This work has been sustained by ANR I-NanoX project and femtoXmag. We thank the Triangle de la Physique for its financial support and Romain Bachelard for constructive discussions.

References

- [1] V. Ramanathan, J. Lee, S. Xu, X. Wang, and D. H. Reitze, "Analysis of Thermal Aberrations in a High Average Power Single-Stage Ti:Sapphire Regenerative Chirped Pulse Amplifier" in *Frontiers in Optics, OSA Technical Digest (CD)* (Optical Society of America, 2006), paper FTuS4.
- [2] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, New York, 2006).
- [3] R. Paschotta, "Beam quality deterioration of lasers caused by intracavity beam distortions," *Opt. Express* **14**, 6069-6074 (2006).
- [4] H. Kogelnik and T. Li, "Laser Beams and Resonators," *Appl. Opt.* **5**, 1550-1567 (1966).
- [5] E. Hecht, *Optics* (Addison Wesley, 2001).
- [6] P. M. Celliers, K. G. Estabrook, R. J. Wallace, J. E. Murray, L. B. Da Silva, B. J. MacGowan, B. M. Van Wonerghem, and K. R. Manes, "Spatial Filter Pinhole for High-Energy Pulsed Lasers," *Appl. Opt.* **37**, 2371-2378 (1998).
- [7] S. Sinha, K. Dasgupta, S. Sasikumar, and S. Kundu, "Saturable-absorber-based spatial filtering of high-power laser beams," *Appl. Opt.* **45**, 4947-4956 (2006).
- [8] R. K. Tyson, "Using the deformable mirror as a spatial filter: application to circular beams," *Appl. Opt.* **21**, 787-793 (1982).
- [9] H. Yan-Lan, Z. Hao-Bin, T. Ji-Chun, D. Dao-Yi, Z. Guang-Wei, W. X. Dong, W. Xiao, "Two-dimensional non-spatial filtering based on holographic Bragg gratings," *Chinese Phys. B* **19** 074215 (2010).
- [10] S. Szatmári, Z. Bakonyi and P. Simon, "Active spatial filtering of laser beams," *Optics Comm.* **134**, 199 (1997).
- [11] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, P. Martin, P. Audebert, J.-C. Gauthier, J.-P. Geindre, and T. Wittman, "Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses," *Phys. Rev. E* **69**, 026402-1 (2004).
- [12] A. Jullien, O. Albert, F. Burgy, G. Hamoniaux, J.-P. Rousseau, J.-P. Chambaret, F. Augé-Rochereau, G. Chériaux, J. Etchepare, N. Minkovski, and S. M. Satiel, "10⁻¹⁰ temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation," *Opt. Lett.* **30**, 920 (2005).
- [13] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, "Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique," *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2793 (1996).
- [14] A. Ksendzov, T. Lewi, O. P. Lay, S. R. Martin, R. O. Gappinger, P. R. Lawson, R. D. Peters, S. Shalem, A. Tsun, and A. Katzir, "Modal filtering for midinfrared nulling interferometry using single mode silver halide fibers," *Appl. Opt.* **47**, 5728-5735 (2008).
- [15] D. Strickland and G. Mourou, "Compression of amplified chirped optical pulses," *Opt. Comm.* **56**, 219 (1985).
- [16] P. Salières, A. L'Huillier, P. Antoine, and M. Lewenstein, "Study of the spatial and temporal coherence of high-order harmonics," *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **41**, 83-142 (1999).
- [17] E. Takahashi, Y. Nabekawa, M. Nurhuda, and K. Midorikawa, "Generation of high-energy high-order harmonics by use of a long interaction medium," *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 158-165 (2003).
- [18] A. Ravasio, D. Gauthier, F. R. N. C. Maia, M. Billon, J.-P. Caumes, D. Garzella, M. Géléoc, O. Gobert, J.-F. Hergott, A.-M. Pena, H. Perez, B. Carré, E. Bourhis, J. Gierak, A. Madouri, D. Maillly, B. Schiedt, M. Fajardo, J. Gautier, P. Zeitoun, P. H. Bucksbaum, J. Hajdu and H. Merdji, "Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser-Harmonics," *Physical Review Letters* **103**, 028104 (2009).
- [19] D. Gauthier, M. Guizar-Sicairos, X. Ge, W. Boutu, B. Carré, J. R. Fienup, and H. Merdji, "Single-shot Femtosecond X-Ray Holography Using Extended References," *Physical Review Letters* **105**, 093901 (2010).
- [20] J. A. Stratton, "Electromagnetic theory," McGraw-Hill Book Co., New-York and London (1941).
- [21] E. Marcatili and R. Schmeltzer, "Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers," *Bell Syst. Tech. J.* **43**, 1783-1809 (1964).
- [22] E. Snitzer, "Cylindrical Dielectric Waveguide Modes," *J. Opt. Soc. Am.* **51**, 491-498 (1961).
- [23] E. G. Neumann, *Single Mode Fibers: Fundamentals* (Springer-Verlag Berlin and Heidelberg GmbH and Co. K, 1988).
- [24] J. F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré and P. Salières, "Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range," *Phys. Rev. A* **66**, 021801 (2002).
- [25] H. Norman and W. Horst, "Laser Resonators and Beam Propagation: Fundamentals, Advanced Concepts and Applications," Springer (2005).
- [26] C. Iaconis and I. A. Walmsley, "Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-Field Reconstruction of Ultrashort Optical Pulses," *Opt. Lett.* **23**, 792-794 (1998).
- [27] M. W. Sasnett, "Propagation of multimode laser beams - the M² factor," in *Physics and Technology of Laser Resonators*, D. R. Hall and P. E. Jackson, Hilger (1989).
- [28] ISO 11146-1:2005.
- [29] A. E. Siegman, "How to (Maybe) Measure Laser Beam Quality," in *DPSS (Diode Pumped Solid State) Lasers: Applications and Issues*, M. Dowley, ed., Vol. 17 of *OSA Trends in Optics and Photonics* (Optical Society of America, 1998), paper MQ1.
- [30] A. Maréchal, *Revue d'Optique* **26**, 257 (1947).
- [31] K. Strehl, "Aplanatische und fehlerhafte Abbildung im Fernrohr," *Zeitschrift für Instrumentenkunde* **15**, 362-370 (1895).
- [32] H.-C. Bandulet, D. Comtois, A. D. Shiner, C. Trallero-Herrero, N. Kajumba, T. Ozaki, P. B. Corkum, D. M. Villeneuve, J.-C. Kieffer and F. Légaré, "High harmonic generation with a spatially filtered optical parametric amplifier," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41**, 245602 (2008).

Bibliographie

1. Gaffney, K.J. and H.N. Chapman, *Imaging Atomic Structure and Dynamics with Ultrafast X-ray Scattering*. Science, 2007. **316**(5830): p. 1444-1448.
2. Chapman, H.N. and K.A. Nugent, *Coherent lensless X-ray imaging*. Nat Photon, 2010. **4**(12): p. 833.
3. Burkhard, K. and et al., *Transmission and emission x-ray microscopy: operation modes, contrast mechanisms and applications*. Journal of Physics: Condensed Matter, 2011. **23**(8): p. 083002.
4. Born, M. and E. Wolf, *Principles of optics*. 1999: Cambridge University Press.
5. Jacobsen, C., et al., *X-ray holographic microscopy using photoresists*. J. Opt. Soc. Am. A, 1990. **7**(10): p. 1847.
6. Spence, J.C.H., U. Weierstall, and M.R. Howells, *Phase recovery and lensless imaging by iterative methods in optical, X-ray and electron diffraction*. Phil. Trans. R. Soc. Lond. A, 2002. **360**: p. 875.
7. McNulty, I., et al., *High-Resolution Imaging by Fourier Transform X-ray Holography*. Science, 1992. **256**(5059): p. 1009-1012.
8. Miao, J., et al., *Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens*. Nature, 1999. **400**: p. 342.
9. Miao, J., et al., *High Resolution 3D X-Ray Diffraction Microscopy*. Physical Review Letters, 2002. **89**(8): p. 088303.
10. Shapiro, D., *Biological imaging by soft x-ray diffraction microscopy*. Proc. Natl Acad. Sci. USA, 2005. **102**: p. 15343.
11. Nishino, Y., et al., *Three-dimensional visualization of a human chromosome using coherent X-ray diffraction*. Phys. Rev. Lett., 2009. **102**: p. 018101.
12. Robinson, I.K., et al., *Reconstruction of the shapes of gold nanocrystals using coherent X-ray diffraction*. Phys. Rev. Lett., 2001. **87**: p. 195505.
13. Williams, G.J., *Fresnel coherent diffractive imaging*. Phys. Rev. Lett., 2006. **97**: p. 025506.
14. Abbey, B., *Keyhole coherent diffractive imaging*. Nature Phys., 2008. **4**: p. 394.
15. Thibault, P., et al., *High-Resolution Scanning X-ray Diffraction Microscopy*. Science, 2008. **321**(5887): p. 379-382.
16. Ackermann, W., et al., *Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window*. Nature Photonics, 2007. **1**(6): p. 336-342.
17. Mancuso, A.P., et al., *Coherent imaging of biological samples with femtosecond pulses at the free-electron laser FLASH*. New Journal Of Physics, 2010. **12**.
18. Eisebitt, S., et al., *Lensless imaging of magnetic nanostructures by X-ray spectro-holography*. Nature, 2004. **432**(7019): p. 885.
19. Chapman, H.N., et al., *Femtosecond diffractive imaging with a soft-X-ray free-electron laser*. Nat Phys, 2006. **2**(12): p. 839.
20. Barty, A., et al., *Ultrafast single-shot diffraction imaging of nanoscale dynamics*. Nat Photon, 2008. **2**(7): p. 415.
21. Chapman, H.N., et al., *Femtosecond time-delay X-ray holography*. Nature, 2007. **448**(7154): p. 676-679.
22. Chapman, H.N., et al., *Femtosecond X-ray protein nanocrystallography*. Nature, 2011. **470**(7332): p. 73.
23. Seibert, M.M., et al., *Single mimivirus particles intercepted and imaged with an X-ray laser*. Nature, 2011. **470**(7332): p. 78.
24. Neutze, R., et al., *Potential for biomolecular imaging with femtosecond X-ray pulses*. Nature, 2000. **406**(6797): p. 752.

25. Emma, P., et al., *First lasing and operation of an angstrom-wavelength free-electron laser*. Nat Photon, 2010. **4**(9): p. 641.
26. Brewer, C.A., et al., *Single-shot extreme ultraviolet laser imaging of nanostructures with wavelength resolution*. Opt. Lett., 2008. **33**(5): p. 518.
27. Trebes, J.E., et al., *Demonstration of X-ray Holography with an X-ray Laser*. Science, 1987. **238**(4826): p. 517-519.
28. Kim, H.T., et al., *Single-shot nanometer-scale holographic imaging with laser-driven x-ray laser*. Applied Physics Letters, 2011. **98**(12): p. 121105.
29. Zeitoun, P., et al., *A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam*. Nature, 2004. **431**(7007): p. 426.
30. Kneip, S., et al., *Bright spatially coherent synchrotron X-rays from a table-top source*. Nat Phys, 2010. **6**(12): p. 980.
31. De Grazia, M., et al. *Applications of intense ultra-short XUV pulses to solid state physics: time-resolved luminescence spectroscopy and radiation damage studies*. in *Damage to VUV, EUV, and X-ray Optics*. 2007. Prague, Czech Republic: SPIE.
32. Boutu, W., et al., *Coherent control of attosecond emission from aligned molecules*. Nat Phys, 2008. **4**(7): p. 545.
33. Haessler, S., et al., *Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets*. Nat Phys, 2010. **6**(3): p. 200.
34. Wieland, M., et al., *Toward time-resolved soft X-ray microscopy using pulsed fs-high-harmonic radiation*. Ultramicroscopy, 2005. **102**(2): p. 93-100.
35. Bartels, R.A., et al., *Generation of Spatially Coherent Light at Extreme Ultraviolet Wavelengths*. Science, 2002. **297**(5580): p. 376-378.
36. Morlens, A.-S., et al., *Submicrometer digital in-line holographic microscopy at 32 nm with high-order harmonics*. Opt. Lett., 2006. **31**(21): p. 3095.
37. Schwenke, J., et al., *Single-shot holography using high-order harmonics*. Journal of Modern Optics, 2008. **55**(16): p. 2723.
38. Sandberg, R.L., et al., *Lensless Diffractive Imaging Using Tabletop Coherent High-Harmonic Soft-X-Ray Beams*. Physical Review Letters, 2007. **99**(9): p. 098103.
39. Sandberg, R.L., et al., *High numerical aperture tabletop soft x-ray diffraction microscopy with 70-nm resolution*. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2008. **105**(1): p. 24-27.
40. Spence, J., *Imaging technology: Harmonic pictures in a flash*. Nature, 2007. **449**(7162): p. 553.
41. Hergott, J.F., et al., *Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range*. Physical Review A, 2002. **66**(2): p. 021801.
42. Ravasio, A., et al., *Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser-Harmonics Source*. Physical Review Letters, 2009. **103**(2): p. 028104.
43. Murnane, M.M. and J. Miao, *Optics: Ultrafast X-ray photography*. Nature, 2009. **460**(7259): p. 1088.
44. Gauthier, D., et al., *Single-shot Femtosecond X-Ray Holography Using Extended References*. Physical Review Letters, 2010. **105**(9): p. 093901.
45. Takahashi, E., et al., *Generation of highly coherent submicrojoule soft x rays by high-order harmonics*. Physical Review A, 2002. **66**(2): p. 021802.
46. Takahashi, E., et al., *Generation of high-energy high-order harmonics by use of a long interaction medium*. J. Opt. Soc. Am. B, 2003. **20**(1): p. 158.
47. Salières, P., et al., *Study of the Spatial and Temporal Coherence of High-Order Harmonics*, in *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*. 1999, Academic Press. p. 83.
48. McPherson, A., et al., *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*. J. Opt. Soc. Am. B, 1987. **4**(4): p. 595.
49. Ferray, M., *Multiple-harmonic conversion of 1064nm radiation in rare gases*. J. Phys. B, 1988. **21**: p. L31.

50. Krause, J.L., K.J. Schafer, and K.C. Kulander, *High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime*. Physical Review Letters, 1992. **68**(24): p. 3535.
51. Corkum, P.B., *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*. Phys. Rev. Lett., 1993. **71**: p. 1994.
52. Huillier, A.L. and et al., *Theoretical aspects of intense field harmonic generation*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 1991. **24**(15): p. 3315.
53. L'Huillier, A., et al., *Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm*. Physical Review A, 1992. **46**(5): p. 2778.
54. Lewenstein, M., et al., *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*. Physical Review A, 1994. **49**(3): p. 2117.
55. Balcou, P., et al., *Generalized phase-matching conditions for high harmonics: The role of field-gradient forces*. Physical Review A, 1997. **55**(4): p. 3204.
56. Lewenstein, M., P. Salières, and A. L'Huillier, *Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation*. Physical Review A, 1995. **52**(6): p. 4747.
57. Salières, P., et al., *Feynman's Path-Integral Approach for Intense-Laser-Atom Interactions*. Science, 2001. **292**(5518): p. 902-905.
58. Merdji, H., et al., *Macroscopic control of high-order harmonics quantum-path components for the generation of attosecond pulses*. Physical Review A, 2006. **74**(4): p. 043804.
59. Salières, P., A. L'Huillier, and M. Lewenstein, *Coherence Control of High-Order Harmonics*. Physical Review Letters, 1995. **74**(19): p. 3776.
60. Constant, E., et al., *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment*. Physical Review Letters, 1999. **82**(8): p. 1668.
61. Kazamias, S., et al., *Global Optimization of High Harmonic Generation*. Physical Review Letters, 2003. **90**(19): p. 193901.
62. Rundquist, A., et al., *Phase-Matched Generation of Coherent Soft X-rays*. Science, 1998. **280**(5368): p. 1412-1415.
63. Boutu, W., et al., *Scaling of the generation of high-order harmonics in large gas media with focal length*. Physical Review A, 2011. **84**(5): p. 053819.
64. Kim, H.T., et al., *Optimization of high-order harmonic brightness in the space and time domains*. Physical Review A, 2004. **69**(3): p. 031805.
65. Gautier, J., et al., *Optimization of the wave front of high order harmonics*. The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics, 2008. **48**(3): p. 459.
66. Mercère, P., et al., *Hartmann and Shack-Hartmann Wavefront Sensors for Sub-nanometric Metrology Modern Developments in X-Ray and Neutron Optics*. 2008, Springer Berlin / Heidelberg. p. 219.
67. Mercere, P., *X-ray beam metrology and x-ray optic alignment by Hartmann wavefront sensing*. Proc. SPIE, 2005. **5921**(1): p. 592109.
68. Marechal, A., *A Coherent Set of Tolerances for Geometrical Aberrations, Including Excentration Effects*. J. Opt. Soc. Am., 1950. **40**(1): p. 60_1.
69. Valentin, C., et al., *High-order harmonic wave fronts generated with controlled astigmatic infrared laser*. J. Opt. Soc. Am. B, 2008. **25**(7): p. B161.
70. Jan, L. and et al., *Maximizing the brilliance of high-order harmonics in a gas jet*. New Journal of Physics, 2009. **11**(2): p. 023016.
71. Boutu, W., et al., *High-order-harmonic generation in gas with a flat-top laser beam*. Physical Review A, 2011. **84**(6): p. 063406.
72. Kazamias, S., et al., *High order harmonic generation optimization with an apertured laser beam*. The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics, 2002. **21**(3): p. 353.
73. Marcatili, E.A.J. and R.A. Schmelzter, *Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers*. Bell Syst. Tech. J., 1964. **43**: p. 1783.
74. Snitzer, E., *Cylindrical Dielectric Waveguide Modes*. J. Opt. Soc. Am., 1961. **51**(5): p. 491.

75. Villoresi, P., et al., *Optimization of high-order harmonic generation by adaptive control of a sub-10-fs pulse wave front*. Opt. Lett., 2004. **29**(2): p. 207.
76. Lambert, G., et al., *Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light*. Nat Phys, 2008. **4**(4): p. 296.
77. Kak, A.C. and M. Slaney, *Principles of Computerized Tomographic Imaging*. 2001, Society of Industrial and Applied Mathematics.
78. Friso van der Veen and Franz, P., *Coherent x-ray scattering*. Journal of Physics: Condensed Matter, 2004. **16**(28): p. 5003.
79. Attwood, D., *Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation: Principles and Applications*. 2007: {Cambridge University Press}.
80. Kirz, J., C. Jacobsen, and M. Howells, *Soft X-ray microscopes and their biological applications*. Quarterly Reviews of Biophysics, 1995. **28**(01): p. 33-130.
81. Chapman, H.N., et al., *High-resolution ab initio three-dimensional x-ray diffraction microscopy*. J. Opt. Soc. Am. A, 2006. **23**(5): p. 1179.
82. RoyS, et al., *Lensless X-ray imaging in reflection geometry*. Nat Photon. **5**(4): p. 243.
83. Marchesini, S., et al., *X-ray image reconstruction from a diffraction pattern alone*. Physical Review B, 2003. **68**(14): p. 140101.
84. Nyquist, H., *Certain topics in telegraph transmission theory*. Proceedings of the IEEE, 2002. **90**(2): p. 280.
85. Shannon, C.E., *{Communication in the Presence of Noise}*. Proceedings of the IRE, 1949. **37**(1): p. 10.
86. Delmas, J.P., *Eléments de théorie du signal: les signaux déterministes*. 1991: Ellipses.
87. Song, C., et al., *Phase retrieval from exactly oversampled diffraction intensity through deconvolution*. Physical Review B, 2007. **75**(1): p. 012102.
88. Thibault, P., *ALGORITHMIC METHODS IN DIFFRACTION MICROSCOPY*, in *Faculty of the Graduate School*. 2007, Cornell University.
89. Guizar-Sicairos, M., *Methods for Coherent Lensless Imaging and X-Ray Wavefront Measurement*, in *The Institute of Optics Arts, Sciences and Engineering, Edmund A. Hajim School of Engineering and Applied Sciences*. 2010, University of Rochester: Rochester, New York.
90. Sayre, D., *Some Implications Of A Theorem Due To Shannon*. Acta Crystallographica, 1952. **5**(6): p. 843-843.
91. Bates, R.H.T., *Fourier Phase Problems Are Uniquely Solvable In More Than One Dimension.1. Underlying Theory*. Optik, 1982. **61**(3): p. 247-262.
92. Miao, J., D. Sayre, and H.N. Chapman, *Phase retrieval from the magnitude of the Fourier transforms of non-periodic objects*. J. Opt. Soc. Am. A, 1998. **15**: p. 1662.
93. Miao, J., et al., *Phase retrieval of diffraction patterns from noncrystalline samples using the oversampling method*. Physical Review B, 2003. **67**(17).
94. Fienup, J.R., *Phase retrieval algorithms: a comparison*. Appl. Opt., 1982. **21**(15): p. 2758.
95. Gerchber.Rw and W.O. Saxton, *Practical Algorithm For Determination Of Phase From Image And Diffraction Plane Pictures*. Optik, 1972. **35**(2): p. 237-&.
96. Fienup, J.R., *Reconstruction of an object from the modulus of its Fourier transform*. Opt. Lett., 1978. **3**(1): p. 27.
97. Fienup, J.R., *Reconstruction of a complex-valued object from the modulus of its Fourier transform using a support constraint*. J. Opt. Soc. Am. A, 1987. **4**(1): p. 118.
98. Elser, V., *Phase retrieval by iterated projections*. J. Opt. Soc. Am. A, 2003. **20**(1): p. 40.
99. Maia, F.R.N.C., et al., *Hawk: the image reconstruction package for coherent X-ray diffractive imaging*. Journal of Applied Crystallography, 2010. **43**(6): p. 1535-1539.
100. Luke, D.R., *Relaxed averaged alternating reflections for diffraction imaging*. Inverse Problems, 2005. **21**(1): p. 37.
101. Gabor, D., *A New Microscopic Principle*. Nature, 1948. **161**(4098): p. 777-778.

102. Goodman, J.W., *Introduction to Fourier optics*. 2005: Roberts & Co.
103. He, H., et al., *Use of extended and prepared reference objects in experimental Fourier transform x-ray holography*. Applied Physics Letters, 2004. **85**(13): p. 2454.
104. Schlotter, W.F., *Multiple reference Fourier transform holography with soft x rays*. Appl. Phys. Lett., 2006. **89**(16): p. 163112.
105. Marchesini, S., et al., *Massively parallel X-ray holography*. Nat Photon, 2008. **2**(9): p. 560.
106. Stadler, L.-M., et al., *Hard X Ray Holographic Diffraction Imaging*. Physical Review Letters, 2008. **100**(24): p. 245503.
107. Podorov, S.G., K.M. Pavlov, and D.M. Paganin, *A non-iterative reconstruction method for direct and unambiguous coherent diffractive imaging*. Opt. Express, 2007. **15**(16): p. 9954.
108. Guizar-Sicairos, M. and J.R. Fienup, *Holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation*. Opt. Express, 2007. **15**(26): p. 17592.
109. London, R.A., M.D. Rosen, and J.E. Trebes, *Wavelength choice for soft x-ray laser holography of biological samples*. Appl. Opt., 1989. **28**(16): p. 3397.
110. Marchesini, S., et al., *Coherent X-ray diffractive imaging: applications and limitations*. Opt. Express, 2003. **11**(19): p. 2344.
111. Howells, M.R., et al., *An assessment of the resolution limitation due to radiation-damage in X-ray diffraction microscopy*. Journal Of Electron Spectroscopy And Related Phenomena, 2009. **170**(1-3): p. 4-12.
112. Shen, Q., I. Bazarov, and P. Thibault, *Diffractive imaging of nonperiodic materials with future coherent X-ray sources*. Journal Of Synchrotron Radiation, 2004. **11**: p. 432-438.
113. Rose, A., *The Sensitivity Performance of the Human Eye on an Absolute Scale*. J. Opt. Soc. Am., 1948. **38**(2): p. 196.
114. Burgess, A.E., *The Rose model, revisited*. J. Opt. Soc. Am. A, 1999. **16**(3): p. 633.
115. Mancuso, A.P., *Coherent-pulse 2D crystallography using a free-electron laser X-ray source*. Phys. Rev. Lett., 2009. **102**: p. 035502.
116. Szoke, A., *Holographic microscopy with a complicated reference*. Journal Of Imaging Science And Technology, 1997. **41**(4): p. 332-341.
117. Shintake, T., *Possibility of single biomolecule imaging with coherent amplification of weak scattering x-ray photons*. Physical Review E, 2008. **78**(4).
118. Schropp, A. and C.G. Schroer, *Dose requirements for resolving a given feature in an object by coherent x-ray diffraction imaging*. New Journal Of Physics. **12**.
119. Shintake, T., *Possibility of single biomolecule imaging with coherent amplification of weak scattering x-ray photons (vol 78, 041906, 2008)*. Physical Review E, 2010. **81**(1).
120. Boutet, S., et al., *Ultrafast soft X-ray scattering and reference-enhanced diffractive imaging of weakly scattering nanoparticles*. Journal Of Electron Spectroscopy And Related Phenomena, 2008. **166**: p. 65-73.
121. Hau-Riege, S.P., *Damage threshold of inorganic solids under free-electron-laser irradiation at 32.5 nm wavelength*. Appl. Phys. Lett., 2007. **90**(17): p. 173128.
122. John, M.H., et al., *Resolution determination in X-ray microscopy: an analysis of the effects of partial coherence and illumination spectrum*. Journal of X-Ray Science and Technology, 1998. **8**(2): p. 95.
123. Jochum, L. and W. Meyer-Ilse, *Partially coherent image formation with x-ray microscopes*. Appl. Opt., 1995. **34**(22): p. 4944.
124. Zhu, D., et al., *High-Resolution X-Ray Lensless Imaging by Differential Holographic Encoding*. Physical Review Letters, 2010. **105**(4): p. 043901.
125. Raines, K.S., et al., *Three-dimensional structure determination from a single view*. Nature, 2010. **463**(7278): p. 214.
126. Guidoni, L., E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot, *Magneto-optics in the Ultrafast Regime: Thermalization of Spin Populations in Ferromagnetic Films*. Physical Review Letters, 2002. **89**(1): p. 017401.

127. Bigot, J.-Y., M. Vomir, and E. Beaurepaire, *Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses*. Nat Phys, 2009. **5**(7): p. 515.
128. Scherz, A., et al., *Phase imaging of magnetic nanostructures using resonant soft x-ray holography*. Physical Review B, 2007. **76**(21): p. 214410.
129. Gutt, C., et al., *Single-pulse resonant magnetic scattering using a soft x-ray free-electron laser*. Physical Review B, 2010. **81**(10): p. 100401.
130. Duckworth, T.A., et al., *Magnetic imaging by x-ray holography using extended references*. Optics Express, 2011. **19**(17): p. 16223-16228.
131. Vodungbo, B., et al., *Polarization control of high order harmonics in the EUV photon energy range*. Opt. Express, 2011. **19**(5): p. 4346.
132. Turner, J.J., et al., *X-Ray Diffraction Microscopy of Magnetic Structures*. Physical Review Letters, 2011. **107**(3): p. 033904.
133. Collins, J.S.A., *Lens-System Diffraction Integral Written in Terms of Matrix Optics*. J. Opt. Soc. Am., 1970. **60**(9): p. 1168.
134. Goodman, J.W., *Statistical optics*. 2000: Wiley.
135. González, A.I. and Y. Mejía, *Nonredundant array of apertures to measure the spatial coherence in two dimensions with only one interferogram*. J. Opt. Soc. Am. A, 2011. **28**(6): p. 1107.