



HAL
open science

Développements méthodologiques et logiciels pour l'imagerie X multimodale par balayage sur la ligne de lumière Nanoscopium

Antoine Bergamaschi

► **To cite this version:**

Antoine Bergamaschi. Développements méthodologiques et logiciels pour l'imagerie X multimodale par balayage sur la ligne de lumière Nanoscopium. Traitement du signal et de l'image [eess.SP]. Université Paris-Saclay, 2017. Français. NNT : 2017SACLS054 . tel-01534173

HAL Id: tel-01534173

<https://theses.hal.science/tel-01534173>

Submitted on 7 Jun 2017

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

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

NNT : 2017SACLS054

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
L'UNIVERSITE PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE N° 576

Particules hadrons énergie et noyau : instrumentation, image, cosmos et simulation

Spécialité de doctorat : physique des particules

Par

Mr Antoine Bergamaschi

Développements méthodologiques et logiciels pour l'imagerie X multimodale par balayage sur la ligne de lumière Nanoscopium

Thèse présentée et soutenue à Saclay, le mardi 7 Mars 2017 :

Composition du Jury :

Mr, Khan, Elias	Professeur, Paris Saclay	Président
Mr, Favre-Nicolin, Vincent	Maître de conférences, Université Joseph Fourier	Rapporteur
Mr, Carazo, Jose-Maria	Professeur, Université autonome de Madrid	Rapporteur
Mme, Peyrin, Françoise	Directeur de recherche, Université Lyon 1	Examinatrice
Mr, Mocuta, Cristian	Scientifique de ligne, Synchrotron SOLEIL	Examineur
Mr, Medjoubi, Kadda	Scientifique de ligne, synchrotron SOLEIL	Directeur de thèse
Mr, Messaoudi, Cédric	Ingénieur de recherche, Institut Curie	invité, co-directeur de thèse
Mr, Marco, Sergio	Directeur de recherche, INSERM	invité, co-directeur de thèse

Titre : Développements méthodologiques et logiciels pour l'imagerie X multimodale par balayage sur la ligne de lumière Nanoscopium

Mots clés : rayon X, microscopie à balayage, tomographie, multimodalité, fluorescence X, traitement du signal

Résumé : L'objet de cette thèse est le développement méthodologique et logiciel d'outils permettant de traiter les grands volumes de données multimodales et tomographiques produits sur Nanoscopium. La technique de microscopie en rayons X durs par balayage permet l'acquisition simultanée d'information par contraste d'absorption, de phase, de diffusion et de fluorescence X. L'association des techniques de balayage avec l'infrastructure d'acquisition rapide FLYSCAN permet de proposer aux futurs utilisateurs de la ligne Nanoscopium de faire des acquisitions tomographiques multimodales. Un des principaux enjeux de cette approche est le traitement en ligne des grands volumes de données générées durant l'acquisition.

Le résultat principal de cette thèse est le logiciel MMXI, dédié au traitement et à la reconstruction des jeux de données multimodales 2D et 3D. Ce logiciel intègre un algorithme dédié à la lecture de gros volumes de données, différentes fonctions de réduction de données, deux algorithmes de reconstruction de phase (intégration dans l'espace de Fourier et technique itérative) et des algorithmes de reconstruction tomographiques (rétroprojection filtré ou itérative).

L'ensemble des méthodes implémentées, des applications permettant de valider ces développements ainsi que les perspectives d'évolution sont présentées dans ce manuscrit.

Title : Methodological and software development for X-ray scanning imaging at Nanoscopium beamline

Keywords : X-ray, scanning imaging, tomography, multimodalities, X-ray fluorescence, signal processing

Abstract : The subject of this thesis is the methodological and software development of tools for processing very large multimodal and tomographic datasets produced on Nanoscopium beamline in the SOLEIL synchrotron. Scanning hard X-ray imaging allows simultaneous acquisition of multimodal information, i.e. of images in which each pixel contains several types of data. Combining these scanning techniques with the FLYSCAN infrastructure, developed for fast data acquisition at Synchrotron SOLEIL, permits to perform multimodal tomographic imaging and tomographic reconstruction during routine user experiments. A main challenge of such imaging techniques is the online processing of the important amount of generated multimodal data.

The main outcome of this thesis work is the MMX-I software which is dedicated to processing large 2D/3D multimodal dataset. This software includes an original algorithm for continuous reading of large data volumes, several reduction functions, two phase reconstruction algorithms (integration in Fourier space and iterative technics) and tomographic reconstruction technics (filtered back projection and iterative technics).

Every implemented method as well as application allowing to validate the new developments and few evolution perspectives are presented in this thesis manuscript.

Chapitre 1	8
Chapitre 2	14
2.1 La microscopie	15
2.2 Le rayonnement X	16
2.2.1 Atténuation des rayons X	16
2.2.2 L'absorption des rayons X et émissions secondaires	17
2.2.3 La diffusion élastique des rayons X	19
2.2.4 La diffusion inélastique des rayons X	20
2.2.5 La propagation des rayons X	21
2.2.6 La cohérence du rayonnement X	22
2.2.7 Production du rayonnement X	24
2.3 La microscopie par rayons X	25
2.3.1 Sources X	25
2.3.2 Principes et techniques de microscopie X dans l'espace réel	28
2.3.3 Détection du rayonnement X	31
2.4 Mécanismes physiques de formation du contraste	34
2.4.1 Le contraste et le bruit quantique	35
2.4.2 Contraste d'absorption	35
2.4.3 Contraste de phase	36
2.4.4 Contraste de fluorescence X	37
2.4.5 Contraste de diffusion	37
2.5 État de l'art des outils de traitement logiciel en microscopie X	37

Chapitre 3	44
3.1 Nanoscopium	45
3.2 CX2 : La station d'imagerie multi-techniques à nano-focalisation	47
3.2.2 Optique de focalisation du faisceau X.....	47
3.2.3 L'Environnement échantillon.....	50
3.2.4 Détecteurs.....	51
3.3 Architecture Flyscan	53
3.4 Volumes de données	54

Chapitre 4	58
4.1 La multimodalité des données	59
4.2 Le signal de transmission	60
4.2.2 Le signal d'absorption.....	60
4.2.3 Le signal de diffusion.....	61
4.2.4 Le signal de phase	63
4.3 Le signal de fluorescence X	65
4.4 Les signaux de monitoring	66
4.4.1 Position du porte échantillon.....	66
4.4.2 Moniteur d'intensité	67
4.5 Reconstruction de phase	68
4.5.1 Méthode par Fourier.....	68
4.5.2 Méthode de Southwell.....	68
4.5.3 Comparaison des algorithmes de reconstruction de phase	69

4.6 Traitement tomographique	71
4.6.2 Rétroprojection filtrée	72
4.6.3 Les techniques de reconstruction algébrique.....	74
<hr/>	
Chapitre 5	78
5.1 MMX-I philosophie et design	79
5.1.1 Architecture générale	79
5.1.2 Processus d'utilisation du logiciel.....	82
5.2 Implémentation	84
5.2.1 Importation des données brutes.....	84
5.2.2 Réduction des données brutes	86
5.2.3 Correction des données	91
5.2.4 Reconstruction des données	97
5.3 Interface utilisateur	99
5.4 Librairies annexes	100
<hr/>	
Chapitre 6	106
6.1 Expérience et utilisation de MMX-I	107
6.1.1 Logo de SOLEIL.....	107
6.1.2 Les microsphères.....	110
6.1.3 Les foraminifères.....	113
<hr/>	
Chapitre 7	120
7.1 Expansion possible de MMX-I	120
7.1.1 Optimisation sur GPU	120
7.1.2 Visualisation et interface utilisateur	121

7.1.3 Perspectives pour la communauté scientifique	122
7.2 Utilisation sur d'autres lignes	123
7.3 L'auto-absorption de la fluorescence X	123
7.3.1 Principaux algorithmes de correction.....	123
7.3.2 Simulation de l'auto-absorption	124
<hr/>	
Chapitre 8	130
A Table des abréviations	132
B Article MMX-I	132

Chapitre 1

Introduction

Entre la fin du XIX^{ème} et la première partie du XX^{ème}, les avancées scientifiques et technologiques permirent de théoriser et de formuler les interactions entre le rayonnement X et la matière.

Ainsi, l'invention du tube de Crookes (1869 – 1875), par Sir William Crookes (1832-1919), a été un important jalon dans la découverte des rayons X. Ce tube constitué d'une ampoule de verre, dans lequel un vide poussé est réalisé (Sprengel 1865), et de deux électrodes à ses extrémités, a permis à Wilhelm Conrad Röntgen (1845 - 1923) de mettre en évidence un nouveau type de lumière, invisible à l'œil et capable de traverser la matière, les rayons X (Röntgen 1895). Ces propriétés sont associées au fait que la longueur d'onde du rayonnement X est plus courte que celle du rayonnement visible. Après avoir évalué le pouvoir de transmission de ce rayonnement à travers différents matériaux, Röntgen demanda à sa femme de mettre sa main entre le tube et une plaque photographique produisant ainsi une image. Cette image, prise le 22 décembre 1895, bien que de qualité médiocre, a marqué l'histoire de l'humanité. L'imagerie par rayons X venait de naître. Seulement deux ans après ce premier cliché, Antoine Bécclère créa, à l'hôpital Tenon, le premier laboratoire hospitalier de radiologie (Pallardy 1999). Durant cette période comprendre les interactions entre les photons X et la matière devient un enjeu scientifique majeur.

Suite à la découverte de Röntgen, Winkelmann et Straubel (Winkelmann and Straubel 1896) découvrirent que des composés chimiques soumis à un rayonnement X peuvent réémettre des rayons X. Ils expliquent leur découverte comme un phénomène d'ionisation, faisant suite à une excitation, conduisant à l'émission de fluorescence X identique à celle déjà connue dans le domaine de la fluorescence visible. Peu de temps après, Barkla théorisa cette radiation dite secondaire. Il proposa une loi modélisant cette émission en fonction de la constitution de la matière et de l'énergie de la source de rayons X (Barkla 1903; Barkla and Sadler 1909).

Ce n'est qu'en 1911, que Rutherford (Rutherford 1911) propose un modèle de l'atome permettant d'expliquer les phénomènes d'interaction des photons X avec la matière. Il modélise l'atome par un noyau de protons autour duquel des électrons orbitent. Bohr (Bohr 1913) améliore ce modèle en proposant le concept d'orbite atomique. Ces orbites correspondent à des niveaux d'énergie discrets sur lesquels les électrons de l'atome viennent se placer. Ce modèle permet la théorisation des constantes physiques caractéristiques à chaque atome comme les énergies de liaison des couches électroniques.

À partir de ce modèle, Lise Meitner (Meitner 1922) et Pierre Auger (Auger 1925) découvrirent l'effet Auger. Cet effet correspond à l'émission d'électrons, appelés électrons Auger, lors de la désexcitation

des atomes ionisés. Ils proposent ainsi un second mode de désexcitation de l'atome entrant en compétition avec la fluorescence X.

En parallèle Compton, à la différence des modèles proposés précédemment, s'intéresse à l'évolution du rayonnement X dans la matière quand celui-ci n'est pas absorbé. Il modélise mathématiquement la diffusion des rayons X par les électrons (Compton 1923) se basant sur les travaux de Thomson (Thomson 1906).

Alors que la première partie du XX^{ème} siècle est consacrée principalement à la compréhension et à la formalisation des modèles d'interaction photons X / matière, la seconde voit naître une recrudescence d'instruments dont la technicité est spécifique à un domaine scientifique bien précis. En effet, les besoins d'imagerie en médecine, biologie, science de la terre et de l'univers, physique, chimie, ... initient un grand nombre de développements instrumentaux capables de pouvoir explorer la matière. Les spécifications en imagerie X présentent un éventail extrêmement large que ce soit en termes d'effets physiques considérés (absorption, diffusion, fluorescence X, effet Auger), de résolution spatiale, de champ de vue, de méthode d'acquisition, etc. La microscopie X est un de ces vastes champs instrumentaux.

La microradiographie, c'est à dire l'imagerie X par contraste d'absorption à résolution micrométrique, a été inventée peu de temps après les expériences de Röntgen (Goby 1913). Il s'agissait d'exposer au rayonnement X un échantillon placé au contact d'un film photographique, dont la granularité permettait de descendre à des résolutions de l'ordre du micron. D'autres techniques ont vu le jour par la suite, notamment la microscopie par projection où l'objet est placé au plus proche de la source de rayons X tandis que l'écran de détection en est fortement éloigné (Von Ardenne 1940). Les travaux de Cosslett et Nixon (Cosslett and Nixon 1951; Nixon 1955) ont permis de grandement améliorer la technique en terme de résolution et de temps d'exposition. Profitant des avancées réalisées en microscopie électronique, ils développèrent la méthode de production d'une source X de petite taille par un faisceau d'électron focalisé sur une cible mince. Durant cette même période, Albert Baez et Paul Kirkpatrick développèrent des miroirs pour focaliser les rayons X. Ils réalisèrent avec ces éléments optiques un autre type de microscope X mais en revanche entaché d'un grand nombre d'aberrations optiques (Kirkpatrick 1949). L'amélioration des ces optiques ainsi que le développement de nouvelles techniques de focalisation, telles que les lentilles de Fresnels pour rayons X (Baez 1952), ont permis le développement de la microscopie X par balayage que ce soit pour l'imagerie de transmission ou l'imagerie de composition chimique obtenue par la détection des événements secondaires tels que la fluorescence X. Cette dernière, a été introduite par Raymond Castaing (Castaing 1952) qui développa un microscope électronique dédié à l'analyse de la fluorescence X afin d'obtenir une cartographie en composition chimique de la surface d'un échantillon.

Durant cette période riche en développements technologiques et méthodologiques, la principale limitation résidait dans la taille et l'intensité des sources de rayons X disponibles. En effet, celles-ci n'ont pas réellement beaucoup changé depuis le début du 20^{ème} siècle. Il faudra attendre les années 70 pour que le rayonnement synchrotron, considéré comme un rayonnement parasite dans les accélérateurs de particules dédiés à la physique des hautes énergies, soit utilisé pour sa grande intensité en microscopie X. C'est en 1972 que Horowitz et Howell ont conçu et publié le tout premier microscope X à transmission et à fluorescence X (Horowitz and Howell 1972) auprès de l'accélérateur du Massachusetts Institute of Technology.

Depuis les années 70, la microscopie X par balayage a fortement évolué. L'avènement de sources encore plus intenses, tels que les synchrotrons de 3^{ème} génération, l'amélioration de la qualité des optiques de rayons X, le développement des détecteurs à semi-conducteur à haute résolution spatiale et temporelle, les précisions de positionnement de l'objet sondé et l'essor du tout numérique, ont fortement contribué à développer cette technique d'imagerie X et à la rendre extrêmement attractive. En effet, ces prouesses technologiques ont permis d'atteindre des résolutions submicroniques, de réduire le temps de prise d'image, de permettre l'imagerie tridimensionnelle de façon routinière et d'ouvrir une voie vers l'imagerie multimodale. La multi-modalité est ainsi de nos jours omniprésente. Le revers de la médaille est la grande quantité de données produite et leur complexité, car elles proviennent des multiples processus physiques. Cette quantité de données, qui en plus contiennent des informations occultées dans la masse, entraîne d'autres problématiques associées à la thématique du « big data ». C'est dans ce contexte que s'inscrit ma thèse qui traite des questions de multimodalité dans le domaine de l'imagerie X par rayonnement synchrotron et de la gestion du grand volume de données complexes générées.

La ligne de lumière Nanoscopium, au synchrotron SOLEIL, est dédiée aux techniques d'imagerie 2D/3D multimodales par balayage, dans la gamme d'énergie 5 à 20 keV. Le principe consiste à balayer l'échantillon par le faisceau X focalisé, pendant que le faisceau transmis et/ou l'émission secondaire sont enregistrés à chaque position de l'échantillon, fournissant des images de fluorescence X, de contraste de phase, de « dark field » (diffusé) et d'absorption. L'objet de la thèse est de développer un outil logiciel permettant de traiter et d'analyser des grands volumes de données produits lors d'expériences de ce type.

Le manuscrit est organisé en 8 chapitres commençant par cette introduction générale et se terminant par une discussion et une conclusion générale. Entre eux, le chapitre 2, intitulé "La microscopie par rayons X", présente une introduction des principes de la microscopie X et une revue des différents mécanismes de formation du contraste. Ma thèse, étant réalisée au synchrotron SOLEIL, une attention particulière a été donnée aux techniques et mécanismes physiques spécifiques aux synchrotrons. Une présentation plus détaillée de la microscopie X par balayage ainsi que les mécanismes physiques qui lui sont propres sont inclus dans cette section. Cette section permettra par la suite d'interpréter les résultats mesurés sur les différents détecteurs.

Le chapitre 3 présente la ligne Nanoscopium et plus particulièrement la station expérimentale d'imagerie X multi-technique par balayage sur laquelle j'ai réalisé les expériences d'imagerie multimodale. Une des spécificités de la ligne Nanoscopium est qu'elle bénéficie de l'architecture d'acquisition Flyscan également présentée dans cette section. Cette architecture permet de réduire considérablement le temps nécessaire à l'acquisition simultanée de cartographies structurales et chimiques de grande taille. Ce chapitre illustre le besoin de créer les outils logiciels nécessaires pour explorer, réduire, traiter et reconstruire la grande quantité de données multimodales générées.

Le chapitre 4 introduit les différentes méthodes d'analyse, de réductions et de reconstructions du signal implémentées dans l'outil logiciel développé dans la thèse. Cette partie place dans les connaissances actuelles le regroupement et l'enchaînement logique des différents algorithmes correspondant à la démarche méthodologique proposée aux utilisateurs du logiciel.

Le chapitre 5 est le cœur de mon travail de thèse. Il montre le logiciel que j'ai nommé MMX-I (MultiModal X-ray Imaging) et les implémentations algorithmiques originales pour le traitement, la réduction et la reconstruction d'images multimodales. Cette partie détaille des fonctionnalités comme l'importation des données ou la correction des données brutes. Elle expose également tous les mécanismes d'ingénierie logicielle utilisés pour offrir un code souple, facile à prendre en main et aisément exportable. Une courte description des différentes interfaces utilisateur du logiciel est également proposée dans ce chapitre. À la fin de ce chapitre une rapide description de toutes les bibliothèques développées en parallèle de MMX-I est présentée. La conception, l'implémentation et l'application de ce logiciel est le sujet du papier associé à cette thèse (Bergamaschi et al. 2016).

Le chapitre 6 présente les expériences d'imagerie multimodale par rayons X que j'ai pu réaliser sur Nanoscopium durant ma thèse. Tous les résultats, images et les reconstructions tomographiques multimodales, présentés dans ce chapitre ont été produits grâce au logiciel MMX-I. Trois échantillons ont été étudiés permettant de valider les développements algorithmiques réalisés et leurs implémentations.

- Auger, Pierre. 1925. "Sur l'effet photoélectrique composé." *Journal de Physique et le Radium* 6 (6): 205–8. doi:10.1051/jphysrad:0192500606020500.
- Baez, Albert V. 1952. "Resolving Power in Diffraction Microscopy with Special Reference to X-Rays." *Nature* 169 (4310): 963–64. doi:10.1038/169963b0.
- Barkla, C. G. 1903. "Secondary Radiation from Gases Subject to X-Rays." *Philosophical Magazine Series 6* 5 (30): 685–98. doi:10.1080/14786440309462976.
- Barkla, C. G., and C. A. Sadler. 1909. "The Absorption of Röntgen Rays." *Philosophical Magazine Series 6* 17 (101): 739–60. doi:10.1080/14786440508636650.
- Bergamaschi, Antoine, Kadda Medjoubi, Cédric Messaoudi, Sergio Marco, and Andrea Somogyi. 2016. "MMX-I: Data-Processing Software for Multimodal X-Ray Imaging and Tomography." *Journal of Synchrotron Radiation* 23 (3): 783–94. doi:10.1107/S1600577516003052.
- Bohr, Niels. 1913. "On the Constitution of Atoms and Molecules." *Philosophical Magazine Series 6* 26 (151): 1–25. doi:10.1080/14786441308634955.
- Castaing, Raymond. 1952. *Application des sondes électroniques à une méthode d'analyse ponctuelle chimique et cristallographique*.
- Compton, Arthur H. 1923. "A Quantum Theory of the Scattering of X-Rays by Light Elements." *Physical Review* 21 (5): 483–502. doi:10.1103/PhysRev.21.483.
- Cosslett, V. E., and W. C. Nixon. 1951. "X-Ray Shadow Microscope." *Nature* 168 (4262): 24–25. doi:10.1038/168024a0.
- Goby, Pierre. 1913. "New Application of the X-Rays: Micro-Radiography." *Journal of the Royal Microscopical Society* 33 (4): 373–75. doi:10.1111/j.1365-2818.1913.tb01033.x.
- Horowitz, Paul, and John A. Howell. 1972. "A Scanning X-Ray Microscope Using Synchrotron Radiation." *Science* 178 (4061): 608–11. doi:10.1126/science.178.4061.608.
- Kirkpatrick, Paul. 1949. "The X-Ray Microscope." *Scientific American* 180 (March): 44–47. doi:10.1038/scientificamerican0349-44.
- Meitner, Lise. 1922. "Über die Entstehung der β -Strahl-Spektren radioaktiver Substanzen." *Zeitschrift für Physik* 9 (1): 131–44. doi:10.1007/BF01326962.
- Nixon, W. C. 1955. "High-Resolution X-Ray Projection Microscopy." *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 232 (1191): 475–85. doi:10.1098/rspa.1955.0232.
- Pallardy, G. 1999. "La radiologie est entree avant l'electricite dans les hopitaux de Paris." *Histoire Des Sciences Medicales* 33 (4): 333–42.
- Röntgen, W. C. 1895. "Über Eine Neue Art von Strahlen." *Annalen Der Physik* 300 (1): 1–11. doi:10.1002/andp.18983000102.
- Rutherford, Ernest. 1911. "The Scattering of Alpha and Beta Particles by Matter and the Structure of the Atom." *The London Edinburgh*: 669–88. doi:10.1080/14786440508637080.
- Sprengel, Hermann. 1865. "III.—Researches on the Vacuum." *Journal of the Chemical Society* 18 (0): 9b–21. doi:10.1039/JS865180009B.
- Thomson, Joseph John. 1906. *Conduction of Electricity through Gases*. Cambridge University Press. <http://archive.org/details/conductionofele00thomuoft>.
- Von Ardenne, Manfred. 1940. *Elektronen-Übermikroskopie*. 1sted. Physics · Engineering · Results. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. <http://www.springer.com/de/book/9783642471032>.
- Winkelman, A., and R. Straubel. 1896. "Ueber Einige Eigenschaften Der Röntgen'schen X-Strahlen." *Annalen Der Physik* 295 (10): 324–45. doi:10.1002/andp.18962951010.

Abstract

Ce chapitre introduit la microscopie par rayons X. Il présente les éléments de la chaîne d'imagerie nécessaires à l'acquisition d'images multimodales en mode balayage.

Dans la première partie nous introduirons le concept de microscopie. Dans la seconde nous décrirons les caractéristiques du rayonnement X. Dans cette partie nous présenterons les effets physiques d'interaction du rayonnement X avec la matière comme l'atténuation, l'absorption et les phénomènes de de-excitations associés et la diffusion. Nous verrons également les aspects de cohérence du rayonnement X et le principe de sa production.

Dans la troisième partie nous présenterons les différentes méthodes de microscopie par rayons X. Cette partie est divisée en trois sous-partie présentant chacune l'état de l'art, des sources de rayonnement X, des techniques de microscopie X et des instruments de détection du rayonnement X.

La quatrième partie est dédiée à la description des phénomènes de formation du contraste, dans le cadre de la microscopie X par balayage, résultant de l'interaction rayon X-matière. Ces interactions mènent aux images d'absorption, de phase, de fluorescence X et de diffusion.

Enfin la cinquième partie présentera un état de l'art de différents logiciels permettant le traitement des modalités de formation du contraste décrit précédemment.

2.1 La microscopie

Comme détaillé dans l'introduction, la microscopie par rayons X a été inventé très tôt dans l'histoire des rayons X. C'est une méthode complémentaire à la microscopie visible et électronique en termes de pouvoir de résolution spatiale et de capacité à pénétrer la matière. De ce fait, elle est utilisée de nos jours dans de nombreux domaines scientifiques comme la biologie (Larabell and Nugent 2010), la géologie/bio-géologie (Sforna et al. 2014), l'archéologie (Tafforeau et al. 2006), la physique des matériaux (Lykhach et al. 2016), la chimie (Franke et al. 2015) etc.

Le pouvoir de résolution d'un microscope (ou limite de résolution), quel qu'il soit, est défini par le critère de Rayleigh. Ce dernier est donné comme la plus petite distance en dessous de laquelle deux points voisins ne sont plus discernables. Le critère de Rayleigh, R , peut être exprimé simplement à l'aide de la longueur d'onde λ du rayonnement de travail et de l'ouverture numérique du dispositif optique (noté NA pour ouverture numérique¹). Il s'écrit comme :

$$R \sim 0.61 \frac{\lambda}{NA} \quad (2.1)$$

Suivant cette équation, plus courte est la longueur d'onde, plus grand sera le pouvoir de résolution.

Dans le cas de la microscopie électronique, les très courtes longueurs d'onde des électrons (2.5 pm à 200 keV) permettent d'atteindre des résolutions atomiques (<0.5 nm). Cependant l'utilisation d'électrons entraîne des limitations dues à leur très petite capacité de pénétration dans les matériaux. En effet, le libre parcours moyen d'un faisceau d'électrons de 200 keV dans le matériel biologique est d'environ 300nm (Yan et al. 2015), en comparaison un photon de 30 keV peut lui en moyenne parcourir 2.6 cm⁽²⁾, soit un peu moins de 10⁷ fois la distance. Le faible libre parcours moyen des électrons entraîne donc une limitation sur l'épaisseur des échantillons ce qui est d'autant plus vraie pour la tomographie électronique par transmission (TET) où les coupes d'échantillon étudiées ont généralement une épaisseur de 150 à 300 nm. De plus, la microscopie électronique nécessite un vide poussé (variant entre 10⁻⁷ et 10⁻¹⁰ mbars) afin d'éviter l'interaction des électrons avec des molécules de l'air qui conduirait à une ionisation empêchant la focalisation du faisceau d'électrons. Cet environnement sous vide impose des contraintes supplémentaires sur les échantillons étudiés. En effet, ils doivent être déshydratés, et si ce n'est pas le cas ils doivent être inclus dans une résine ou figés dans l'eau en état vitreux par cryogénie.

Concernant la microscopie dans la lumière visible, sa limite de résolution est limitée par la plus petite longueur d'onde détectable par l'œil humain, c'est à dire 400 nm (violet). La limite d'un microscope classique est donc d'environ 200 nm. Du fait de la forte absorption du rayonnement visible par une grande majorité des matériaux, la profondeur d'information est rapidement limitée. La transparence de

¹ numerical aperture en anglais

² <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ComTab/tissue.html>

l'échantillon est donc un critère crucial en microscopie visible et est limité à environ 1 mm pour le matériel biologique (Bordier 2007).

La microscopie par rayons X est sur le plan de la résolution entre la microscopie visible, moins résolue, et la microscopie électronique, plus résolue. La longueur d'onde étant autour de l'Angström (c'est à dire 0,1 nm), le pouvoir de résolution des systèmes existants peut atteindre au mieux quelques dizaines de nanomètres (Mimura et al. 2010) sur des échantillons dont l'épaisseur est supérieure à la centaine de microns tout en travaillant dans un environnement ambiant (pression atmosphérique et température ambiante). Ce dernier avantage, non négligeable, rend possible l'étude d'un échantillon dans un état proche de son environnement naturel.

2.2 Le rayonnement X

La longueur d'onde du rayonnement X utilisé en microscopie X se situe entre 1 nm et 0.2 nm. Comme toute onde électromagnétique, l'énergie en électron volts se calcul suivant la relation :

$$E[\text{eV}] = \frac{hc}{\lambda} = \frac{1239.8}{\lambda[\text{nm}]} \quad (2.2)$$

Où h est la constante de Planck, λ la longueur d'onde et c est la célérité de la lumière dans le vide.

Le rayonnement X est souvent classé en différentes catégories suivant son énergie E : les X mous ($E < 1 \text{ keV}$), les X tendres ($1 \text{ keV} < E < 5 \text{ keV}$) et les X durs ($5 \text{ keV} < E < 20 \text{ keV}$). Dans ces gammes d'énergie, les processus d'interaction des rayons X avec la matière sont principalement l'absorption, la diffusion élastique et la diffusion inélastique.

2.2.1 Atténuation des rayons X

Ces phénomènes physiques vont contribuer à atténuer un faisceau de rayon X lorsqu'il traverse un échantillon. L'intensité transmise est alors plus faible que l'intensité incidente. Cette atténuation dépend à la fois de l'énergie incidente des rayons X et de la nature du matériau. La capacité d'un milieu à atténuer est décrite par son coefficient d'atténuation linéique, μ . Dans le cas d'un faisceau de rayons X d'énergie E qui illumine un objet constitué d'un matériau homogène d'une épaisseur Δz , l'atténuation suit une loi exponentielle appelée loi de Beer-Lambert :

$$I = I_0 e^{-\mu(E)\Delta z} \quad (2.3)$$

Le coefficient d'atténuation linéique (μ) est homogène à l'inverse d'une distance (cm^{-1}) et est fonction de l'énergie des rayons X incidents et du matériau.

Les probabilités de chaque type d'interaction (absorption τ_{pe} , diffusion élastique σ_r et diffusion inélastique σ_c), appelés section efficace, décrivent le coefficient d'atténuation linéique comme suit :

$$\mu_{att} = (\tau_{pe} + \sigma_c + \sigma_r) \frac{N_a}{M_k} \rho_k = \sigma_{tot} \frac{N_a}{M_k} \rho_k \quad (2.4)$$

où N_a est le nombre d'Avogadro³, M_k la masse atomique de l'élément k et σ_{tot} la section totale d'interaction. La section σ_{tot} est exprimée comme la probabilité d'interactions avec le milieu et est la somme de toute les sections d'interactions pouvant avoir lieu.

La Figure 2.a présente les coefficients d'atténuation linéique pour le carbone et le fer en fonction de l'énergie du photon ainsi que les sections efficaces de chaque interaction.

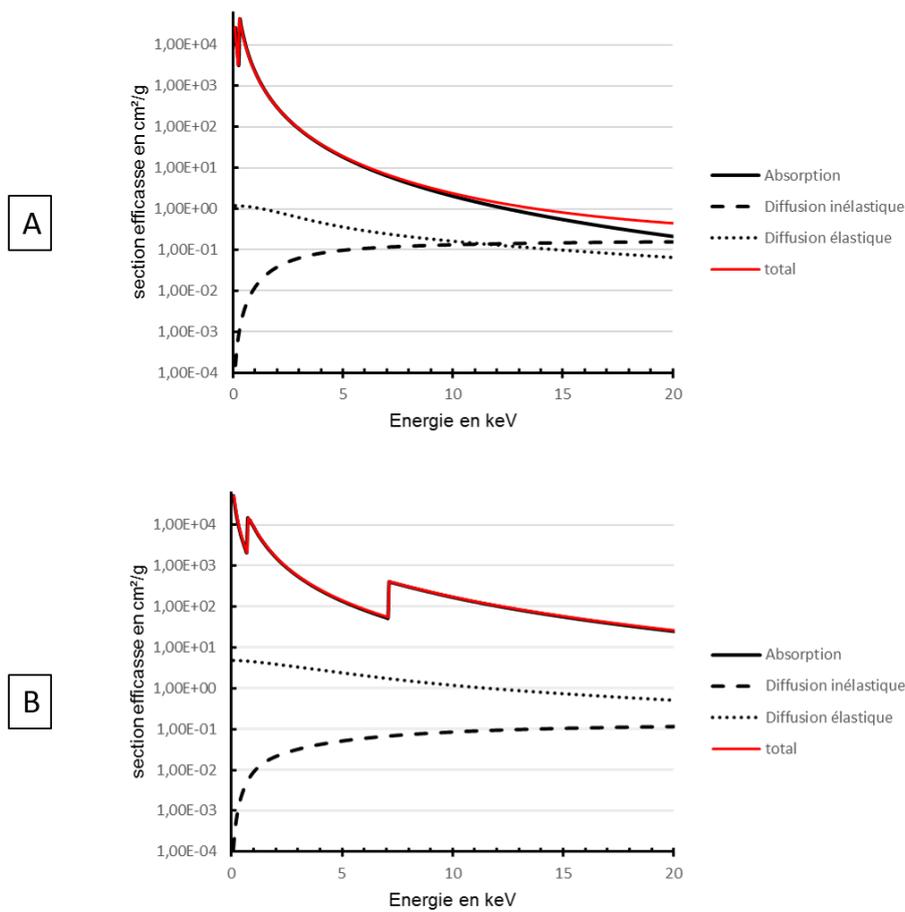


Figure 2.a : Section efficace du Carbone (A) et du Fer (B) entre 0.1 keV et 20 keV.

2.2.2 L'absorption des rayons X et émissions secondaires

Le processus d'absorption est produit par l'effet photoélectrique où un photon cède la totalité de son énergie à un électron d'une couche atomique (K, L, M, etc.). Cet électron, appelé photoélectron, est éjecté de l'atome, le laissant ainsi dans un état excité.

³ Nombre d'atomes dans 12 grammes de carbone 12

Une réorganisation atomique a donc lieu et conduit à une émission de photons de fluorescence ou

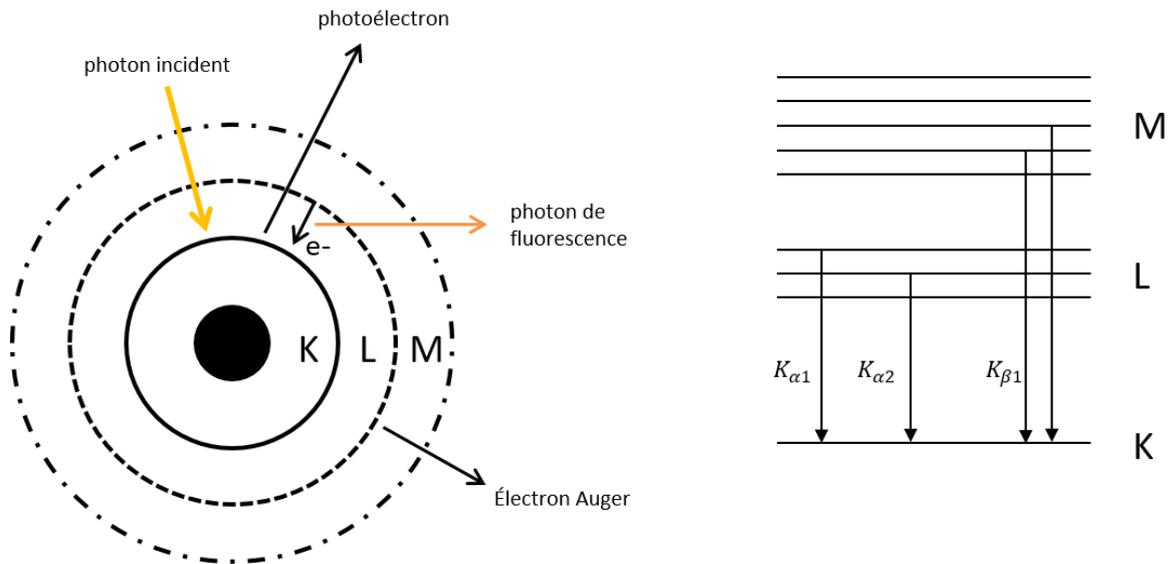


Figure 2.b : Absorption photoélectrique d'électrons Auger.

La section efficace de l'effet photoélectrique par atome dépend de l'énergie du photon et du numéro atomique Z de l'atome. Elle s'exprime comme suit (Compton and Allison 1935):

$$\tau_{pe} = \begin{cases} \frac{30.3Z^{3.94}}{E^3} & \text{pour } E > E_k \\ \frac{0.97Z^{4.30}}{E^3} & \text{pour } E_{l1} < E < E_k \\ \frac{0.78Z^{3.94}}{E^3} & \text{pour } E_{m1} < E < E_{l3} \end{cases} \quad (2.5)$$

L'expression (2.5) indique la forte dépendance de la nature du matériau (numéro atomique Z). L'effet est donc d'autant plus probable que l'élément est lourd. Elle indique aussi qu'à basse énergie l'effet devient prépondérant.

Les courbes de sections efficaces d'interaction photoélectrique en fonction de l'énergie présentent des discontinuités très marquées et caractéristiques lorsque l'énergie du photon incident atteint l'énergie de liaison des électrons de l'élément cible (Figure 2.a).

Comme énoncé plus haut, l'absorption photoélectrique d'un photon X conduit à l'éjection d'un électron, laissant derrière lui une lacune. Il s'ensuit divers processus en cascade visant à combler cette lacune ainsi qu'à libérer l'atome siège de l'interaction, de son excédent d'énergie par émission de fluorescence X ou d'électrons Auger. Ces processus sont caractéristiques de l'atome et possèdent une

énergie caractéristique. La probabilité que la désexcitation conduise à un photon X ou à un électron est appelée rendement de fluorescence.

Les variations des rendements de fluorescence de la couche K et de la couche L en fonction du numéro atomique Z sont présentées sur la Figure 2.c.

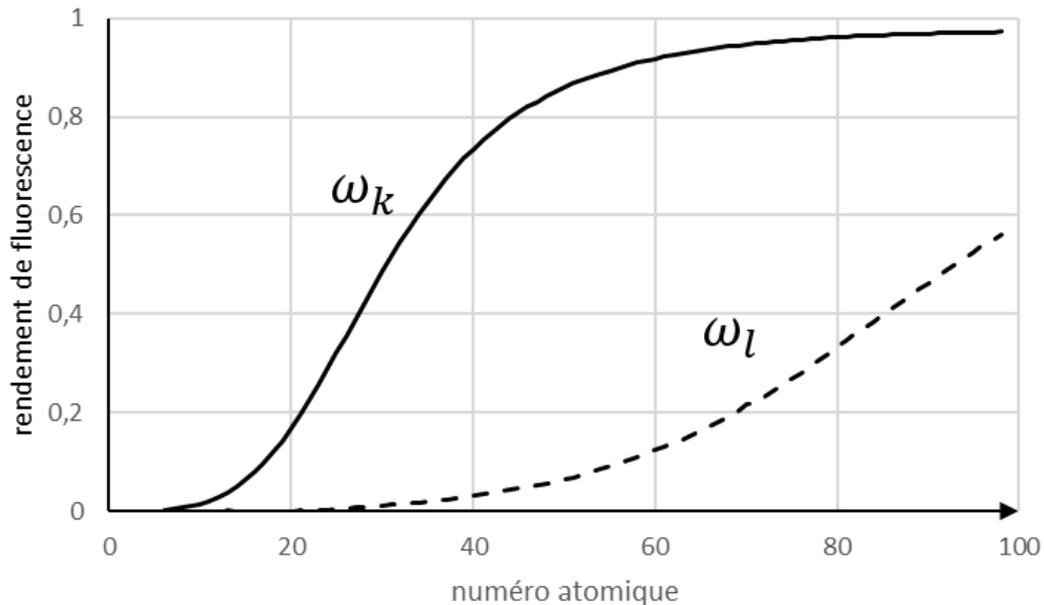


Figure 2.c : Rendement de fluorescence associé à la couche K (ligne continue) et à la couche L (ligne en pointillé) en fonction du numéro atomique Z

On peut remarquer que le rendement est faible pour les éléments légers et important pour les éléments lourds.

L'énergie des photons de fluorescence X est parfaitement tabulé dans la littérature et permet de parfaitement identifier l'atome émetteur, c'est à dire le composé élémentaire d'un échantillon (Grieken and Markowicz 2001; Hubbell 1969).

2.2.3 La diffusion élastique des rayons X

La diffusion élastique est une diffusion du photon incident, sans perte d'énergie, sur un électron. Lorsque que ce dernier est considéré comme libre, on parlera de diffusion Thompson et lorsqu'il est lié au cortège électronique de l'atome, on parlera de diffusion Rayleigh (Hubbell 1969).

La probabilité pour qu'un photon incident d'énergie E subisse une diffusion élastique et soit dévié

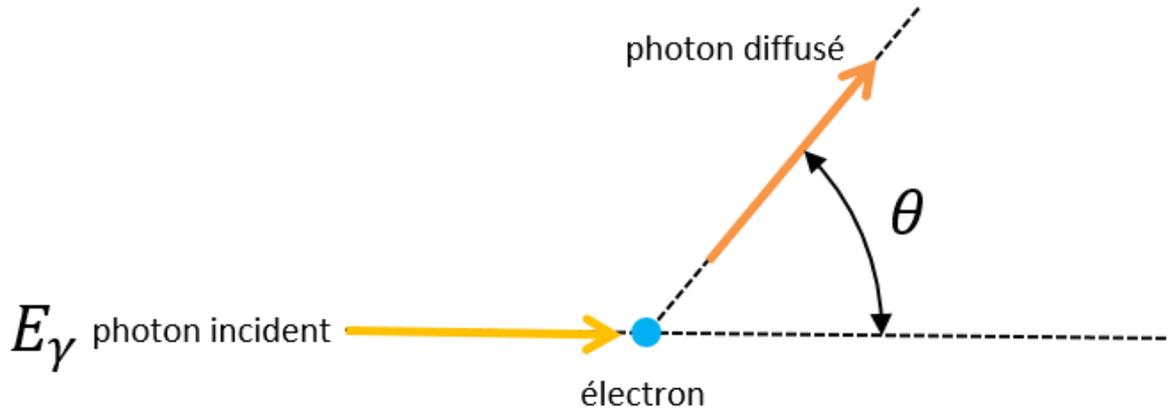


Figure 2.d : Diffusion élastique, le photon incident est diffusé suivant l'angle θ sans échange d'énergie avec les électrons atomiques

d'un angle θ est donnée par la section efficace suivante (Grieken and Markowicz 2001):

$$\frac{d\sigma}{d\theta} = \frac{r_e^2}{2} (1 + \cos^2\theta) G(x, Z)^2 \quad (2.6)$$

Où $G(x, Z)$ est appelé le facteur de forme atomique avec $x = \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \frac{E_\gamma}{hc}$ et r_e est le rayon d'un électron. Pour les petites valeurs de θ , le facteur de forme s'identifie au Z atomique, tandis que pour les plus grandes valeurs, il s'approche de zéro.

2.2.4 La diffusion inélastique des rayons X

La diffusion inélastique d'un photon sur un électron libre ou très peu lié (quelques eV) est appelée diffusion Compton. Lors de ce processus, le photon incident est dévié de sa trajectoire et transfère une partie de son énergie à l'électron avec lequel il a interagi.

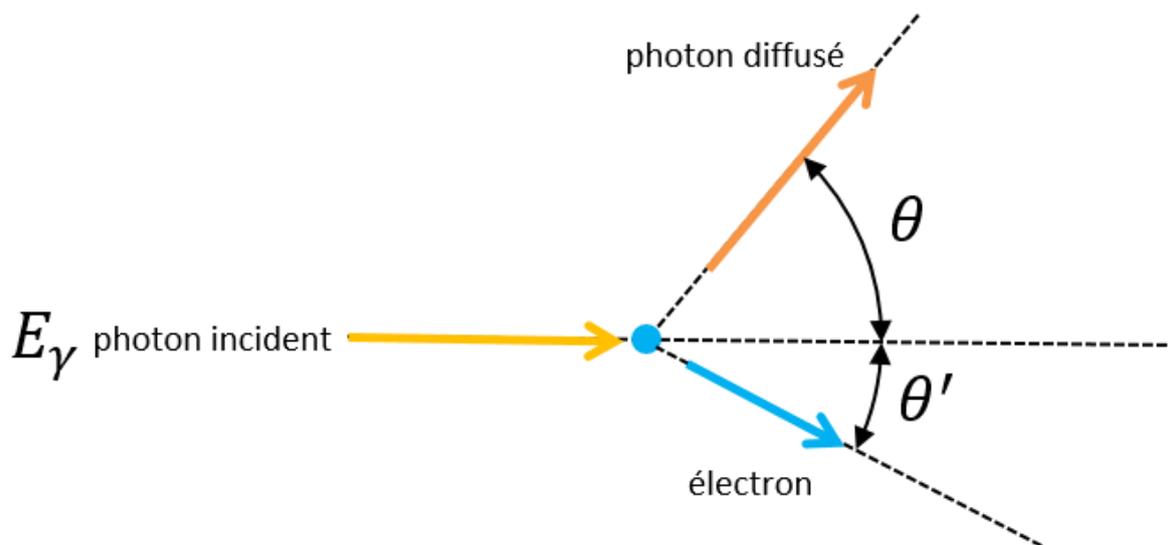


Figure 2.e : Diffusion inélastique, le photon incident est diffusé suivant l'angle θ et transfère une partie de son énergie à un électron de recul.

La conservation des quantités de mouvement projetées donne la relation qui lie l'angle θ à l'énergie du photon incident E_γ et du photon diffusé E'_γ . Elle s'écrit comme suit :

$$\frac{E'_\gamma}{E_\gamma} = \frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \quad (2.7)$$

avec,

$$\alpha = \frac{E_\gamma}{m_e c^2} \quad (2.8)$$

La probabilité pour qu'un photon incident d'énergie E_γ subisse une diffusion inélastique et soit dévié d'un angle θ , est donnée par la section efficace déterminée par Klein et Nishina (Klein and Nishina 1929). Elle s'écrit comme suit :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = Zr_e^2 \left(\frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \right)^2 \left(\frac{1 + \cos^2\theta}{2} \right) \left(1 + \frac{\alpha^2(1 - \cos\theta)^2}{(1 + \cos^2\theta)(1 + \alpha(1 - \cos\theta))} \right) \quad (2.9)$$

Comme on peut le voir sur la Figure 2.a, la section efficace d'interaction Compton augmente avec l'énergie du photon. Selon la formule de Klein et Nishina, plus l'énergie de photon incident est grande et plus la déviation de sa trajectoire initiale est faible.

2.2.5 La propagation des rayons X

Les interactions décrites plus haut sont formulées suivant une approche corpusculaire (approche microscopique). Selon le principe de dualité onde-corpusculaire, cette description peut se faire suivant une approche ondulatoire (approche macroscopique). En effet, la propagation d'un faisceau de rayons X parallèle et monochromatique suivant l'axe s et pour une distance z à travers un milieu homogène d'indice de réfraction n s'écrit :

$$\psi(z) = \psi_0 e^{iknz} \quad (2.10)$$

avec ψ_0 l'amplitude de l'onde et $k = 2\pi/\lambda$ le nombre d'onde. L'indice de réfraction d'un milieu est une grandeur complexe, il s'exprime comme suit (Jackson 1998) :

$$n = 1 - \delta - i\beta \quad (2.11)$$

δ correspond au décrément de l'indice de réfraction et β l'indice d'absorption. L'expression (2.11) se développe comme suit :

$$\psi(z) = \psi_0 e^{ikz} e^{ik\delta z} e^{-k\beta z} \quad (2.12)$$

L'expression de l'onde est décrite en 3 termes : sa propagation dans le vide, son déphasage par le milieu et son atténuation par le milieu. La Figure 2.f illustre cette description.

Le terme d'atténuation, par analogie à la loi de Beer-Lambert développé en (2.3), permet d'exprimer

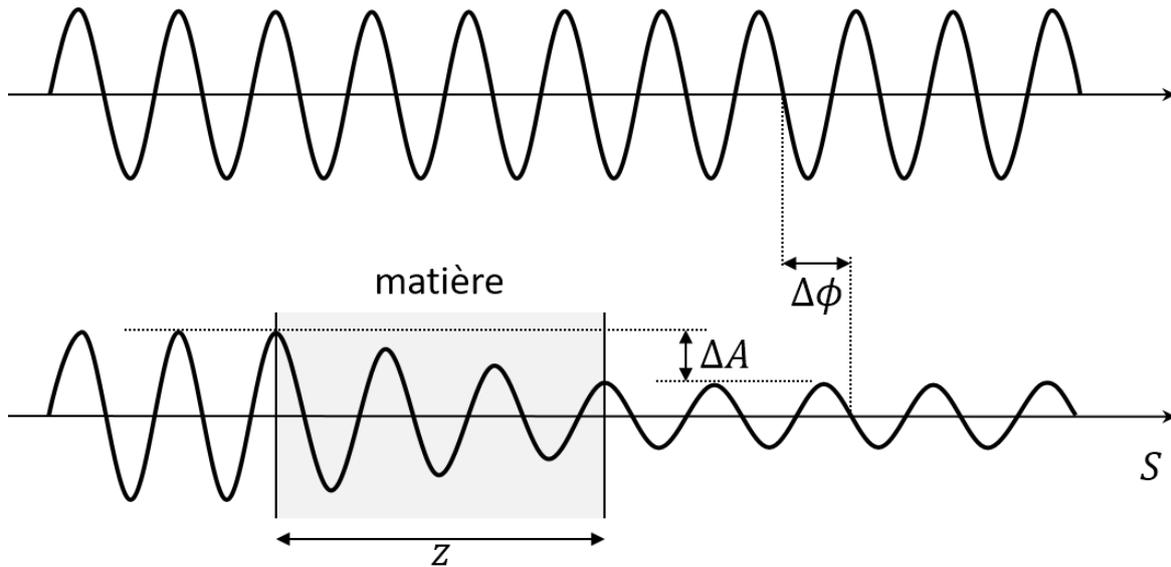


Figure 2.f : Schéma de la propagation d'une onde électromagnétique traversant un matériau d'une épaisseur Z . Le comportement du rayonnement est régi alors par l'indice de réfraction du milieu. L'amplitude du rayonnement décroît exponentiellement avec l'épaisseur, ΔA représente cette décroissance. Un décalage de phase représenté comme la différence de phase entre un faisceau qui se propage dans un matériau et un faisceau qui se propage dans le vide est également introduit, $\Delta\phi$.

l'indice d'absorption β en fonction du coefficient d'atténuation linéique μ :

$$\beta = \frac{\lambda}{4\pi} \mu \quad (2.13)$$

L'indice de réfraction peut quant à lui s'exprimer en fonction des paramètres atomiques :

$$\delta = \frac{Z_v r_e}{2\pi} \lambda^2 \quad (2.14)$$

avec Z_v le nombre d'électrons par unité de volume et r_e le rayon classique de l'électron.

En première approximation, il est possible de considérer que β est inversement proportionnel à la puissance -4 de l'énergie du photon X ($\beta \sim E^{-4}$) et δ à la puissance -2 ($\delta \sim E^{-2}$). Par conséquent, à mesure que l'énergie des photons augmente δ peut être de plusieurs ordres de grandeurs supérieurs à β . Cela illustre le fait que le phénomène de réfraction peut largement supplanter l'absorption. Cette propriété ouvre le champ à l'imagerie par contraste de phase que nous verrons dans la section 2.4.3.

2.2.6 La cohérence du rayonnement X

La cohérence du faisceau est une caractéristique relevant de l'aspect ondulatoire de la lumière. On peut décrire le comportement du faisceau comme le comportement moyen de tous les photons le constituant. Les caractéristiques ondulatoires du faisceau sont alors exprimées comme la cohérence du groupe de photons le constituant.

La cohérence est un paramètre crucial lorsque l'on veut mettre à profit le déphasage que peut subir un faisceau à la traversée d'un milieu afin de produire des interférences. Ces interférences, comme nous le verrons par la suite, sont nécessaires, que ce soit pour focaliser un faisceau de rayons X ou pour la génération d'images de radiographie par contraste de phase. La cohérence illustre la corrélation que possède un groupe d'ondes entre elles. On parlera de cohérence temporelle lorsque cette corrélation est suivant le temps et de cohérence spatiale lorsqu'elle est prise à deux endroits différents.

Cohérence temporelle

La cohérence temporelle est reliée à la largeur du spectre énergétique du rayonnement utilisé. En effet, un rayonnement n'est jamais purement monochromatique, il réside toujours une dispersion en énergie noté $\Delta\lambda$. Lorsque deux ondes dont la longueur d'onde diffère de $\Delta\lambda$ sont émises en phase, elles vont progressivement se déphaser jusqu'à se retrouver en opposition de phase. La distance parcourue correspond à la longueur de cohérence temporelle noté ξ_T . Comme l'illustre la Figure 2.g au bout d'une distance $2 \xi_T$, les ondes sont de nouveau en phase. L'expression de ξ_T qui en découle est :

$$\xi_T = \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda} \quad (2.15)$$

La longueur de cohérence temporelle n'est donc fonction que de la « pureté » énergétique du faisceau et donc du monochromateur utilisé pour filtrer celui-ci. Typiquement, la pureté atteinte par un monochromateur double cristal est de 10^{-4} donnant une longueur de cohérence temporelle à 10 keV d'environ 600 nm.

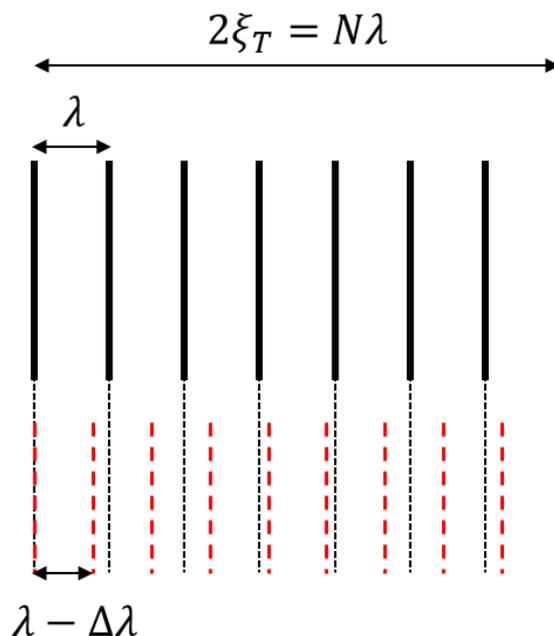


Figure 2.g : Illustration de la longueur de cohérence temporelle.

Cette grandeur est rarement critique. En effet, le déphasage spatial ou différence de chemin optique est, généralement, bien en dessous de la longueur de cohérence longitudinale.

Cohérence spatiale

La cohérence spatiale est liée à la taille de la source de rayons X. Comme le montre la Figure 2.h, deux ondes émises à l'extrémité et au centre de la source vont à une distance donnée présenter une différence de marche de moins d'une demi – période $\lambda/2$ sur une longueur transverse appelée longueur de cohérence transverse. Elle est notée ξ_s et s'écrit :

$$\xi_s = \frac{\lambda D}{S} \quad (2.16)$$

Avec S la taille de la source et D la distance entre le plan d'observation et la source. Pour une taille de source de $100\mu\text{m}$ et une distance de 80m on obtient une longueur de cohérence spatiale de $96\mu\text{m}$ à 10 keV.

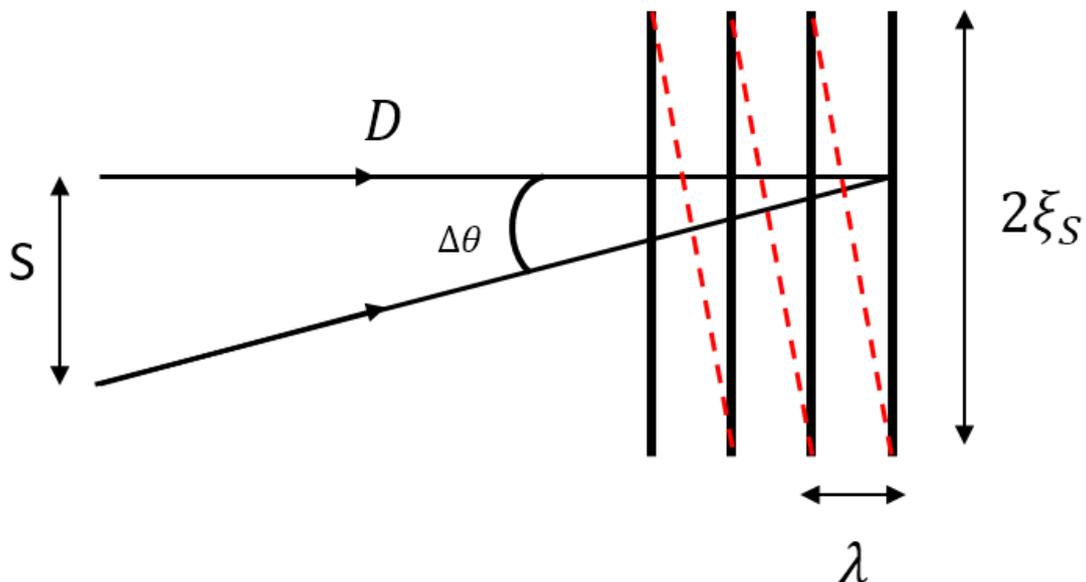


Figure 2.h : Illustration de la longueur de cohérence spatiale.

2.2.7 Production du rayonnement X

La théorie du rayonnement électromagnétique prévoit que lorsqu'une particule chargée subit une modification de son vecteur vitesse en module et/ou en orientation, elle rayonne de l'énergie. Ce processus est important pour les particules légères et il est pratiquement négligeable pour les particules lourdes. L'électron est une particule chargée légère, dont la production est aisée à mettre en œuvre, et s'avère être un bon candidat et est couramment utilisé dans la production de rayons X.

Lorsque la particule est freinée, le rayonnement émis porte le nom de rayonnement de freinage ou bremsstrahlung (Jackson 1998). Par contre, si elle est soumise à l'accélération centripète d'un champ magnétique le rayonnement produit est appelé rayonnement synchrotron.

2.3 La microscopie par rayons X

2.3.1 Sources X

Un faisceau de photons X est caractérisé par les grandeurs suivantes : son spectre d'énergie, son flux, sa brillance et sa cohérence. Dans cette section nous introduisons ces différentes grandeurs.

Spectre d'énergie

Le spectre d'énergie caractérise la distribution d'énergie des photons constituant le faisceau. Ce spectre est dépendant de la manière dont le faisceau est produit. Les spectres monochromatiques, c'est-à-dire constitués d'une seule énergie, ont une importance cruciale dans les expériences nécessitant une focalisation du faisceau. La mesure de la chromaticité est le facteur $\Delta E/E$, qui caractérise l'écart à l'énergie nominale.

Intensité, flux et brillance

L'intensité du faisceau correspond au nombre de photons par unité d'aire et de temps et est mesuré en photons par seconde. Le flux est l'intensité intégrée sur un temps donné. La brillance caractérise la source de rayons-X et est définie comme le flux par unité de temps, par angle solide, par aire et par intervalle (ou bande) d'énergie. Elle donne donc une mesure d'intensité de la source, mais aussi de sa distribution angulaire.

Dans cette partie nous décrivons le principe de production des rayons X et plus particulièrement le rayonnement synchrotron avec des éléments d'insertion.

Principe de production

La brillance quantifie l'intensité d'une source en tenant compte de sa pureté spectrale, de sa taille et de son ouverture angulaire. On distingue les différentes sources par leur brillance.

Les plus anciennes sont les sources dites de laboratoire ou conventionnelles. Le rayonnement est produit dans un tube radiogène dans lequel, sous l'effet d'une tension accélératrice, un courant électronique s'établit. Le tube radiogène est constitué d'une anode et d'une cathode placées sous vide dans une ampoule de verre. La cathode, constituée d'un filament métallique, émet des électrons lorsqu'elle est parcourue par un courant qui élève sa température (effet Edison). Ces électrons, accélérés par une différence de potentiel, sont focalisés et sont freinés dans une anode métallique (le plus souvent en tungstène, argent, rhodium, cuivre, molybdène, plomb...).

Le ralentissement des électrons par les éléments lourds de la cible produit un rayonnement appelé *bremsstrahlung* ou rayonnement de freinage. Lorsque l'énergie de l'électron est suffisante, il peut ioniser l'atome de la cible. L'atome se trouve alors dans un état excité et le retour à l'état fondamental se fait par réorganisation électronique. Ce processus conduit en partie à l'émission d'un photon X de fluorescence dont l'énergie est dépendante du niveau ionisé. Le spectre des rayons X résultant présente un spectre continu auquel se superpose des raies de fluorescence spécifique de l'anode utilisée. Le rendement d'un tube est relativement faible. En effet, la plus grande partie de la puissance emportée par le faisceau d'électrons est dissipée sous forme de chaleur dans l'anode (auto-absorption du signal produit). Les capacités d'évacuation de cette chaleur vont donc limiter le flux accessible sur ce type de source. La brillance des sources de laboratoire est maximale sur les raies de fluorescence de la cible (de l'ordre de 10^8 - 10^{10} photons/s/mm²/BW, ici BW correspond à la largeur d'une raie de fluorescence), c'est-à-dire à des énergies caractéristiques du matériau constituant la cible. Plus récemment de nouvelles technologies reposant sur l'utilisation de métal à l'état liquide comme anode (Hemberg, Otendal, and Hertz 2003) ont permis d'améliorer la brillance des sources de laboratoire (~ 3 - 4×10^{11} photons/s/mm²/BW) en outre passant la limitation liée à l'échauffement de la cible par le faisceau d'électrons.

D'autres sources de rayonnement en cours de développement proposent d'augmenter encore d'avantage la brillance. Ces sources utilisent l'effet Compton inverse pour produire un rayonnement X (Jacquet 2014) à partir de photons de basse énergie. Elles sont plus grandes et plus complexes que les sources conventionnelles mais portent le titre de sources compactes car elles empruntent une partie de la physique des synchrotrons (voir ci-dessous) tout en restant dans des dimensions raisonnables. Le principe de fonctionnement de ces sources est d'utiliser le transfert d'énergie ayant lieu entre un électron relativiste et un photon de basse énergie pour produire des photons de haute énergie (effet Compton inverse). Les électrons relativistes sont générés par un accélérateur linéaire puis stockés dans un anneau de stockage. Les photons de basse énergie (~ 1 eV) sont produits par un faisceau laser et sont tirés dans une section droite de l'anneau de stockage. L'effet Compton inverse peut générer des photons de plusieurs dizaines de KeV à partir d'un laser de ~ 1 eV et d'électrons de quelques dizaines de MeV. La brillance de ce type de source est importante, avec les progrès actuels il est possible d'atteindre les 10^{11} - 10^{13} photons/s/angle solide/BW.

Une brillance encore plus importante peut être obtenue dans les centres de rayonnements synchrotron. Le rayonnement synchrotron est émis par un électron ou un positron ultra-relativiste, c'est-à-dire d'énergie $\gg m_0 c^2 = 0.511$ MeV, avec m_0 la masse au repos de l'électron et c la vitesse de la lumière dans le vide, lorsqu'il traverse un champ électrique ou magnétique. Dans une machine type synchrotron, les particules sont accélérées à une énergie de l'ordre du GeV puis stockées dans un accélérateur circulaire, appelé anneau de stockage. La structure magnétique de l'anneau de stockage

dans lequel les électrons sont conservés permet à ceux-ci d'émettre un rayonnement électromagnétique appelé rayonnement synchrotron. Ces notions seront approfondies ci-dessous.

Le rayonnement synchrotron

Les synchrotrons sont des accélérateurs de particules chargées. L'électron est la particule utilisée dans les synchrotrons dédiés à la production de rayonnements électromagnétiques. Les synchrotrons ont été construits à l'origine pour des expériences de physique des particules (McMillan 1945).

Les machines de type synchrotron sont constituées en général de trois types d'accélérateurs. Le premier est l'accélérateur linéaire qui accélère les électrons à une énergie de l'ordre de la centaine de MeV (100MeV à SOLEIL) pour les injecter ensuite dans un booster. Le booster est un synchrotron qui permet d'accélérer les électrons jusqu'à leur énergie nominale. Une fois les électrons accélérés à une énergie donnée, de l'ordre de quelques GeV (2.75GeV à SOLEIL), ils sont injectés dans un accélérateur circulaire, appelé anneau de stockage. Le rayonnement utilisé pour les expériences provient de cet anneau. L'anneau de stockage est donc conçu pour que les électrons aient le temps de vol à l'intérieur le plus long possible, c'est-à-dire qui maximise le facteur de temps de vie de Touschek (Bernardini et al. 1963). Pour ce faire, les électrons sont maintenus à une énergie quasi constante grâce à des cavités accélératrices permettant de leur restituer l'énergie qu'ils perdent par rayonnement. De plus, pour maintenir un courant constant (nombre d'électrons circulant dans la machine), des paquets « neufs » d'électrons sont réinjectés périodiquement, suivant les paramètres de la machine, dans l'anneau. La structure magnétique de l'anneau de stockage correspond à l'ensemble des éléments magnétiques agissant sur le faisceau d'électrons. Cette structure définit les paramètres de trajectoire du faisceau d'électrons et de structuration des paquets d'électron. Ces paramètres sont les principaux facteurs déterminant la dimension et la divergence des sources de photons insérés dans l'anneau.

Les synchrotrons actuels, dits de 3^{ème} génération (la première est l'utilisation en parasite sur les accélérateurs de particules de physique des hautes énergies, la seconde correspondant aux premières machines circulaires dédiées au rayonnement synchrotron émis par les aimants de courbure), sont axés sur l'utilisation, comme source de photons, des onduleurs et wigglers insérés dans les sections droites de l'anneau de stockage. Ces éléments d'insertion à la différence des aimants de courbure possèdent plusieurs pôles magnétiques et ont pour effet d'imposer une trajectoire ondulée aux paquets d'électrons (Winick et al. 1981). À chaque accélération ou décélération de l'électron une radiation synchrotron (rayonnement électromagnétique) est émise par l'électron. Ces éléments permettent d'augmenter grandement le flux de photons produit ainsi que de permettre de produire un faisceau faiblement divergent.

La brillance d'un onduleur est de l'ordre de 10^{20} - 10^{23} photons/s/mm²/mrad²/0.1%BW exprimée en flux de photon par angle d'ouverture, par bande d'énergie. L'émission des photons a une

structure en cône. La dimension de ce cône est directement fonction de la structure magnétique de l'anneau de stockage (ou la trajectoire des électrons dans l'anneau de stockage), de l'énergie de ceux-ci et de la dimension des paquets d'électrons.

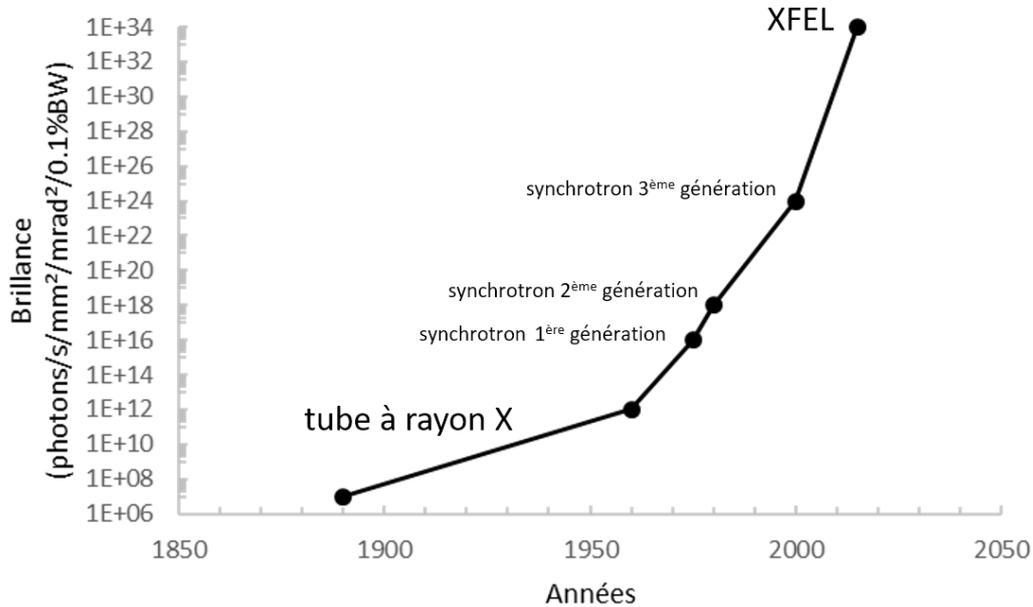


Figure 2.i : Courbe de l'évolution de la brillance des sources de rayons X au cours des années. Les XFEL (X-ray Free Electron Laser) sont des nouvelles sources de rayonnement X de haute brillance.

2.3.2 Principes et techniques de microscopie X dans l'espace réel

On peut classer les différents instruments de microscopie X en trois sous-ensembles. Le premier sous-ensemble est constitué des microscopes à projection, où une source divergente est projetée magnifiée, sur un détecteur résolu spatialement (Nixon 1955). Les microscopes à projection ne nécessitent aucune optique pour fonctionner. L'objet, placé entre la source et le détecteur, projette son image (son ombre) sur le détecteur avec un grandissement, M , proportionnel à sa distance entre la source, d , et la distance entre la source et le détecteur, D . Le grandissement calculé comme :

$$M = \frac{D}{d} \quad (2.17)$$

Cette fonction est décroissante avec la distance. La magnification est importante quand l'objet est proche de la source, et tend vers 1 quand l'objet est proche du plan image. Ce paramètre, et la dimension des pixels du détecteur bidimensionnel, caractérisent la résolution du système. Si un faisceau parallèle, ou faiblement divergent, est utilisé, alors la résolution du système devient uniquement dépendante de la dimension des pixels du détecteur.

La seconde classe correspond aux microscopes appelés microscopes X par transmission (TXM). Ces microscopes sont équivalents aux microscopes visibles par transmission traditionnelle mais pour le

rayonnement X. Le TXM comme les microscopes à projection sont des techniques de microscopie plein champs où l'ensemble de l'échantillon (ou un large champ de vue) est imagé en une seule acquisition. Le principe consiste à concentrer le faisceau sur le spécimen, avec un condenseur, avant de grandir la zone illuminée avec une optique adaptée pour projeter l'image, avec un grossissement, sur un détecteur résolu spatialement (Niemann, Rudolph, and Schmahl 1983; Guttmann et al. 2012). Le TXM donne accès aux techniques de transmissions et permet donc d'obtenir des images de contraste d'absorption, de phase avec l'utilisation de grilles de déphasage (Momose et al. 1998; Bonse et al. 1998) ou grâce à des techniques de propagation du signal (Cloetens et al. 1996; Paganin et al. 2002) et de darkfield (Pfeiffer et al. 2008). Le TXM est l'instrument de référence pour atteindre de très hautes résolutions avec des temps d'acquisition très courts. Cependant l'aspect « plein champ » de cette technique limite son association avec les modalités de photoémission. Il est tout de même possible d'utiliser le signal de transmission pour mesurer le spectre d'absorption d'un échantillon (Jacobsen et al. 2000). Ce spectre est obtenu en mesurant l'atténuation du faisceau pour différentes énergies. Si les énergies sondées sont proches du seuil d'absorption d'un élément d'intérêt, on parle de XANES et si les énergies sondées sont éloignées du seuil on parle de EXAFS. Un exemple d'imagerie par TXM est présenté dans la Figure 2.j (Sviben et al. 2016).

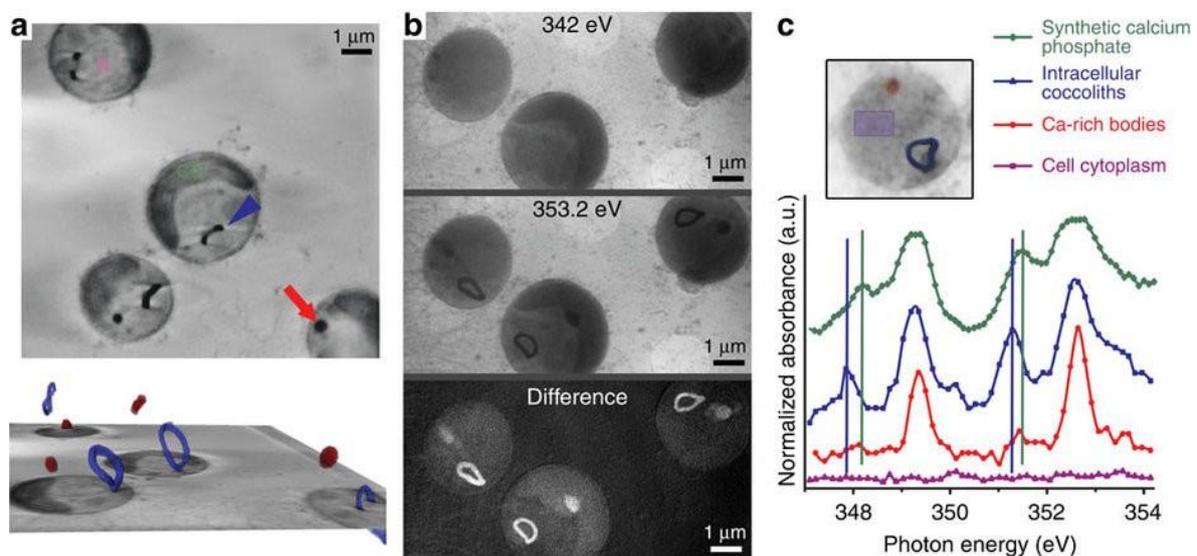


Figure 2.j : (Sviben et al. 2016) Images issues d'une expérience de cryo-tomographie plein champs sur des vacuoles, associée à une image de XANES du Calcium. Dans chaque image la taille effective des pixels est de 11.8nm. Les images en (a) sont issue de la reconstruction tomographique du jeu de donnée. Les images en (b) représente des images de XANES prise aux énergies, entre 347.7 et 354.7 eV, proche du seuil L2,3 du Calcium. Les spectres en (c) représente le XANES évalué à différentes positions dans une vacuole.

Enfin le troisième sous-ensemble concerne les microscopes à balayages. Le principe consiste à focaliser le faisceau X sur une partie d'un échantillon et à déplacer la zone de focalisation, point par point, pour couvrir l'ensemble du champ de vue. Chaque zone de focalisation correspondra alors à un point de l'échantillon. L'information contenue en chaque point correspond au faisceau transmis et/ou à l'émission secondaire d'une particule. On parle de microscopie X à balayage par transmission (STXM)

lorsque seul le faisceau transmis est enregistré et de microscopie X à balayage de fluorescence X (S-XRF) lorsque seuls les photons de fluorescence X émis par l'échantillon sont enregistrés.

Dans le cas du STXM le faisceau transmis est enregistré sur un détecteur bidimensionnel ce qui permet de mesurer les contrastes d'absorption, de diffusion (darkfield) et le contraste de phases différentielles (DPC) (Graeme R. Morrison 1993; G. R. Morrison and Browne 1992).

La microscopie X par balayage est souvent associée aux différentes méthodes permettant de collecter les photoémissions comme les photons de fluorescence X ou les électrons Auger. Les techniques de fluorescence X (voir 1.2.4) (XRF) permettent d'établir la composition chimique d'un échantillon (Grieken and Markowicz 2001), elles consistent à utiliser des détecteurs analytiques pendant l'acquisition pour mesurer l'énergie des photons émise lors du processus de désexcitation d'un atome ionisé par effet photoélectrique. La spectroscopie des électrons (SPEM)(Rotermund, Ertl, and Sesselmann 1989) offre, elle, la possibilité de mesurer la composition chimique à la surface des échantillons.

Lorsque le signal de transmission et un signal de photoémission sont enregistrés simultanément, on parle simplement de microscopie X par balayage (SXM). La multiplicité des informations pouvant être mesurée simultanément fait du STXM l'instrument multimodal de choix pour obtenir une cartographie tant morphologique que chimique d'un échantillon. Un exemple de cette technique associant image de contraste de phase par Zernike et fluorescence X est présenté dans la Figure 2.k (Holzner et al. 2010). Le principe de fonctionnement est décrit plus en détails dans la suite de cette section.

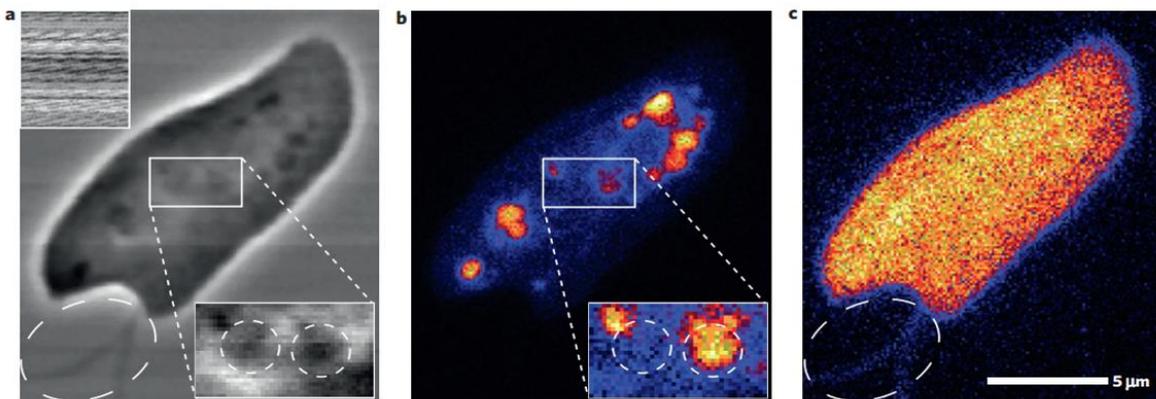


Figure 2.k : Exemple de microscopie X par balayage (Holzner et al. 2010). Contraste de phase Zernike (a). Fluorescence X du phosphore (b) et du soufre (c)

Principe de microscopie X par balayage

Comme il a été défini dans la section 2.3.2, la microscopie X par balayage (SXM) consiste à scanner un objet d'intérêt avec un faisceau de photons X focalisé. À chaque point scanné, le signal issu de

l'interaction photon matière est enregistré par différents détecteurs. L'ensemble des points mesurés sont traités afin de construire une image de l'échantillon. La microscopie X par balayage permet d'associer des techniques d'imagerie par transmission, fluorescence X et par émission de photoélectrons. Chaque technique permet d'apporter des informations complémentaires sur l'échantillon analysé. Les expériences de fluorescence X permettent, par exemple, d'obtenir des images où chaque pixel constituant l'objet cartographié est un spectre d'énergie, lequel peut être analysé pour déterminer la composition élémentaire à l'échelle du pixel. L'ajout d'un détecteur 2D pixel permet également d'analyser le signal de transmission et d'extraire des informations telle que l'absorption, le diffusé ou le contraste de phase.

La microscopie X par balayage est une technique difficilement réalisable sans une source de rayons X capable de fournir un flux important de photons sur un point focal le plus petit possible (de l'ordre de la centaine de nanomètre sur Nanoscopium). Ceci pour plusieurs raisons, premièrement la fluorescence X et certaines optiques de focalisation (i.e. lentille de Fresnel) nécessitent l'utilisation d'un faisceau monochromatique. La réduction du spectre entier d'émission d'une source à une seule bande réduit le flux total de photons. Deuxièmement les optiques de focalisation diffractive, comme les lentilles de Fresnel, nécessitent une cohérence spatiale de l'ordre de grandeur de leur dimension pour augmenter leur efficacité. Comme vue dans la section 2.2.5, on augmente la cohérence spatiale en réduisant la taille de la source ou en augmentant la distance entre la source et l'objet (la lentille). Il est techniquement plus simple de réduire la taille de la source en ajoutant un jeu de fente ajustable jouant le rôle de point de source secondaire. Cependant, l'effet correspond à une filtration spatiale du faisceau et donc également à une diminution du flux en aval de la fente.

2.3.3 Détection du rayonnement X

Comme vue dans la section précédente (§2.3.1), les sources de rayonnement X ont énormément évolué et gagné en brillance. L'augmentation du flux de photons X sur l'échantillon permet de réduire le temps nécessaire à l'accumulation d'un signal suffisant. L'efficacité de détection des détecteurs permet également de réduire le temps nécessaire à une acquisition. La caractéristique principale d'un détecteur X est sa capacité à convertir le rayonnement X en grandeur mesurable.

Il existe deux principaux schémas de détection, la détection directe et indirecte. Dans le cas d'une détection indirecte, le rayonnement X est préalablement transformé en rayonnement visible dans un scintillateur avant d'être transformé en courant électrique grâce à un convertisseur semi-conducteur. Dans le cas d'une détection par conversion directe, le rayonnement X est directement transformé en courant électrique grâce à un semi-conducteur.

La détection indirecte

Un détecteur indirect est, de manière générale, composé d'un scintillateur, d'une optique de microscope et d'une caméra visible de haute résolution CCD ou CMOS. Le scintillateur est un matériau émettant de la lumière visible suite à l'absorption d'un rayonnement ionisant. Afin d'optimiser l'efficacité de conversion, ce qui correspond à maximiser l'absorption du faisceau X dans le scintillateur, le choix de la composition (CsI:Na, GdO₂S:Tb, Lu₂O₃:Eu etc.) doit être fait sur la base de l'énergie du rayonnement X incident. Une optique de microscope permet ensuite de magnifier l'image formée par le scintillateur sur le capteur CCD/CMOS. Celui-ci peut alors enregistrer les photons visibles et produire une image numérique. Le principal avantage de la détection indirecte est la faible taille des pixels des capteurs CCD/CMOS associés à une optique de grandissement qui permettent d'atteindre des résolutions submicroniques. Cette technique est principalement utilisée dans l'imagerie plein champ (microradiographie) où le flux de photons est important (Desjardins et al. 2014). Elle peut également être utilisée pour des expériences de TXM/STXM (B. Kaulich et al. 2003).

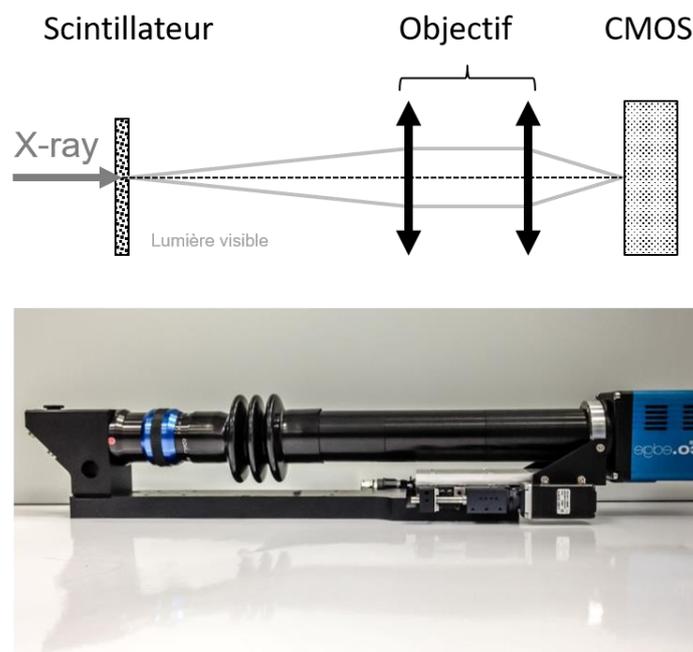


Figure 2.1 : Schéma d'une détection indirecte via un scintillateur et image d'un détecteur couplant scintillateur et caméra CMOS.

La détection directe

Dans ce design, les rayons X sont directement convertis en charge électrique dans un matériau semi-conducteur. Ce matériau est choisi en fonction de l'énergie du rayonnement X incident. Les deux principaux types de matériau sont le Si (7 - 35 keV) et Le CdTe (7 - 100 keV).

Plusieurs familles de détecteurs directs existent : on notera par exemple les CCD/CMOS en illumination inverse (Eaton et al. 2000) qui ont l'avantage d'avoir des pixels de petites tailles (<20µm) et les détecteurs pixels hybrides à comptage de photons qui, associés à une électronique de lecture bas

bruit, ne produisent pas de bruit de détection (Medjoubi et al. 2010). Cette propriété est due à la haute sensibilité du matériau semi-conducteur et à la nature discrète de la lumière. Effectivement chaque photon, ayant une énergie dans la plage de travail du matériau semi-conducteur, produit un niveau de signal suffisamment intense pour être lu par une électronique de lecture bas bruit.

Les détecteurs hybrides à comptage de photons mesurent l'intensité du signal X en comptant un à un les quanta de lumière contenus dans la radiation électromagnétique. Ils possèdent une architecture particulière où la face d'entrée, sur le semi-conducteur, est uniformément métallisée et la face arrière pixélisée. Chaque pixel est couplé par « bump-bonding » (liaison par une boule de métal tendre) à une électronique de comptage réalisée dans un microcircuit.

Les détecteurs directs sont les instruments de mesure préférés pour les expériences où une haute sensibilité associée à une grande dynamique est nécessaire comme les expériences de STXM et de diffraction cohérente (Medjoubi et al. 2013; Menzel et al. 2010; Clark et al. 2014).

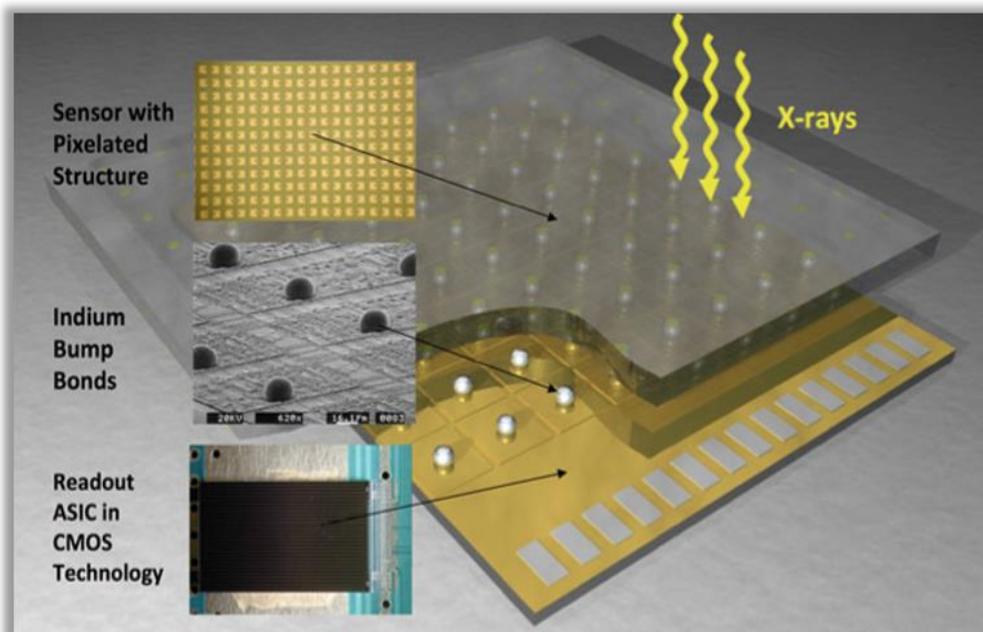


Figure 2.m : Schéma extrait de (Brönnimann and Trüb 2015) représentant les principaux éléments d'un détecteur hybride à comptage de photons. Le capteur (sensor) absorbe le rayonnement X et transmet un signal électrique à l'électronique de lecture via les Bump Bonds.

Les détecteurs en spectroscopie X

Dans cette partie nous nous intéressons uniquement au détecteur à dispersion d'énergie pour la spectroscopie. Ces détecteurs ont supplanté les détecteurs par dispersion d'onde grâce à leur versatilité et rapidité d'acquisition. Ils sont solides et basés sur des semi-conducteur (Si-Li, Silicium à dérive de charge (SDD)) sont classiquement utilisé pour mesuré le signal de fluorescence X.

Dans ces détecteurs la totalité de l'ionisation produite par un photon X est transformée en tension électrique dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie du photon X. Ce signal est ensuite amplifié et traité par une électronique spécifique puis trié et enregistré dans un histogramme d'énergie. L'accumulation de signaux dans l'histogramme produit un spectre d'énergie.

Les détecteurs à dispersion d'énergie sont classiquement utilisés pour mesurer le signal de fluorescence X mais ils permettent également de mesurer le faisceau diffusé par effet Compton ou Rayleigh. Ces détecteurs sont aussi classiquement unidimensionnels mais peuvent également être intégrés en mosaïque (multi-éléments) pour augmenter l'angle solide de détection (Ryan et al. 2010).

La géométrie d'acquisition est également importante, car les photons diffusés aux grands angles par l'échantillon peuvent saturer les détecteurs de fluorescence. Effectivement ces détecteurs, capables de mesurer l'énergie des photons, sont limités par leur capacité à séparer deux événements rapprochés dans le temps. Afin d'optimiser au mieux une expérience de fluorescence X il est donc nécessaire de calibrer le flux de photon pour ne pas dépasser le seuil de comptage du détecteur ($<10^6$ photons/seconde). Dans la même optique, il est également possible d'augmenter la proportion des photons de fluorescence par rapport aux photons diffusés. Pour se faire, les détecteurs de fluorescence sont positionnés pour couvrir les angles solides où la diffusion est minimale, typiquement autour 90° par rapport à l'axe faisceau (polarisé sur le plan horizontal dans le cas du synchrotron).

2.4 Mécanismes physiques de formation du contraste

Le principe de l'imagerie par rayons X en microscopie par balayage repose sur la mesure de la distribution spatiale de l'intensité du rayonnement transmis ou émis par un échantillon. De manière générale, cette distribution est enregistrée sous forme d'image. Le rayonnement transmis contient des informations sur la structure interne de l'objet étudié. Selon les processus d'interaction énumérés en section 2.2, ce rayonnement est composé de photons qui n'ont pas interagis avec l'échantillon ou ont été diffusés en conservant totalement ou partiellement leur énergie. L'analyse du faisceau transmis permet de séparer ces processus et de donner accès aux modalités d'imagerie par contraste d'absorption, contraste de phase et contraste de diffusé.

Le rayonnement X émis par l'échantillon (i.e. fluorescence X) est, comme vu dans la section 2.2.2, produit à la suite d'une interaction photoélectrique sur un atome appartenant à l'échantillon. L'identification des raies de fluorescence X, donc des atomes émetteurs, permet d'obtenir des informations de composition élémentaire de l'échantillon et de donner accès à la modalité de contraste de fluorescence.

La partie suivante définit ce que l'on appelle contraste et analyse le bruit du contraste associé à ces images : le bruit quantique.

2.4.1 Le contraste et le bruit quantique

Le contraste est la différence de signal entre deux zones d'une image. En théorie, il est parfaitement représentatif de l'inhomogénéité de structure et/ou de composition interne à l'échantillon. En pratique, l'intensité du faisceau incident fluctue en fonction du temps. De ce fait le signal enregistré par les détecteurs est proportionnel à un nombre de photons obéissant à une loi de Poisson. Par conséquent deux zones parfaitement identiques de l'objet produiront une intensité de signal différente. La probabilité d'avoir n photons pour un nombre moyen de N photons s'écrit :

$$P(n) = \frac{e^{-N}N^n}{n!} \quad (2.18)$$

N représente la valeur moyenne de la distribution. La variance et l'écart-type s'écrivent respectivement :

$$\begin{aligned} \text{var}(n) &= N \\ \sigma(n) &= \sqrt{N} \end{aligned} \quad (2.19)$$

Ce bruit, appelé bruit quantique, peut donc fortement altérer le contraste. Le rapport signal sur bruit, noté SNR (Signal to Noise Ratio) est un excellent critère qui permet de quantifier l'impact du bruit sur le contraste. Dans le cas où seul le bruit de Poisson est considéré, le SNR est égal à \sqrt{N} . Intuitivement on peut supposer que pour discerner une différence d'intensité, cette dernière doit être de l'ordre de la fluctuation. Le critère de Rose (Rose 1973) permet de définir l'écart minimal entre le signal et son bruit afin que les deux soient dissociables. Ce critère stipule que pour être perceptible un signal doit être au minimum 5 fois plus important que son bruit. Par conséquent, plus le nombre de photons sera élevé meilleure sera la qualité du contraste.

2.4.2 Contraste d'absorption

La modalité d'absorption correspond à la distribution spatiale de l'intensité transmise par un échantillon. La distribution spatiale d'atténuation de l'échantillon est définie comme le rapport des distributions transmises et incidentes. Selon la loi de Beer-Lambert (§2.2.1), le logarithme de ce rapport permet d'extraire le produit du coefficient d'atténuation linéique, μ_{att} , et de l'épaisseur z .

L'obtention d'un contraste suffisant est limitée par la capacité du matériau à atténuer le faisceau dans les proportions satisfaisant le critère de Rose. Pour un matériau donné l'atténuation est une fonction exponentielle de l'épaisseur et de son atténuation linéique. Il est donc nécessaire de concilier ces deux grandeurs. Ainsi plus l'élément est léger (i.e. μ_{att} est petit), plus l'épaisseur de l'échantillon traversé par le faisceau devra être grande pour accumuler un signal suffisant. La longueur d'atténuation correspond à l'inverse de l'atténuation linéique. Elle donne une estimation de l'épaisseur maximale avant que l'atténuation soit trop importante pour fournir un signal statistiquement représentatif.

En microscopie par balayage, cette modalité est obtenue point par point en intégrant l'ensemble du faisceau transmis.

2.4.3 Contraste de phase

La modalité de contraste de phase est une mesure de déphasage du faisceau transmis par l'échantillon. Ce déphasage s'exprime comme suit :

$$\Delta\phi = \delta kz \quad (2.20)$$

L'obtention d'un contraste suffisant, pour un matériau, est limitée par un déphasage minimum et par son atténuation (i.e. limite induite par l'absorption). Pour les rayons X, le contraste de phase atteint le critère de Rose pour une épaisseur de matériau plus faible que le contraste d'absorption. Ainsi, pour une même épaisseur la quantité de photon nécessaire pour atteindre le critère de Rose est inférieure pour le contraste de phase. Le contraste de phase est donc préféré pour les échantillons faiblement absorbants par leur épaisseur ou leur composition (voir Figure 2.n).

Les détecteurs étant sensibles à l'intensité d'une onde et non à sa phase, cette modalité requiert des méthodes de mesures indirectes. Ces méthodes exploitent la redistribution asymétrique de l'intensité mesurée sur le détecteur. Cette redistribution est induite par le changement de phase du faisceau dans le matériau. En microscopie X par balayage, la mesure de cette redistribution s'effectue avec un détecteur capable de résoudre les asymétries d'illumination autour de l'axe du faisceau, c'est typiquement le cas des détecteurs pixels bidimensionnels.

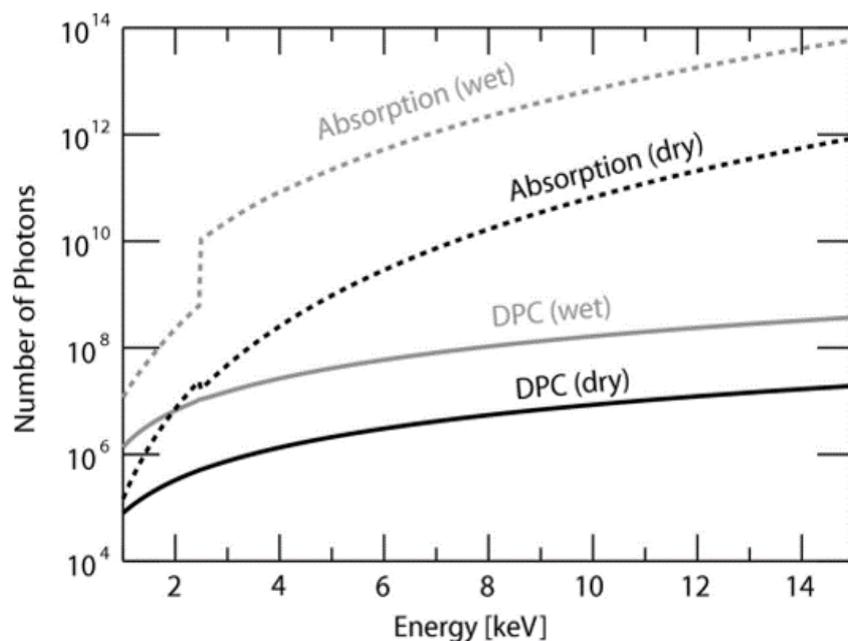


Figure 2.n : Ce graphique, issu de (Hornberger et al. 2008), représente la comparaison du nombre de photons nécessaires pour obtenir un contraste identique avec des méthodes de contraste de phase et d'absorption. On note que les techniques de contrastes requièrent jusqu'à 10^6 fois moins de photons.

2.4.4 Contraste de fluorescence X

La modalité de fluorescence correspond à la cartographie en énergie d'un échantillon. Cette modalité est obtenue via l'émission secondaire de photon de fluorescence X d'un atome excité par photo-absorption (§2.2.2). Le contraste correspond à l'intensité contenue dans les cartographies des éléments révélés.

Le signal de fluorescence X est interprété en fonction de l'énergie du faisceau incident, qui doit être monochromatique. Les détecteurs à dispersion d'énergie (§2.3.3) enregistrent une plage précise d'énergie. L'énergie du faisceau incident et la plage d'énergie du détecteur définissent l'intervalle des énergies des photons de fluorescence X pouvant être mesurés. L'intensité du signal est mesurée comme le nombre de photon de fluorescence X provenant de l'échantillon et enregistré par le détecteur par tranche d'énergie. Le contraste de cette technique est doublement limité par l'atténuation de l'échantillon : l'atténuation du faisceau excitant et l'atténuation du rayonnement de fluorescence X.

Dans le cas de la microscopie X par balayage, cette modalité est obtenue en mesurant point par point le spectre en énergie de fluorescence X. Ces spectres sont ensuite traités numériquement pour extraire les cartographies élémentaires, une par élément, de l'échantillon.

2.4.5 Contraste de diffusion

Le contraste de diffusion ou de darkfield est une mesure de l'intensité du signal diffusé aux grands angles, c'est à dire l'extérieur du cône du faisceau direct.

L'intensité du signal est fonction de la dimension des structures traversées par le faisceau. Ce contraste est sensible à la densité des structures de dimensions inférieures à la zone illuminée par le faisceau. Ainsi plus la densité de ces structures est importante, plus l'intensité du darkfield est forte.

En microscopie X par balayage, ce contraste se mesure en intégrant l'ensemble du signal à l'extérieur de la zone d'illumination du faisceau direct. La séparation du faisceau direct et du signal de darkfield peut être faite de façon physique avec un occulteur placé devant le détecteur sur la zone d'illumination directe, ou de manière virtuelle si un détecteur bidimensionnel est utilisé.

2.5 État de l'art des outils de traitement logiciel en microscopie X

De nombreux logiciels spécifiques à chaque technique de microscopie existent. Les logiciels présentés ici ont été choisis parmi ceux-ci et sont représentatifs des techniques qu'ils représentent.

TomoJ (Messaoudi et al. 2007) et TomoPy (Gürsoy et al. 2014) sont deux logiciels de reconstruction tomographique pour les données de transmission. TomoJ, initialement développé pour la microscopie électronique, propose un ensemble complet de fonctionnalités contenant les tout dernier algorithmes de tomographie. TomoPy présente une structure de librairie support, c'est-à-dire servant de base à une utilisation dans un contexte spécifique (i.e il nécessite une intégration logicielle).

AnkaPhase (Weitkamp et al. 2011) et PITRE (Chen et al. 2012) sont des logiciels de reconstruction de phase et de tomographie de phase pour l'imagerie plein champ. Ces logiciels proposent des reconstructions de la phase se basant, entre autres, sur la déconvolution du signal connaissant la distance entre l'échantillon et le détecteur.

PyMCA (Solé et al. 2007), Mantis (Lerotic et al. 2014) et MAPS (Vogt 2003) sont des logiciels dédiés à la fluorescence X. Ils permettent de traiter numériquement les spectres de fluorescence X afin d'extraire des informations quantitatives de ceux-ci.

D'autres logiciels permettent également de faire des analyses de XANES (§2.3.2) comme TXM-Wizard (Liu et al. 2012) ou Axis2000 (A. Hitchcock 1997). On ajoutera à cette liste (non exhaustive) de logiciel de traitement spécifique à la microscopie X, le logiciel ImageJ (Schneider, Rasband, and Eliceiri 2012) qui est un logiciel de post-traitement d'image plus généraliste et très répandu.

Synthèse

Dans ce chapitre nous avons présenté l'état de l'art de la microscopie X par balayage. La connaissance des équipements comme les sources ou les détecteurs permettent d'interpréter les signaux mesurés. Ces signaux sont le résultat de l'interactions entre rayonnement X et la matière. La formation du contraste, grâce à ces signaux, forme la base des connaissances nécessaires pour l'analyse et le traitement ultérieur des images.

Nous avons également cité des exemples de différents logiciels existants pour les différentes techniques traitées durant cette thèse. Bien qu'il existe des logiciels, voir des scripts, pour traiter les données brutes de l'imagerie plein champs, aucun n'existe pour la microscopie X par balayage. Il est donc nécessaire de développer une chaîne de processus pour l'analyse et le traitement de ces données.

Afin de compléter ce chapitre, nous fournissons les détails du « set-up » expérimental de la station d'imagerie multi-techniques à nano-focalisation (CX2) du synchrotron SOLEIL dans le chapitre suivant. Cette station a permis l'obtention des premiers jeux de données qui ont été reconstruits avec les développements de cette thèse. Dans un autre chapitre, nous préciserons également les implémentations numériques permettant de générer les images de contraste des modalités décrites.

- Als-Nielsen, Jens, and Des McMorrow. 2011. *Elements of Modern X-Ray Physics: Als-Nielsen/Elements*. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc. <http://doi.wiley.com/10.1002/9781119998365>.
- Bernardini, C., G. F. Corazza, G. Di Giugno, G. Ghigo, J. Haissinski, P. Marin, R. Querzoli, and B. Touschek. 1963. "Lifetime and Beam Size in a Storage Ring." *Physical Review Letters* 10 (9): 407–9. doi:10.1103/PhysRevLett.10.407.
- Bonse, Ulrich, Felix Beckmann, Frank Busch, and Olaf Günnewig. 1998. "X-Ray Microtomography Using Interferometric Phase-Contrast." In *X-Ray Microscopy and Spectromicroscopy*, edited by Dr Jürgen Thieme, Professor Dr Günter Schmahl, Dr Dietbert Rudolph, and Professor Dr Eberhard Umbach, 77–83. Springer Berlin Heidelberg. http://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-642-72106-9_9.
- Bordier, Clémence. 2007. "Diffusion de la lumière par des tissus biologiques: Etude expérimentale et modélisation par l'équation de transfert radiatif vectorielle." Phdthesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00426428/document>.
- Brönnimann, Christian, and Peter Trüb. 2015. "Hybrid Pixel Photon Counting X-Ray Detectors for Synchrotron Radiation." In *Synchrotron Light Sources and Free-Electron Lasers*, edited by Eberhard Jaeschke, Shaukat Khan, Jochen R. Schneider, and Jerome B. Hastings, 1–29. Springer International Publishing. http://link.springer.com/referenceworkentry/10.1007/978-3-319-04507-8_36-1.
- Chen, Rong Chang, Diego Dreossi, Lucia Mancini, Ralf Menk, Luigi Rigon, Ti Qiao Xiao, and Renata Longo. 2012. "PITRE: Software for Phase-Sensitive X-Ray Image Processing and Tomography Reconstruction." *Journal of Synchrotron Radiation* 19 (Pt 5): 836–45. doi:10.1107/S0909049512029731.
- Clark, Jesse N., Xiaojing Huang, Ross J. Harder, and Ian K. Robinson. 2014. "Continuous Scanning Mode for Ptychography." *Optics Letters* 39 (20): 6066–69. doi:10.1364/OL.39.006066.
- Cloetens, Peter, Raymond Barrett, José Baruchel, Jean-Pierre Guigay, and Michel Schlenker. 1996. "Phase Objects in Synchrotron Radiation Hard X-Ray Imaging." *Journal of Physics D: Applied Physics* 29 (1): 133. doi:10.1088/0022-3727/29/1/023.
- Compton, Arthur Holly, and Samuel King Allison. 1935. *X-Rays in Theory and Experiment*. Van Nostrand.
- Desjardins, K., M. Bordessoule, C. Petrache, C. Meneglier, D. Dallé, P. Mercere, and K. Medjoubi. 2014. "MTF, NPS and DQE Characterization of an in-House Developed X-Ray Imaging Detector for Synchrotron Based Micro-Tomography." *Journal of Instrumentation* 9 (6): C06001. doi:10.1088/1748-0221/9/06/C06001.
- Eaton, W. J., G. R. Morrison, N. R. Waltham, Tony Warwick, Werner Meyer-Ilse, and David Attwood. 2000. "Configured Detector System for STXM Imaging." *AIP Conference Proceedings* 507 (1): 452–57. doi:10.1063/1.1291189.
- Franke, Matthias, Florencia Marchini, Liang Zhang, Quratulain Tariq, Nataliya Tsud, Mykhailo Vorokhta, Martin Vondráček, et al. 2015. "Temperature-Dependent Reactions of Phthalic Acid on Ag(100)." *The Journal of Physical Chemistry C* 119 (41): 23580–85. doi:10.1021/acs.jpcc.5b07858.
- Grieken, Rene Van, and A. Markowicz. 2001. *Handbook of X-Ray Spectrometry, Second Edition*. CRC Press.

- Gürsoy, Dog̃a, Francesco De Carlo, Xianghui Xiao, and Chris Jacobsen. 2014. “TomoPy: A Framework for the Analysis of Synchrotron Tomographic Data.” *Journal of Synchrotron Radiation* 21 (5): 1188–93. doi:10.1107/S1600577514013939.
- Guttman, Peter, Carla Bittencourt, Stefan Rehbein, Polona Umek, Xiaoxing Ke, Gustaaf Van Tendeloo, Chris P. Ewels, and Gerd Schneider. 2012. “Nanoscale Spectroscopy with Polarized X-Rays by NEXAFS-TXM.” *Nature Photonics* 6 (1): 25–29. doi:10.1038/nphoton.2011.268.
- Hawkes, Peter W., and John C. H. Spence, eds. 2007. *Science of Microscopy*. New York, NY: Springer New York. <http://link.springer.com/10.1007/978-0-387-49762-4>.
- Hemberg, O., M. Otendal, and H. M. Hertz. 2003. “Liquid-Metal-Jet Anode Electron-Impact X-Ray Source.” *Applied Physics Letters* 83 (7): 1483–85. doi:10.1063/1.1602157.
- Hitchcock, Adam. 1997. “aXis2000 Source.” <http://unicorn.mcmaster.ca/aXis2000.html>.
- Hitchcock, Adam P. 2012. “Soft X-Ray Imaging and Spectromicroscopy.” In *Handbook of Nanoscopy*, edited by Gustaaf Van Tendeloo, Dirk Van Dyck, and Stephen J. Pennycook, 745–91. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/9783527641864.ch22/summary>.
- Holzner, Christian, Michael Feser, Stefan Vogt, Benjamin Hornberger, Stephen B. Baines, and Chris Jacobsen. 2010. “Zernike Phase Contrast in Scanning Microscopy with X-Rays.” *Nature Physics* 6 (11): 883–87. doi:10.1038/nphys1765.
- Hornberger, B., M. D. de Jonge, M. Feser, P. Holl, C. Holzner, C. Jacobsen, D. Legnini, et al. 2008. “Differential Phase Contrast with a Segmented Detector in a Scanning X-Ray Microprobe.” *Journal of Synchrotron Radiation* 15 (4): 355–62. doi:10.1107/S0909049508008509.
- Hubbell, J. H. 1969. “Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients and Energy Absorption Coefficients from 10 KeV to 100 GeV.” NSRDS-NBS.
- Jackson, John David. 1998. *Classical Electrodynamics, third edition*. 3rd Edition. New York: John Wiley & Sons, Inc.
- Jacobsen, Wirick, Flynn, and Zimba. 2000. “Soft X-Ray Spectroscopy from Image Sequences with Sub-100 Nm Spatial Resolution.” *Journal of Microscopy* 197 (2): 173–84. doi:10.1046/j.1365-2818.2000.00640.x.
- Jacquet, M. 2014. “High Intensity Compact Compton X-Ray Sources: Challenges and Potential of Applications.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 11th European Conference on Accelerators in Applied Research and Technology, 331: 1–5. doi:10.1016/j.nimb.2013.10.078.
- Janos Kirz, Chris Jacobsen. 1995. “Soft-X-Ray Microscopes and Their Biological Applications.” *Quarterly Reviews of Biophysics* 28 (1): 33–130. doi:10.1017/S0033583500003139.
- Kaulich, B., D. Bacescu, D. Cocco, J. Susini, M. Salomé, O. Dhez, C. David, et al. 2003. “Twinmic: A European Twin Microscope Station Combining Full-Field Imaging and Scanning Microscopy.” *Journal de Physique IV (Proceedings)* 104 (March): 103–7. doi:10.1051/jp4:200300039.
- Kaulich, Burkhard, Pierre Thibault, Alessandra Gianoncelli, and Maya Kiskinova. 2011. “Transmission and Emission X-Ray Microscopy: Operation Modes, Contrast Mechanisms and Applications.” *Journal of Physics. Condensed Matter: An Institute of Physics Journal* 23 (8): 83002. doi:10.1088/0953-8984/23/8/083002.
- Klein, O., and Y. Nishina. 1929. “Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac.” *Zeitschrift für Physik* 52 (11–12): 853–68. doi:10.1007/BF01366453.

- Larabell, Carolyn A., and Keith A. Nugent. 2010. "Imaging Cellular Architecture with X-Rays." *Current Opinion in Structural Biology* 20 (5): 623–31. doi:10.1016/j.sbi.2010.08.008.
- Lerotic, Mirna, Rachel Mak, Sue Wirick, Florian Meirer, and Chris Jacobsen. 2014. "MANTiS: A Program for the Analysis of X-Ray Spectromicroscopy Data." *Journal of Synchrotron Radiation* 21 (Pt 5): 1206–12. doi:10.1107/S1600577514013964.
- Liu, Yijin, Florian Meirer, Phillip A. Williams, Junyue Wang, Joy C. Andrews, and Piero Pianetta. 2012. "TXM-Wizard: A Program for Advanced Data Collection and Evaluation in Full-Field Transmission X-Ray Microscopy." *Journal of Synchrotron Radiation* 19 (Pt 2): 281–87. doi:10.1107/S0909049511049144.
- Lykhach, Yaroslava, Sergey M. Kozlov, Tomáš Skála, Andrii Tovt, Vitalii Stetsovych, Nataliya Tsud, Filip Dvořák, et al. 2016. "Counting Electrons on Supported Nanoparticles." *Nature Materials* 15 (3): 284–88. doi:10.1038/nmat4500.
- McMillan, Edwin M. 1945. "The Synchrotron - A Proposed High Energy Particle Accelerator." *Physical Review* 68 (5–6): 143–44. doi:10.1103/PhysRev.68.143.
- Medjoubi, Kadda, Alain Bonissent, Nicolas Leclercq, Florent Langlois, Pascal Mercère, and Andrea Somogyi. 2013. "Simultaneous Fast Scanning XRF, Dark Field, Phase-, and Absorption Contrast Tomography." In *X-Ray Nanoimaging: Instruments and Methods, (2013/09/26)*, Proc. SPIE 8851:88510P. San Diego, California, United States. doi:10.1117/12.2026680.
- Medjoubi, Kadda, Thierry Bucaille, Stéphanie Hustache, Jean François Bérrar, Nathalie Boudet, Jean Claude Clemens, Pierre Delpierre, and Bernard Dinkespiler. 2010. "Detective Quantum Efficiency, Modulation Transfer Function and Energy Resolution Comparison between CdTe and Silicon Sensors Bump-Bonded to XPAD3S." *Journal of Synchrotron Radiation* 17 (4): 486–95. doi:10.1107/S0909049510013257.
- Menzel, A., C.M. Kewish, P. Kraft, B. Henrich, K. Jefimovs, J. Vila-Comamala, C. David, et al. 2010. "Scanning Transmission X-Ray Microscopy with a Fast Framing Pixel Detector." *Ultramicroscopy* 110 (9): 1143–47. doi:10.1016/j.ultramic.2010.04.007.
- Messaoudi, Cédric, Thomas Boudier, Carlos OS Sorzano, and Sergio Marco. 2007. "TomoJ: Tomography Software for Three-Dimensional Reconstruction in Transmission Electron Microscopy." *BMC Bioinformatics* 8 (1): 288. doi:10.1186/1471-2105-8-288.
- Mimura, Hidekazu, Soichiro Handa, Takashi Kimura, Hirokatsu Yumoto, Daisuke Yamakawa, Hikaru Yokoyama, Satoshi Matsuyama, et al. 2010. "Breaking the 10 Nm Barrier in Hard-X-Ray Focusing." *Nature Physics* 6 (2): 122–25. doi:10.1038/NPHYS1457.
- Momose, A., T. Takeda, Y. Itai, A. Yoneyama, and K. Hirano. 1998. "Phase-Contrast Tomographic Imaging Using an X-Ray Interferometer." *Journal of Synchrotron Radiation* 5 (Pt 3): 309–14. doi:10.1107/S0909049597014271.
- Morrison, G. R., and M. T. Browne. 1992. "Dark-field Imaging with the Scanning Transmission X-ray Microscope." *Review of Scientific Instruments* 63 (1): 611–14. doi:10.1063/1.1143820.
- Morrison, Graeme R. 1993. "Phase Contrast and Darkfield Imaging in X-Ray Microscopy." In , 1741:186–93. Proc. SPIE. doi:10.1117/12.138730.
- Niemann, B., D. Rudolph, and G. Schmahl. 1983. "The Göttingen X-Ray Microscopes." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 208 (1): 367–71. doi:10.1016/0167-5087(83)91152-3.
- Nixon, W. C. 1955. "High-Resolution X-Ray Projection Microscopy." *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 232 (1191): 475–85. doi:10.1098/rspa.1955.0232.
- Paganin, D., S. C. Mayo, T. E. Gureyev, P. R. Miller, and S. W. Wilkins. 2002. "Simultaneous Phase and Amplitude Extraction from a Single Defocused Image of a Homogeneous

- Object.” *Journal of Microscopy* 206 (1): 33–40. doi:10.1046/j.1365-2818.2002.01010.x.
- Pfeiffer, F., M. Bech, O. Bunk, P. Kraft, E. F. Eikenberry, Ch Brönnimann, C. Grünzweig, and C. David. 2008. “Hard-X-Ray Dark-Field Imaging Using a Grating Interferometer.” *Nature Materials* 7 (2): 134–37. doi:10.1038/nmat2096.
- Rose, Albert. 1973. *Vision: Human and Electronic*. Plenum Press.
- Rotermund, H. H., G. Ertl, and W. Sesselmann. 1989. “Scanning Photoemission Microscopy of Surfaces.” *Surface Science Letters* 217 (3): L383–90. doi:10.1016/0167-2584(89)90108-4.
- Ryan, C. G., R. Kirkham, R. M. Hough, G. Moorhead, D. P. Siddons, M. D. de Jonge, D. J. Paterson, G. De Geronimo, D. L. Howard, and J. S. Cleverley. 2010. “Elemental X-Ray Imaging Using the Maia Detector Array: The Benefits and Challenges of Large Solid-Angle.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Frontiers in radiation physics and applications: Proceedings of the 11th International Symposium on Radiation Physics, 619 (1–3): 37–43. doi:10.1016/j.nima.2009.11.035.
- Schneider, Caroline A., Wayne S. Rasband, and Kevin W. Eliceiri. 2012. “NIH Image to ImageJ: 25 Years of Image Analysis.” *Nature Methods* 9 (7): 671–75. doi:10.1038/nmeth.2089.
- Sforna, Marie Catherine, Pascal Philippot, Andrea Somogyi, Mark A. van Zuilen, Kadda Medjoubi, Barbara Schoepp-Cothenet, Wolfgang Nitschke, and Pieter T. Visscher. 2014. “Evidence for Arsenic Metabolism and Cycling by Microorganisms 2.7 Billion Years Ago.” *Nature Geosci* 7 (11): 811–15.
- Solé, V. A., E. Papillon, M. Cotte, Ph. Walter, and J. Susini. 2007. “A Multiplatform Code for the Analysis of Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Spectra.” *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 62 (1): 63–68. doi:10.1016/j.sab.2006.12.002.
- Stangl, Julian, Cristian Mocuta, Virginie Chamard, and Dina Carbone. 2013. *Nanobeam X-Ray Scattering: Probing Matter at the Nanoscale*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. <http://doi.wiley.com/10.1002/9783527655069>.
- Sviben, Sanja, Assaf Gal, Matthew A. Hood, Luca Bertinetti, Yael Politi, Mathieu Bennet, Praveen Krishnamoorthy, et al. 2016. “A Vacuole-like Compartment Concentrates a Disordered Calcium Phase in a Key Coccolithophorid Alga.” *Nature Communications* 7 (April): 11228. doi:10.1038/ncomms11228.
- Tafforeau, P., R. Boistel, E. Boller, A. Bravin, M. Brunet, Y. Chaimanee, P. Cloetens, et al. 2006. “Applications of X-Ray Synchrotron Microtomography for Non-Destructive 3D Studies of Paleontological Specimens.” *Applied Physics A* 83 (2): 195–202. doi:10.1007/s00339-006-3507-2.
- Vogt, S. 2003. “MAPS : A Set of Software Tools for Analysis and Visualization of 3D X-Ray Fluorescence Data Sets.” *Journal de Physique IV - Proceedings* 104: 4. doi:10.1051/jp4:20030160.
- Weitkamp, T., D. Haas, D. Wegrzynek, and A. Rack. 2011. “ANKAphase : Software for Single-Distance Phase Retrieval from Inline X-Ray Phase-Contrast Radiographs.” *Journal of Synchrotron Radiation* 18 (4): 617–29. doi:10.1107/S0909049511002895.
- Winick, Herman, George Brown, Klaus Halbach, and John Harris. 1981. “Wiggler and Undulator Magnets.” *Physics Today* 34 (5): 50–63. doi:10.1063/1.2914568.
- Yan, Rui, Thomas J. Edwards, Logan M. Pankratz, Richard J. Kuhn, Jason K. Lanman, Jun Liu, and Wen Jiang. 2015. “Simultaneous Determination of Sample Thickness, Tilt, and Electron Mean Free Path Using Tomographic Tilt Images Based on Beer–Lambert Law.” *Journal of Structural Biology*, Recent Advances in Detector Technologies and Applications for Molecular TEM, 192 (2): 287–96. doi:10.1016/j.jsb.2015.09.019.

Imagerie X multimodale par balayage rapide sur Nanoscopium

Abstract

Nanoscopium est une ligne d'imagerie, par rayons X dur, du synchrotron SOLEIL. Elle est dédiée à l'imagerie 2D/3D multi-échelles de morphologie et de composition chimique. Ce chapitre est dédié à la description de Nanoscopium et de la station d'imagerie X à haute résolution et multi-techniques par balayage sur laquelle j'ai travaillé.

Les spécifications de haute résolution spatiale requises par les expériences d'imagerie X par balayage imposent de fortes contraintes de stabilité du faisceau de rayons X. Afin de répondre à cela, Nanoscopium possède un schéma optique non standard comparé aux autres lignes de lumière de SOLEIL. Ce schéma sera exposé en première partie de ce chapitre.

La deuxième partie du chapitre est consacrée à la station expérimentale d'imagerie X multimodale. La focalisation du faisceau de rayons X, le porte échantillon ainsi que les détecteurs de cette station seront présentés en détails.

La troisième partie de ce chapitre détaille l'architecture FLYSCAN qui est une architecture d'acquisition rapide et parallèle de plusieurs détecteurs. Cette technique d'acquisition a permis d'augmenter drastiquement les cadences d'acquisition, augmentant de manière significative le volume de données produit lors des expériences de microscopie X par balayage. Ce volume de données sujet de la dernière partie de ce chapitre est le support de l'information traitée par les développements de cette thèse.

3.1 Nanoscopium

SOLEIL est une source de rayonnement synchrotron située sur le plateau de Saclay. C'est une société civile financée par deux organismes de tutelles : le CNRS et le CEA. 350 personnes y travaillent, afin d'accueillir les scientifiques du monde entier, qui y effectuent de la recherche multidisciplinaire. Le rayonnement synchrotron, par ses qualités exceptionnelles de brillance et d'étendue spectrale (allant de l'infrarouge aux rayons X durs), est un outil privilégié pour explorer la matière, dans les domaines aussi variés que la biologie, la chimie, les sciences des matériaux, l'environnement, la physique, les sciences de la Terre, le patrimoine culturel ou l'archéologie.

Soleil compte 29 lignes de lumière dont Nanoscopium (Somogyi et al. 2015), la toute première ligne longue, actuellement en cours de mise en exploitation. Ses 155 mètres de long permettent, à travers une instrumentation complexe, de pouvoir focaliser le faisceau sur une taille inférieure à 100 nm dans la gamme des rayons X durs (5 à 20 keV). La ligne Nanoscopium couvre de nombreux domaines d'application comme la science de la vie, la biologie, la géologie, géobiologie, les sciences environnementales, les nanotechnologies, etc.

La focalisation nanométrique est un réel challenge. En effet, les contraintes imposées par la technique de balayage d'un faisceau focalisé nanométrique requièrent une stabilité du faisceau en intensité ($\sim \pm 10\%$) mais également en position à des fréquences allant du Hertz (dérive lente) au kilohertz (instabilité visible entre deux pixels). Le design optique de la ligne, le choix de ses instruments et son bâtiment ont pour but d'assurer une très haute stabilité du faisceau. La ligne Nanoscopium (Figure 3.a) a été conçue pour atteindre des performances nanométriques malgré les instabilités latentes de la source.

La source de rayon X utilisée par Nanoscopium est un ondulateur U18 de 2 mètres de long. Il couvre une gamme d'énergie de travail entre 5 et 20keV. En sortie d'onduleur, le faisceau est dit blanc, c'est à dire qu'il comporte toutes les énergies dans sa gamme couverte. La taille de la source de rayon X en sortie directe d'onduleur à 5 keV est de $650\mu\text{m}$ en horizontal par $20\mu\text{m}$ en vertical⁴. La divergence de la source est de $53 \times 29 \mu\text{rad}^2$ FWHM. À 15 mètres de la source, dans la première cabane optique de la ligne, un diaphragme mobile de $800 \mu\text{m}$ de côté permet de supprimer les parties les plus divergentes du faisceau de rayons X, c'est-à-dire les très basses énergies.

À respectivement 26 et 27.8 mètres se trouvent deux miroirs M1 et M2. Ils travaillent avec un angle d'incidence rasant de 2,5 mrad. Le miroir M1 a un rôle de dé-focalisation verticale tandis que le miroir M2 permet d'obtenir une dé-focalisation horizontale. Ils condensent une image agrandie de la source avec un facteur d'agrandissement environ égal à 2,6 en vertical et 2,3 en horizontal au niveau de la

⁴ Valeur de la largeur du lobe principal d'intensité à la moitié de sa hauteur (FWHF).

source secondaire (60m en aval des miroirs). La taille du faisceau attendue avec des miroirs parfaits au niveau de la source secondaire serait alors de $1500 \times 54 \mu\text{m}$.

Avant le second point source, à 80m environ des miroirs, un monochromateur Si(111) double cristal à sortie fixe est utilisé pour filtrer en énergie le faisceau. La précision de cette filtration en énergie est de $\frac{\Delta E}{E} \approx 10^{-4}$. Le monochromateur est placé en amont du point source secondaire dans le but de minimiser la puissance absorbée autour de celui-ci puisque seule l'énergie sélectionnée par le monochromateur est dans l'axe du faisceau.

Le second point source est l'élément essentiel pour assurer la stabilité en position du faisceau dans la station expérimentale située plus de 70m en aval. Ce second point source est soit un pinhole, soit un jeu de fente et permet de filtrer les variations de position du faisceau. Il doit être illuminé en totalité et définit alors le point source de l'ensemble de la chaîne d'imagerie. La distance de plus de 70m entre le second point source et la lentille de focalisation est en adéquation avec la longueur de cohérence latérale nécessaire aux optiques de nano-focalisation.

Le faisceau se propage ensuite vers les stations expérimentales à environ 70m de distance où il est nano-focalisé par une optique diffractive ou réfléchive sur l'échantillon. Selon l'optique de focalisation, il sera possible de concentrer le faisceau de 30 nm à 100 nm.

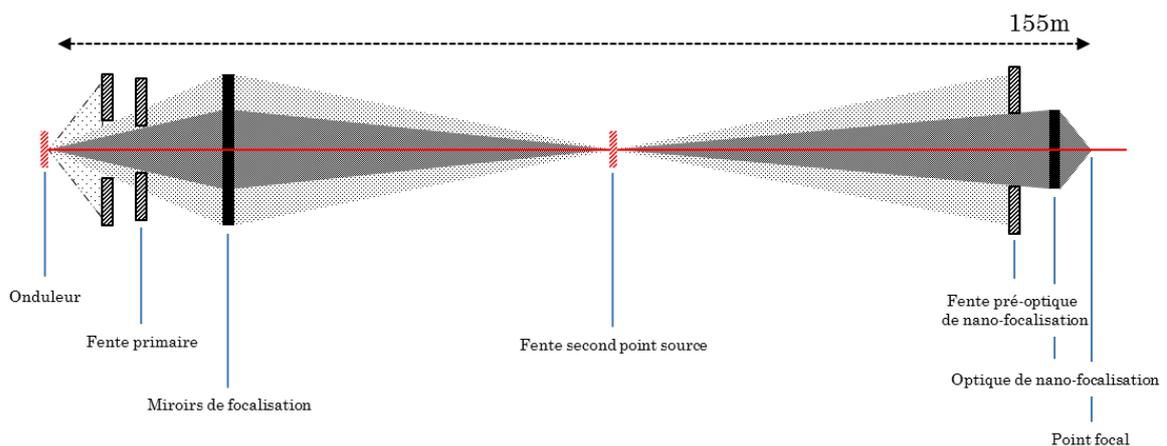


Figure 3.a : Synoptique optique de la ligne Nanoscopium. L'axe du faisceau correspond à la ligne rouge, le monochromateur entre les miroirs de focalisation et les fentes second point source n'est pas représenté ici.

3.2 CX2 : La station d'imagerie multi-techniques à nano-focalisation

La station expérimentale CX2 de la ligne Nanoscopium est dédiée à l'imagerie X multimodale par balayage rapide et à très haute résolution spatiale (~50-100 nm). Le principe consiste à balayer l'échantillon par le faisceau X focalisé par une optique diffractive (lentille de Fresnel). À chaque position du faisceau sur l'échantillon, l'image du faisceau transmis et un spectre des photons de fluorescence X sont enregistrés. Les informations de contraste de phase, de « dark field » (diffusé), d'absorption et de fluorescence X sont extraites pour chaque position formant ainsi les images de modalité dites réduites. La Figure 3.b présente le schéma du dispositif expérimental de CX2. Cette partie présente les principaux éléments optiques et instrumentaux de la station. Les sections suivantes introduisent l'optique de focalisation et les détecteurs implémentés sur la station.

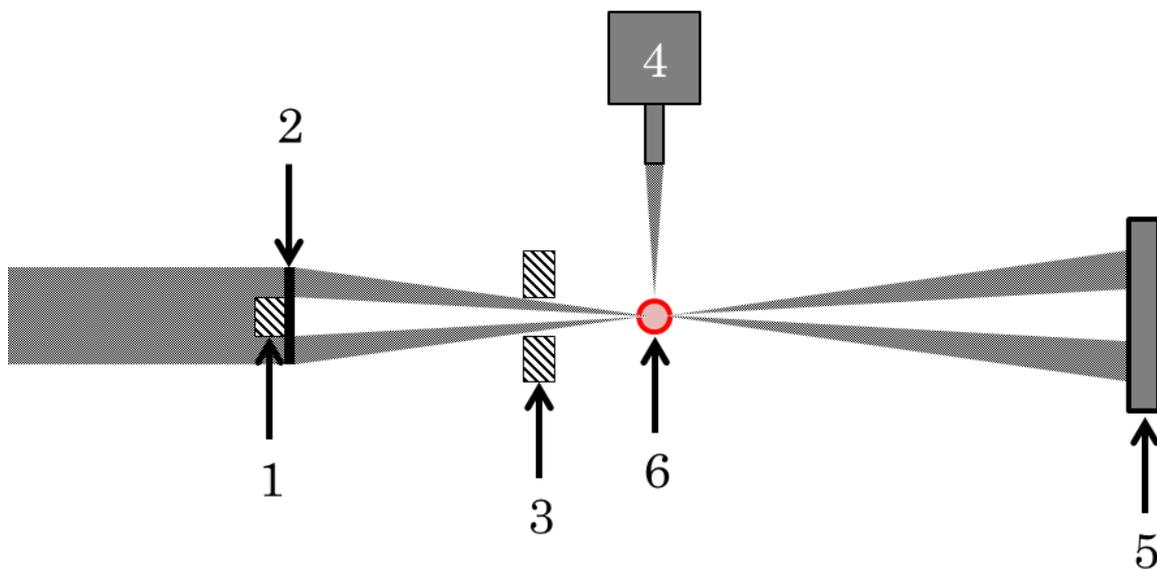


Figure 3.b : Schéma de la station expérimentale CX2. 1 : Stop central ; 2 : Lentille de Fresnel ; 3 : ouverture de sélection d'ordre ; 4 : détecteur de fluorescence ; 5 : détecteur du faisceau transmis (détecteur pixel 2D) ; 6 : Point focal de l'optique de focalisation, position de l'échantillon

3.2.2 Optique de focalisation du faisceau X

Le faisceau X incident est focalisé à l'aide de lentilles de Fresnel (FZP). Ces lentilles appartiennent à la famille des optiques dites diffractives. Elles utilisent les propriétés de diffraction des rayons X pour créer un schéma d'interférences dans le front d'ondes résultant du passage des photons à travers le système diffractant. Une interférence est constructive lorsque deux ondes se croisent en phase, c'est-à-dire précisément à leur valeur maximale (ou minimale), créant ainsi un pic d'intensité. Une FZP est constituée d'anneaux concentriques d'épaisseurs (anneaux pleins) et de largeurs définies et espacés

régulièrement (anneaux vides) (voir Figure 3.c) pour créer des interférences constructives au point focal f suivant l'équation :

$$r_m^2 + f^2 = \left(f + \frac{m\lambda}{2}\right)^2 \quad (3.1)$$

où r_m correspond à l'anneau m , et λ est la longueur d'onde du faisceau incident.

Une FZP est construite pour une longueur d'onde optimale. L'utilisation de la FZP avec une longueur d'onde différente aura pour effet de diminuer son rendement, c'est-à-dire réduire le rapport flux au point focal sur flux incident, et/ou de déplacer la position du point focal le long de l'axe du faisceau. L'utilisation des lentilles de Fresnel pour la focalisation nécessite que le faisceau soit monochromatique, et avec une longueur de cohérence transverse comparable à la zone d'exposition du faisceau sur la lentille afin d'approcher la limite physique en termes de taille de faisceau focalisé.

Deux classes de lentilles de Fresnel existent pour les rayons X. Les lentilles de Fresnel dites absorbantes et celles dites de phase. Les lentilles absorbantes utilisent uniquement le déphasage introduit entre les anneaux vides (i.e. les espaces entre les anneaux pleins). La différence de chemin introduite par l'équation (3.1) entre chacun des anneaux vides permet de créer un déphasage de $m\pi$ ou $\frac{m\lambda}{2}$ au point focal. Les lentilles de phase utilisent, en plus des anneaux vides, les anneaux pleins qui grâce à une épaisseur et un matériau choisis pour une énergie spécifique introduisent un déphasage de π . Les lentilles de phase, plus faciles à produire, sont préférées pour la focalisation des rayons X durs à l'échelle nanométrique. Effectivement, les lentilles absorbantes ont un ratio de structure définie comme le rapport entre l'épaisseur des anneaux pleins et la largeur des anneaux vides. Ce ratio croît exponentiellement avec l'énergie des photons, ce qui empêche de produire des FZP binaires pour les photons de haute énergie (rayons X durs).

Les paramètres caractérisant une lentille de Fresnel sont la distance focale f , l'extension latérale du point focal δ_s et la profondeur de champs δ_d . Ces paramètres sont dépendants de l'énergie du faisceau incident et de la géométrie de la lentille. Les relations suivantes (3.2) définissent ces grandeurs et la Figure 3.c illustre également ces paramètres.

$$\begin{aligned} f &= \frac{D\Delta r}{\lambda} \\ \delta_s &= 1.22 \frac{\lambda f}{D} \\ \delta_d &= \pm \frac{2\Delta r^2}{\lambda} \end{aligned} \quad (3.2)$$

Ici, D est le diamètre de la FZP, Δr est la dimension du plus petit anneau de la FZP et λ est la longueur d'onde du faisceau incident. Sur CX2 une lentille de $700\mu\text{m}$ de diamètre est utilisée avec une dimension du dernier anneau de 100nm . Dans ces conditions et avec une énergie de 14 keV , le point focal se trouve

à 80cm environ de la lentille et la dimension latérale de ce point est de 122nm avec une profondeur de champ d'environ 230 μ m.

L'utilisation de FZP entraîne des contraintes supplémentaires sur le dispositif optique. La FZP étant une optique de diffraction, elle produit des maxima et minima à toute les fractions entières de la distance focale. On appelle l'ordre 0 le faisceau traversant la FZP sans être dévié, l'ordre 1 les ondes produisant un maximum au point focal, ordre 2 au point focal divisé par deux etc. Entre ces points, les interférences ne sont pas toutes constructives et créent donc des ondulations parasites. Dans le but de maximiser le signal au point focal, il est nécessaire de ne sélectionner que l'ordre 1 de la lentille. Il est possible de filtrer les différents ordres de la FZP en ajoutant un stop central (CS) pour éliminer l'ordre 0 et une ouverture de sélection d'ordre (OSA ou pinhole⁵) pour ne sélectionner que l'ordre 1. Le stop central, en association avec l'OSA, empêche l'ordre zéro d'arriver directement sur le point focal. Le stop central est un élément opaque aux rayons X qui va créer un « trou » au centre du faisceau illuminant la FZP. Le stop central est positionné sur le même axe que l'OSA au centre du faisceau de photons, en amont de la FZP. L'OSA est un pinhole, c'est-à-dire une ouverture dans une plaque opaque aux rayons X, qui permet d'arrêter les ordres de focalisation « parasite ». L'OSA est positionnée sur le même axe que le CS à une distance optimale OSA_p de la FZP, il n'autorise alors que le passage du premier ordre de focalisation. L'ensemble du dispositif optique, CS, FZP et OSA est représenté dans la Figure 3.c.

$$OSA_p = f \cdot \frac{f \times OSA_r}{FZP_r} \quad (3.3)$$

Ici FZP_r est le rayon de la FZP et OSA_r le rayon de l'OSA. Pour une énergie de 14 keV et avec les caractéristiques de la lentille vue précédemment, on obtient une distance OSA_p d'environ 79cm.

⁵ Trou d'épingle en français, désigne un trou de petite taille.

L'illumination de la FZP est définie par un jeu de fentes placé en amont de la lentille. Afin d'obtenir

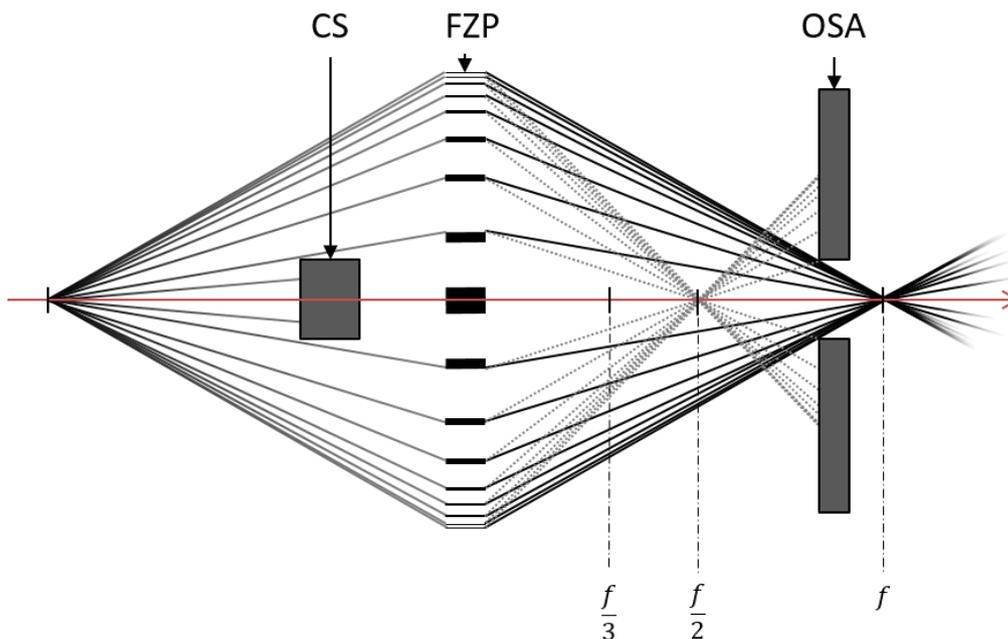


Figure 3.c : Schéma de focalisation d'une lentille de Fresnel (FZP). L'ouverture de sélection d'ordre de focalisation (OSA) ne laisse passer que les rayons focalisant sur le point focal f choisie au préalable. Le stop central (CS) permet lui de compléter l'OSA en filtrant les rayons directement transmis dans l'axe du faisceau.

une efficacité maximale de la FZP il est possible d'ajuster les dimensions horizontale et verticale de l'illumination afin qu'elles correspondent à la longueur de cohérence latérale du faisceau (Mastropietro 2011). Au préalable à chacune des acquisitions, le point focal de la FZP est déterminé par la technique de mesure de profil d'un bord franc. Cette technique consiste à balayer un bord franc absorbant, par exemple une couche épaisse d'or, le long de l'axe du faisceau. Chaque mesure permet de définir le profil du faisceau. Le point focal est alors défini dans la zone où le faisceau a le plus petit diamètre (Suzuki et al. 2005).

3.2.3 L'Environnement échantillon

L'environnement échantillon correspond à l'ensemble des équipements du dispositif expérimental qui concerne le conditionnement et positionnement de l'échantillon. Dans le cas de la microscopie par balayage de nombreux moteurs et plateaux permettent de positionner l'échantillon et de le déplacer sur le point focal.

L'échantillon est monté sur une tête goniométrique⁶ manuelle de type Huber 1005 permettant de placer l'échantillon à la position et avec une orientation adéquate grâce à un double arceau et des translations (manuelles). La tête goniométrique est elle-même installée sur une rotation motorisée. Cette

⁶<http://www.xhuber.de/en/product-groups/4-accessories/44-accessories/goniometer-heads/manual-versions/1005/>

rotation (PI/MICOS RS40⁷) précise à 0.005° permet de réaliser des acquisitions tomographiques. Sous le moteur de rotation se trouve les platines de translations de l'échantillon (AXMO⁸). Ces platines d'une précision de 100nm permettent de déplacer l'échantillon sur le faisceau dans les directions X/Y du plan perpendiculaire à l'axe du faisceau. Elles peuvent couvrir une distance de 1cm. De plus, la translation horizontale de l'échantillon, correspondant au moteur X du plateau, est un axe de déplacement continu. Cet axe doit présenter le mouvement le plus continu possible (i.e. <5%) et ce pour des vitesses allant de 1µm/s à 1mm/s. Il est crucial pour l'implémentation Flyscan (voir 3.3) que ces spécifications soient respectées. Finalement une platine de positionnement supporte l'ensemble des éléments et permet de placer le système dans l'axe du faisceau (voir Figure 3.d). Chaque moteur est équipé d'un codeur associé à un interpolateur permettant de connaître à chaque instant sa position sur son axe avec une précision de 100 nm.

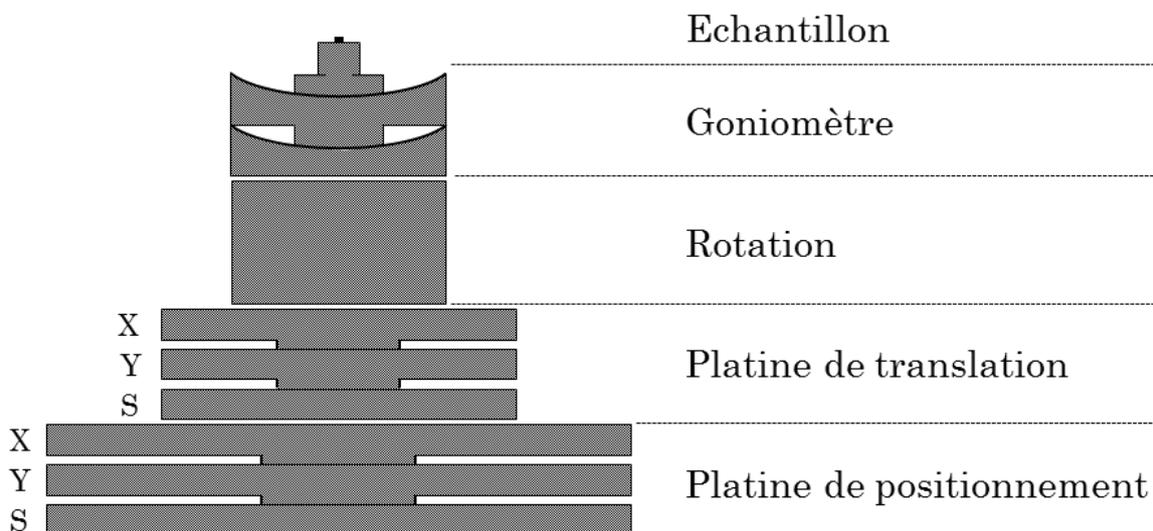


Figure 3.d : Représentation schématique de l'empilement des moteurs. Les plan X/Y des platines de translation et de positionnement sont dans le plan perpendiculaire au faisceau et l'axe S est dans l'axe du faisceau. L'étage Goniomètre est réglé manuellement alors que les autres étages rotation, translation et positionnement sont motorisés.

3.2.4 Détecteurs

La station CX2 est équipée de trois types de détecteurs différents classés en deux catégories en fonction de leurs rôles. La première catégorie regroupe les détecteurs utilisés pour sonder l'échantillon. La seconde catégorie regroupe ceux utilisés pour diagnostiquer l'état du faisceau. Le lancement de

⁷<https://www.physikinstrumente.com/en/products/rotation-stages/stages-with-worm-gear-drives/rs-40-rotation-stage-1204000/>

⁸ <http://www.axmo.fr/group/ensembles-motorises?md=M>

l'acquisition sur chacun des détecteurs est lancé grâce à un signal externe issue d'une horloge de précision (§3.3).

Les détecteurs servant à sonder l'échantillon, de première catégorie, sont placés à différents emplacements en aval de celui-ci. Sur CX2, le détecteur du faisceau transmit, un détecteur hybride à comptage de photon *XPAD*⁹ (§2.3.3), est placé dans l'axe du faisceau à environ 3,4m en aval de l'échantillon. Le *XPAD* utilisé est un mono-module constitué de 560x120 pixels d'une taille de 130µm. La lecture d'une image à partir de ce détecteur ne nécessite que 1.6ms ce qui permet, dans un système d'acquisition rapide, d'obtenir une cadence de prise d'images de 640Hz.

Les détecteurs de fluorescence X, de première catégorie, sont placés autour de l'échantillon suivant une géométrie propre à l'acquisition souhaitée (à 90° de l'axe du faisceau pour une détection de fluorescence X optimale). CX2 est équipée de deux détecteurs VITUS H80¹⁰. Ces détecteurs de fluorescence de type Silicium à dérive de charge (SDD) ont une surface active de détection de 80mm². Ils sont utilisés pour mesurer à la fois les photons de fluorescence X issus de l'échantillon, mais aussi le faisceau diffusé aux grands angles/rétrodiffusés. Ces détecteurs sont couplés avec une électronique d'analyse multicanale rapide, le xMAP¹¹, utilisé en mode double tampon de mémoire. Ce mode permet à l'électronique de lire et écrire les données simultanément et ainsi d'améliorer la cadence du détecteur.

Les détecteurs utilisés pour le diagnostic du faisceau, de seconde catégorie, sont placés en amont des optiques de focalisation. Ils permettent de corriger les cartographies de toutes fluctuations en intensité et en position du faisceau pouvant apparaître en amont de CX2. L'intensité et la position du faisceau sont respectivement mesurées avec un moniteur d'intensité (noté MI) et un moniteur de position (noté XBPM pour X-Ray Beam Position Monitor).

⁹ <http://www.imxpad.com>

¹⁰ Produit par Ketek : <http://www.ketek.net/products/vitus-sdd/vitus-h80/>

¹¹ Produit par XIA LLC : <http://www.xia.com/DXP-XMAP.html>

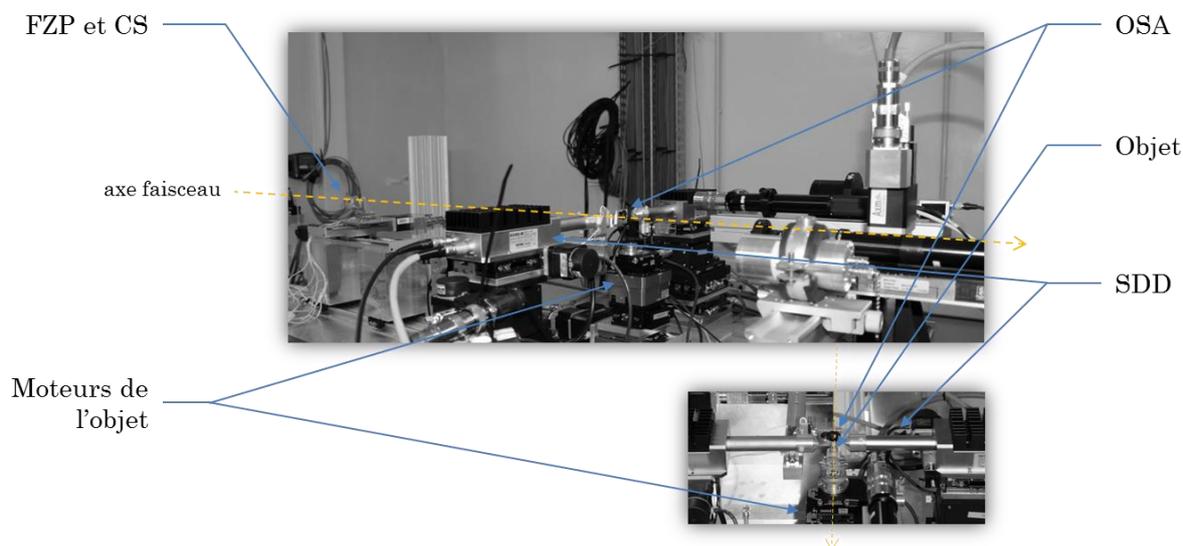


Figure 3.e : Présentation de la station CX2 de la ligne Nanoscopium. OSA : ouverture de sélection d'ordre de diffraction. SDD : détecteur de fluorescence X. FZP : lentille de Fresnel. CS : stop central. Le détecteur du faisceau transmis n'est pas représenté ici, mais ce trouve en aval dans l'axe du faisceau.

3.3 Architecture Flyscan

On a vu que la station CX2 (§3.2) est équipée de nombreux détecteurs pour réaliser des expériences d'imagerie multi-techniques par balayage continu. Cependant, orchestrer l'ensemble des équipements pour permettre de réaliser l'acquisition reste un challenge. Le projet Flyscan de SOLEIL (Leclercq et al. 2015) a été développé sur Nanoscopium dans un premier temps pour réaliser ce type d'acquisition et dans un second temps pour devenir un modèle, générique, de contrôle pour les autres lignes de SOLEIL.

Le Flyscan est une solution logicielle permettant de structurer l'ensemble des équipements implémentés sur une ligne dans une architecture, appelée architecture Flyscan, et ayant pour but de contrôler l'ensemble de l'acquisition. Tous les équipements sont contrôlés individuellement grâce à une interface TANGO¹² au travers un réseau TCP/IP. L'architecture Flyscan est souple ainsi, un instrument peut simplement être ajouté/retiré de l'architecture sans modification du logiciel. L'architecture Flyscan permet de synchroniser le déclenchement des équipements grâce à une horloge commune à tous.

L'architecture Flyscan gère également la sauvegarde des données enregistrées tout au long d'une expérience. Les équipements TANGO comme les détecteurs exportent leurs images à chaque signal de déclenchement. Ces données sont ensuite temporairement enregistrées dans un espace local. La gestion des données est contrôlée par le « DataMerger ». Quand un nombre spécifique de signaux ont été généré, par exemple à la fin de chaque ligne, le « DataMerger » regroupe les données brutes et les enregistre

¹² <http://www.tango-controls.org/>

dans un nouveau fichier temporaire NeXus (ou HDF5) (Poirier et al. 2009). Afin d'optimiser les performances d'acquisition cette gestion des données brutes est gérée de façon asynchrone par Flyscan ne perturbant par ainsi le déroulement synchrone de l'acquisition. Quand tous les fichiers temporaires ont été créés le DataMerger crée le fichier NeXus final les regroupant tous sur l'espace de stockage de la ligne.

Dans le cadre de la microscopie X par balayage, l'architecture Flyscan offre la possibilité de faire des acquisitions avec des mouvements de moteur continus. En comparaison d'une méthode pas à pas, c'est-à-dire quand les moteurs marquent une pause à chaque position imagée, cette seule modification diminue jusqu'à 60 fois le temps nécessaire à une acquisition. Cette diminution du temps d'acquisition augment de-facto le flux de données produites, celui-ci peut monter jusqu'à 6 Gb/s (valeur maximum enregistrée sur un réseau 10Gb/s), ce qui représente un stress important sur l'ensemble du réseau. L'architecture Flyscan est donc capable de gérer un flux important de données brutes. Le volume des données sauvegardée présente un nouveau challenge. Effectivement la plateforme Flyscan peut facilement générer 200 Go par heure sur une ligne comme Nanoscopium. Le traitement de ces grands jeux de données est l'objet de ma thèse et sera présenté dans les prochaines parties.

3.4 Volumes de données

Nous avons vu dans la section précédente que la plateforme Flyscan permettait de tirer au mieux les capacités de l'instrumentation d'une ligne de lumière (3.3). Nous avons vu, au travers de la description de CX2, que les expériences multimodales nécessitent l'utilisation de multiples détecteurs (3.2.4). Ceux-ci enregistrent les données provenant de l'interaction du faisceau et de l'échantillon mais aussi des diagnostique tout au long de la ligne. En plus des informations issues des détecteurs, les motorisations présentes dans l'environnement de l'échantillon permettent de mesurer leur position sur leur axe (0). Ces informations d'origines et de formes diverses, sont enregistrées dans un fichier HDF5 grâce à l'architecture Flyscan (3.3). Le flux de données généré lors d'une telle acquisition est donc importante à cause de la cadence, proche du kilohertz, d'un tel système associé et à la multiplicité des informations enregistrées. La principale source de données sont les détecteurs 2D, puis les détecteurs 1D (fluorescence) et enfin tous les autres instruments enregistrés sur la ligne. Pour une acquisition en deux dimensions, 500*1000 pixel, avec un détecteur 2D de 560*120 pixel et quatre détecteurs de fluorescence, le fichier résultant pèse 82 Go. Les images provenant du détecteur 2D occupent à elles seules environ 67 Go soit environ 80% des données totales. Le volume final des données brutes représente donc une taille considérable, il contient de multiples informations dans de multiples formats. Le traitement de tels volumes est la continuité logique de l'utilisation d'une ligne de lumière et est le sujet de ma thèse.

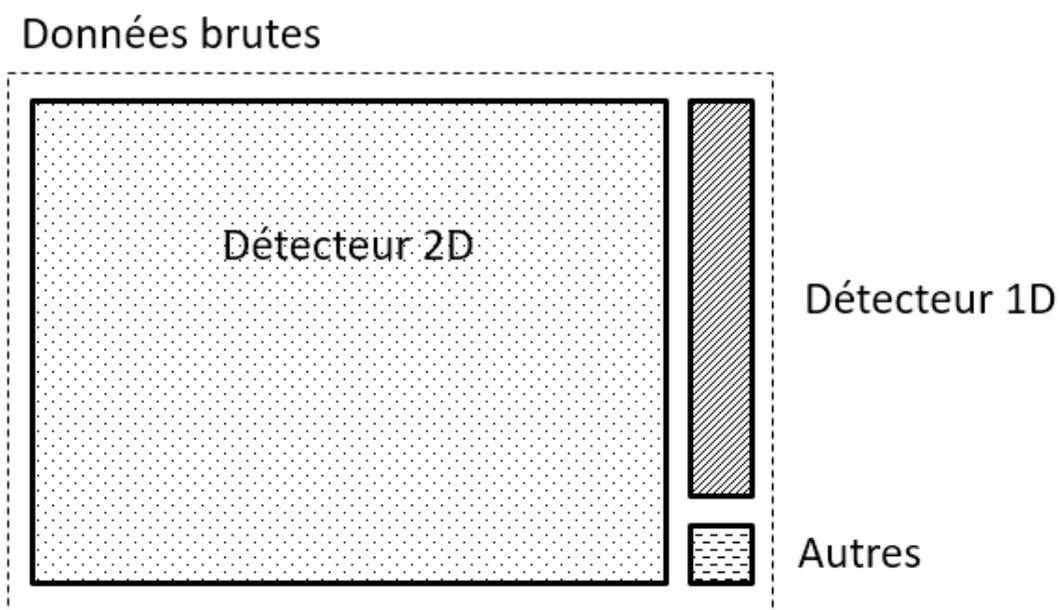


Figure 3.f : Répartition des données suivant leur type.

Synthèse

La ligne Nanoscopium a été conçue pour permettre de focaliser un faisceau de rayons X, entre 5 et 20 KeV, à des dimensions nanométriques. Le design optique de la ligne a été pensé pour fournir un faisceau stable et cohérent en entrée des deux stations actuellement en fonctionnement. La station CX2, utilisée lors de cette thèse, est l'une d'elles. Durant l'acquisition tous les dispositifs expérimentaux de la station, comme les moteurs ou les détecteurs, sont enregistrés simultanément. L'organisation et la gestion d'une telle acquisition est orchestrée grâce à l'architecture Flyscan implémentée sur la ligne. Le Flyscan permet également d'exécuter l'acquisition par balayage rapide, c'est-à-dire avec un ou plusieurs moteurs déplaçant l'échantillon sans temps de pause. Le grand volume de données généré par de telles acquisitions multimodales et rapides est principalement du fait des données de transmission provenant d'un détecteur bidimensionnel. Une ligne comme Nanoscopium peut ainsi produire plusieurs centaines de Giga-octets de données par heure.

- Leclercq, N., J. Berthault, F. Langlois, S. Le, S. Poirier, J. bisou, F. Blache, K. Medjoubi, and C. Mocuta. 2015. “FLYSCAN: A Fast and Multi-Technique Data Acquisition Platform for the SOLEIL Beamlines.” In *ICALEPCS*, (2015/10/12). Melbourne, Australia. http://www.researchgate.net/publication/282769766_WEPGF056_Poster.
- Mastropietro, Francesca. 2011. “Imagerie de nanofils uniques par diffraction cohérente des rayons X.” Phdthesis, Université de Grenoble. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00716410/document>.
- Poirier, Stéphane, C. Marechal, M. Ounsy, Alain Buteau, Phillipe Martinez, Brigitte Gagey, Phillip Pierrot, M. Mederbel, and JM Rochat. 2009. “Experimental Data Storage Management in Nexus Format at Synchrotron Soleil.” In , 75. Kobe Japan. <http://epaper.kek.jp/icalepcs2009/html/auth0897.htm>.
- Somogyi, Andrea, Kadda Medjoubi, Gil Baranton, Vincent Le Roux, Marc Ribbens, François Polack, Pascal Philippot, and Jean-Pierre Samama. 2015. “Optical Design and Multi-Length-Scale Scanning Spectro-Microscopy Possibilities at the Nanoscopium Beamline of Synchrotron Soleil.” *Journal of Synchrotron Radiation* 22 (4): 1118–29. doi:10.1107/S1600577515009364.
- Suzuki, Yoshio, Akihisa Takeuchi, Hidekazu Takano, and Hisataka Takenaka. 2005. “Performance Test of Fresnel Zone Plate with 50 Nm Outermost Zone Width in Hard X-Ray Region.” *Japanese Journal of Applied Physics* 44 (4R): 1994. doi:10.1143/JJAP.44.1994.

Abstract

De manière générale, le traitement du signal consiste à extraire des grandeurs d'intérêts de données brutes (un signal) enregistrées lors d'une acquisition. Il intervient à deux niveaux différents du processus de transformation d'une donnée brute en information interprétable. Le premier niveau est la réduction des signaux enregistrés en grandeurs d'intérêts ou données réduites. Le second niveau est l'extraction, ou la reconstruction, d'informations complémentaires à partir de ces grandeurs sur la base de modèles physiques et mathématiques.

Dans cette partie du manuscrit, nous nous intéressons aux différentes techniques du signal liées à la microscopie par rayon X à balayage. Dans un premier temps, nous traiterons les différents signaux issus du faisceau transmis et enregistrés sur un détecteur 2D pixel. Ces signaux sont obtenus en séparant par régions les données brutes du détecteur pixel. Il est ainsi possible de séparer les signaux d'absorption, de diffusion et de contraste de phase. Dans un second temps, nous aborderons le traitement du signal de fluorescence X via les spectres issus des détecteurs résolus en énergie. Nous verrons ensuite que des traitements additionnels peuvent être intégrés en utilisant des signaux provenant des outils de diagnostic du faisceau. Enfin, dans les deux dernières parties du chapitre, la reconstruction de phase à partir de ses gradients et la reconstruction tomographique des projections d'un échantillon seront présentées. Ces reconstructions inversent le modèle numérique et physique de formation de l'image pour calculer les informations relatives à l'échantillon.

4.1 La multimodalité des données

Dans le cadre de cette thèse les données que nous traitons proviennent des différents détecteurs et acteurs d'une station de microscopie de rayons X dur par balayage (SXM) (§2.3.2). Le détecteur du faisceau transmis que nous utilisons est un détecteur hybride à comptage de photons (Medjoubi et al. 2013; Menzel et al. 2010). Ces détecteurs présentent l'avantage d'être virtuellement sécables, dans la limite de leur résolution en pixels. Cette propriété leur permet de simuler l'instrumentation nécessaire à l'acquisition des différentes informations véhiculées par le faisceau transmis. Par exemple, il est possible de virtuellement masquer le faisceau direct pour obtenir une image du darkfield (champs sombre) sans utiliser d'occulteur (Bunk et al. 2009; Graeme R. Morrison 1993).

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les informations recueillies lors d'une expérience multimodale proviennent de différents acteurs. On peut cependant les séparer en deux grandes classes. La première regroupe les signaux portant une information sur l'échantillon imagé, c'est-à-dire tous les signaux qui rendent compte de l'interaction entre le faisceau de photons incident et l'échantillon. La seconde classe représente les signaux de monitoring (surveillance), qui correspondent à toutes les informations enregistrées en parallèle comme la position des moteurs, le flux de photons et la position du faisceau en amont des optiques de focalisation etc.

Les signaux issus de l'échantillon sont également séparés en deux catégories, le signal de transmission et le signal de fluorescence X. Le signal de transmission correspond à l'extension du faisceau incident en aval de l'échantillon. On appelle l'ensemble du faisceau transmis dans l'axe du faisceau incident le « brightfield » et les extrémités diffusées de celui-ci le « darkfield » (Figure 4.a).

Dans les expériences de SXM telles que celles réalisées sur Nanoscopium, tous ces signaux sont acquis simultanément (§3.3). Les différentes informations ainsi recueillies ont donc toutes la même origine et sont, ainsi, directement superposables. Chaque signal est réduit à partir des données en une image dite « réduite ». L'ensemble des images réduites forment une représentation multimodale de l'échantillon.

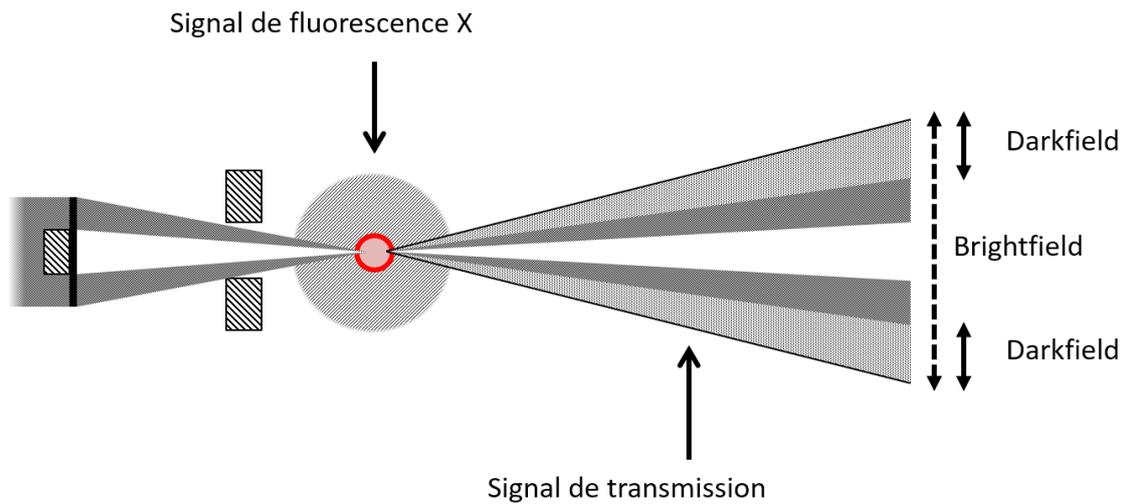


Figure 4.a: Dans une expérience de SXM, où le faisceau est focalisé, le signal de transmission correspond à l'ensemble des photons venant de la source et interagissant avec l'échantillon. Dans l'axe du faisceau incident, on sépare ce signal en deux sections, le brightfield (champ clair) qui est constitué de l'ensemble des photons du cône transmission dans l'axe du faisceau et le darkfield (champ sombre) qui est constitué des photons diffusés par l'échantillon autour de l'axe du faisceau. Le signal de fluorescence est quant à lui émis dans toutes les directions.

4.2 Le signal de transmission

Dans le cas du SXM, tous les photons provenant de la source et se propageant après l'échantillon dans la direction du faisceau font partie du signal de transmission. Si le signal de transmission est enregistré grâce à un détecteur 2D pixel, il est possible de virtuellement décomposer ce signal en trois modalités : l'absorption, la diffusion et la phase. Les signaux d'absorption et de phase sont issus du brightfield et le signal de diffusion est issu du darkfield (Figure 4.b). Ces modalités représentent trois informations complémentaires, l'atténuation, l'intensité du darkfield (champ sombre) et le contraste de phase différentielle. Elles sont interprétables comme l'action des mécanismes de contraste d'interaction rayon X matière (§2.2).

4.2.2 Le signal d'absorption

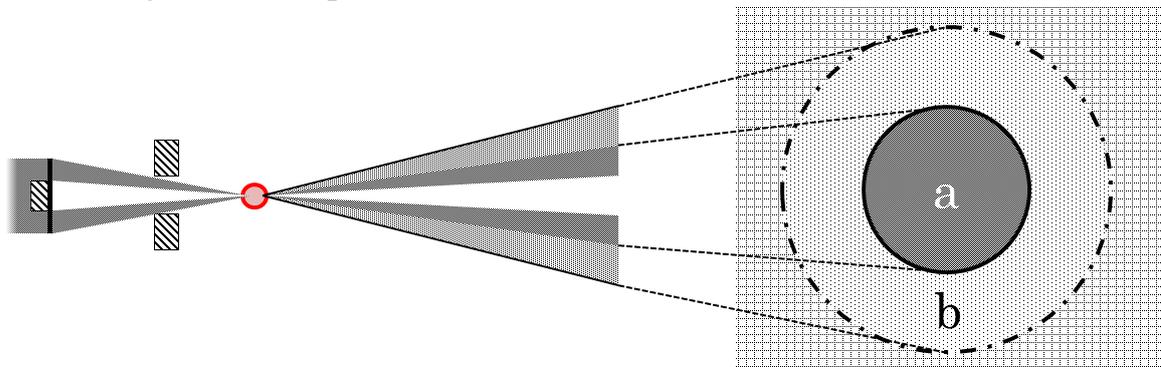


Figure 4.b : Le signal de transmission est décomposé sur un détecteurs 2D pixel en deux parties, le brightfield (champ claire) **a+b**, et le darkfield (champ sombre) **b**.

Dans le cadre d'une expérience de microscopie X les échantillons sont, rarement, purement absorbants ou diffusants. Le signal d'absorption est alors interprété comme l'atténuation linéique, c'est-à-dire le produit du coefficient d'atténuation linéique (§2.2.1) avec l'épaisseur projetée de l'échantillon.

Dans les conditions expérimentales de CX2, il est impossible de discriminer les photons n'ayant pas subis d'interaction dans l'échantillon des photons diffusés aux très petits angles (i.e. très proche de l'axe du faisceau) et donc de différencier le coefficient d'absorption et de diffusion linéique. Le coefficient d'absorption linéique, qui est la section efficace de l'effet photoélectrique par centimètre au travers de l'échantillon, n'est en effet mesurable formellement que si on suppose que les photons traversant l'échantillon ne subissent d'autre interaction que l'effet photoélectrique ; le coefficient d'atténuation linéique peut alors être réduit au coefficient d'absorption linéique.

La grandeur physique évaluée, par le signal d'absorption, est donc le coefficient d'atténuation linéique, μ_{att} . Ce coefficient est fonction de l'énergie du rayonnement et de la composition chimique de l'échantillon. Elle se mesure grâce à la relation liant la décroissance de l'intensité du rayonnement en fonction de l'épaisseur inconnue de l'échantillon, L , et suivant une loi exponentielle décroissante, la loi de Beer-Lambert (voir équation. (2.3)).

Sur un détecteur pixel l'atténuation linéique est calculée comme le rapport entre la somme de l'intensité mesurée sur chaque pixel avec et sans échantillon. Du fait de la limite en taille du détecteur seule l'intensité du brightfield est mesurée, les photons diffusés au-delà sur détecteur sont ignorés. L'équation (4.1) présente la formule permettant de calculer l'atténuation linéique pour l'épaisseur de l'échantillon à la position (x, y) . Ici, w et h respectivement sont la largeur et la hauteur du détecteur et pixel et pixel^* sont respectivement les valeurs des pixels avec ou sans échantillon.

$$\mu_{\text{att}}(x, y) = -\ln \left(\frac{\sum_{i=0}^w \sum_{j=0}^h \text{pixel}_{ij}}{\sum_{i=0}^w \sum_{j=0}^h \text{pixel}_{ij}^*} \right) \quad (4.1)$$

4.2.3 Le signal de diffusion

Le signal de diffusion est la somme de tous les photons diffusés par l'échantillon et détectés hors du brightfield (G. R. Morrison and Browne 1992; Graeme R. Morrison 1993). L'extraction de cette information consiste simplement à obstruer le centre de l'illumination du détecteur ou à désaxer le détecteur de l'axe du faisceau incident pour ne recevoir que la partie externe à celui-ci. Dans le cas d'un détecteur bidimensionnel dont les dimensions sont plus grandes que le faisceau transmis, il est possible de virtuellement effectuer cette opération en retirant les pixels proches de la zone maximale d'illumination.

Comme vu précédemment il est impossible de séparer de manière rigoureuse les photons n'ayant pas interagis avec l'échantillon des photons diffusés par l'échantillon aux très petits angles (quelques mrad dans les configurations de CX2). Le signal de darkfield, défini comme une intensité, représente une grandeur sans dimension. Cependant à partir du pattern de répartition spatiale du darkfield il est possible d'extraire des informations comme la dimension des structures diffusantes et leurs formes. L'équation (4.2) est la formule permettant de calculer l'intensité du signal de diffusion. w et h sont les dimensions horizontales et verticales de la ROI dans laquelle l'identification des pixels faisant partie du darkfield est réalisée. La recherche des dimensions et des pixels associés au darkfield est traitée dans le chapitre suivant (§5.2.2).

$$I_{\text{dark}}(x, y, z) = \sum_{i=0}^w \sum_{j=0}^h \text{pixel}_{ij} \quad (4.2)$$

Ce signal de diffusion peut être le signe d'éléments chimiques légers et/ou de structures dont les dimensions sont inférieures à la taille du faisceau sur l'échantillon (G. R. Morrison and Browne 1992; Bunk et al. 2009).

Il est également possible d'extraire des informations supplémentaires de ce signal de diffusion comme l'orientation de la diffusion ou la dimension des structures diffusantes. En effet, l'orientation de la diffusion donne une information sur l'orientation des structures vues par le faisceau X. Cette orientation est calculée en intégrant l'intensité du diffusé par tranche angulaire, c'est-à-dire en divisant l'aire d'intégration par angle d'intégration $d\phi$ (Figure 4.c). L'ajustement de l'intensité calculée pour chaque écart d'angle $d\phi$ avec une fonction sinusoïde permet d'obtenir l'orientation de la diffusion. La dimension des structures diffusantes, d , peut être calculée en convertissant la distance dans l'espace réciproque q mesuré sur le détecteur dans l'espace réel avec la relation (4.3).

$$d = \frac{2\pi}{q} \quad (4.3)$$

La distance dans l'espace réciproque se calcule grâce à l'équation (4.4) en connaissant la distance entre l'échantillon et le détecteur l , la dimension des pixels du détecteur p , la longueur d'onde du faisceau λ et la distance entre la bande d'intégration et le centre du pattern d'illumination r .

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{\tan^{-1}\left(\frac{r \times p}{l}\right)}{2}\right) \quad (4.4)$$

4.2.4 Le signal de phase

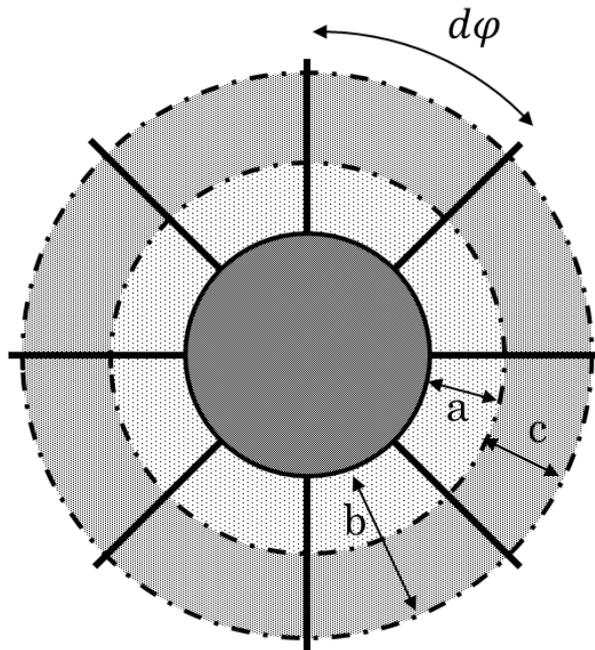


Figure 4.c : Schéma de l'intégration du champ sombre. Le disque du milieu correspond à la zone du brightfield, proche de l'axe du faisceau incident, qui n'est pas pris en compte dans l'intégration du champ sombre. La couche « a » représente un premier niveau d'intégration, « c » un second et « b » la somme des deux. Dans le cas d'un calcul de signal de diffusion suivant q , il est possible d'intégrer sur une ou plusieurs bandes à la fois pour plus de statistiques. Le calcul de l'orientation lui est préférentiellement obtenu de la somme des zones intégrées pour plus de statistiques.

La réfraction ayant lieu dans l'échantillon entraîne une déviation de l'axe du faisceau de photons (Figure 4.d). Cette déviation redistribue le faisceau transmis sur le plan image. À partir de ce pattern d'illumination, il est possible de mesurer un signal de phase en calculant la magnitude de déviation. Celle-ci est produite par un déphasage progressif du faisceau suivant le gradient de la densité électronique projetée de l'échantillon. Cette déflexion n'est observable que si la fluctuation spatiale de l'indice de réfraction est de l'ordre de grandeur du faisceau. L'angle entre l'axe du faisceau incident et le faisceau réfracté est proportionnel au gradient de phase de l'objet et à la longueur d'onde des photons du faisceau (4.5).

$$\alpha(x) = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\delta\varphi}{\delta x}$$

$$\alpha(y) = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\delta\varphi}{\delta y}$$
(4.5)

Du fait que l'indice de réfraction des rayons X dans les matériaux est inférieur à 1, l'angle α du faisceau

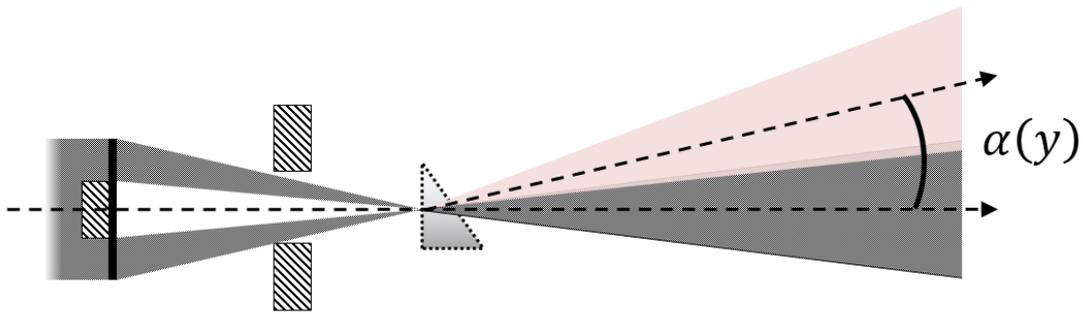


Figure 4.d : Déviation du faisceau incident par l'échantillon. L'angle α entre l'axe du faisceau et le faisceau réfracté permet de mesurer le gradient de phase dans l'échantillon.

réfracté est, contrairement à la lumière visible, orienté dans la direction de la diminution gradient. Cet angle se traduit par un déplacement horizontal ou vertical du faisceau sur le plan image, au niveau du détecteur (4.6).

$$\begin{aligned} \Delta x &= \alpha(x) \times D \\ \Delta y &= \alpha(y) \times D \end{aligned} \tag{4.6}$$

Où D est la distance entre l'objet et le détecteur. Cette distance étant grande (i.e. 3,2m sur CX2) et l'angle petit, on peut utiliser l'approximation des petits angles et réduire $\tan(\alpha) \approx \alpha$. Les déplacements différentiels Δx et Δy du faisceau sont mesurés comme la différence entre le centre de masse du pattern d'illumination avec et sans échantillon (Figure 4.e). Ils représentent les déplacements différentiels par rapport à la position d'origine. Une heuristique présentée dans les parties suivantes est nécessaire pour déterminer la position du faisceau sans échantillon ou par défaut \bar{y} et \bar{x} du pattern d'illumination dans les deux directions (4.7) dans le cas où la position sans échantillon ne serait pas connue. Dans ce dernier cas, une erreur correspondant à l'écart entre la position réelle et calculée d'origine est introduite.

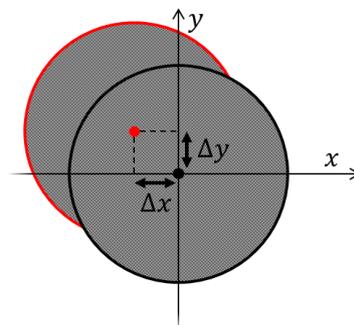


Figure 4.e : Déplacement du faisceau réfracté dans le plan du détecteur. Le point rouge représente le centre du pattern d'illumination réfracté, qui correspond dans cet exemple au centre de gravité, et le point noir la position d'origine. Calculer les distances entre les positions du centre d'illumination à sa position d'origine donne accès au déplacement relatif du faisceau et infini à la valeur du gradient de phase.

À la suite de ces mesures, on obtient les images de gradient de phase $\frac{\delta\varphi}{\delta x}$ et $\frac{\delta\varphi}{\delta y}$ dans les directions x et y. Les grandeurs calculées \bar{x} et \bar{y} sont différentes de 0 uniquement dans le cas où la valeur de la position d'origine du faisceau est inconnue.

$$\Delta y = \left(\frac{1}{\sum_{i=0}^h \sum_{j=0}^w \text{pixel}_{ij}} \sum_{i=1}^h \left[i \sum_{j=1}^w \text{pixel}_{ij} \right] \right) - \bar{y}$$

$$\Delta x = \left(\frac{1}{\sum_{i=0}^h \sum_{j=0}^w \text{pixel}_{ij}} \sum_{j=1}^w \left[j \sum_{i=1}^h \text{pixel}_{ij} \right] \right) - \bar{x}$$
(4.7)

4.3 Le signal de fluorescence X

Nous avons vu dans le chapitre précédent que l'effet photoélectrique peut entraîner l'émission d'un photon de fluorescence X. Ces photons ont des énergies bien précises et sont caractéristiques de l'élément et de la couche du nuage d'électronique de l'élément excité. Ils sont émis dans toutes les directions de l'espace suivant une loi aléatoire uniforme, on parle d'émission isotrope. Ces photons sont enregistrés avec des détecteurs capables de mesurer leurs énergies. Comme le signal est émis dans toutes les directions, plus l'angle solide de détection est grand, plus la quantité de signal enregistré est importante. Plusieurs détecteurs sont donc souvent utilisés pour augmenter cet angle solide de détection.

Le traitement du spectre de fluorescence X est un sujet complexe qui s'étend bien au-delà de ce qui est présenté ici (Grieken and Markowicz 2001). Il implique notamment de modéliser et de soustraire le continuum du spectre, de détecter toute les lignes caractéristiques correspondant à chacun des éléments et de supprimer les artefacts créés par tous les photons n'étant pas issus de l'échantillon comme, par exemple, la fluorescence X du support de l'échantillon. Ici, nous traitons uniquement le cas simple où le signal d'un élément correspond à l'aire sous le spectre et dans un intervalle restreint d'énergie. La calibration du spectre est une étape indispensable pour pouvoir définir les limites de l'aire à calculer pour chaque élément. Cette calibration consiste à définir pour chaque canal l'intervalle d'énergie lui correspondant. Classiquement dans les chaînes de mesures en spectroscopie, il existe une relation de linéarité entre les numéros de canaux et l'énergie, il suffit donc de définir deux points dans le spectre pour calibrer l'ensemble de celui-ci.

L'intégration du signal d'un élément consiste à sommer l'ensemble des canaux sur lesquels s'étend le pic caractéristique de cet élément. La sélection des canaux à sommer se fait au travers d'une ROI. Si plusieurs détecteurs de fluorescence sont utilisés simultanément, il est possible de sommer sur les mêmes plages d'énergies leurs signaux.

4.4 Les signaux de monitoring

4.4.1 Position du porte échantillon

En imagerie par balayage continu, la taille des pixels est définie par la vitesse de translation v et le temps d'acquisition par pixel t (appelé « dwell time »).

$$p = v \times t \quad (4.8)$$

La précision en position, la stabilité de la vitesse et la linéarité d'accélération sont des paramètres clés pour obtenir une cartographie précise. La dimension des pixels dépend de la distance entre deux points imagés dans les directions X et Y. Cette longueur peut varier entre deux pixels générant des pixels de dimensions différentes. Cette non-uniformité, dans la taille des pixels, crée des déformations qui peuvent apparaître dans l'image reconstruite.

Durant l'acquisition les données provenant des codeurs des tables de translation de l'échantillon sont enregistrées. Ces données permettent de suivre le déplacement de l'échantillon. Le repositionnement des pixels consiste à réintégrer l'ensemble des informations de positions de l'échantillon pour créer une grille parfaite sur laquelle les données enregistrées par les autres capteurs de l'acquisition sont repositionnées. Ce processus permet de linéariser les distorsions de l'image initialement non-linéaire au prix de la perte ponctuelle d'informations locales. La grille parfaite Γ (Figure 4.f) est constituée avec les caractéristiques suivantes :

- W est la largeur de la grille. Elle est égale à la largeur entre les points au bord de la zone d'acquisition les moins distants.
- H est la hauteur de la grille. Elle est égale à la hauteur entre les points supérieurs et inférieurs de la zone d'acquisition les moins distants.
- P_w est la largeur d'un pixel. Elle est égale au déplacement moyen de l'échantillon dans la direction horizontale.
- P_h est la hauteur d'un pixel. Elle est égale au déplacement moyen de l'échantillon dans la direction verticale.

Le nombre de pixels de Γ est le rapport entre les dimensions de ces pixels P_w , P_h et la hauteur et largeur W , H . Les paramètres de Γ sont calculés grâce aux équations (4.9) et (4.10). On note que h et w représentent ici le nombre d'échantillonnages en hauteur et en largeur, respectivement, des matrices de positions de l'échantillon. Chaque pixel i, j de Γ est réassigné suivant les valeurs $x_{i,j}$ et $y_{i,j}$ de (4.11).

$$\begin{aligned} W &= \min \left(\max(\text{motor}_x^k)_{k=0 \rightarrow k=h} \right) - \max \left(\min(\text{motor}_x^k)_{k=0 \rightarrow k=h} \right) \\ H &= \min \left(\max(\text{motor}_y^k)_{k=0 \rightarrow k=w} \right) - \max \left(\min(\text{motor}_y^k)_{k=0 \rightarrow k=w} \right) \end{aligned} \quad (4.9)$$

$$P_w = \frac{1}{wh} \sum_{k=0}^h \sum_{i=1}^w |\text{motor}_x^{k,i-1} - \text{motor}_x^{k,i}|$$

$$P_h = \frac{1}{wh} \sum_{i=0}^w \sum_{k=1}^h |\text{motor}_y^{k-1,i} - \text{motor}_y^{k,i}|$$
(4.10)

$$x_{i,j} = \frac{\text{motor}_x^{i,j}}{P_w}$$

$$y_{i,j} = \frac{\text{motor}_y^{i,j}}{P_h}$$
(4.11)

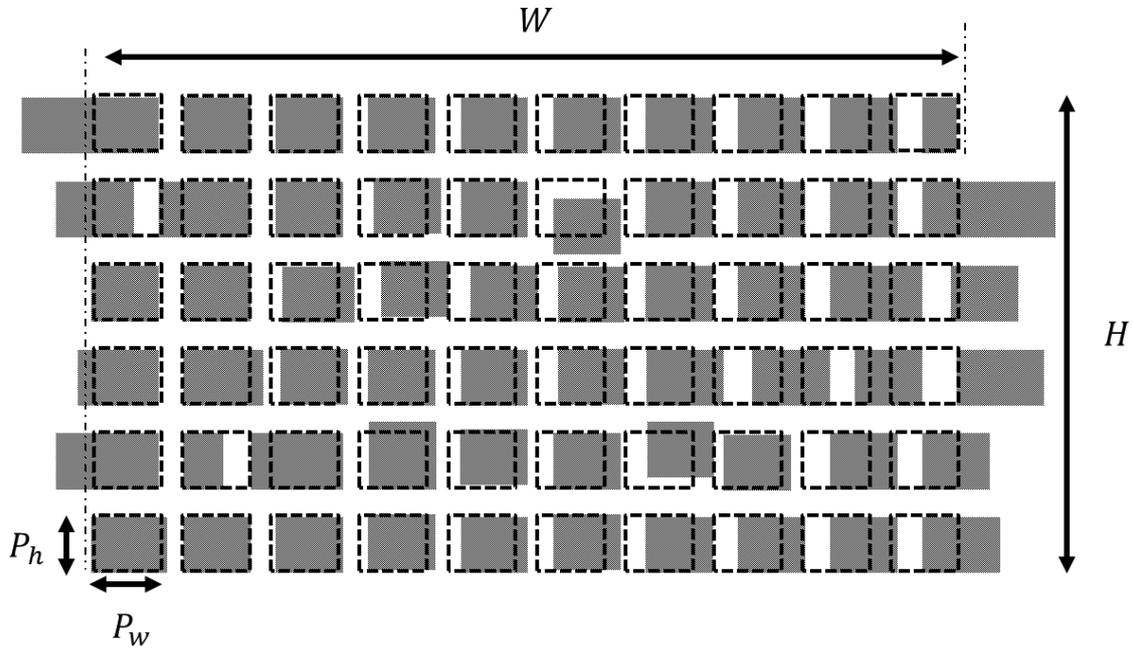


Figure 4.f : Le repositionnement permet de supprimer les déformations non linéaires d'une image. Ici en gris les zones échantillonnées lors de l'acquisition et en pointillé la grille parfaite servant de support de repositionnement. Il est noté qu'une partie de l'information est perdue.

4.4.2 Moniteur d'intensité

Les moniteurs d'intensité sont placés en amont de l'optique de nano-focalisation. Ils permettent de mesurer, simultanément avec les autres instruments, le flux de photons. Cette mesure permet de corriger les éventuelles variations de flux au cours d'une expérience. Les variations peuvent être des dérives lentes, périodiques ou ponctuelles provenant de l'ensemble des acteurs de la production à la stabilisation du faisceau.

4.5 Reconstruction de phase

À partir des données réduites de gradients de phase il est possible de reconstruire la phase elle-même. Nous présentons ici deux techniques, une directe par intégration dans l'espace de Fourier et une intégration par différentiation linéaire itérative.

4.5.1 Méthode par Fourier

Les techniques de reconstructions de la phase par Fourier, se basent sur la propriété de différentiation de la transformée de Fourier (4.12). Ainsi il est possible d'intégrer les gradients $\frac{\delta\varphi}{\delta x}$ et $\frac{\delta\varphi}{\delta y}$ pour obtenir la phase $\varphi(x, y)$ du front d'onde (4.13) (Kottler et al. 2007).

$$F\left(\frac{\partial g}{\partial x}\right) = 2\pi i x F(g) \quad (4.12)$$

Avec F et F^{-1} , les transformées de Fourier directe et inverse.

$$\varphi(x, y) = \text{Real} \left(F^{-1} \left(\frac{F \left(\frac{\delta\varphi}{\delta x} + i \frac{\delta\varphi}{\delta y} \right)}{2\pi i (u + iv)} \right) \right) \quad (4.13)$$

où u et v sont les coordonnées de l'espace réciproque. Seule la partie réelle de la fonction est conservée. La partie imaginaire est un facteur de qualité de la phase reconstruite. Effectivement, les éléments non nuls de la partie imaginaire peuvent être utilisés pour mesurer la fidélité de la phase reconstruite (Holzner 1-Aug-10).

4.5.2 Méthode de Southwell

La reconstruction de phase de Southwell est une méthode d'intégration de gradient linéaire itérative (Southwell 1980). Les approches itératives comme celle-ci sont connues pour être efficaces dans le cas où les gradients à intégrer présentent de fortes discontinuités. La méthode de Southwell consiste en une intégration linéaire des gradients dans les directions horizontale et verticale. À chaque itération la phase φ_{jk}^{i+1} est calculée comme :

$$\varphi_{jk}^{i+1} = \varphi_{jk}^i + w \left(\bar{\varphi}_{jk}^i + \frac{\left(\frac{\delta\varphi}{\delta x_{j,k+1}} - \frac{\delta\varphi}{\delta x_{j,k-1}} + \frac{\delta\varphi}{\delta y_{j+1,k}} - \frac{\delta\varphi}{\delta y_{j-1,k}} \right)}{2} - \varphi_{jk}^i \right) \quad (4.14)$$

où i est l'index d'itération, w le coefficient de relaxation et j, k les coordonnées des pixels. Le coefficient de relaxation w , permettant de faire converger l'algorithme vers une solution, est dépendant du processus de mise à jour de l'algorithme. La méthode de mise à jour Jacobienne met à jour φ_{jk}^i après le calcul de toutes ces valeurs. La méthode Gaussienne elle met à jour φ_{jk}^i après le calcul de chacune de ces valeurs. Le coefficient de relaxation w sera compris dans l'intervalle $]0,1]$ pour la mise à jour Jacobienne et une valeur optimale w_{optimal} pour la méthode Gaussienne. Cette dernière dépend de N le nombre de valeurs dans les gradients de phase.

$$w_{\text{optimal}} = \frac{2}{1 + \sin\left(\frac{\pi}{N+1}\right)} \quad (4.15)$$

4.5.3 Comparaison des algorithmes de reconstruction de phase

La Figure 4.g présente un exemple de reconstruction de phase en utilisant les deux techniques d'intégration décrites ci-dessus. L'objet imagé, lors d'une expérience de microscopie X à balayage rapide, est une tête de mite (Medjoubi et al. 2013). L'image d'absorption (Figure 4.g-C) montre une discontinuité de la phase produite par l'écart d'absorption entre l'échantillon et le porte échantillon (ici presque complètement opaque aux rayons X). Du fait du traitement dans l'espace de Fourier, cette discontinuité, introduit une large variation d'intensité basse fréquence dans l'ensemble de l'image. À contrario, avec la méthode de Southwell, cette variation virtuelle du gradient créé par la discontinuité reste localisée dans la région proche de cette dernière. La Figure 4.g-D montre un profil vertical parcourant la totalité de l'image pour chacune des reconstructions. On peut voir que l'effet de la discontinuité contamine fortement toute l'image reconstruite par la méthode de Fourier alors que celui-ci est localisé dans le cas de la reconstruction de Southwell. La méthode de Southwell présente donc l'avantage d'être plus robuste à ce genre de caractéristique. Cependant la complexité en temps des reconstructions par Southwell est beaucoup plus importante que la méthode de Fourier. Une image de 1 million de pixel comme celle de la mite peut mettre plusieurs minutes à être reconstruite.

Ces deux méthodes d'intégration de phase proposées dans MMX-I permettent à l'utilisateur de faire un choix entre temps de calcul et robustesse du calcul.

La reconstruction quantitative de phase a été étudiée en utilisant la méthode d'intégration par Fourier.

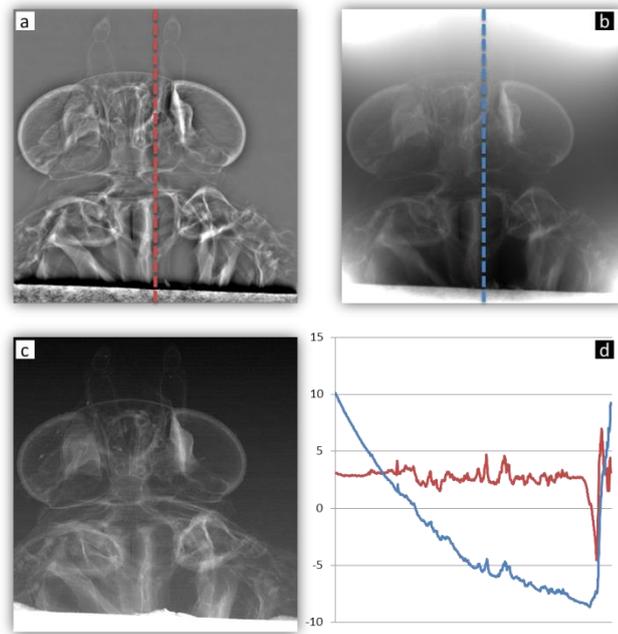


Figure 4.g : Reconstruction de phase d'une tête de mite en utilisant la méthode de Southwell (a) et par Fourier (b). Les profils verticaux de chacune des images sont comparés dans le graphique (d). L'image d'absorption (c) montre une discontinuité entre l'échantillon et le porte échantillon. Cette discontinuité en absorption résulte en une perte du signal de phase.

Pour cela, une image du contraste de phase différentielle en X/Y de fils de nylon a été mesurée à 14 KeV. La relation entre le déphasage φ d'un faisceau de longueur d'onde λ , dans un échantillon d'épaisseur t pour lequel la partie réelle de l'indice de réfraction est δ , peut s'écrire comme :

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} t\delta \quad (4.16)$$

Le diamètre en horizontal et en vertical des fils sont respectivement de 50 et 100 μm . À partir de l'image de phase reconstruite (Figure 4.h-a) et avec l'équation (4.16) il est possible de retrouver le diamètre des fils. Les valeurs de la partie réel de l'indice de réfraction à 14 KeV et la densité du nylon utilisé, pour résoudre l'équation, sont respectivement 1.63×10^{-6} et 1.13 g/cm^3 (Keyriläinen, Fernández, and Suortti 2002). Les épaisseurs calculées sont en accord avec leur valeur nominale. L'erreur sur l'épaisseur reconstruite est d'environ 1 μm RMS. Celle-ci est mesurée à l'extérieur de l'échantillon (l'aire à l'intérieur du carré orange dans la Figure 4.h). En comparaison, l'épaisseur calculée à partir de l'image d'absorption est montrée Figure 4.h-b. Cette image est très bruitée avec un faible rapport signal sur bruit (SNR) comparé à l'image obtenue avec la phase reconstruite. De plus, le bruit mesuré à l'extérieur de l'objet est d'environ 12 μm RMS.

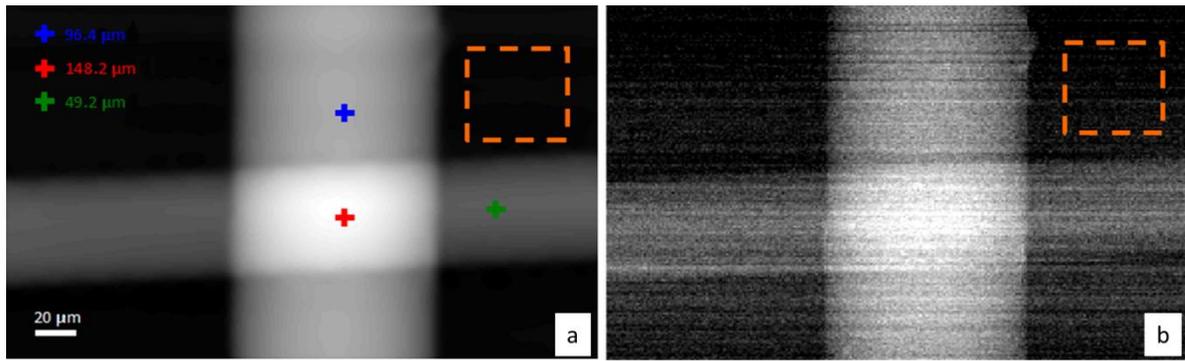


Figure 4.h : Reconstruction quantitative de l'épaisseur obtenu avec les images de reconstruite de phase (a) et d'absorption (b).

4.6 Traitement tomographique

La reconstruction tomographique consiste à reconstruire une matrice K à N dimensions de l'espace, où $N \in [2; 3]$ pour des images, à partir de M projections ($M \in [2; +\infty]$) de celle-ci. Chaque projection est une représentation, à $N-1$ dimensions, de la matrice K suivant une rotation θ autour d'un axe. Dans le cas du STXM, chaque point d'une cartographie est une image du faisceau résultant de la traversée d'un échantillon en ligne droite. Cette configuration correspond à la géométrie de projection en faisceaux parallèles telle que définie pour les images plein champ. Chaque image du faisceau intègre donc les informations des différentes modalités de transmission, vue dans la section 2.2.1, au cours de sa propagation dans l'échantillon. Une projection 1D P_θ s'écrit comme :

$$P_\theta(k) = \int_{\text{rayon}(\theta,k)} f(x,y) ds \quad (4.17)$$

où k est la coordonnée 1D dans la projection P_θ , $f(x,y)$ est la fonction image (ici en 2D) et ds l'échantillonnage de l'intégrale. Cette intégration est effectuée sur le rayon de coordonnée k et de direction θ . Pour la suite nous prendrons les coordonnées comme décrit sur la Figure 4.i.

Les reconstructions tomographiques sont bien connues et décrites dans la littérature (Kak and Slaney 2001). Les algorithmes de reconstruction se regroupent en deux catégories principales, les méthodes analytiques telles que la rétroprojection filtrée (FBP) (Bracewell and Riddle 1967) et les méthodes itératives telles que les techniques de reconstruction algébrique (ART) (Gordon, Bender, and Herman 1970).

4.6.2 Rétroprojection filtrée

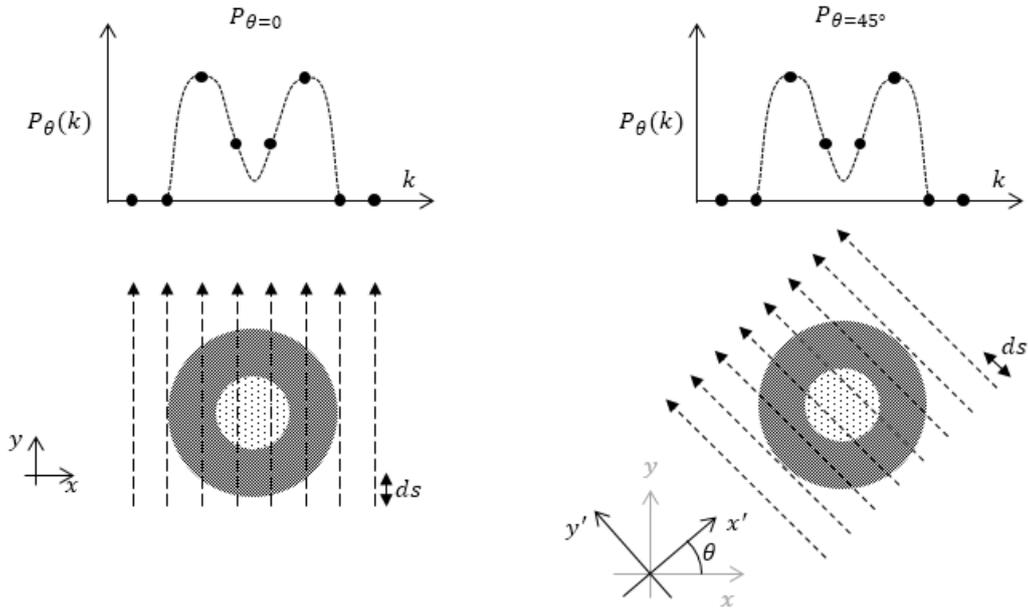


Figure 4.i : Système de coordonnées utilisées pour la reconstruction tomographique. Pour plus de simplicité ici, les projections sont de dimension 1. P_θ est la projection de l'objet à l'angle θ . Chaque ligne intégrale est espacée de dk , intervalle d'échantillonnage de la projection. ds est l'échantillonnage dans le sens d'intégration. θ est l'angle entre le système de coordonnées par défaut et une nouvelle orientation.

La rétroprojection filtrée est le résultat du théorème de la section centrale (Kak and Slaney 2001). Ce théorème découle de la transformation de coordonnées cartésiennes en coordonnées polaires dans l'espace de Fourier. On appelle $f(x, y)$ la fonction image qui décrit, dans l'espace réel, en tous points d'une matrice à deux dimensions. L'équation (4.18) présente l'égalité entre $f(x, y)$ et la transformée de Fourier de $F(u, v)$ qui est elle-même la transformée de Fourier de $f(x, y)$.

Si on introduit le système de coordonnées polaires suivant :

$$f(x, y) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} F(u, v) e^{i2\pi(ux+vy)} du dv \quad (4.18)$$

$$u = w \cos(\theta)$$

$$v = w \sin(\theta) \quad (4.19)$$

$$du dv = w dw d\theta$$

L'équation (4.18) devient alors :

$$f(x, y) = \int_0^{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} F(w, \theta) w e^{i2\pi w(x \cos(\theta) + y \sin(\theta))} dw d\theta \quad (4.20)$$

qui peut se réécrire :

$$f(x, y) = \int_0^\pi \left[\int_{-\infty}^{+\infty} S_\theta(w) |w| e^{i2\pi w(x\cos(\theta) + y\sin(\theta))} dw \right] d\theta \quad (4.21)$$

où $S_\theta(w)$ est la transformée de Fourier de la fonction de projection $P_\theta(k)$. Par symétrie dans l'espace de Fourier il est possible de réduire l'intégrale sur π . La partie entre crochet dans l'équation (4.21) est appelée projection filtrée. Due à la correspondance en coordonnées polaire, la filtration est ici un filtre rampe $|w|$. L'intégration de la projection filtrée sur π ou 2π permet de reconstruire la fonction image $f(x, y)$. Les techniques de FBP ont l'avantage d'être rapides et robustes. Il est également facile d'adapter le filtrage en fonction des quantités physiques imagées, de l'échantillonnage en angle ou du rapport signal sur bruit afin d'améliorer la reconstruction.

L'équation (4.21) et plus particulièrement le terme de filtration $|w|$ est correct si les mesures dans les projections correspondent à l'intégrale du signal au travers de l'échantillon. Dans le cas du contraste de phase différentielle, les mesures dans les projections ne sont pas l'intégrale du signal recherché mais la dérivée de celui-ci. Il faut modifier la reconstruction pour tenir compte de la réalité physique de la mesure. On réécrit la partie entre crochet de l'équation (4.21) comme :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} i2\pi w S_\theta(w) \left[\frac{-i}{2\pi} \operatorname{sgn}(w) \right] e^{i2\pi w(x\cos(\theta) + y\sin(\theta))} dw \quad (4.22)$$

Si on calcule la transformée de Fourier inverse en séparant l'ensemble de l'équation en deux sous partie, on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial P_\theta(k)}{\partial k} &= \int i2\pi w S_\theta(w) \\ \frac{1}{2\pi^2 k} &= \int \frac{-i}{2\pi} \operatorname{sgn}(w) \end{aligned} \quad (4.23)$$

Dans le cas où la grandeur mesurée correspond à $\frac{\partial P_\theta(k)}{\partial k}$ comme pour le contraste de phase différentielle, on réécrit l'intégrale de rétro projection filtrée (4.21) comme :

$$f(x, y) = \int_0^\pi \left[S'_\theta(w) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{-i}{2\pi} \operatorname{sgn}(w) e^{i2\pi w(x\cos(\theta) + y\sin(\theta))} dw \right] d\theta \quad (4.24)$$

Où $S'_\theta(w)$ est la transformée de Fourier de la projection représentant une dérivée de la fonction à reconstruire. On appelle $\frac{-i}{2\pi} \operatorname{sgn}(w)$ le filtre de Hilbert pour la reconstruction directe de la phase à partir de ces gradients.

4.6.3 Les techniques de reconstruction algébrique

La deuxième catégorie d'algorithmes de reconstructions sont les techniques itératives. Nous détaillons ici la technique de reconstruction algébrique (ART). Celle-ci est basée sur la projection et la rétroprojection. Pour modéliser ces processus, la fonction image f_j est discrétisée dans une grille de pixels. Alors que les techniques de FBP reconstruisent le volume en rétroprojetant la projection P_θ après une étape de filtrage, ART modélise également le système de projection qui permet d'obtenir les valeurs de projection (4.25).

$$P_{\theta i} = \sum_{j=1}^N f_j w_{ij} \quad (4.25)$$

f_j est la fonction image à la position j et w_{ij} est la matrice de pondération de la fonction image à la position j et à l'angle i . Le principe des techniques ART est de trouver les coefficients f_j en partant d'un état initial, par exemple nul, pour aboutir à une solution convergente à l'aide d'un processus itératif. Ce processus est une suite mathématique convergente (4.26) :

$$f_j^k = f_j^{k-1} + r \left[\frac{P_{\theta i} - \sum_{j=1}^N f_j^{k-1} w_{ij}}{(\sum_{j=1}^N w_{ij})^2} \sum_{j=1}^N w_{ij} \right] \quad (4.26)$$

Chaque valeur f_j doit tendre vers une constante, le paramètre w_{ij} module cette valeur en fonction de l'angle de projection. Ce paramètre w_{ij} peut-être calculé comme l'aire du pixel j traversé à la projection i pour chacun des rayons (voir Figure 4.j). Le paramètre r est le coefficient de relaxation, il pondère la mise à jour des valeurs de la matrice f à reconstruire. Ce paramètre doit être compris entre $]0,1]$ pour une reconstruction optimale et sert à limiter les erreurs introduites par le bruit présent sur chaque projection.

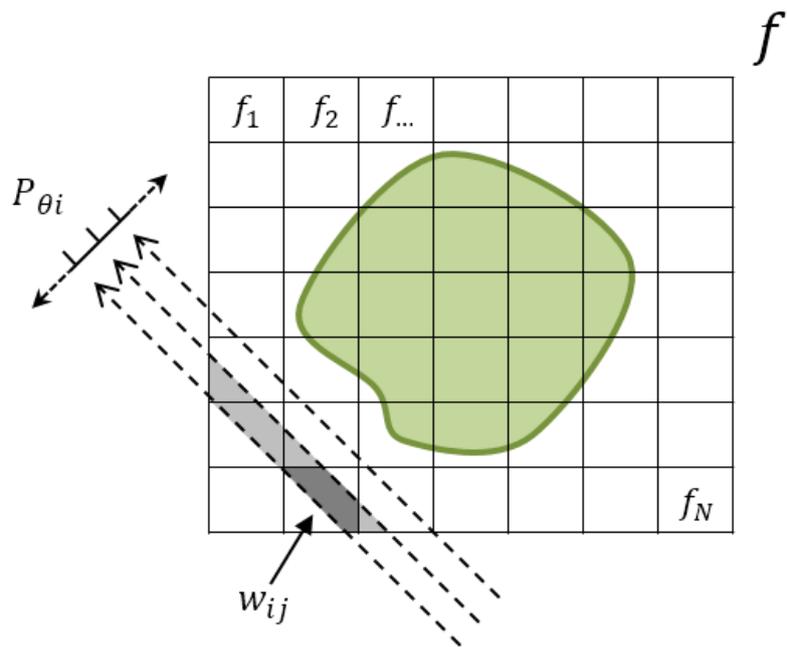


Figure 4.j : Image de la discrétisation de la fonction image f . Le point w_{ij} est calculé comme l'aire d'intersection entre un pixel f_j et un rayon de la projection P_{θ_i} .

Synthèse

Dans ce chapitre nous avons vu les différents traitements nécessaires pour permettre de reconstruire des informations interprétables à partir de données brutes obtenues lors d'expériences de microscopie X multimodale par balayage. Ces informations correspondent à des grandeurs physiques comme l'atténuation du faisceau X par l'échantillon, le gradient de phase ou à d'autres grandeurs d'intérêts associées au darkfield. L'intégration des signaux de monitoring tel que les données codeurs des platines de translation de l'échantillon ou l'intensité du faisceau permettent d'améliorer la qualité des images réduites.

Enfin ces images réduites peuvent être le support d'informations supplémentaires nécessitant une étape supplémentaire de reconstruction. Deux types de reconstructions sont décrits ici, la reconstruction de phase et tomographique. La reconstruction de phase permet de reconstruire la phase de l'épaisseur projetée d'un échantillon à partir des données réduites de contraste de phase différentielle. La reconstruction tomographique permet, elle, de restituer la distribution interne des grandeurs projetées grâce à un système d'acquisition par projection angulaire.

L'ensemble des méthodes présentées dans ce chapitre permettant la réduction, la correction et la reconstruction des données multimodales sont la base de l'implémentation du logiciel que j'ai développé durant ma thèse. L'utilisation de ces méthodes et leur association logique sont parties intégrantes des travaux méthodologiques effectués pendant la thèse.

Références

- Bracewell, R. N., and A. C. Riddle. 1967. "Inversion of Fan-Beam Scans in Radio Astronomy." *The Astrophysical Journal* 150 (November): 427. doi:10.1086/149346.
- Bunk, O., M. Bech, T. H. Jensen, R. Feidenhans'l, T. Binderup, A. Menzel, and F. Pfeiffer. 2009. "Multimodal X-Ray Scatter Imaging." *New Journal of Physics* 11 (12): 123016. doi:10.1088/1367-2630/11/12/123016.
- Gordon, Richard, Robert Bender, and Gabor T. Herman. 1970. "Algebraic Reconstruction Techniques (ART) for Three-Dimensional Electron Microscopy and X-Ray Photography." *Journal of Theoretical Biology* 29 (3): 471–81. doi:10.1016/0022-5193(70)90109-8.
- Grieken, Rene Van, and A. Markowicz. 2001. *Handbook of X-Ray Spectrometry, Second Edition*, . CRC Press.
- Holzner, Christian. 1-Aug-10. "Hard X-Ray Phase Contrast Microscopy. Techniques and Applications." NY: The Graduate School, Stony Brook University: Stony Brook, NY. <https://dspace.sunyconnect.suny.edu/handle/1951/55467>.
- Kak, Avinash C, and Malcolm Slaney. 2001. *Principles of Computerized Tomographic Imaging*. Philadelphia: Society for Industrial and Applied Mathematics.
- Keyriläinen, J., M. Fernández, and P. Suortti. 2002. "Refraction Contrast in X-Ray Imaging." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 488 (1–2): 419–27. doi:10.1016/S0168-9002(02)00442-4.
- Kottler, C., C. David, F. Pfeiffer, and O. Bunk. 2007. "A Two-Directional Approach for Gratingbased Differential Phase Contrast Imaging Using Hard X-Rays." *Optics Express* 15 (3): 1175–81. doi:10.1364/OE.15.001175.
- Medjoubi, Kadda, Nicolas Leclercq, Florent Langlois, Alain Buteau, Stephane Lé, Stéphane Poirier, Pascal Mercère, Marie Catherine Sforza, Cameron M. Kewish, and Andréa Somogyi. 2013. "Development of Fast, Simultaneous and Multi-Technique Scanning Hard X-Ray Microscopy at Synchrotron Soleil." *Journal of Synchrotron Radiation* 20 (2): 293–99. doi:10.1107/S0909049512052119.
- Menzel, A., C.M. Kewish, P. Kraft, B. Henrich, K. Jefimovs, J. Vila-Comamala, C. David, et al. 2010. "Scanning Transmission X-Ray Microscopy with a Fast Framing Pixel Detector." *Ultramicroscopy* 110 (9): 1143–47. doi:10.1016/j.ultramic.2010.04.007.
- Morrison, G. R., and M. T. Browne. 1992. "Dark-field Imaging with the Scanning Transmission X-ray Microscope." *Review of Scientific Instruments* 63 (1): 611–14. doi:10.1063/1.1143820.
- Morrison, Graeme R. 1993. "Phase Contrast and Darkfield Imaging in X-Ray Microscopy." In , 1741:186–93. Proc. SPIE. doi:10.1117/12.138730.
- Southwell, W. H. 1980. "Wave-Front Estimation from Wave-Front Slope Measurements." *Journal of the Optical Society of America* 70 (8): 998–1006. doi:10.1364/JOSA.70.000998.

MMX-I : logiciel de traitement multimodale

Abstract

Ce chapitre présente le cœur de mon travail de thèse, l'implémentation du logiciel MMX-I. Dans une première partie nous introduisons les principes techniques de conception de MMX-I. Puis nous présenterons le processus d'utilisation du logiciel, c'est-à-dire comment les différents traitements présentés dans les chapitres précédents ont été associés dans le logiciel. Dans une seconde partie nous décrivons en détail l'implémentation technique et algorithmique des différentes étapes du processus d'utilisation du logiciel. Cette partie est émaillée des différents algorithmes et méthodes mises en place lors de cette thèse pour traiter les grands volumes de données multimodales. La troisième partie est dédiée à la présentation de l'interface utilisateur du logiciel et enfin la quatrième partie présente l'ensemble des bibliothèques conçues en parallèle de MMX-I pendant la thèse.

5.1 MMX-I philosophie et design

Comme il a été vu dans les chapitres précédents, l'imagerie multimodale réalisée sur Nanoscopium repose sur une stratégie d'acquisition Flyscan (Leclercq et al. 2015) qui permet d'acquérir rapidement (à des fréquences proches du kHz) et simultanément différents signaux uni- ou bidimensionnels. De ce fait les données enregistrées sont d'une part extrêmement hétérogène, que ce soit en termes de modalité, de séquençement d'acquisition et de volume ; et d'autre part, la quantité de données produites lors des expériences menées sur les lignes d'imagerie croît de façon exponentielle. Le développement d'un logiciel ad hoc dédié au traitement des données d'imagerie multimodale par rayons X devient donc nécessaire afin d'extraire les informations recherchées sur l'échantillon analysé. Le logiciel MMX-I (Bergamaschi et al. 2016), que j'ai développé lors de cette thèse, remplit cette fonction car il permet de gérer et d'obtenir des informations 2D et 3D de jeux de données multidimensionnelles de grande taille, facilitant la réalisation de traitements complexes des images et spectres. L'objectif principal de MMX-I était ainsi de permettre aux utilisateurs experts ou débutants de pouvoir traiter et d'analyser ces données directement sur site ou hors site, et ce, quel que soit la modalité recherchée. En effet, MMX-I a été pensé pour être une solution logicielle facile à prendre en main grâce à une interface graphique simple (§5.3) et efficace notamment grâce à son système de lecture original de fichier HDF5 (§5.2.1) ("The HDF Group" 2015). Le logiciel, open-source donc ouvert à la communauté scientifique, est construit de façon à faciliter la participation à son amélioration par les développeurs tiers.

MMX-I est codé en Java car ce langage présente plusieurs avantages qui ont été considérés pour faire ce choix :

- Le code Java peut fonctionner sur toutes les plateformes possédant une machine virtuelle Java sans recompilation ;
- Le logiciel peut être utilisé avec un seul fichier exécutable, qui peut lui-même contenir la machine virtuelle Java ;
- L'application peut être mise en marche depuis une clé USB ;
- Java possède déjà de nombreuses bibliothèques de calcul scientifique sous licence libre ;
- La bibliothèque ImageJ (Schneider, Rasband, and Eliceiri 2012) écrite en Java fournit les fonctionnalités basiques de visualisation des images scientifiques ;
- Java est un des langages le plus utilisé dans le monde, ce qui rend le code pérenne pour sa maintenance et ses possibles extensions.

5.1.1 Architecture générale

MMX-I utilise un pattern de programmation de type modèle, vue et contrôleur (MVC) (Reenskaug 1979) qui est expliqué dans la Figure 5.a. Ce pattern permet de découpler le modèle de la vue et le contrôleur du modèle. Ainsi le modèle peut être modifié sans changer la vue et la vue peut être modifiée sans

changer le contrôleur. Cette architecture permet d'intégrer rapidement des évolutions du logiciel au prix d'un développement initial plus complexe. MMX-I a vocation à être développé de façon collaborative sur une base de code source libre. Le logiciel peut être utilisé comme une application ou une librairie, auquel cas seul le modèle et le contrôleur sont utilisés. MMX-I est publié sous licence MIT (open source), les sources ainsi que la documentation peuvent être téléchargées sur internet (<https://bitbucket.org/antoinebergamaschi/mmx-i>).

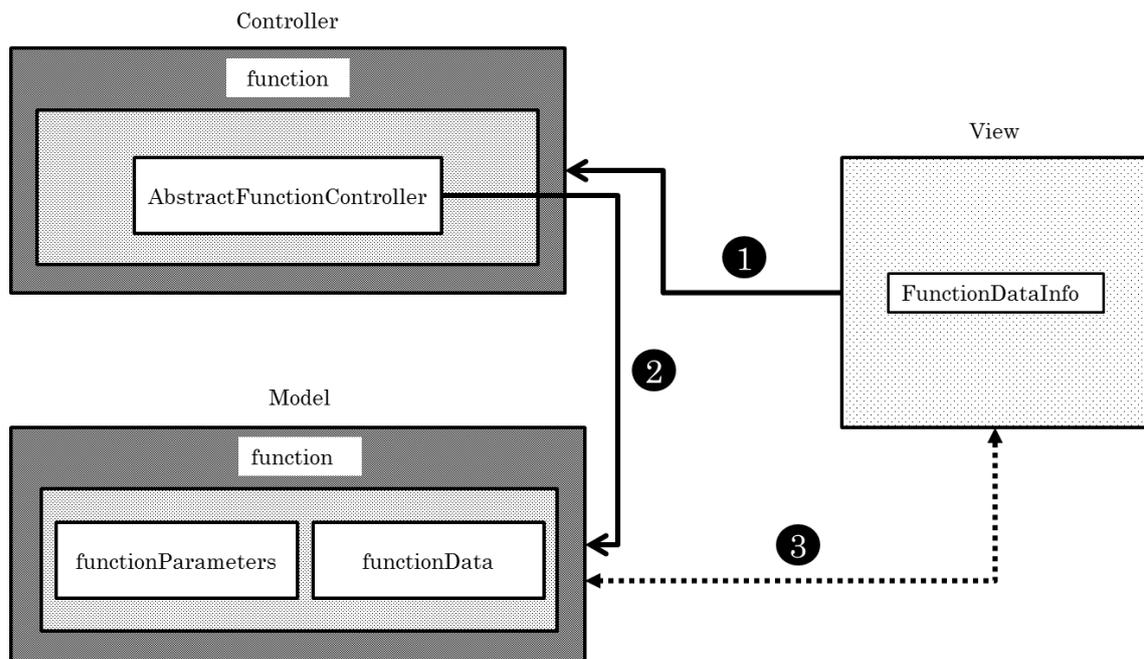


Figure 5.a : Schéma de l'architecture MVC et implémentation pratique dans le logiciel MMX-I. 1 - La vue (View) envoie une requête au contrôleur (Controller). 2 - Le contrôleur utilise le modèle (Model) pour répondre à la requête de la vue. 3 - Le modèle lance des événements permettant de suivre son fonctionnement, ces événements peuvent être interceptés par la vue. FunctionDataInfo, AbstractFunctionController, FunctionParameters et FunctionData sont des prototypes d'objets permettant une structuration MVC.

Comme dit précédemment, l'architecture globale de MMX-I a été pensée pour faciliter le maintien du code et son extension par des développeurs tiers. L'idée principale est de tirer au maximum les capacités du langage de programmation Java en jouant sur les possibilités offertes en termes de pré-compilation, de structure d'objet et d'architecture abstraite. Java est un langage dit objet. Les liens entre objets définissent une architecture qui permet de définir un cadre solide pour la maintenance ou l'évolution du logiciel. Ce cadre est la base de tout développement logiciel dont celui de MMX-I. Afin d'expliquer le plus précisément possible l'implémentation logiciel de MMX-I, nous présentons dans la suite de ce paragraphe une description rapide des concepts de programmation objet.

Un objet est une structure regroupant un ensemble de fonctions et de paramètres. L'association de ces différents objets forme une architecture logicielle. Il est possible d'associer les objets par agrégation, héritage ou par implémentation d'interface. L'agrégation correspond au lien direct d'un objet avec un autre, c'est à dire qu'au moins un des deux objets possède un pointeur vers l'autre objet. L'héritage est

un lien dur entre deux types d'objet, l'objet fils de la relation possède toutes les fonctions et paramètres de l'objet parent. L'implémentation d'interface est un lien faible, seul les 'interfaces' peuvent être implémentées par les objets. Les interfaces sont des objets ne possédant que des fonctions sans corps, c'est-à-dire non implémentées. Un exemple d'une architecture est montré dans la Figure 5.a. Les objets de type *AbstractFunctionController* sont des objets parents destinés à être utilisés en héritage par chacun des contrôleurs spécifiques. Dans la suite lorsque nous parlerons de module, nous ferons référence à un objet fils d'*AbstractFunctionController* par héritage.

La Figure 5.a présente également un schéma de l'interaction modèle/vue/contrôleur du pattern MVC tel qu'il est implémenté dans MMX-I. La vue interroge les *AbstractFunctionController*, ceux-ci ont accès au *SessionObject* qui contient toutes les données en mémoire (voir Figure 5.b). Les contrôleurs peuvent alors effectuer la requête de l'interface sur le modèle. La Vue est mise à jour grâce aux évènements du modèle capturé via les objets *FunctionDataInfo*. Les changements importants du modèle entraînent la création de nouveaux objets *CustomAnalyse*. Tous les objets *CustomAnalyse* sont conservés et permettent de conserver l'historique des modifications du modèle. Dans cette architecture *DataStorage* et *VolatileStorage* sont des structures verrouillées dans le sens où elles ne peuvent contenir que des objets *StackData* par agrégation qui sont eux même strictement définis. Cependant un développeur qui souhaiterait ajouter une nouvelle fonctionnalité au logiciel pourrait utiliser *FunctionDataStorage* et implémenter un nouvel objet par héritage d'*AbstractFunctionData*. L'avantage de cette structure est la simplicité de maintenance et d'implémentation puisque l'écriture d'un seul objet permet d'intégrer celui-ci dans le schéma complexe de l'architecture de MMX-I.

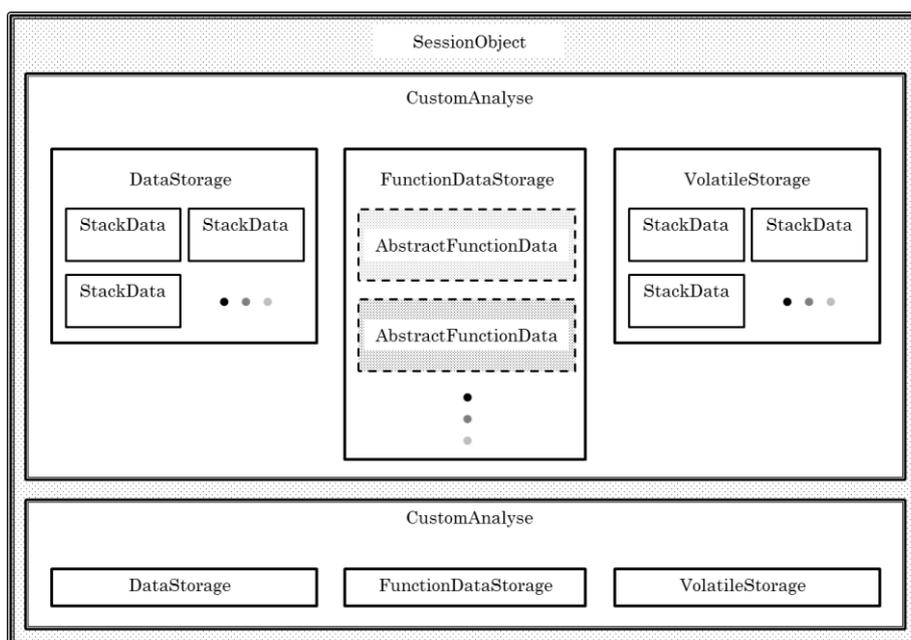


Figure 5.b : Schéma de l'architecture d'archivage des données du modèle. L'objet *SessionObject* contient tous les *CustomAnalyse* créés par l'utilisateur. Chaque *CustomAnalyse* agrège les données calculées par le programme soit temporairement *VolatileStorage* soit définitivement *DataStorage*. L'objet

FunctionDataStorage contient tous les objets AbstractFunctionData dont héritent toutes les implémentations des différentes fonctionnalités de traitement de MMX-I.

5.1.2 Processus d'utilisation du logiciel

MMX-I est conçu pour traiter tout type de données d'imagerie par rayons X. Il peut donc utiliser deux types de données en entrées soit des données brutes de microscopie X par balayage ou des données réduites produites par cette même technique, soit des données de microscopie X plein champ. Les données brutes de microscopie par balayage sont importées uniquement au format HDF5. Ces données brutes doivent être alors réduites avant de pouvoir être utilisées par les autres modules du logiciel.

Les étapes suivantes du processus sont indépendantes (à l'exception de la partie encadrée de la Figure 5.c pour la réduction des données brutes). Les quatre étapes du processus de traitement de MMX-I sont : i) l'importation des données brutes ; ii) la réduction des données brutes ; iii) la correction des données réduites et iv) la reconstruction des données. La Figure 5.c présente l'ensemble des étapes du processus de traitement. Nous allons décrire maintenant étape par étape le déroulement du processus ainsi que toutes les fonctions associées du point de vue de l'implémentation. La physique liée aux mécanismes du contraste ainsi que la théorie concernant les reconstructions ont été détaillées dans le chapitre précédent.

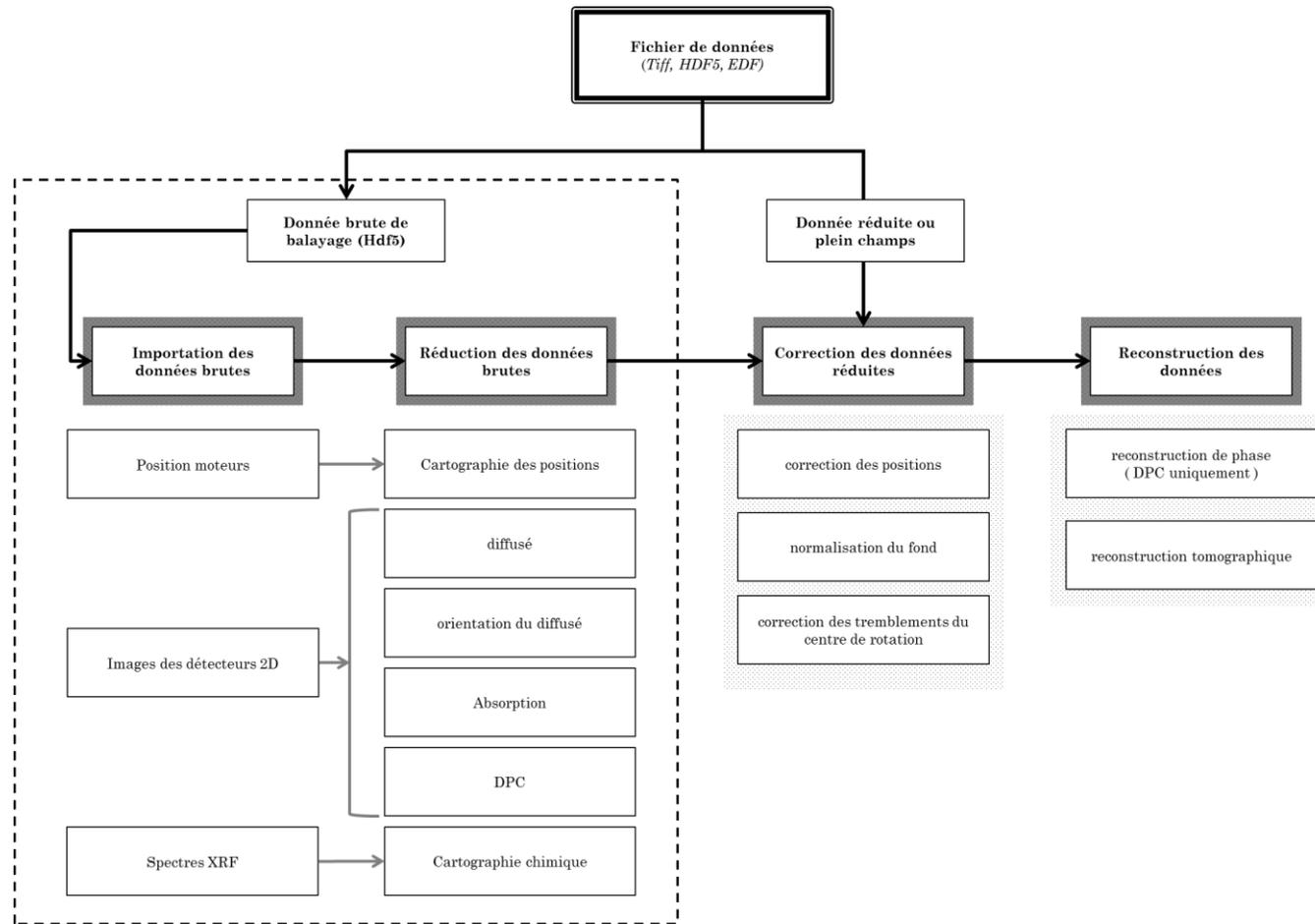


Figure 5.c

: Schéma du processus logique de MMX-I. Les entrées du logiciel sont des données brutes ou réduites. Si les données sont brutes et issues d'une acquisition par balayage, alors les premières étapes sont l'importation des données et leur réduction. Puis les données sont corrigées de la même manière que si elles provenaient d'une acquisition plein champ et reconstruites si possible elles sont issues d'une acquisition tomographique ou correspondent à des images de contraste de phase différentielle.

5.2 Implémentation

5.2.1 Importation des données brutes

Au synchrotron SOLEIL, les données brutes et les métadonnées (comme les paramètres du balayage, l'identifiant de l'échantillon, les paramètres du faisceau ou la date) obtenues durant une acquisition sur une ligne de lumière sont majoritairement enregistrées au format HDF5 ("The HDF Group" 2015) suivant les conventions NeXus (Könnecke et al. 2015). L'architecture hiérarchique du format HDF5 facilite le traitement des données et leur interprétation. En effet, toutes les données, indépendamment de leur type ou de leur dimension, peuvent être sauvegardées dans un fichier unique. Les fichiers HDF5 sont des fichiers binaires et indexés en B-tree (structure d'arbre). En plus d'être auto-descriptif (le fichier contient les paramètres de son encodage), le format HDF5 est presque illimité en taille (i.e. limité uniquement par le système de fichiers). Enfin, le format HDF5 est continuellement amélioré par le HDF Group pour intégrer les derniers drivers et technologies disponibles. MMX-I utilise la version 1.10.patch1¹³ de la librairie HDF5.

L'implémentation de l'architecture Flyscan sur la ligne Nanoscopium permet de produire de façon régulière des fichiers HDF5 de plus de 100 giga-octet¹⁴ (Go). Lire et traiter ces grands fichiers nécessite une grande capacité de mémoire et de puissance de calcul. Ces exigences ne sont généralement pas compatibles avec l'utilisation d'un ordinateur standard ou d'un ordinateur portable. C'est pour cela que l'optimisation des ressources de calcul est une partie centrale de MMX-I. Il faut en effet résoudre le problème de la manipulation de ces grands jeux de données sur un ordinateur standard. Hdf5Opener est l'interface de programmation applicative (API) que j'ai développée pour résoudre ce problème.

Il est impossible de mettre en mémoire l'intégralité d'un fichier HDF5 du fait de sa taille incompatible avec la mémoire vive (*random acces memory* ou RAM) d'un ordinateur. Dans ce contexte, un séquençement entre la lecture du fichier (i.e. mise en mémoire vive) et le calcul sur les données en mémoire devient obligatoire pour permettre de traiter l'ensemble du fichier. Ce séquençement, pour être optimal, doit prendre en compte la différence entre temps de lecture et temps de calcul. Effectivement, il faut éviter que l'une ou l'autre des opérations ait un temps d'attente lié à la réalisation de l'une d'entre elles. Le fonctionnement de Hdf5Opener repose sur le fait que la lecture dans le fichier HDF5 des données qui doivent être réduites prend beaucoup plus de temps que le calcul de la réduction de ces mêmes données. Plus précisément, le système de fonctionnement de Hdf5Opener repose sur une architecture client/serveur où le client est MMX-I par le biais d'un « Hdf5Streamer » et le serveur, l'API « Hdf5Opener ». Cette architecture permet de lire en flux continu et donc efficacement le fichier HDF5. Pour ce faire, Hdf5Opener possède sa propre mémoire et un processus d'exécution indépendant de MMX-I. La Figure 5.d présente le schéma d'interaction entre MMX-I et Hdf5Opener. MMX-I, i.e. le

¹³ Version disponible depuis le 31 Mars 2016

¹⁴ 1Go = 1.000.000.000 Octets = 8.000.000.000 bits

client, envoie des requêtes contenant les coordonnées de lecture du fichier HDF5 via un objet *Hdf5Streamer*. *Hdf5Opener* est en attente permanente de requête, il exécute tous les ordres reçus dans sa queue de lecture (pile FIFO¹⁵) dans l'ordre de réception. Une fois la lecture du fichier HDF5 terminée, les données lues sont stockées dans un tableau et la requête est considérée comme finalisée. Tant que le tableau de stockage est plein (la taille de ce tableau de stockage est définie au lancement de *Hdf5Opener*) le processus de lecture est bloqué. Seul l'objet *Hdf5Streamer* a accès aux pointeurs de ce tableau de stockage et peut donc récupérer les données produites. Une fois les données récupérées par *Hdf5Streamer*, elles sont supprimées du tableau de stockage et les processus de lecture peuvent reprendre.

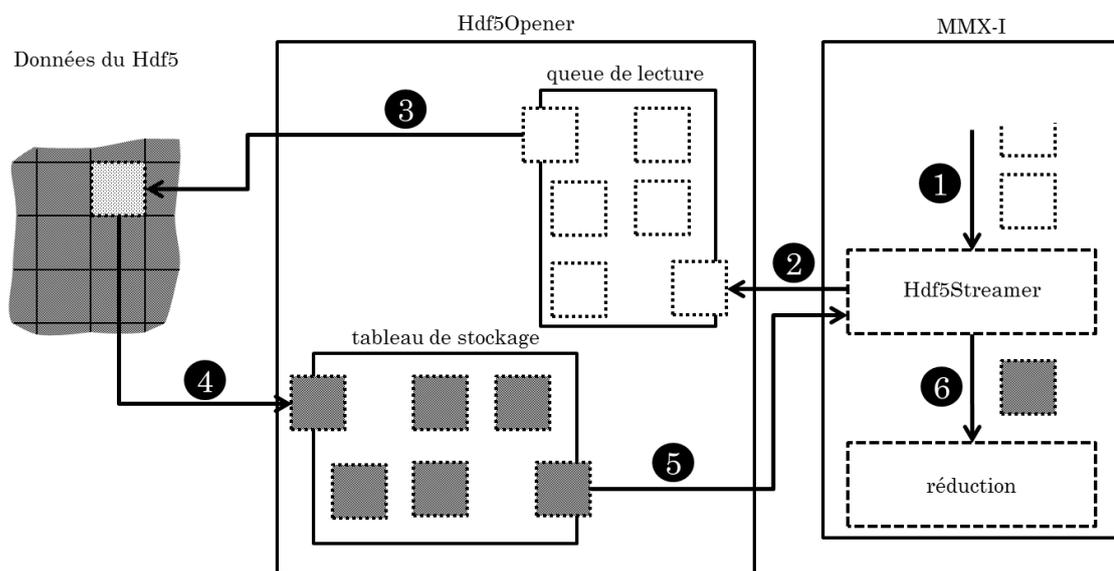


Figure 5.d : Schéma d'interaction entre MMX-I et *Hdf5Opener*. Les carrés représentent les données échangées entre les deux programmes. 1 : Les coordonnées et dimensions des données à lire sont enregistrées dans un objet *Hdf5Streamer* de MMX-I. 2 : Le *Hdf5Streamer* de MMX-I envoie les coordonnées à lire dans la queue de lecture de *Hdf5Opener*. 3 : *Hdf5Opener* utilise les coordonnées envoyées par *Hdf5Streamer* pour lire les données d'un fichier *Hdf5*. 4 : les données lues sont enregistrées dans un tableau de stockage et mises en attente. 5 : *Hdf5Streamer* récupère les données lues par *Hdf5Opener*. 6 : les données sont transférées vers une fonction de réduction de MMX-I.

La librairie *Hdf5Opener* est donc spécialisée dans la lecture de fichier HDF5 mais lit de manière générique chaque fichier. La stratégie d'optimisation de lecture implémentée dans MMX-I consiste à dimensionner spécifiquement, pour chaque fichier et capacité de calcul, chaque bloc envoyé en lecture à *Hdf5Opener*. Cet ajustement se fait grâce à l'objet *Hdf5Streamer* qui contient toutes les caractéristiques de chaque bloc lu. Les blocs sont calibrés à deux niveaux différents de la structure des données (Figure 5.e), au niveau (bas) de l'image du détecteur et au niveau (haut) des positions de l'échantillon dans le faisceau. Dans le cas de technique par balayage avec acquisition de l'image du

¹⁵ FIFO = First In First Out, se traduit par « premier arrivé premier sortie ».

faisceau transmis sur un détecteur bidimensionnel, il apparaît qu'une grande partie du détecteur ne contiennent pas ou trop peu d'informations. Seule une région d'intérêt (ROI) autour du faisceau transmis est alors évaluée. Le dimensionnement du bloc à bas niveau correspond à cette ROI. Cela permet de ne lire qu'une partie des données. Le dimensionnement du bloc à haut niveau est lié aux capacités de calcul. Par défaut la taille de ce bloc correspond au nombre de pixel, dans les coordonnées de balayage, de la dernière dimension du tableau de données stockées dans le fichier Hdf5 (c.-à-d. une image stockée avec les coordonnées dans l'ordre r_{scan} puis y_{scan} puis x_{scan} comme dans la Figure 5.e, aura comme bloc de lecture par défaut le nombre de pixel de x_{scan}).

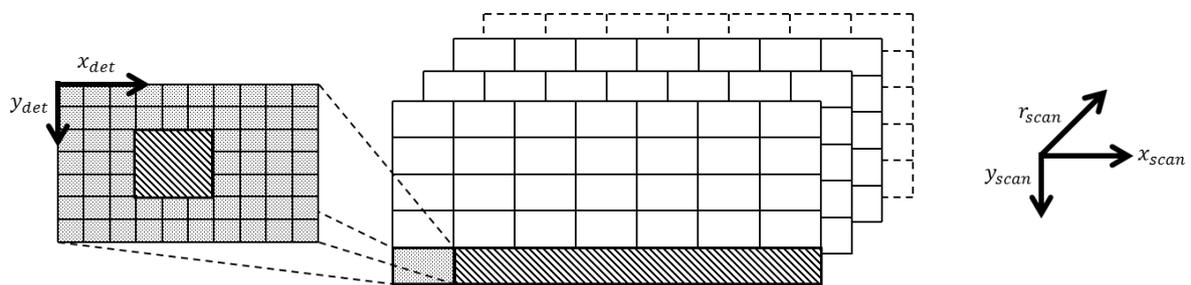


Figure 5.e : Illustration de la lecture partielle d'un fichier Hdf5 par Hdf5Opener suivant les dimensions données par l'objet Hdf5Streamer. Un tableau à 5 dimensions est représenté ici. Les coordonnées de l'image du détecteur sont x_{det} et y_{det} et les coordonnées de balayage sont x_{scan} , y_{scan} et r_{scan} pour les orientations différentes. Les zones hachées sont les coordonnées spécifiées par Hdf5Streamer ; tout le bloc défini ainsi correspond à une lecture dans le fichier Hdf5.

Hdf5Opener peut également s'adapter à l'ordinateur utilisé en dimensionnant son tableau de stockage en fonction de la quantité de mémoire vive (RAM) disponible. Ce tableau sert de buffer d'attente pour les données lues par Hdf5Opener. L'augmentation de la taille de ce buffer influence la dimension des blocs de lecture et le nombre de blocs pouvant être conservé simultanément en mémoire. Plus les blocs de lecture sont grands (en plus d'être contigus) plus la lecture du fichier HDF5 est efficace. L'augmentation du buffer peut également être utilisée pour augmenter le nombre de blocs lus en attente. Dans cette disposition, la lecture sera alors optimisée pour les données où le calcul est plus long que le temps de lecture (i.e. sur des ordinateurs équipés d'un disque dur rapide mais ayant peu de RAM).

5.2.2 Réduction des données brutes

L'étape de réduction consiste à réduire les données brutes de transmission et de fluorescence X en grandeur physique. Cette étape permet d'extraire les images de distribution de composition élémentaire, de contraste de phase différentielle, d'absorption, de diffusion et d'orientation du diffusé. Avant de réduire ces données brutes, une étape de prétraitement est nécessaire. En effet, un travail d'identification, de débruitage et de calibration doit être réalisé.

Prétraitement

Comme vu dans §4.2, l'image du faisceau transmis est séparée en deux zones, la zone dite du faisceau transmis direct et la zone du faisceau transmis diffusé. La zone du faisceau transmis direct est utilisée pour mesurer le contraste d'absorption. Alors que la zone du faisceau transmis diffusé est utilisée pour mesurer le darkfield. On a vu dans §5.2.1 que l'un des moyens utilisés pour accélérer le processus de lecture du fichier HDF5 est la sélection d'une ROI dans l'ensemble de l'image du détecteur (optimisation des blocs bas niveau). Cette ROI peut être définie par l'utilisateur, mais par défaut elle est automatiquement calculée à la première ouverture du fichier HDF5 contenant l'image d'un détecteur 2D comme donnée de transmission. Lors de la première ouverture du fichier, 10% au minimum des données sont scannées. Les données scannées permettent de créer un masque du détecteur séparant le faisceau transmis du diffusé et marquant les pixels défectueux du détecteur. Pour se faire une ROI contenant la zone de faisceau direct et l'image de présence de chacun des pixels sont calculées. La ROI par défaut est calculée en accumulant les ROI_{max} trouvées sur chacune des images (voir Figure 5.f).

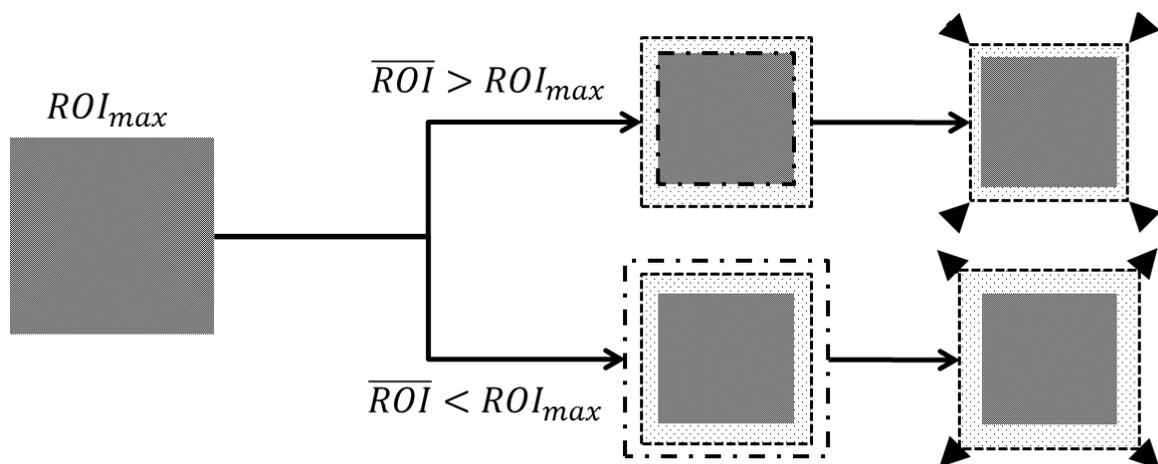


Figure 5.f : Construction de la ROI autour de la zone de faisceau transmis direct. Pour chaque image une ROI_{max} est calculée. Cette ROI_{max} correspond à la zone la plus grande pouvant contenir le faisceau transmis direct. La \overline{ROI} moyenne est accumulée à chaque image, cette ROI est utilisée comme limite de la position maximum. La ROI finale correspond à la plus petite ROI_{max} calculée.

L'image de présence de chacun des pixels est calculée en parallèle comme le pourcentage de présence de chacun des pixels. Un pixel est considéré comme présent si sa valeur numérique est supérieure à un seuil (par défaut 1). Un pixel est compté comme 1 si présent et 0 sinon. La somme de la présence divisée par le nombre d'images utilisées permet de calculer le pourcentage de présence.

L'image de présence et la ROI permet de séparer les pixels en trois classes, les pixels du spot correspondant au point d'illumination (*bright field spot*), les pixels chauds et les autres pixels. Le masque du détecteur créé à cette étape permet d'identifier les pixels à prendre en compte lors du calcul des différentes modalités. Elle est particulièrement sensible car elle engendre des conséquences sur toutes les analyses suivantes.

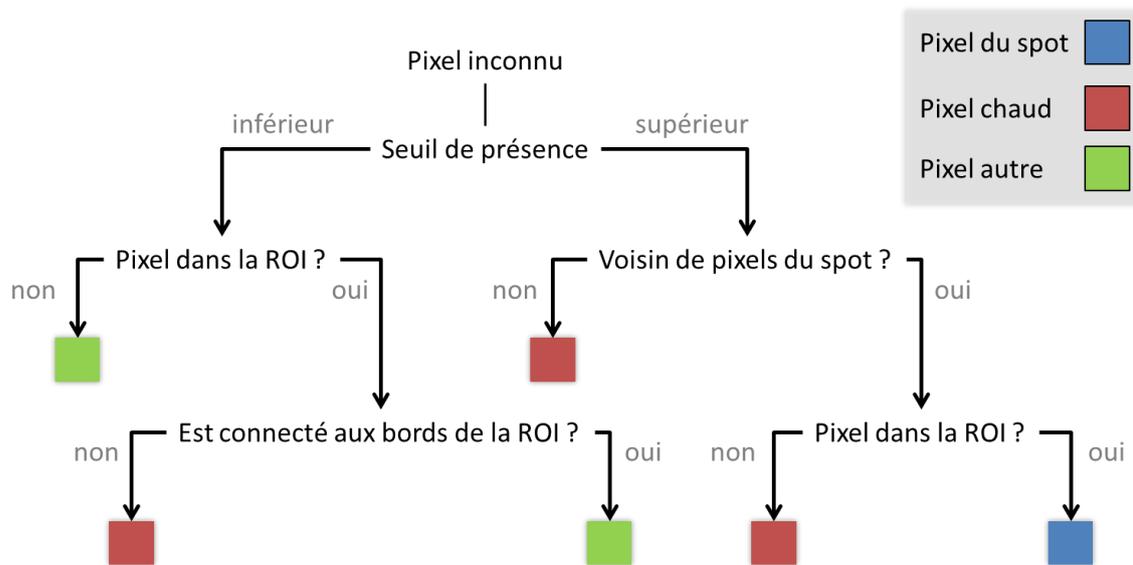


Figure 5.g : Diagramme de décision pour l'assignation des pixels à chacun des types, pixel chaud, pixel du spot ou autre pixel. Après l'étape de seuillage, tous les pixels inférieurs au seuil sont considérés comme autres pixels, tous les pixels supérieurs au seuil sont considérés comme pixel du spot. Ce diagramme est répété plusieurs fois en se basant sur les masques précédemment obtenus pour éviter les biais induits par cette première étape.

L'arbre de décision (Figure 5.g) est utilisé pour séparer les trois classes de pixels. Cet arbre se base sur quatre critères de décision : la valeur minimale de présence d'un pixel, la connexion avec d'autres pixels du point d'illumination, la connexion du pixel aux bords de cette ROI et la position par rapport à la ROI de la zone du faisceau transmis direct.

Le premier critère permet de séparer les pixels en deux classes en fonction de la valeur du pixel, dans l'image de présence, par rapport au seuil de présence. Cette valeur n'est pas une dimension de signal direct mais un comptage de la présence du pixel au-dessus d'un seuil défini par l'utilisateur. Tous les pixels supérieurs au seuil de présence sont considérés comme des pixels du point d'illumination et tous les pixels en dessous sont classés comme autres pixels. Le choix du seuil est particulièrement sensible car c'est la première étape de cet arbre dichotomique. Afin d'augmenter la robustesse du modèle cet arbre est répété plusieurs fois pour chaque pixel.

Le deuxième et le troisième critère sont basés sur la connectivité des pixels. La connectivité d'un pixel est ici calculée à partir de ses 8 voisins. Dans le cas du critère de voisinage d'un pixel marqué

comme pixel du spot, seul les 8 voisins sont évalués. À contrario, dans le cas de la recherche de connectivité au bord de la ROI, une recherche récursive sur chacun des pixels voisins et non marqués comme pixel du spot est réalisée. Le but de ce critère est de déterminer s'il existe un chemin entre le pixel initial et le bord de la ROI sans passer par un pixel du spot. Si un tel chemin existe alors le pixel est classé comme autre, sinon il est classé comme chaud (pixel non utilisé par la suite dans le calcul des modalités).

Enfin, le quatrième critère concerne la localisation du pixel. Ce critère teste si le pixel fait partie de la ROI de la zone du faisceau transmis direct ou non. Il permet de discriminer les pixels chauds des pixels du spot dans le cas où ces pixels ont une présence supérieure au seuil, ou de caractériser les pixels autres dans le cas où les pixels ont une présence inférieure au seuil.

Par la suite les pixels du masque marqués comme chauds ne sont pas utilisés dans l'analyse, ceux marqués comme pixels du spot serviront à construire le contraste de phase différentielle et enfin ceux marqués comme autres pixels serviront à construire l'image du diffusé.

Un mécanisme de suppression des points chauds ponctuels est également implémenté. Contrairement à la création du masque, ce mécanisme est utilisé pour toutes les images issues du détecteur 2D. Le principe est de chercher dans chaque image les pixels significativement différents de leur voisin. Pour cela, un calcul de variance sur les 8 pixels voisins est réalisé sur chacun des pixels et permet de construire la carte de variance (5.1). Un algorithme d'histogramme local est ensuite utilisé sur cette carte pour déterminer la position des pixels chauds (Gonzalez and Woods 2006). Les pixels chauds trouvés dans cette étape sont remplacés par la valeur moyenne des pixels voisins ou supprimés de l'analyse.

$$\sigma_{xy} = \sum_{k \in [x-1; x+1]} \sum_{j \in [y-1; y+1]} (P_{kj} - P_{xy})^2 \quad (5.1)$$

Au chargement du fichier HDF5, les spectres de fluorescence X (XRF) sont sommés afin d'obtenir le spectre de fluorescence X moyen émis lors de l'acquisition. À partir de ce spectre moyen, il est proposé de réaliser une calibration en énergie. La calibration consiste simplement à identifier deux pics sur le spectre moyen (Grieken and Markowicz 2001). Une extrapolation linéaire est ensuite effectuée sur l'ensemble du spectre. Pour reconstruire la carte des éléments chimiques l'utilisateur doit sélectionner sur le spectre les pics correspondants aux éléments qu'il souhaite reconstruire. Des traitements plus poussés sur les spectres XRF tels que la déconvolution et la soustraction du fond sont possibles mais ne sont pas implémentés dans MMX-I. Cependant pour les utilisateurs souhaitant profiter de ces traitements avancés, MMX-I propose de réinjecter les fichiers de calibration et d'analyse du logiciel PyMCA (Solé et al. 2007), un outil avancé de traitement des données de fluorescence par rayons X (XRF).

Réduction

La réduction des données est l'étape suivante. Elle est indissociable de l'importation des données. Indissociable, car une image, telle que celle que nous traitons, peut représenter plusieurs centaines de Go de données. Or, il est impossible, sur un ordinateur standard actuel possédant en moyenne 16-32 Go de mémoire, de conserver en mémoire une si grosse quantité de données. Il est donc nécessaire de coupler l'importation des données brutes et le calcul de réduction des données pour limiter la quantité de mémoire nécessaire au calcul. La Figure 5.h présente un schéma du processus de fonctionnement de la réduction des données. L'architecture décrite ici a pour but de faciliter l'implémentation d'opérations de manipulation des données brutes. C'est dans cette optique, de couplage automatique entre importation des données et de calcul sur celles-ci, que l'architecture entourant l'objet *BasicComputationFunction* a été créée. Cette architecture est composée de l'objet *BasicReadFunction* qui est un prototype parent de l'objet *BasicComputationFunction* et des objets fils par héritage de *BasicComputationFunction* dans lesquels l'implémentation du calcul est faite. *BasicReadFunction* contient toutes les fonctions et paramètres nécessaires pour la lecture des fichiers HDF5. A chaque lecture d'un bloc de données, *BasicReadFunction* appelle les fonctions définies par *BasicComputationFunction* qui elles-mêmes appellent les fonctions définies pour chaque opération de réduction. Les fonctions de réduction sont implémentées dans le logiciel suivant les spécifications précisées dans le Chapitre 4. Une fois les opérations de réduction terminées, l'image réduite est mise à jour avec les nouvelles informations. Cette implémentation permet de maintenir un découplage entre lecture et calcul alors même qu'une imbrication complexe les lie. Chaque prototype d'objet est associé à une fonctionnalité, ainsi *BasicReadFunction* lit les données et gère la mémoire liée à l'utilisation des données. *BasicReadFunction* peut également réguler le processus de calcul en bloquant la récupération des données si la mémoire disponible n'est pas suffisante.

L'objet *BasicComputationFunction* ajoute la parallélisation du calcul ainsi que la gestion des

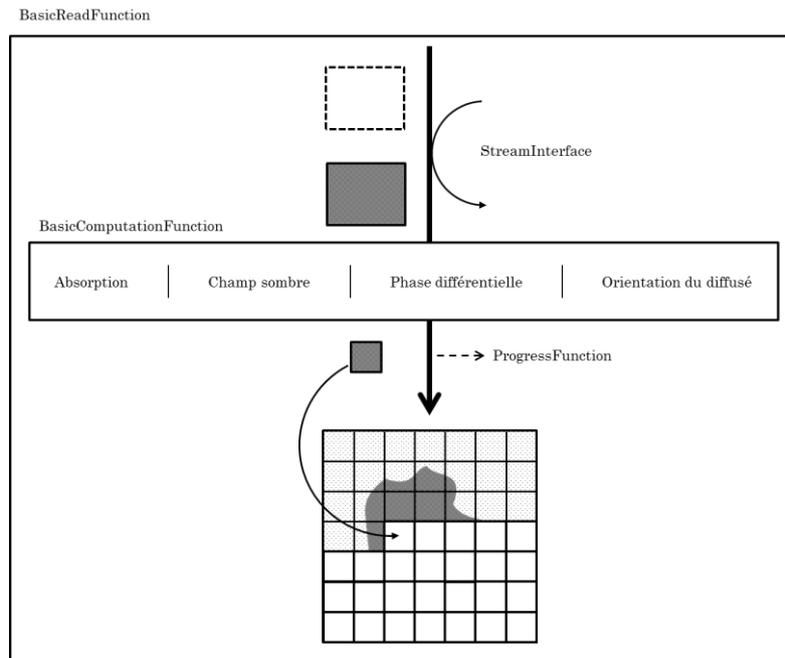


Figure 5.h : Schéma du fonctionnement des fonctions de réduction.

informations des calculs annexes telle que la filtration des pixels avec le masque des pixels (voir §5.2.3). Les objets héritant de *BasicComputationFunction* doivent implémenter la méthode *compute* qui est spécifique à chaque opération de réduction. Cette structuration est complexe mais allège le travail de l'utilisateur souhaitant ajouter de nouvelles méthodes de réduction. La seule action nécessaire étant de créer un nouvel objet héritant de *BasicComputationFunction* et d'implémenter les fonctions obligatoires. Le reste du calcul de réduction, la lecture et la parallélisation sont entièrement automatisés.

5.2.3 Correction des données

Des étapes supplémentaires de correction sont nécessaires pour améliorer la qualité des images. Ces étapes sont applicables aux données réduites, mais également aux données issues d'autres types d'acquisition où le volume des données à inclure dans la mémoire vive le permet tel que l'imagerie plein champ. Ces fonctionnalités sont implémentées dans MMX-I dans une architecture appelée *Function*. L'architecture de *Function* regroupe l'implémentation d'un contrôleur *AbstractFunctionController* et d'un modèle constitué de données *AbstractFunctionData* et du code de calcul *AbstractFunction*.

Implémentation

L'implémentation d'une nouvelle fonctionnalité est réalisée au travers de l'architecture présentée dans la Figure 5.i. Toutes les nouvelles fonctionnalités suivent ce schéma et reposent sur l'utilisation d'annotations fonctionnelles. Les annotations fonctionnelles sont des interfaces en Java, elles sont souvent (comme pour MMX-I) utilisées dans un contexte de génération automatique de code. Les annotations sont utilisées ici pour générer le code nécessaire à l'interaction entre les modules de contrôle, de calcul et de sauvegarde des données. La génération du code est effectuée avec le projet RX-annotation

(voir §5.4). Cette structure permet encore de focaliser les efforts d'implémentation sur l'écriture du code de calcul et de contrôle. L'interaction avec la vue n'est pas présentée dans la Figure 5.i. La vue a uniquement accès à la partie contrôle, cependant l'objet généré automatiquement *FunctionDataInfo* est transmissible de L'*AbstractFunctionController* vers la vue en lecture seule.

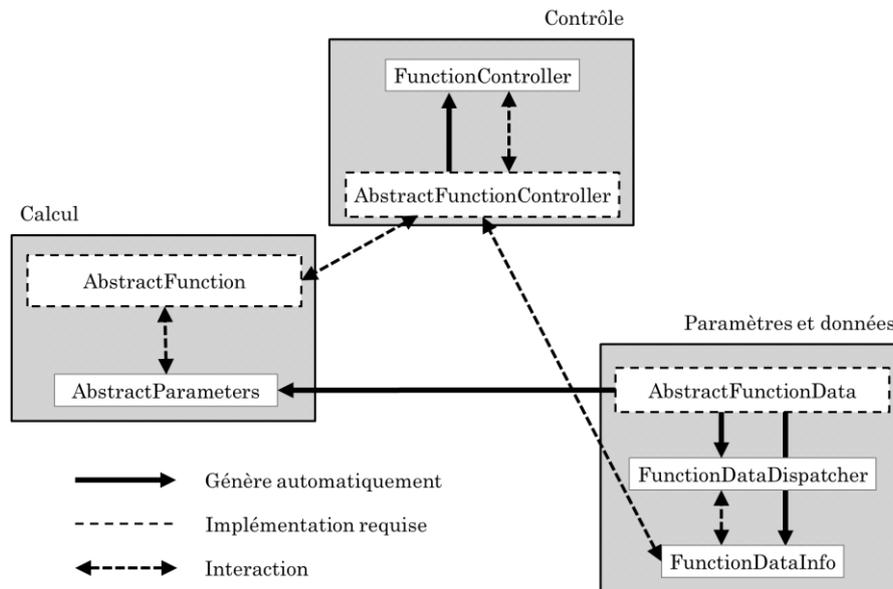


Figure 5.i : Schéma de la structure des fonctions de MMX-I. L'implémentation d'une nouvelle fonctionnalité consiste à écrire trois objets. Chaque objet remplit un but précis, *AbstractFunction* doit contenir le code de calcul, les paramètres et données sont fournis par *AbstractFunctionData* et les fonctions de calcul sont utilisables uniquement via le contrôleur dédié *AbstractFunctionController*. Des annotations fonctionnelles permettent de générer une partie du code servant à l'interaction entre les trois modules rendant le processus d'implémentation plus facile.

Corrections

La correction des données réduites est une étape indispensable pour obtenir des reconstructions avec un haut niveau de fidélité. La correction concerne les variations d'intensité et/ou de position du faisceau durant l'acquisition, les erreurs liées à l'inconstance de la vitesse de déplacement du porte échantillon et aux décalages ou excentricité (ondulation) de l'axe de rotation dans le cas d'acquisition tomographique. La correction s'effectue de la même façon sur des images issues d'acquisition d'imagerie plein champ. Dans le cadre d'acquisitions multimodales chaque modalité peut hériter des paramètres de correction d'une autre modalité.

Correction des erreurs de positionnement du porte échantillon

Dans le cas d'acquisitions par balayage rapide Flyscan (§3.3), l'échantillon est déplacé en continu sur un axe transverse à l'axe du faisceau X pendant que les informations des détecteurs et des codeurs instrumentaux sont enregistrées pour chaque position. L'enregistrement simultané des différents instruments est déclenché par un signal analogique périodique envoyé à tous les détecteurs simultanément. L'axe de déplacement continu avance à vitesse constante sans pause le long de son

parcours. Cependant l'accélération/décélération du moteur, la stabilité de la vitesse et la fluctuation des positions de départ provoquent une distorsion de la dimension de chacun des pixels du scan. En plus de dégrader l'image finale, cette inhomogénéité peut contraindre sensiblement les algorithmes qui requièrent, en postulat initial, des données continues et espacées régulièrement. Comme définie dans la partie §4.4.1, une grille parcimonieuse est créée. La distribution des intensités est ensuite redistribuée sur toute la grille sans utiliser d'interpolation. Toutes les valeurs mesurées sont assignées aux positions auxquelles elles appartiennent dans leur globalité. Cet arrangement crée des trous dans la grille car les valeurs peuvent être trop ou pas assez espacées. Pour cette raison, toutes les positions n'ayant pas reçues de valeur sont linéairement interpolées dans un second temps.

Correction des oscillations de l'axe de rotation

Le principe d'une expérience de tomographie est de mesurer les projections de l'échantillon sous de multiples orientations. Il faut donc faire tourner l'échantillon autour d'un axe, l'axe de rotation, tout en restant dans le champ de vue du faisceau (voir Figure 5.j). Malgré un bon alignement, c'est à dire une bonne coïncidence entre l'axe de rotation et le centre géométrique l'objet, le moteur servant à faire tourner l'échantillon peut introduire une ondulation due à des défauts mécaniques. Ces oscillations sont le fruit d'un désaxage de l'axe de rotation, c'est-à-dire à un angle entre l'axe de rotation et le socle du moteur (voir Figure 5.k). L'oscillation introduite par cet angle est amplifiée avec la distance séparant le socle du moteur à la position de l'échantillon (Figure 5.k).

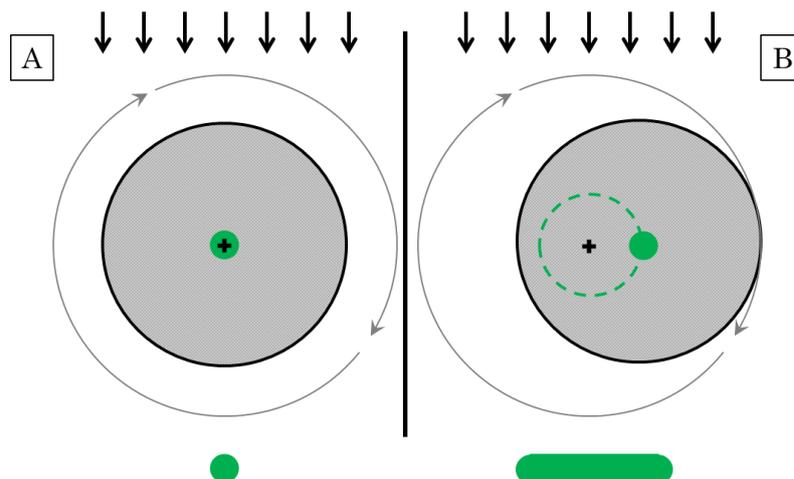


Figure 5.j : Représentation du mauvais alignement d'un échantillon. Ici l'objet, le disque sombre, à son centre de rotation, point vert, qui coïncide avec l'axe de rotation (représenté par une croix noire). La somme des projections sur 360° du centre de rotation de l'objet est représentée sous celui-ci. Dans l'image B le centre de l'objet et l'axe de rotation ne coïncide plus. On peut voir que la somme des projections produit une ligne et non plus un point.

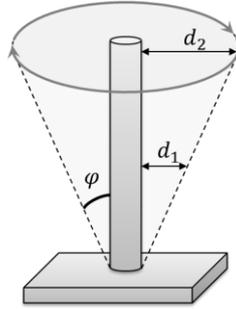


Figure 5.k : Représentation schématique de l'ondulation mécanique introduite par la platine de rotation. Si φ est différent de 0, l'axe de rotation n'est plus perpendiculaire à la platine du moteur. On peut représenter ce désaxage comme un cône. L'erreur introduite est amplifiée avec la distance du support de l'axe (la platine du moteur).

La correction de ces oscillations de l'axe de rotation est la première étape d'une reconstruction tomographique. Outre l'élimination d'artefact survenant dans la reconstruction tomographique, elle permet également de définir la position précise du centre de rotation. L'algorithme de correction que nous utilisons a été décrit par (Azevedo et al. 1990). Cet algorithme se base sur la relation entre le centre de masse d'un échantillon et le centre de masse de ces projections. Le centre de masse calculé de l'échantillon est défini à partir d'une grandeur physique observée dans les projections (i.e. le coefficient d'atténuation). Le centre de masse de l'échantillon est donc un point (dans l'espace réel de l'échantillon) unique, dépendant uniquement de la grandeur physique utilisée dans le calcul du centre de masse. À contrario, le centre de masse des projections est une fonction dépendante de l'angle de projection. Si la masse totale, c'est-à-dire la quantité entrant en jeu dans le calcul du centre de masse, de l'objet est conservée dans les projections alors on obtient la relation suivante :

$$S(\theta) = Cst + \bar{x}\cos(\theta) + \bar{y}\sin(\theta) \quad (5.2)$$

Où S est le centre de masse des projections, \bar{x} et \bar{y} sont les centres de masse dans les directions orthogonales de l'objet et Cst est la constante d'ordonnée à l'origine. Il est alors possible avec une régression trigonométrique de trouver le centre de rotation Cst et les centres de masse \bar{x} et \bar{y} de l'objet. Dans notre cas, nous utilisons également cette régression pour réaligner les projections sur la trajectoire du centre de gravité. La régression est effectuée en 2 temps et en suivant uniquement la variable \bar{x} , car nous discrétisons chaque hauteur Figure 5.1.

Dans un premier temps, nous utilisons le modèle (5.3) pour effectuer la régression sur l'ensemble des hauteurs (chacune des hauteurs étant mise bout à bout).

$$\hat{S}(\theta) = Cst + b\sin(c\theta + d) \quad (5.3)$$

Où $\hat{S}(\theta) = S(\theta) + \sigma$ et σ est une variable de bruit. Ici c et d sont des variables d'ajustement du déphasage et de la propagation de phase. Si θ est connu pour toutes les positions alors ces paramètres ne sont pas indispensables et peuvent être initialisés. La différence $\hat{S}(\theta) - S(\theta)$, entre les centres de masse respectivement des projections théoriques et calculées, permet de calculer un ajustement à appliquer sur chaque projection. Cet ajustement se traduit par un décalage, entier ou flottant, sur l'axe x de la

projection (les nouvelles valeurs créées sont initialisées à 0 pour ne pas influencer le calcul du centre de masse). Pour stabiliser l'algorithme et le rendre robuste au bruit, l'ajustement est implémenté de façon itérative (5.4), la première étape de régression est par default répétée jusqu'à 1000 fois.

$$\hat{S}^{i+1}(\theta) = S(\theta) + w(\hat{S}^i(\theta) - S(\theta)) \quad (5.4)$$

Où w est le coefficient de relaxation, compris entre $[0,1[$.

La deuxième partie consiste à séparer les différents sinogrammes (1 par hauteur) et à faire une nouvelle régression plus fine. Cette dernière permet de corriger pour chaque altitude les effets de désaxement de l'axe de rotation. Cette dernière étape est nécessaire car nous ne prenons pas en compte le paramètre \bar{y} dans la régression (5.3).

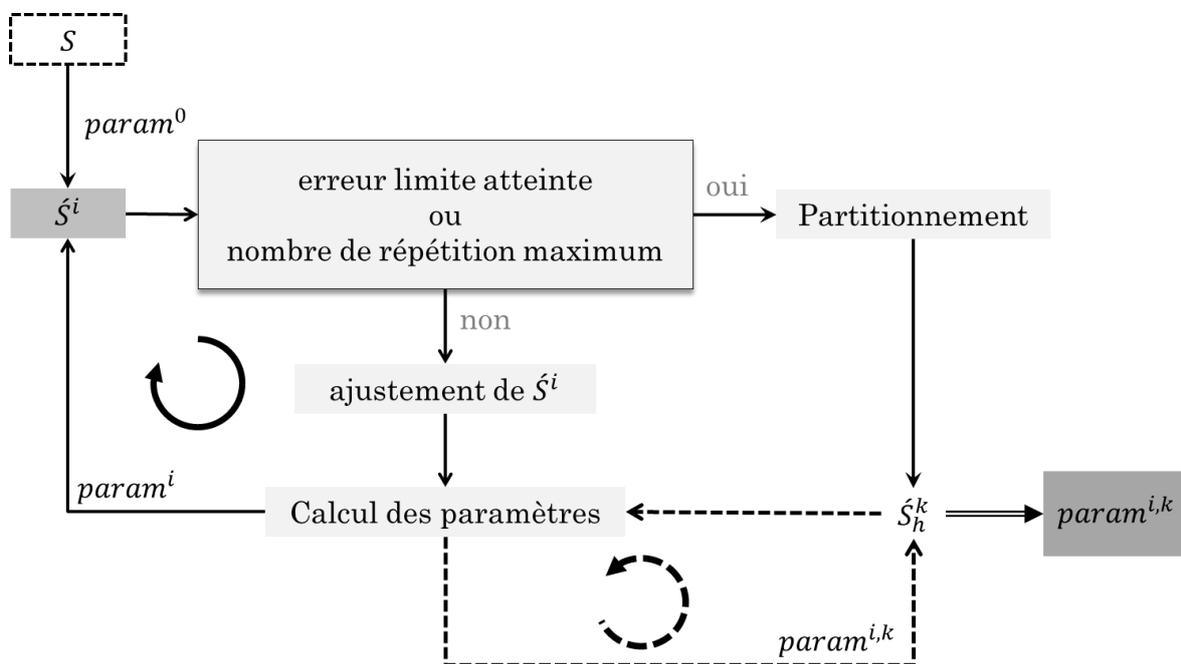


Figure 5.1 : Algorithme de correction du sinogramme. Les centres de masse des projections permettent de calculer S . \hat{S} est calculé comme la régression de S par le modèle (5.3). \hat{S} permet également d'ajuster le centre de masse des projections pour s'approcher des valeurs théoriques parfaites. Cette opération est répétée N fois jusqu'à atteindre soit une limite d'erreur soit le nombre maximum de répétition. Les données sont ensuite partitionnées en hauteur et les sinogrammes de chaque hauteur sont calibrés individuellement. Finalement les paramètres de régression sont extraits pour calculer le centre de rotation.

La correction des oscillations avec la technique de (Azevedo et al. 1990) n'est applicable que dans le cas où le lien entre le centre de masse de l'objet et des projections sont en accord. En imagerie par rayons X, la modalité d'absorption est la seule à remplir entièrement cette condition, cependant dans le logiciel, la correction n'a pas été bloquée sur cette seule modalité pour plus de versatilité.

Correction des variations du fond

Les instabilités du faisceau engendrent une fluctuation du signal mesuré au cours d'une acquisition. La normalisation des données permet de s'abstraire de ces fluctuations dans les images et d'avoir une

échelle absolue. La normalisation permet par exemple de passer d'une mesure de fluctuation d'intensité à une échelle d'atténuation linéique. Suivant les modalités, la normalisation est calculée et appliquée de différentes façons. Mais le principe reste le même : isoler l'objet d'intérêt de son environnement et soustraire la contribution de l'environnement pour ne conserver que celle de l'objet. La détection de l'environnement d'un objet (zone hors objet) automatique est un problème extrêmement complexe. Du fait de cette complexité, la normalisation peut être faite manuellement, en modifiant les images avec ImageJ, ou automatiquement avec un algorithme de normalisation. L'algorithme présenté ici, est un algorithme de normalisation par recherche de bords, qui ne fonctionne donc que dans le cas où l'objet d'intérêt peut être dissocié des bords de l'image.

L'algorithme de normalisation utilisé dans MMX-I permet dans un premier temps de dissocier deux zones dans l'image, une zone correspondant au fond et l'autre à l'objet. Dans le cas idéal la zone de l'objet définit les bords précis de celui-ci. En réalité pour des raisons de minimisation de l'erreur il est préférable de minimiser la zone de fond et donc maximiser la zone de l'objet de façon à ne jamais utiliser l'objet pour normaliser l'image. La discrimination entre la zone de fond et l'objet est réalisée grâce à une analyse du gradient de signal sur chaque ligne de l'image (5.5). Pour chaque pixel, P, de chaque ligne, l'algorithme calcule le gradient dans la direction de déplacement, P', sur une fenêtre de n valeurs. L'utilisation de n pixel pour une valeur de gradient permet de moyenniser le signal du gradient dans le cas d'une image bruitée.

$$P'_j = \sum_{k=i}^{i+n} P_{k+1} - P_k \quad (5.5)$$

Un seuil est alors défini à partir de l'analyse des valeurs du gradient de l'ensemble d'une ligne, ce seuil est la plus petite valeur parmi 50% des plus hautes valeurs du gradient (percentile 50 des valeurs du gradient). La position de l'interface objet/fond est ensuite déterminée comme la position de la première valeur de gradient restante dans les deux sens possibles. Dans un second temps une moyenne est faite sur le fond détecté pour chaque ligne. Cette moyenne est ensuite soustraite (pour les modalités de darkfield, de fluorescence et de contraste de phase différentielle) ou divisée (pour l'absorption) à chacun des pixels d'une image.

En plus de cette normalisation, les images de contraste de phase différentielle sont également normalisées une seconde fois. Effectivement, les images de phase différentielle dans la direction X ou Y doivent avoir théoriquement une valeur moyenne nulle dans leur direction respective. Dans la réalité il est possible d'avoir un écart avec la valeur nulle, pour des petites images ou si l'objet est en partie en dehors du champ de vue. On peut estimer que la distribution des valeurs de déplacement du faisceau autour de la position nulle dans les directions X, Y est gaussienne. Un ajustement des déplacements sur une fonction gaussienne est donc réalisé. À l'aide de cet ajustement, les valeurs extrêmes sont supprimées et la valeur moyenne est déplacée vers la valeur nulle par soustraction.

5.2.4 Reconstruction des données

Les techniques de reconstruction consistent à récupérer, par le biais de méthodes mathématiques, des informations contenues dans un objet à partir de données partielles générées à partir de lui. Dans MMX-I la reconstruction des données est séparée en deux modules, la reconstruction de la phase et la reconstruction tomographique. La phase reconstruite peut également faire l'objet d'une reconstruction tomographique. Les fonctions de reconstruction sont implémentées comme les fonctions de correction dans l'architecture *Function* de MMX-I (voir §5.2.3 Implémentation), nous ne reviendrons donc pas dans ce chapitre sur l'implémentation Java mais plutôt sur les parties spécifiques aux méthodes de reconstruction de phase et de reconstruction tomographique.

Reconstruction de la phase

La reconstruction de la phase consiste à intégrer les signaux de phase différentielle dans les directions orthogonales X et Y. MMX-I offre la possibilité de reconstruire la phase avec une intégration dans l'espace réel (méthode de Southwell) ou dans l'espace de Fourier (voir §4.5).

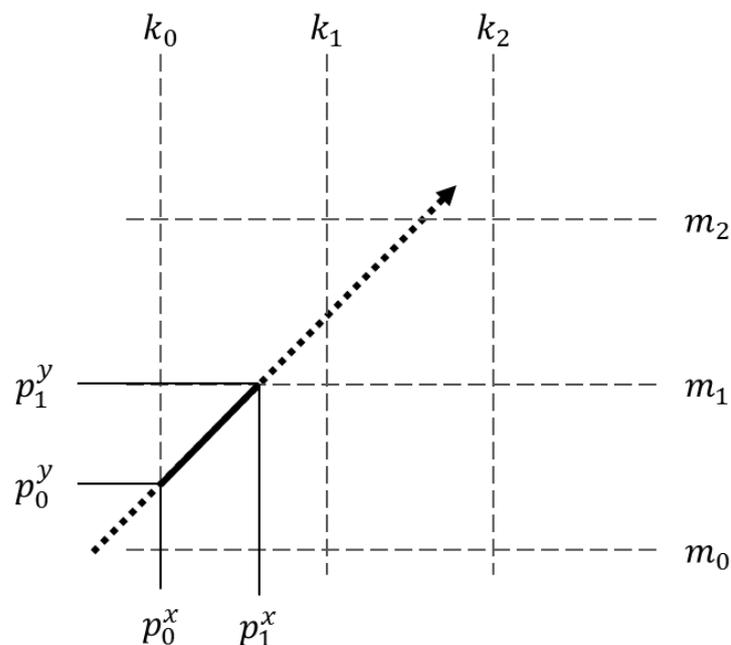
La méthode de Southwell dans l'espace réel est une intégration itérative des gradients de phase. La méthode consiste, à chaque itération, à calculer une matrice intermédiaire contenant le résultat de l'intégration des gradients pour chacun des points. Puis de dériver cette matrice dans les directions d'intégration pour obtenir la matrice dérivée, c'est-à-dire faire l'inverse de l'étape précédente. La matrice résultat est enfin calculée comme la somme de la matrice résultat de l'itération précédente, ou 0 si c'est la première itération, additionnée à la différence calculée entre la matrice dérivée et les gradients mesurés (voir §4.5.2). La différence calculée tend progressivement vers zéro à mesure que la matrice résultat tend vers la reconstruction finale. Deux méthodes de résolution de cet algorithme ont été implémentées, la méthode Jacobienne ou la méthode Gaussienne. Les deux méthodes produisent des résultats très similaires mais la méthode Gaussienne converge moins rapidement. Les deux méthodes diffèrent par le moment auquel la matrice résultat est mise à jour. Dans la méthode Jacobienne la matrice résultat est calculée lorsque la matrice intermédiaire est complètement calculée. A l'inverse la méthode Gaussienne met à jour la matrice résultat à chaque fois qu'une valeur de la matrice intermédiaire est calculée. Malgré le fait que la méthode Gaussienne demande plus de calculs avant de converger vers la reconstruction finale, c'est elle qui est utilisée par défaut dans MMX-I. Car la méthode de mise à jour de cette méthode permet de ne conserver en mémoire que la matrice résultat alors que la méthode Jacobienne nécessite d'avoir en mémoire la matrice intermédiaire en plus. Cette différence est particulièrement importante pour la mise en place de traitement parallèle de l'algorithme, c'est-à-dire si plusieurs projections doivent être reconstruites simultanément, comme dans le cas d'une acquisition tomographique. Le traitement parallèle permet des gains très importants de vitesse de calcul grâce à l'optimisation des capacités de calcul d'un ordinateur. Ici la méthode Jacobienne peut-être parallélisée soit par le calcul simultané de plusieurs projections, soit par une parallélisation du calcul sur une

projection (cette parallélisation n'a pas été implémentée dans le logiciel). Dans le premier cas, le coût en mémoire pour calculer parallèlement n projections est proportionnel à $2*n$. La méthode Gaussienne quant à elle n'est pas parallélisable sur une projection, mais permet de calculer en parallèle n projections pour un coût en mémoire proportionnel à n . Dans le but de rendre le logiciel compatible avec les plus petites configurations d'ordinateur la méthode Gaussienne est donc préférable à la méthode Jacobienne.

L'intégration dans l'espace de Fourier correspond à la double intégration de deux grandeurs orthogonales. MMX-I utilise la librairie ParallelColt¹⁶ pour le calcul de la transformée de Fourier discrète. Du fait du calcul dans l'espace de Fourier, des artefacts peuvent apparaître si les images ne sont pas correctement encadrées et apodisées (voir §4.5.3). Pour limiter ces artefacts, deux types d'encadrement et d'apodisation sont proposés dans le logiciel suivant les spécifications de Bon et al. (Bon, Monneret, and Wattellier 2012). Elles consistent en l'extension de la dimension des images de gradients en une image de gradients 4 fois plus grande. La construction de cette image est réalisée soit en utilisant une symétrie de miroir (MDI), soit en anti-symétrisant les gradients (ASDI).

Reconstruction tomographique

La reconstruction tomographique permet de récupérer les informations s'accumulant lorsqu'un rayon traverse un objet. À partir d'une collection d'images de projection, contenant les valeurs d'accumulation, prise sous différentes orientations, il est possible de retrouver ces informations. On sépare deux types de reconstructions tomographiques, les rétroprojections filtrées et les reconstructions algébriques (voir §4.6).



¹⁶ <https://sites.google.com/site/piotrwendykier/software/parallelcolt>

Figure 5.m : Modélisation du parcours d'un rayon dans le volume de l'objet. L'algorithme consiste à chercher le point d'intersection p du rayon avec un des axes entiers du volume (k ou m). Une fois le point d'intersection trouvé il est possible de calculer l'aire sous la courbe ou uniquement la longueur du segment dans le pixel.

Dans le but de développer de nouvelles techniques de reconstruction (voir §7.3), j'ai développé mon propre algorithme de reconstruction tomographique. L'algorithme utilisé pour le parcours dans le volume s'apparente au tracé de rayon classique, où chaque paire de point d'intersection entre le rayon et la grille du volume correspond à une distance de propagation dans un pixel (on parle ici de pixel car seulement une hauteur du volume est traité par tracé de rayon) (Figure 5.m). Cet algorithme est utilisé à la fois pour simuler la projection et la rétroprojection nécessaire à tous les algorithmes de reconstruction itératif.

Cependant, cet algorithme ne bénéficie pas de l'optimisation GPU qui diminue grandement (au moins d'un facteur 10) le temps nécessaire à une reconstruction. C'est pour cette raison que la librairie TomoJ est actuellement utilisée pour effectuer les reconstructions dans le logiciel.

5.3 Interface utilisateur

MMX-I intègre une interface graphique permettant de réaliser et de paramétrer toute les opérations implémentées dans son modèle. Une interface modulaire plus ambitieuse appelée FXview (voir §5.4) est en cours de développement et en conséquence ne sera pas présentée ici. L'interface graphique actuellement opérationnelle est construite en utilisant les composantes SWING de Java. Elle est structurée autour de volets se succédant en suivant le schéma logique d'utilisation de MMX-I.

Le premier volet permet de visualiser et de sélectionner les données brutes à réduire par la suite. Dans le cas d'imagerie par balayage avec un détecteur pixel une image du détecteur est affichée (voir encadré vert Figure 5.n). Sur cette image l'aire contenant la zone d'illumination du faisceau est dessinée en jaune. Dans le cas d'acquisition de spectres de fluorescence, le spectre somme est affichable pour chacun des canaux d'enregistrement du détecteur (voir encadré rouge Figure 5.n). Il est possible de naviguer dans les données du fichier HDF5 en utilisant le curseur sous la zone de représentation des spectres de fluorescence X. Les options de ce premier volet permettent par exemple de sélectionner les moteurs à utiliser pour corriger les positions des pixels, de calibrer les spectres de fluorescence X ou encore de sélectionner les zones du spectre de fluorescence X à intégrer. L'interface permet également de personnaliser les paramètres des différents algorithmes de traitement des données brutes ou de détection de la zone d'illumination.

Le deuxième volet est dédié à la visualisation rapide du fichier HDF5 et du paramétrage des opérations de réduction. Les configurations possibles sont, la sélection d'une ROI de réduction, le paramétrage des options de recalage des pixels, la définition de la géométrie d'acquisition et la possibilité de sous-échantillonner la réduction des données pour un calcul plus rapide.

Le troisième volet permet de sélectionner les modalités (absorption, darkfield, phase différentielle, fluorescence) à reconstruire. Les options de ce volet permettent également de définir les régions de darkfield à intégrer et de paramétrer le calcul du contraste de phase différentielle et les méthodes de reconstruction de la phase.

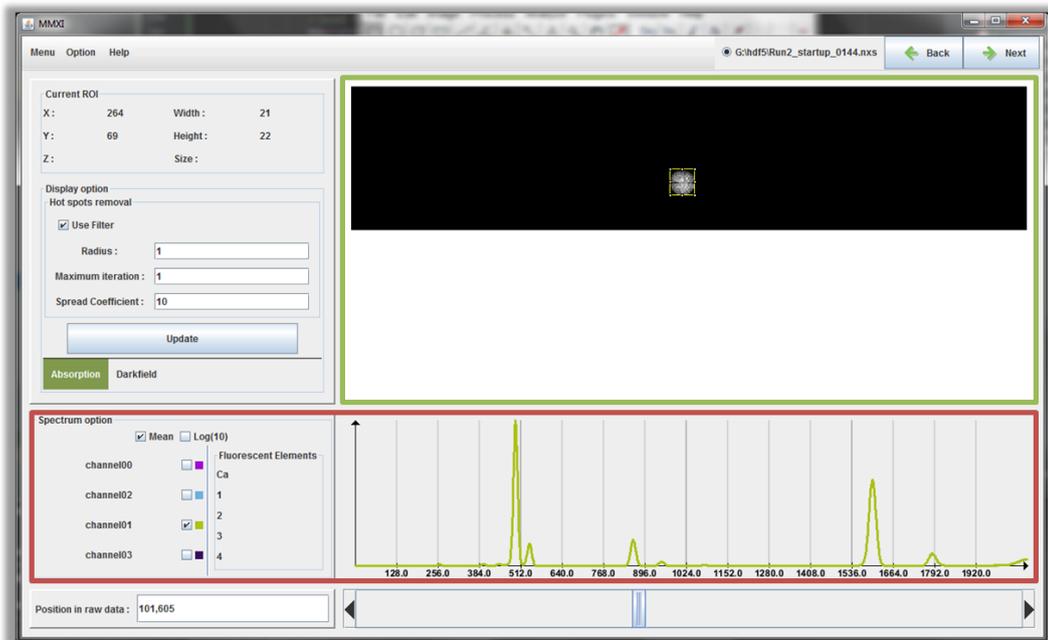


Figure 5.n : Premier volet de l'interface basique de MMX-I. Les données brutes issues de détecteur pixel sont affichées dans le rectangle vert. Les données brutes des détecteurs résolus en énergie sont affichées dans le rectangle rouge.

Le quatrième volet est le volet permettant de réaliser les opérations de correction des images réduites. Deux onglets sont disponibles, le premier est l'onglet de normalisation de l'image et le second de correction de l'axe de rotation.

Enfin le cinquième et dernier volet est le volet permettant la reconstruction tomographique des images (uniquement dans le cas d'acquisition tomographique). Ce volet permet de choisir entre les méthodes de rétroprojection filtrée ou non et les méthodes de reconstruction algébrique.

5.4 Bibliothèques annexes

MMX-I est un logiciel permettant de faire de nombreuses opérations et propose de nombreuses fonctionnalités. Comme vu ci-dessus, un effort particulier a été apporté pour segmenter le code en actions simples dans le but de simplifier la maintenance et l'ajout de nouvelles fonctionnalités. L'objectif final est de rendre le projet MMX-I accessible à l'ensemble de la communauté. Cependant MMX-I est un projet ambitieux regroupant beaucoup de fonctionnalités dont certaines sont complètement indépendantes. Plusieurs bibliothèques annexes ont donc été développées pour, d'une part, renforcer la segmentation des fonctionnalités et, d'autre part, rendre ces fonctionnalités accessibles

individuellement. Les bibliothèques annexes sont : Hdf5Opener que nous avons vu dans la partie 5.2.1, RX-Image, RX-Annotation, RX-Native et FXview. MMX-I est une bibliothèque en tant que telle mais nous ne la décrivons pas ici puisque c'est l'objet de l'ensemble de cette partie.

Un diagramme de l'encapsulation des différentes bibliothèques est présenté Figure 1.n. Nous allons

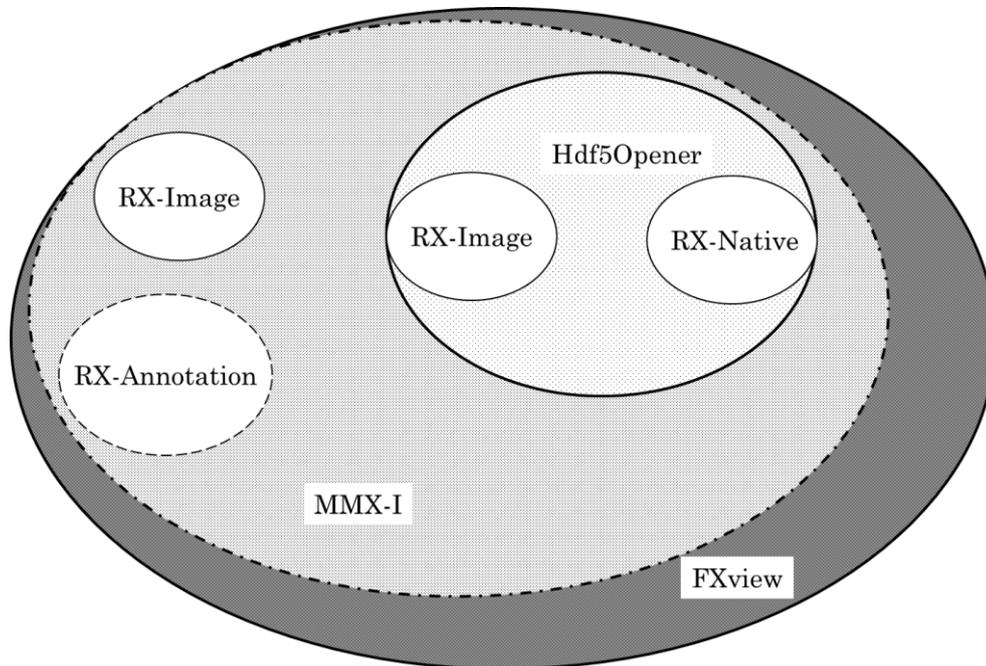


Figure 5.o : Différents niveaux d'encapsulation des bibliothèques développées en parallèle de MMX-I. La bibliothèque RX-Image est utilisée à deux niveaux, une première fois dans Hdf5Opener et une deuxième fois dans MMX-I. MMX-I utilise lui-même la bibliothèque Hdf5Opener et est contenu dans la bibliothèque graphique FXview. Cette organisation en bibliothèque permet de segmenter clairement les différentes fonctionnalités.

maintenant brièvement décrire les principales caractéristiques de chaque bibliothèque.

RX-Image

RX-Image est une bibliothèque dite « pont »¹⁷. Elle sert d'interface avec ImageJ1 et ImageJ2 pour le chargement des images au format TIFF. Du fait de son architecture en pont, de nouveaux formats d'images ou d'autres bibliothèques de chargement d'images peuvent être utilisées sans que le code existant, utilisant les fonctions de RX-Image, ne doit être modifié. RX-Image contient le code de représentation des données, toutes les données chargées via RX-Image sont transformées dans cette structure. Les structurations définies dans RX-Image sont RXData, RXImage, RXSpectrum et RXVirtualImage. Ce sont ces objets qui sont, par la suite, manipulés dans le logiciel.

¹⁷ « bridge API » en anglais

La librairie dispose également de deux composantes graphiques pour l’affichage des images. Une composante SWING¹⁸, se basant sur la librairie d’ImageJ pour l’affichage des images. Et une composante JAVAFX¹⁹ pour l’intégration dans la vue FXview.

RX-Native

RX-Native est la librairie permettant de charger quasi-dynamiquement les bibliothèques compilées en C/C++ telles que les bibliothèques pour la lecture des fichiers HDF5. Le code a été en grande partie emprunté à la librairie JOCL (<http://www.jocl.org/>) destinée au calcul sur carte graphique.

Hdf5Opener

Hdf5Opener est la librairie de lecture des fichiers HDF5. Elle utilise la librairie HDF5 1.10 compilée en C du HDF5 Group pour ouvrir et effectuer les opérations de lecture dans les fichiers HDF5. L’objet de base du Hdf5Opener est le Hdf5VirtualStack ou Hdf5VirtualSpectrum, ces objets héritent de l’objet *RXVirtualImage* de la librairie RX-Image. Un singleton contrôle la création et la suppression des images. Ce singleton permet d’enregistrer les entrées vers les fichiers HDF5 pour ne pas dupliquer les connexions à ces fichiers (ce qui pourrait générer des erreurs de lecture). Il permet également de fermer proprement les fichiers restés ouverts après la fermeture de l’application.

Comme vue précédemment, Hdf5Opener contient les éléments nécessaires à la lecture en « streaming » des fichiers HDF5. Le streaming est défini par deux acteurs, le service qui fournit les données et les clients qui demandent au service les données. Ici Hdf5Opener est le service et MMX-I le client. Le streaming d’un fichier HDF5 est orchestré par trois éléments ; Une interface, *StreamInterface*, qui doit être implémentée dans l’application cliente ; Un objet, *StreamObject*, contenant les paramètres de lecture faisant la connexion entre le service et le client. Et enfin le cœur du service de streaming, *Hdf5VirtualStream*, qui gère la mémoire et l’accès au fichier HDF5 pour la lecture.

RX-Annotation

RX-Annotation est la librairie contenant les annotations fonctionnelles utilisées dans l’architecture de MMX-I. Les annotations fonctionnelles sont lues et traitées durant la compilation du logiciel. Ces annotations servent alors à écrire automatiquement de nouveaux fichiers source, par l’intermédiaire de la librairie Apache Velocity, qui seront ajoutés aux autres fichiers sources du logiciel. Elles permettent d’écrire des classes très verbeuses ne contenant pas de fonction de calcul spécifique. Les annotations fonctionnelles sont notamment utilisées dans MMX-I pour la création des objets *FunctionDataInfo* qui

¹⁸ SWING est le nom de l’API standard regroupant les différents outils pour la création d’interface graphique de Java 1.0 – 1.7.

¹⁹ JAVAFX est le nom de l’API standard regroupant les différents outils pour la création d’interface graphique pour Java 1.7-1.9

sont des objets immutables pouvant circuler entre model et la vue. Les annotations disponibles dans la dernière version sont *ComputeFunction*, *FunctionController*, *FunctionData*, *MMXIFunction*, *MMXIFunctionVariableField*. Le détail des fonctionnalités associées à ces différentes annotations ne sont pas décrites ici mais dans une documentation technique fournie avec la librairie.

FXview

FXview est la future interface graphique de MMX-I (Figure 5.p). Elle utilise le nouveau standard pour la création d'interface graphique de Java, JavaFX. Une attention toute particulière a été apportée à cette interface pour permettre une extension facile. L'interface est constituée de modules entièrement paramétrables. Elle peut charger différents modules graphiques et les intégrer dynamiquement dans l'interface finale. L'objectif est de permettre aux utilisateurs experts de MMX-I de pouvoir facilement adapter l'application à n'importe quelle utilisation.

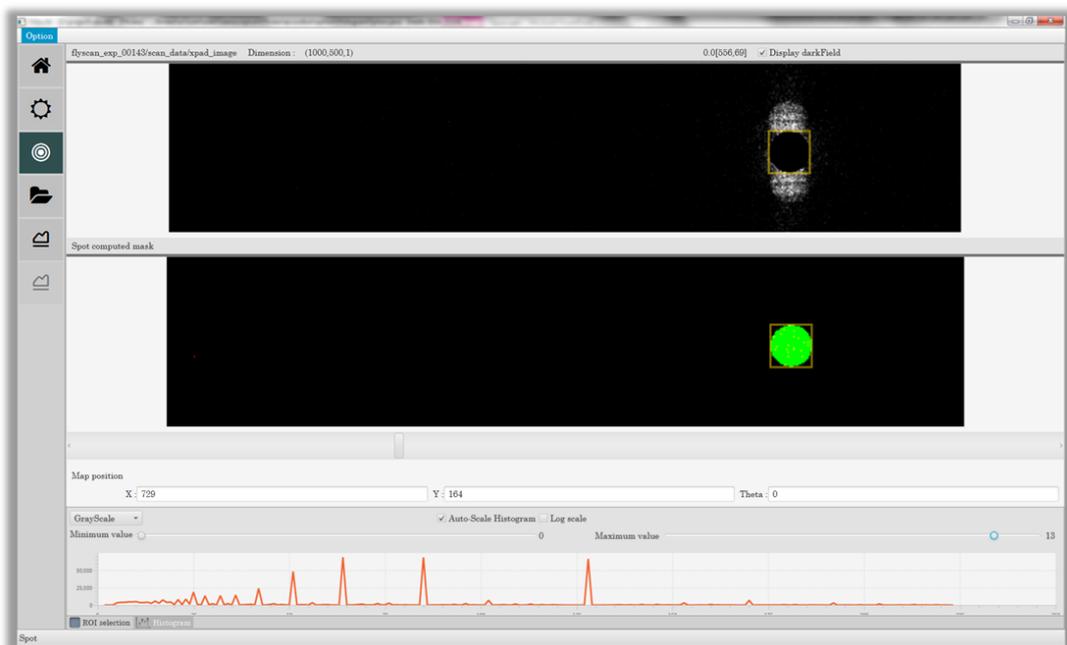


Figure 5.p : Image de l'interface FXview. Sur la gauche de l'interface les icônes représentent les modules actuellement chargé.

Synthèse

Durant cette thèse, j'ai pu développer le logiciel de traitement et de reconstruction de données multimodal, MMX-I. Le logiciel incorpore de nombreux algorithmes originaux, comme la lecture des données HDF5 en continue ou la détection du pattern d'illumination du faisceau. La conception de l'architecture logiciel et du processus d'utilisation permet à MMX-I de pouvoir être maintenu simplement et ouvre la voie à son amélioration par des tiers. Il est par exemple possible d'implémenter une nouvelle méthode de réduction en écrivant un unique objet Java. Le logiciel est opérationnel et est utilisé de manière routinière sur la ligne Nanoscopium par des utilisateurs experts.

- Azevedo, Stephen G., D.J. Schneberk, J. Fitch, and H.E. Martz. 1990. "Calculation of the Rotational Centers in Computed Tomography Sinograms." *IEEE Transactions on Nuclear Science* 37 (4): 1525–40. doi:10.1109/23.55866.
- Bergamaschi, Antoine, Kadda Medjoubi, Cédric Messaoudi, Sergio Marco, and Andrea Somogyi. 2016. "MMX-I: Data-Processing Software for Multimodal X-Ray Imaging and Tomography." *Journal of Synchrotron Radiation* 23 (3): 783–94. doi:10.1107/S1600577516003052.
- Bon, Pierre, Serge Monneret, and Benoit Wattellier. 2012. "Noniterative Boundary-Artifact-Free Wavefront Reconstruction from Its Derivatives." *Applied Optics* 51 (23): 5698–5704. doi:10.1364/AO.51.005698.
- Gonzalez, Rafael C., and Richard E. Woods. 2006. *Digital Image Processing (3rd Edition)*. Upper Saddle River, NJ, USA: Prentice-Hall, Inc.
- Grieken, Rene Van, and A. Markowicz. 2001. *Handbook of X-Ray Spectrometry, Second Edition*,. CRC Press.
- Könnecke, Mark, Frederick A. Akeroyd, Herbert J. Bernstein, Aaron S. Brewster, Stuart I. Campbell, Björn Clausen, Stephen Cottrell, et al. 2015. "The NeXus Data Format." *Journal of Applied Crystallography* 48 (1): 301–5. doi:10.1107/S1600576714027575.
- Leclercq, N., J. Berthault, F. Langlois, S. Le, S. Poirier, J. bisou, F. Blache, K. Medjoubi, and C. Mocuta. 2015. "FLYSCAN: A Fast and Multi-Technique Data Acquisition Platform for the SOLEIL Beamlines." In *ICALPECS, (2015/10/12)*. Melbourne, Australia. http://www.researchgate.net/publication/282769766_WEPGF056_Poster.
- Reenskaug, Trygve. 1979. "The Model-View-Controller (MVC) Its Past and Present." <https://heim.ifi.uio.no/~trygver/themes/mvc/mvc-index.html>.
- Schneider, Caroline A., Wayne S. Rasband, and Kevin W. Eliceiri. 2012. "NIH Image to ImageJ: 25 Years of Image Analysis." *Nature Methods* 9 (7): 671–75. doi:10.1038/nmeth.2089.
- Solé, V. A., E. Papillon, M. Cotte, Ph. Walter, and J. Susini. 2007. "A Multiplatform Code for the Analysis of Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Spectra." *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 62 (1): 63–68. doi:10.1016/j.sab.2006.12.002.
- "The HDF Group." 2015. <https://www.hdfgroup.org/>.

Chapitre 6

Expériences et résultats

Abstract

Ce chapitre présente des exemples de traitements, réalisés avec MMX-I, sur des données expérimentales produites lors d'expériences multimodales que j'ai effectué sur la ligne Nanoscopium de SOLEIL.

6.1 Expérience et utilisation de MMX-I

Nous présentons ici deux catégories d'échantillons mesurés en Flyscan sur la ligne Nanoscopium et traités avec le logiciel MMX-I : deux échantillons « test » constitués de micro/nanostructures et de compositions connues (logo SOLEIL et microsphères), et un échantillon couvrant un des domaines d'application de Nanoscopium, la paléocéanographie (foraminifère). Les jeux de données correspondant au logo SOLEIL et au foraminifère ont été reconstruits sur un ordinateur portable²⁰ standard (typiquement utilisé par les utilisateurs de la ligne). Pour ces échantillons, les données brutes sous forme de fichiers HDF5 ont été lues sur un disque dur externe connecté en USB2. Les microsphères ont été reconstruites sur un ordinateur de bureau²¹.

6.1.1 Logo de SOLEIL

Dans le but de tester la capacité d'acquisition multimodale rapide de la station CX2 (§3.2), un échantillon « test », conçu par le groupe Micro- et Nanotechnology du Paul Scherrer Institute (PSI), a été imagé. Les mesures ont été réalisées avec un faisceau focalisé de largeur à mi-hauteur d'environ 300nm et à une énergie de 14 keV. Une photographie de cet échantillon prise avec un microscope visible est présentée sur la Figure 6.a. Il est composé du logo de SOLEIL, dans lequel la lettre « O » est représentée par un soleil au centre duquel se trouve une étoile de siemens. Ce logo est présent dans l'échantillon en différentes tailles 250x120 μm pour le gros et 120x60 μm pour les petits. D'autres structures complètent l'échantillon, comme les mires de traits à pas variables (200nm à 2 μm) ou des étoiles de siemens de 30 μm de diamètre. L'ensemble de ces structures ne sont pas réalisées avec le même matériau. En effet, une partie est réalisée en or tandis qu'une autre est en nickel. Le support de l'ensemble est une membrane carrée (1x1mm) en nitrure de silicium (Si_3N_4) de 500nm d'épaisseur.

²⁰ Dell XPS 13 - Core™ i7-6560U, 8Go RAM.

²¹ Dell WorkStation Core™ Xeon E5, 64Go RAM

L'acquisition 2D multimodale de cet échantillon a été réalisée avec une résolution pixel de 400 nm.



Figure 6.a : Image de microscopie optique de l'échantillon représentant le logo de SOLEIL.

Au total l'image couvre un champ de vue de $400 \times 200 \mu\text{m}$ soit 1000×500 pixels. Chaque pixel a été mesuré durant 4ms, pour une durée totale d'acquisition de 42min (en sachant qu'une seconde est nécessaire en fin de chaque ligne (§3.3)). La dimension totale du fichier HDF5 est de 78Go. La réduction des données permettant de produire les modalités d'absorption, darkfield, fluorescence et de phase n'a duré que 10min avec l'ordinateur portable décrit en introduction.

Les images de morphologie reconstruites à partir du faisceau transmis sont présentées dans la Figure 6.b. Les images de composition élémentaire obtenues à partir de la fluorescence X sont présentées dans la Figure 6.c. Les informations extraites du faisceau transmis (absorption, diffusion, contraste de phase différentiel), Figure 6.b, permettent de résoudre la structure (morphologie) de l'échantillon. Les images d'absorption (a) et de contraste de phase différentiel (c,d) permettent de sonder la partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction de l'échantillon en chaque point. Le signal de ces modalités permet de visualiser les structures de l'ordre de grandeur ou plus grandes que le faisceau focalisé. L'image du darkfield (b), quant à elle, permet de visualiser les phénomènes de diffusion ayant lieu lorsque les structures traversées par le faisceau focalisé sont plus petites que celui-ci. Typiquement on observe dans l'image (b) les maximums d'intensité au centre des étoiles de siemens et dans les mires à pas variables. On constate également que l'intensité augmente avec la diminution de la largeur des bandes et est maximale quand les bandes sont plus fines que le faisceau.

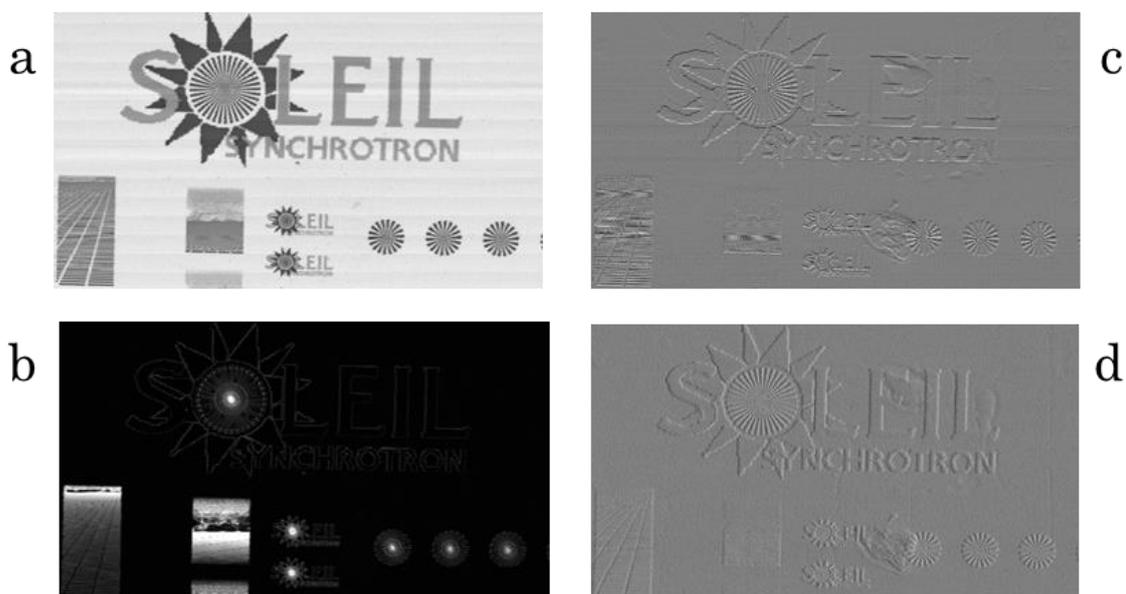


Figure 6.b : Image reconstruite à partir de l'image du faisceau de transmit. (a) image d'absorption, (b) image de darkfield, (c)(d) image de contraste de phase différentiel en Y et X respectivement.



Figure 6.c : Cartographie issue du spectre de fluorescence X, de la distribution élémentaire d'or (a) et de nickel (b).

Du fait que toute les informations sont enregistrées simultanément, aucune étape d'alignement n'est nécessaire pour superposer les différentes modalités entre elles. La Figure 6.d présente l'image de superposition de la phase reconstruite et des cartographies de fluorescence X de la Figure 6.c. Comme prévu, les images sont parfaitement alignées sans opération supplémentaire. On remarque l'apparition de craquelures dans le support en nitrate-silicium de l'échantillon réparties dans toute l'image. Ces craquelures, invisibles dans les autres modalités, sont visibles grâce à la haute sensibilité à l'épaisseur projetée du contraste de phase.

Cet échantillon test nous a permis de démontrer le bon fonctionnement de MMX-I. En effet, cet



Figure 6.d : Superposition de l’image de phase reconstruite (gris) et des cartographies de distribution de l’or (rouge) et du nickel (vert).

échantillon présente les caractéristiques nécessaires, en matière de structures et de compositions, pour produire avec suffisamment d’intensité chacune des modalités traitées par MMX-I.

6.1.2 Les microsphères

Dans la continuité des expériences tests, nous avons utilisé des microsphères (ou sphères), achetées chez *microsphere technology*²², fabriquées en verre (SiO₂), de diamètres compris entre 14 et 25 µm et recouvertes d’une couche de métal. Différents types de microsphères ont été achetés, les microsphères diffèrent par le revêtement métallique et l’épaisseur de celui-ci (voir ci-dessous).

Métal	Épaisseurs de la couche métallique
Cuivre	44 et 122nm
Fer	37 et 69nm
Or	20nm

La préparation de l’échantillon a consisté à mélanger les 5 types de sphère (décrites dans le tableau ci-dessus) avec une solution d’éthanol (90%) et à incorporer cette solution dans une préparation de gel d’agarose (5%)(C₁₂H₁₈O₉) encore liquide. Une fois l’agarose solidifié, les sphères en suspension dans le gel ont été « repêchées » avec une boucle MiTeGen²³ (en polymère de carbone) et séchées une seconde fois sur la boucle (cette opération étant simplifiée par la teneur élevée en alcool).

Les mesures ont été réalisées avec un faisceau focalisé de largeur à mi-hauteur d’environ 500nm et à une énergie de 12 keV. À cette énergie, les seuils (K,L,M) (§2.2.2) du fer et du cuivre peuvent être

²² <http://microspheretechnology.com/microsphere/>

²³ <http://www.mitegen.com/products/microloops/microloops.shtml>

excités mais uniquement le seuil M de l'or. Nous avons étudié les microsphères avec les techniques d'imagerie multimodale 2D et 3D.

Acquisition 2D multimodale

Dans un premier temps, une image 2D de l'échantillon a été acquise avec une résolution pixel de $1\mu\text{m}$. L'image couvre un champ de vue de $500 \times 100\mu\text{m}$ soit 500×100 pixels. Chaque pixel a été mesuré durant 40 ms, ce qui correspond à une durée totale d'acquisition de 35 min. La dimension totale du fichier HDF5 est de 8Go. La réduction des données dans les modalités d'absorption, darkfield, fluorescence et de phase a pris 2min avec l'ordinateur décrit en introduction.

Les résultats de réduction du faisceau transmis sont présentés dans la Figure 6.e. On peut constater que les microsphères sont clairement visibles dans toutes les modalités. Cela correspond à notre attente concernant l'aspect échantillon de test des sphères pour des expériences de SXM multimodales. La boucle est peu visible voir invisible dans les images de darkfield et d'absorption. Cependant le signal de contraste de phase différentiel permet de la distinguer clairement. Ce résultat est l'effet recherché puisque nous souhaitons réduire au maximum l'atténuation du porte échantillon.

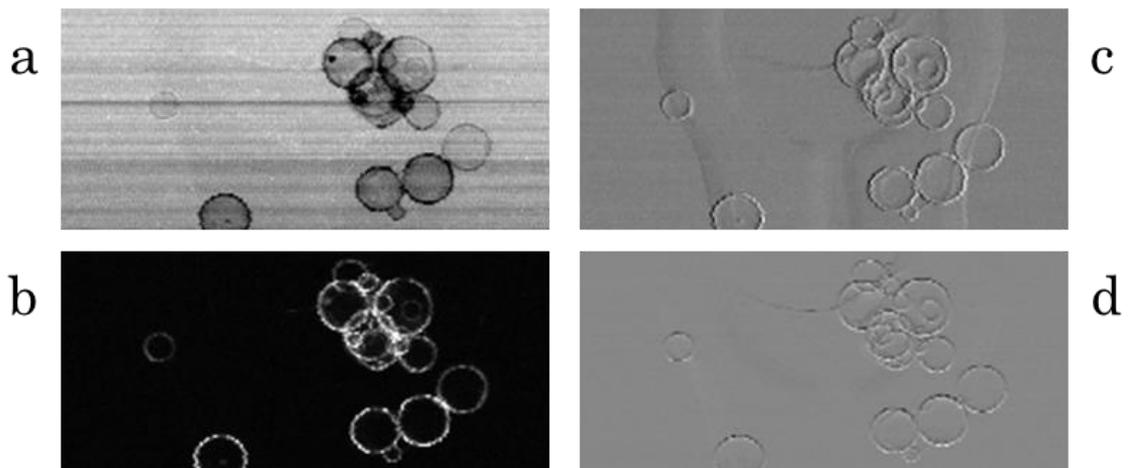


Figure 6.e : Image reconstruite à partir de l'image du faisceau de transmit. (a) image d'absorption, (b) image de darkfield, (c)(d) image de contraste de phase différentiel en X et Y respectivement.

Les images de distribution du fer et du cuivre sont présentées dans la Figure 6.f. On distingue deux clusters de microsphères, l'un constitué quasi-exclusivement de sphères recouvertes de cuivre (vert) et l'autre de sphères recouvertes de fer (rouge). Dans l'image, aucune sphère recouverte d'or n'est détectée. On remarque un effet d'auto-absorption dans la partie droite du cluster de billes de cuivre.

La Figure 6.g est une superposition des images de fluorescence X et de l'image de phase reconstruite.

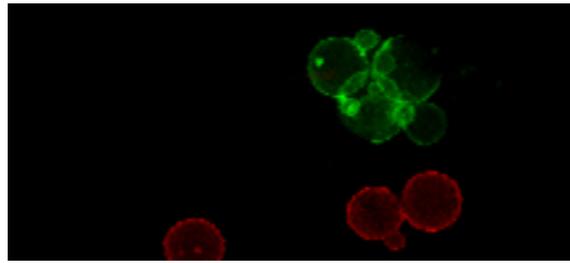


Figure 6.f : Cartographies de distributions du fer (rouge) et du cuivre (vert)

On constate que certaines sphères visibles en phase ne présentent pas de signal de fluorescence X de fer, de cuivre ou d'or. Deux hypothèses peuvent expliquer cette observation. Soit la couche métallique de ces billes s'est dissoute dans l'éthanol ou le gel durant le processus de montage de l'échantillon. Soit le métal recouvrant ces billes est en or et donc indétectables par fluorescence X dans ces conditions expérimentales. La seconde hypothèse a été éliminée, car l'or aurait augmenté l'atténuation du faisceau ce qui n'est pas le cas, comme on peut l'observer dans l'image a de la Figure 6.e. Au contraire l'atténuation est minimale, proche de la valeur du fond. On peut donc supposer que ces billes ont perdu leurs revêtements métalliques. À priori, on ne peut pas deviner quelle était à l'origine la matière de revêtement de ces billes. Cependant, sachant qu'une quantité environ égale de chacun des types de billes existait dans le mélange initial et qu'aucune bille d'or n'est détectée, on peut supposer que le revêtement en or s'est dissous dans l'opération de préparation de l'échantillon.

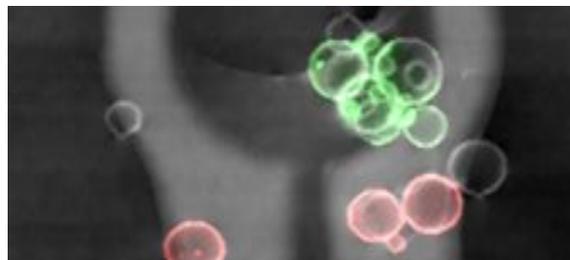


Figure 6.g : Superposition de la phase reconstruite et des cartographies de distribution du cuivre (vert) et du fer (rouge).

Acquisition 3D multimodale

Dans un second temps, une image 3D de l'échantillon a été acquise avec une résolution pixel de $1\mu\text{m}$. L'image couvre un champ de vue de $500 \times 60\mu\text{m}$ soit 500×60 pixels. Au total 500 projections de l'échantillon réparties sur 360° ont été acquises. Ces projections ont été mesurées avec une résolution pixel de $1\mu\text{m}$ et une durée par pixel de 20ms. Plusieurs heures étant nécessaires pour la réalisation d'une telle acquisition, il a été décidé d'acquérir le tomogramme tranche par tranche. Cela permet, en cas de problème lors de la mesure (arrêt de l'acquisition, perte faisceau...) de pouvoir reconstruire les données. Le séquençage de l'acquisition est donc le suivant : 1) mouvement continu dans la direction X (direction de balayage) ; 2) rotation autour de l'axe perpendiculaire à la direction de balayage (axe Y) ; 3) répétition des étapes 1 et 2 jusqu'à obtenir l'ensemble des projections d'une tranche ; 4) déplacement

sur l'axe perpendiculaire à la direction de balayage (acquisition d'une nouvelle tranche) ; 5) retour à l'étape 1. Au total, 60 tranches virtuelles de l'échantillon espacées de $1\mu\text{m}$ ont été successivement mesurées. La durée totale l'acquisition a été d'environ 8h30. Pour que le fichier HDF5 ne soit pas corrompu dans sa totalité en cas de problème informatique, une nouvelle méthode d'enregistrement des fichiers a été introduite. Ici, non pas 1 mais 10 fichiers ont été enregistrés et représentent le résultat final. L'ensemble des fichiers a une dimension totale de 240Go. La réduction des données dans les modalités d'absorption, darkfield, fluorescence et de phase a pris 30min avec l'ordinateur (de bureau) décrit en introduction.

Figure 6.h représente un rendu volumique de la phase reconstruite. Malgré un temps de d'acquisition deux fois moins important que lors de l'acquisition 2D, on distingue clairement les deux clusters de billes. La Figure 6.i est une coupe dans le volume reconstruit, de la phase et de la distribution de cuivre, de l'échantillon. Cette coupe montre la superposition de la distribution du cuivre sur un des clusters de billes. Cet échantillon nous aura donc permis de valider le fonctionnement de MMX-I pour reconstruire des données prévenant de différentes modalités.

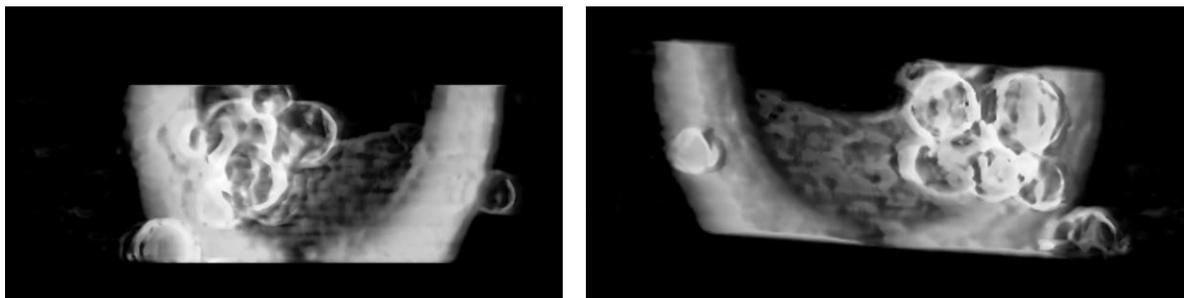


Figure 6.h : Rendue volumique de la reconstruction de la phase des sphères. Les deux images représentent le même objet vu de face et de profile.

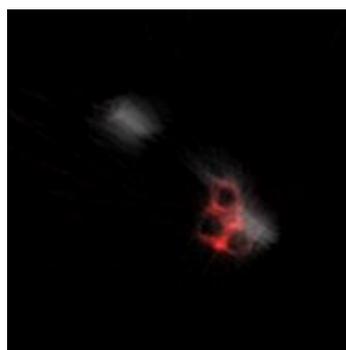


Figure 6.i : Vue d'une coupe dans le volume reconstruit de l'échantillon de microsphères. Les volumes correspondant à la distribution de cuivre (en rouge) et à la phase (en gris) sont superposé.

6.1.3 Les foraminifères

Les foraminifères planctoniques sont des protistes présents dans tous les océans. Leur distribution, abondance et diversité sont fortement corrélées aux propriétés de l'eau de surface des océans et

principalement aux gradients de température de surface (SST). Beaucoup d'espèces de foraminifères produisent leurs coquilles, appelée test, qui est composée de carbonate de calcium. La production de ces coquilles est un phénomène de bio-minéralisation. Des éléments traces et des isotopes stables de l'eau de mer sont incorporés dans la test au fil du développement du foraminifère. Du fait de leur coquille calcaire, ces microfossiles sont très bien préservés dans les sédiments marins. Ils sont donc largement utilisés pour la reconstruction des environnements océaniques anciens (Boyle 1981; Lea 2003) et des grands événements géologiques (Snow, Duncan, and Bralower 2005).

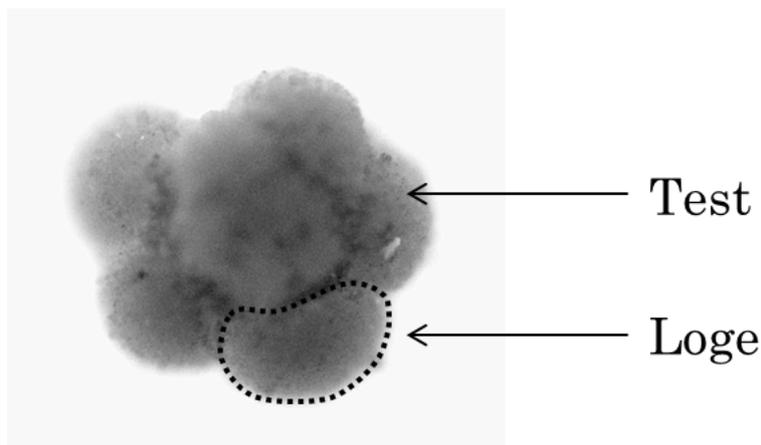


Figure 6.j : Image de microscope optique d'un foraminifère de type Globigerina. La structure, la coquille, en carbonate de calcium est appelée test. Les loges successives sont le résultat du développement ontogénétique du foraminifère.

La direction de l'enroulement et la porosité des coquilles sont des marqueurs morphologiques utilisés pour monitorer le SST (Desmares et al. 2016) et les propriétés de masse de l'eau de mer (Fischer and Wefer 1999). Ces deux marqueurs prennent avantage du développement ontogénétique des foraminifères. En effet, chaque étape du développement est marquée par la création d'une chambre (ou loge) qui succède (physiquement) aux précédentes jusqu'à la forme adulte (Rhumbler 1909). La caractérisation de l'étape ontogénétique est indispensable pour pouvoir analyser morphologiquement un échantillon (Daniela N. Schmidt 2013). La seule méthode d'analyse non-invasive permettant d'obtenir la structure des chambres internes, d'environ 10-20 μ m, est la tomographie par rayon X. Jusqu'à présent, les tomographies de rayon X en plein champs ont principalement été utilisées pour ce type d'étude. Cependant, cette technique limite l'analyse à une étude morphologique. L'étude des éléments traces se trouvant piégés dans la coquille peut apporter des informations essentielles et complémentaires aux informations morphologiques (Lea 2003; Munsel et al. 2010; Branson et al. 2013; Branson et al. 2015).

Afin de pouvoir interpréter les observations faites sur les foraminifères, comprendre les mécanismes d'incorporation des métaux lourds durant le processus de bio-minéralisation est une clé fondamentale. Actuellement, ce mécanisme n'est pas entièrement élucidé. De nouvelles informations peuvent être

apportées par la combinaison des techniques d'analyse chimique et morphologique 3D et ceci avec une haute résolution spatiale.

Nous avons donc étudié les foraminifères avec les techniques d'imagerie multimodales 2D et 3D. L'échantillon mesuré et présenté dans ce qui suit a été fourni par Delphine Desmares²⁴. La taille de celui-ci est de 400x250x100 μm . Comme montré sur la figure, l'échantillon, encadré en rouge, est déposé sur un coussin de colle.

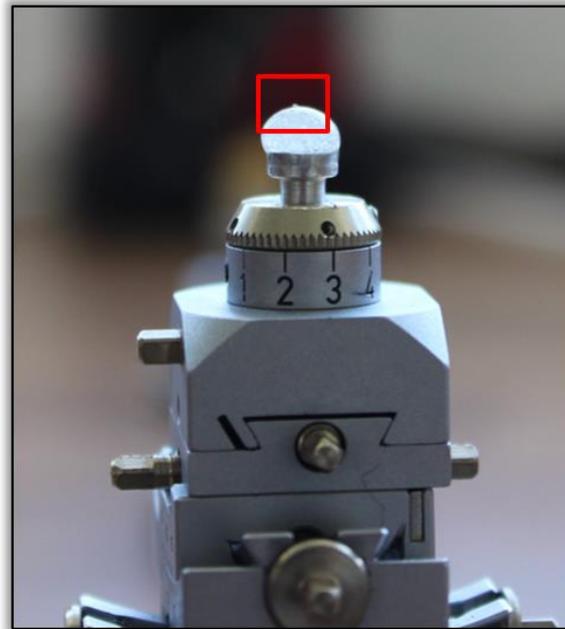


Figure 6.k : Photographie du goniomètre sur lequel l'échantillon est fixé. L'échantillon est encadré par le rectangle rouge, il correspond à la petite protubérance au sommet du coussin de colle.

Les mesures qui suivent ont été réalisées avec un faisceau focalisé de largeur à mi-hauteur d'environ 500nm à une énergie de 16 keV. Cette énergie de travail permet d'atteindre une profondeur de champ de 500 μm comparable avec l'épaisseur du foraminifère.

Acquisition 2D multimodale

Une acquisition 2D multimodale du foraminifère a été réalisée avec une résolution pixel de 1 μm . L'image couvre un champ de vue de 600x400 μm soit 600x400 pixels. Chaque pixel a été mesuré durant 3 ms, ce qui correspond à une durée totale d'acquisition de 20 min.

La cartographie multimodale obtenue est présentée sur la Figure 6.1. Les modalités présentes sont le contraste de phase différentielle et le contraste de fluorescence X. La DPC révèle bien les structures internes de l'échantillon et également sa position enfoncée partiellement dans la colle. Les spectres de

²⁴ Maître de conférence à l'UPMC

fluorescence X montrent la présence de fer et de calcium. Le fer est principalement localisé dans les loges du foraminifère (en rouge sur la Figure 6.1). Le fer détecté peut être expliqué par la sédimentation et la cristallisation de fer dans les fonds marins après la mort du foraminifère.

Comme énoncé plus haut, la coquille est principalement composée de carbonate de calcium (en vert sur la Figure 6.1). La distribution du calcium montre cependant une forte asymétrie gauche/droite. Cet effet est lié à la géométrie de détection du signal de fluorescence X. En effet, lors de cette expérience, un seul SDD, placé à la gauche de l'échantillon (par rapport au faisceau incident) a été utilisé. De par cette géométrie les photons de fluorescence X émis à l'opposé du détecteur doivent, pour être détectés, traverser l'échantillon dans toute son épaisseur. Ce faisant, le signal de fluorescence produit est atténué voire complètement absorbé par le foraminifère, c'est l'effet d'auto-absorption. Nous traiterons dans le chapitre suivant (§7.3) les possibles améliorations du logiciel pour corriger ce phénomène.

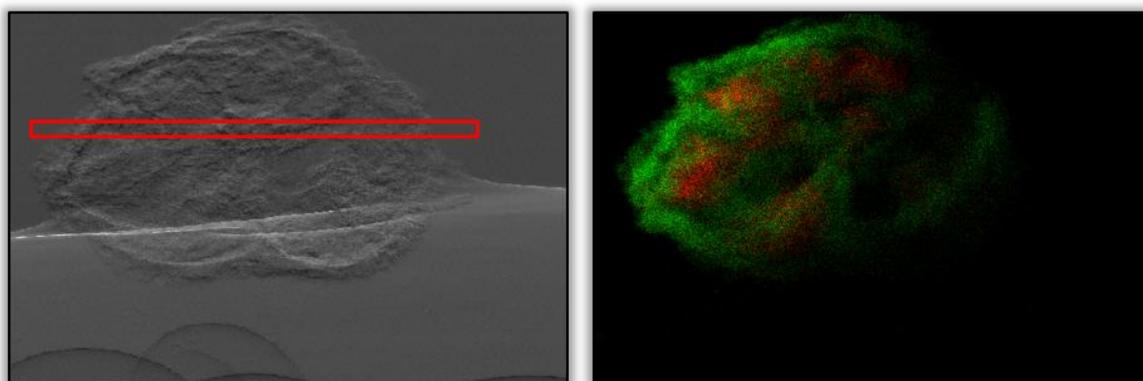


Figure 6.1 : Droite : image de contraste de phase différentielle. Gauche : Cartographies de la distribution du fer (rouge), du calcium (vert). Cette dernière image illustre l'effet d'auto-absorption du signal de fluorescence dans un échantillon de grosse taille.

Acquisition 3D multimodal

Une acquisition tomographique a également été réalisée sur ce foraminifère. La région étudiée est indiquée par un rectangle rouge dans la Figure 6.1. Chaque projection de l'échantillon couvre un champ de vue de $500 \times 23 \mu\text{m}$. Au total 200 projections de l'échantillon réparties sur 360° ont été acquises. Ces projections ont été mesurées avec une résolution pixel de $1 \mu\text{m}$ et une durée par pixel de 3ms. L'acquisition a été faite tranche par tranche comme lors de la tomographie des microsphères décrite plus haut (§1.1.2). Au total, 23 tranches virtuelles de l'échantillon espacées de $1 \mu\text{m}$ ont été successivement mesurées. Les 2 300 000 pixels ont été acquis en 3h. La taille du fichier HDF5 de 500 Go. La réduction de ces données, avec MMX-I, permettant de produire les modalités d'absorption, darkfield, fluorescence et de phase n'a duré que 1h20min avec l'ordinateur portable décrit en introduction.

La Figure 6.m présente le rendu volumique de la phase, du darkfield et des distributions de fer et de calcium. Le meilleur contraste pour la morphologie globale est obtenu avec la phase. La forte intensité

de darkfield indique la présence de zones très diffusantes. Elles peuvent être dues à une structure morphologique de taille inférieure à la dimension du faisceau (type granulaire). Ces structures sont principalement situées à l'intérieur de la coquille. On constate également que la distribution de fer se situe au niveau d'une de ces zones. Aucune trace de fer n'a été trouvée dans les autres structures diffusantes.

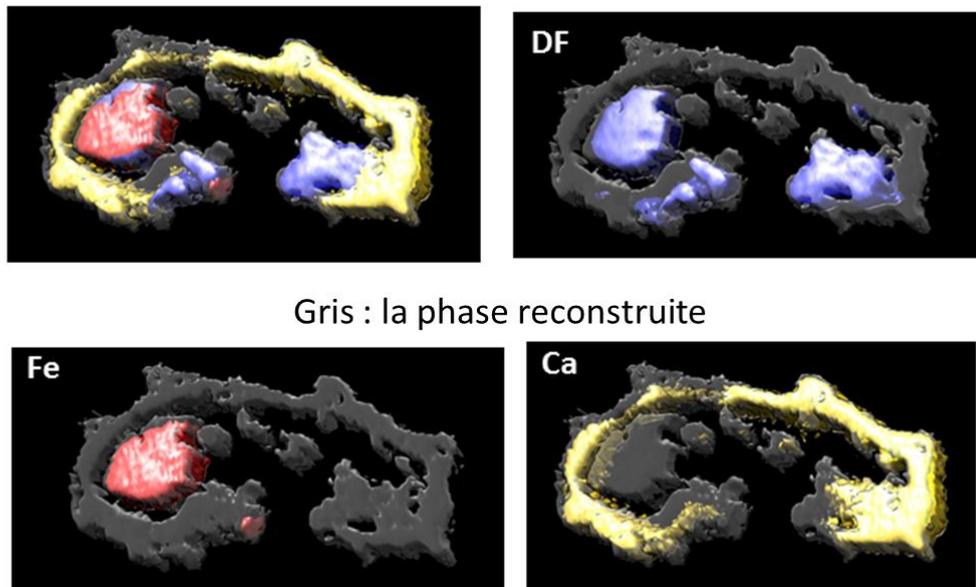


Figure 6.m : Rendu volumique 3D des différentes modalités d'un foraminifère. La phase est représentée en gris, le fer en rouge, le calcium en jaune et le darkfield en bleu.

Synthèse

Les expériences menées sur la ligne ont permis de valider l'utilisation de MMX-I pour le traitement de jeux de données volumineux produits lors d'expériences d'imagerie X multimodale par balayage rapide. Les traitements 2D multimodaux ont été validés avec le premier échantillon, le logo de SOLEIL. Le second échantillon, les microsphères, a permis de confirmer les traitements de données bidimensionnelles mais aussi la réalisation de tomographie multimodale. Enfin le troisième échantillon est un cas type d'utilisation du logiciel par un utilisateur de Nanoscopium avec une acquisition 2D/3D multimodale. Le logiciel est donc aujourd'hui prêt pour être utilisé par la communauté scientifique.

- Als-Nielsen, Jens, and Des McMorrow. 2011. *Elements of Modern X-Ray Physics: Als-Nielsen/Elements*. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc. <http://doi.wiley.com/10.1002/9781119998365>.
- Boyle, Edward A. 1981. "Cadmium, Zinc, Copper, and Barium in Foraminifera Tests." *Earth and Planetary Science Letters* 53 (1): 11–35. doi:10.1016/0012-821X(81)90022-4.
- Branson, Oscar, Karina Kaczmarek, Simon A. T. Redfern, Sambuddha Misra, Gerald Langer, Tolek Tyliczszak, Jelle Bijma, and Henry Elderfield. 2015. "The Coordination and Distribution of B in Foraminiferal Calcite." *Earth and Planetary Science Letters* 416: 67–72. doi:10.1016/j.epsl.2015.02.006.
- Branson, Oscar, Simon A. T. Redfern, Tolek Tyliczszak, Aleksey Sadekov, Gerald Langer, Katsunori Kimoto, and Henry Elderfield. 2013. "The Coordination of Mg in Foraminiferal Calcite." *Earth and Planetary Science Letters* 383: 134–41. doi:10.1016/j.epsl.2013.09.037.
- Daniela N. Schmidt, Emily J. Rayfield. 2013. "Linking Evolution and Development: Synchrotron Radiation X-Ray Tomographic Microscopy of Planktic Foraminifers." *Palaeontology* 56 (4): 741–49. doi:10.1111/pala.12013.
- Desmares, Delphine, Nemo Crognier, Jérémie Bardin, Marc Testé, Bernard Beaudoin, and Danièle Grosheny. 2016. "A New Proxy for Cretaceous Paleooceanographic and Paleoclimatic Reconstructions: Coiling Direction Changes in the Planktonic Foraminifera *Muricohedbergella Delrioensis*." *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* 445 (March): 8–17. doi:10.1016/j.palaeo.2015.12.021.
- Fischer, Gerhard, and Gerold Wefer. 1999. *Use of Proxies in Paleooceanography*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. <http://link.springer.com/10.1007/978-3-642-58646-0>.
- Hawkes, Peter W., and John C. H. Spence, eds. 2007. *Science of Microscopy*. New York, NY: Springer New York. <http://link.springer.com/10.1007/978-0-387-49762-4>.
- Lea, D. W. 2003. "6.14 - Elemental and Isotopic Proxies of Past Ocean Temperatures A2 - Holland, Heinrich D." In *Treatise on Geochemistry*, edited by Karl K. Turekian, 1–26. Oxford: Pergamon. <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B0080437516061144>.
- Munsel, D., U. Kramar, D. Dissard, G. Nehrke, Z. Berner, J. Bijma, G.-J. Reichart, and T. Neumann. 2010. "Heavy Metal Incorporation in Foraminiferal Calcite: Results from Multi-Element Enrichment Culture Experiments with *Ammonia Tepida*." *Biogeosciences* 7 (8): 2339–50. doi:10.5194/bg-7-2339-2010.
- Rhumbler, Ludwig. 1909. *Die Foraminiferen*. Vol. 3. Ergebnisse der Plankton-Expedition. Lipsius u. Tischer.
- Snow, Laura J., Robert A. Duncan, and Timothy J. Bralower. 2005. "Trace Element Abundances in the Rock Canyon Anticline, Pueblo, Colorado, Marine Sedimentary Section and Their Relationship to Caribbean Plateau Construction and Oxygen Anoxic Event 2." *Paleoceanography* 20 (3): PA3005. doi:10.1029/2004PA001093.
- Stangl, Julian, Cristian Mocuta, Virginie Chamard, and Dina Carbone. 2013. *Nanobeam X-Ray Scattering: Probing Matter at the Nanoscale*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. <http://doi.wiley.com/10.1002/9783527655069>.

7.1 Expansion possible de MMX-I

7.1.1 Optimisation sur GPU

Les cartes graphiques (GPU) sont utilisées pour réduire grandement le temps de calcul des opérations arithmétiques. Les GPU sont divisées en petites unités d'arithmétique spécialisées (ALU) regroupées en groupe appelé cœur. Chaque cœur est défini par sa capacité à effectuer un calcul indépendamment des autres cœurs sur un nombre limité de bits (8, 16, 32 bits). Contrairement aux processeurs (CPU) qui ne possèdent au maximum que $24(48)^{25}$ cœurs, les GPU possèdent des cœurs par milliers (3584^{26}). Ces cœurs spécialisés dans le calcul arithmétique simple permettent de faire ce que l'on appelle de la programmation massivement parallèle.

La parallélisation d'un algorithme consiste à diviser la tâche principale de celui-ci en sous-tâches réalisables indépendamment et simultanément. A l'inverse d'un calcul séquentiel, qui effectue les tâches les unes après les autres, le calcul parallèle produit les résultats des sous-opérations dans un ordre pseudo-aléatoire. L'ensemble des sous-opérations constitue alors le résultat. L'intérêt de la parallélisation est de distribuer la charge de travail sur tous les nœuds de calcul (i.e. les cœurs) et ainsi diviser le temps de calcul total au mieux par le nombre de nœuds utilisés. On parle de calcul massivement parallèle pour les GPUs, ou les clusters de CPU, car ils possèdent un très grand nombre de nœud de calcul (i.e. plus de 2000 pour les GPU). Pour le calcul massivement parallèle sur GPU les sous-opérations doivent avoir des propriétés de simplicité en calcul et en mémoire (c'est-à-dire nécessiter peu de mémoire et être un calcul simple pour le cœur du GPU utilisé) pour être réalisables.

L'exemple d'une implémentation massivement parallèle est la reconstruction tomographique itérative. Effectivement la reconstruction tomographique itérative nécessite un calcul important que ce soit pour la projection ou la rétroprojection. Les opérations élémentaires sont, le parcours dans le volume reconstruit, le calcul du coefficient de correction et l'addition du coefficient sur le volume en cours de reconstruction. Ces trois opérations sont des calculs simples sur GPU et l'enchaînement de ces opérations forment une tâche indépendante pour chaque projection, à chaque itération. Cet algorithme était donc un candidat parfait pour une optimisation sur GPU, et a prouvé son efficacité (TomoJ GPU (Messaoudi

²⁵ Intel - http://ark.intel.com/products/93790/Intel-Xeon-Processor-E7-8890-v4-60M-Cache-2_20-GHz

²⁶ Nvidia - <http://www.geforce.com/hardware/10series/titan-x-pascal>

et al. 2007)) en diminuant en moyenne par 30 fois le temps de calcul d'une reconstruction classique de 1024x1024x100 voxels.

L'algorithme de reconstruction itérative de la phase dans l'espace réel (§4.5.2) est un exemple semblable à la reconstruction tomographique. Environ 50 000 itérations sont nécessaires pour faire converger l'algorithme et le temps de calcul est exponentiel avec le nombre de pixel à traiter. Dans cet algorithme, en mode Jacobien, le calcul de chacun des pixels est indépendant. L'optimisation sur GPU est donc envisageable dans une future version de MMX-I. Le gain de temps espéré grâce à cette implémentation permettra d'accélérer le temps calcul entre 10 et 100 fois. Une intégration de phase itérative pour une image 500x500 pixels durant approximativement 10min, on peut espérer réduire ce temps de calcul à moins d'une minute.

7.1.2 Visualisation et interface utilisateur

La visualisation des données et l'interface utilisateur sont les seuls éléments visibles par l'utilisateur final de MMX-I. La création d'une interface ergonomique pour l'utilisation du logiciel est une science peu mise en avant dans le domaine scientifique. En effet, l'objectif premier des logiciels scientifiques est de réaliser une tâche le plus correctement possible et non le plus simplement. On retrouve donc souvent des interfaces scientifiques qui présentent à l'utilisateur de multiples paramètres à renseigner (boutons, cases à cocher, champs à remplir etc.). Ces paramètres, souvent spécifiques à un algorithme précis ou à une technique particulière sont source de confusion et parfois d'erreurs lors de l'utilisation du logiciel.

Sans remettre en cause l'utilité de l'ajustement des algorithmes grâce à de nombreux paramètres, il est possible d'utiliser la plupart des paramètres uniquement avec leurs valeurs par défaut. C'est l'orientation qui a été prise pour l'interface FXview (§5.4) pour le logiciel MMX-I. L'implémentation de cette interface n'est pas encore finalisée mais les objectifs finaux sont les suivants : 1) Simplifier au maximum l'interface utilisateur, 2) Rendre l'interface entièrement paramétrable pour s'adapter aux différents types d'utilisations, 3) Permettre d'adapter les valeurs par défaut des paramètres du logiciel en fonction des utilisations. Les points 2 et 3 nécessitent une interface d'administration supplémentaire réservée aux experts qui souhaitent améliorer encore d'avantage l'expérience utilisateur du logiciel.

La visualisation des données produites est un point clé de l'interface utilisateur. Actuellement, lors du traitement multimodal des données, chaque modalité est représentée par une image. Ces informations pourraient être regroupées dans une vue "multimodale" qui regrouperait dans une même interface graphique les spectres, et images des différentes modalités. La visualisation des données reconstruites en 3 dimensions pose le même problème, une solution similaire serait envisageable.

7.1.3 Perspectives pour la communauté scientifique

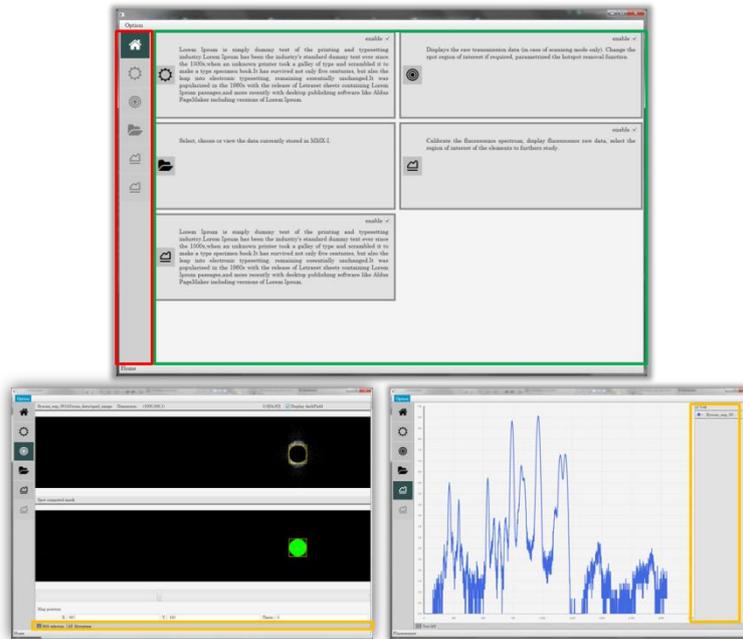


Figure 7.a : Différentes vues de l'interface FXview. L'interface est séparée en différentes pages. Chaque page correspond à une action précise et est accessible à partir du bandeau encadré en rouge. Le panneau entouré en vert est l'élément qui change pour chaque page. Les paramètres supplémentaires de chaque page sont accessibles via les bandeaux sur les bords de l'interface (cadre orange). Cette interface est entièrement ajustable pour être adaptée à une utilisation spécifique.

MMX-I est libre de droit, open-source ce qui rend le projet ouvert à la communauté scientifique. Celle-ci peut donc améliorer le logiciel en ajoutant de nouvelles fonctionnalités et en maintenant à jours le code de manière collaborative. Dans ce sens, les perspectives d'évolution du logiciel pour la communauté et par la communauté sont innombrables. Il est par exemple possible d'ajouter de nouvelles méthodes de réduction, de traitement, de reconstruction de phase ou de reconstruction tomographique.

Une des perspectives les plus intéressantes pour la communauté scientifique est la possibilité d'utiliser MMX-I sur un ordinateur à distance. Le principe est d'utiliser MMX-I, au travers d'un client léger (i.e. navigateur web), comme un service sur un ordinateur où les données brutes sont stockées. MMX-I possède actuellement les bases pour être utilisé de cette façon (i.e. contrôleur indépendant, transfert d'information via POJO²⁷), cependant le serveur de requêtes n'est pas implémenté. Cette nouvelle implémentation permettrait à la communauté scientifique d'utiliser des ressources de calcul à distance ou local.

²⁷ Plain Old Java Object pour simple objet Java en français.

7.2 Utilisation sur d'autres lignes

MMX-I vise à être adaptable sur toutes les lignes de microscopie X par balayage produisant un signal de transmission ou un signal de fluorescence X. Les différents modes de lecture suivant les dimensions du détecteur lui permette de lire les données de transmission à la fois de détecteurs 2D ou ponctuelle. Le logiciel s'adapte également à l'utilisation d'une lentille de Fresnel ou d'un KB (Kirkpatrick-Baez) comme optique de focalisation.

MMX-I est actuellement en version bêta. Le logiciel est principalement utilisé sur Nanoscopium mais d'autres lignes du synchrotron SOLEIL ont d'ores et déjà pu le tester avec succès. Les tests ont par exemple permis de faire des reconstructions de spectre XANES à partir d'un détecteur ponctuel, bien que l'analyse et les méthodes spécifique ne soient pas incluses actuellement dans le logiciel.

7.3 L'auto-absorption de la fluorescence X

L'auto-absorption de la fluorescence X consiste en la réabsorption de cette même fluorescence par l'échantillon duquel elle a été émise. Compenser ce phénomène est crucial pour la réalisation d'analyses quantitatives en imagerie XRF 3D. En effet, la perte d'information liée à l'auto-absorption fausse la mesure de concentration d'éléments localisés dans la structure interne de l'échantillon. Cet effet augmente avec l'épaisseur de l'échantillon et également lorsque les éléments sondés sont légers (Z faible).

7.3.1 Principaux algorithmes de correction

La problématique de l'auto-absorption a été abordée sous différents angles et avec différentes méthodes. Malucelli et al. (Malucelli et al. 2013) ont, par exemple, proposés de corriger l'auto-absorption d'élément léger en mesurant le coefficient d'atténuation linéique avec un STXM et en mesurant, a posteriori, l'épaisseur de l'échantillon avec un microscope à force atomique. Ainsi connaissant précisément la position de leur détecteur, il leurs a été possible de corriger le flux de photons émanant de leur échantillon. Cependant cette technique nécessite de réaligner les images obtenues avec les différents instruments (i.e. STXM et microscope à force atomique). Ces instruments n'ayant pas les mêmes résolutions et ne mesurant pas les mêmes grandeurs physiques, la méthode est donc difficile à mettre en œuvre de manière routinière. Golosio et al. (Golosio et al. 2003) ont proposés une technique de correction de l'auto-absorption basée sur l'association des reconstructions tomographiques de l'absorption, du diffusé et de la fluorescence. Ces dernières modalités sont acquises simultanément. Cette technique permet d'estimer pour chacun des pixels la densité électronique, l'absorption et la composition chimique réduisant significativement le nombre de coefficient inconnu à reconstruire.

Un nouveau développement tomographique pour la reconstruction de la fluorescence X pourrait être l'association de l'algorithme de Golosio avec l'algorithme de reconstruction hyper spectrale récemment

proposé par Gürsoy et al (Gürsoy et al. 2015). Ce dernier algorithme ne corrige pas l'auto-absorption mais permet de reconstruire les spectres de fluorescence X en appliquant des contraintes de reconstruction sur les spectres mesurés. Dans le but de commencer le développement de cette nouvelle technique, j'ai développé un logiciel de simulation Monte-Carlo, RX-Simulation, capable de simuler une acquisition tomographique en fluorescence X. Ce logiciel a pour but de créer des fantômes (images tests) servant de jeux de données connus pour d'une part évaluer les méthodologies de correction existantes et d'autre part en développer de nouvelles. Ces dernières seraient basées sur l'association de l'ensemble des informations multimodales (Fluorescence, Absorption, Phase, Dark Field) telles que celles produites sur Nanoscopium.

7.3.2 Simulation de l'auto-absorption

La méthode de Monte-Carlo (Metropolis and Ulam 1949; Von Neumann and Ulam 1945) consiste à simuler le comportement d'un ensemble de particules en utilisant des méthodes stochastiques. Dans notre cas, les particules simulées sont des photons X que nous suivons à travers la matière. La simulation est réglée par un ensemble de paramètres géométriques et physiques. Ces paramètres sont soit fixes, soit générés aléatoirement à partir de fonctions déterministes (les paramètres sont alors tirés). Le modèle de simulation développé à ce stade présente les simplifications physiques suivantes :

- Le faisceau X incident est parallèle ;
- Dans ce premier modèle, seul l'effet photo-électrique est considéré. Les effets Compton et Thompson ne sont donc pas traités ;
- Les électrons Auger et photoélectrons ne sont pas traités.

Modélisation

On représente un photon X comme un vecteur de valeurs numériques représentant l'énergie du photon, sa direction dans un repère orthonormé, son type (i.e photon incident ou photon de fluorescence X) et son libre parcours. Le volume simulé est représenté par des voxels auxquels une composition chimique est associée. Le détecteur de fluorescence X est simulé comme une surface positionnée hors du volume de simulation et possédant comme paramètre un cône d'ouverture, simulant un collimateur.

On cherche tout d'abord à modéliser la distance z parcourue par un photon X avant d'être absorbé par effet photoélectrique. Le facteur d'absorption $f_{\text{absorption}}$ d'un faisceau de rayons X mono-énergétique à travers un matériau de coefficient d'atténuation μ_M et d'épaisseur z est donné par :

$$f_{\text{absorption}}(z) = 1 - e^{-\mu_M z} \quad (7.1)$$

La distribution de l'absorption $D_{\text{absorption}}$ en fonction de l'épaisseur z est égale à la dérivée sur z de la fonction $f_{\text{absorption}}$. Elle s'exprime comme :

$$D_{\text{absorption}}(z) = \mu_M e^{-\mu_M z} \quad (7.2)$$

Il nous faut donc simuler cette distribution afin de générer aléatoirement la distance z parcourue par un photon à travers un matériau. Pour ce faire, on utilise la méthode de transformation. Elle consiste à calculer la fonction de répartition F de la distribution entre 0 et z :

$$F(z) = \int_0^z D_{\text{absorption}}(z) dz = 1 - e^{-\mu_M z} \quad (7.3)$$

On note que la fonction $F(z)$ est croissante et continue sur l'intervalle $[0 ; +\infty[$ (z étant une distance les valeurs négatives sont donc exclues de cet intervalle). Les limites de la fonction $F(z)$ sont alors 1 et 0 pour z tendant respectivement vers $+\infty$ et 0 respectivement. Puis d'en déduire la fonction inverse F^{-1} (à condition qu'elle soit bijective) :

$$F^{-1}(z) = z = -\frac{1}{\mu_M} \ln(1 - F(z)) \quad (7.4)$$

Il est alors possible de reconstruire la distribution de l'absorption en tirant aléatoirement, avec une loi uniforme, des valeurs entre les limites de la fonction $F(z)$, $[0,1[$.

Dans le cas d'un matériau composite, à chaque couple atome/énergie du photon incident correspond une probabilité d'interaction photoélectrique. Le choix de l'atome avec lequel aura lieu l'interaction sera fonction de la proportion de chacun des groupes d'atomes et généré aléatoirement selon une loi uniforme comprise entre 0 et 1. De même, le choix de l'orbite excitée (K, L ou M) dicté par l'énergie du photon incident et par le rendement de chacune des orbites, sera tiré suivant la même loi uniforme.

De cet atome, un photon de fluorescence X est émis avec une direction isotrope. La direction est tirée aléatoirement sur la surface d'une sphère, de diamètre 1, suivant les fonctions suivantes (Marsaglia 1972) :

$$\begin{aligned} x &= 2U_1 \sqrt{1 - U_1^2 - U_2^2} \\ y &= 2U_2 \sqrt{1 - U_1^2 - U_2^2} \\ z &= 1 - 2(U_1^2 + U_2^2) \end{aligned} \quad (7.5)$$

où U_1 et U_2 sont des variables aléatoires, tirées uniformément sur l'intervalle $[-1 ; 1]$, satisfaisant la condition $U_1^2 + U_2^2 < 1$. Les coordonnées x, y et z définissent alors un point aléatoire sur la sphère qui représente la direction du photon de fluorescence X émis.

L'organigramme des interactions est présenté dans la Figure 7.d. Cet organigramme décrit le schéma décisionnel du parcours d'un photon. Il existe deux conditions d'arrêt au suivi du parcours : soit le photon, de fluorescence ou incident, sort de l'échantillon ; soit le photon est absorbé et ne produit pas

de fluorescence X. Quand un photon sort de l'échantillon, sa trajectoire permet d'évaluer si celui-ci est détecté ou non.

Implémentation

RX-Simulation est codé en Java, il utilise la librairie xraylib (Schoonjans et al. 2011) comme source de données pour les constantes physiques. Les volumes servant de supports aux éléments chimiques sont créés via le logiciel Phantomaj²⁸ (logiciel développé par Cédric Messaoudi et moi-même lors de mon stage de M2 en 2012 à l'institut Curie).

Le logiciel Geant4 (Agostinelli et al. 2003) est un logiciel faisant référence dans le domaine de la simulation de particules des hautes énergies. Il permet de faire des simulations similaires à celles que nous réalisons. Ce logiciel a d'ailleurs été utilisé pour valider nos premiers résultats. Cependant il n'est pas utilisé dans le code source de RX-Simulation, car nous souhaitons conserver un contrôle total sur toutes les étapes du processus de simulation. Ce contrôle nous offrant une plus grande flexibilité dans le processus de création de nouveaux algorithmes de correction de l'auto-absorption.

Résultats

Pour la première simulation nous avons décidé d'utiliser un objet simple constitué d'un tube en Silicium de 500 μm de diamètre, de trois fibres de Calcium de différentes épaisseurs, deux de 125 μm et une de 65 μm de diamètre, et d'un fil en Cuivre de 50 μm de diamètre. Le schéma de l'échantillon et la disposition de l'axe du faisceau simulé ainsi que du détecteur de fluorescence X est indiquée dans la Figure 7.b. Les premiers résultats sont présentés dans la Figure 7.c et sont cohérent avec nos attentes.

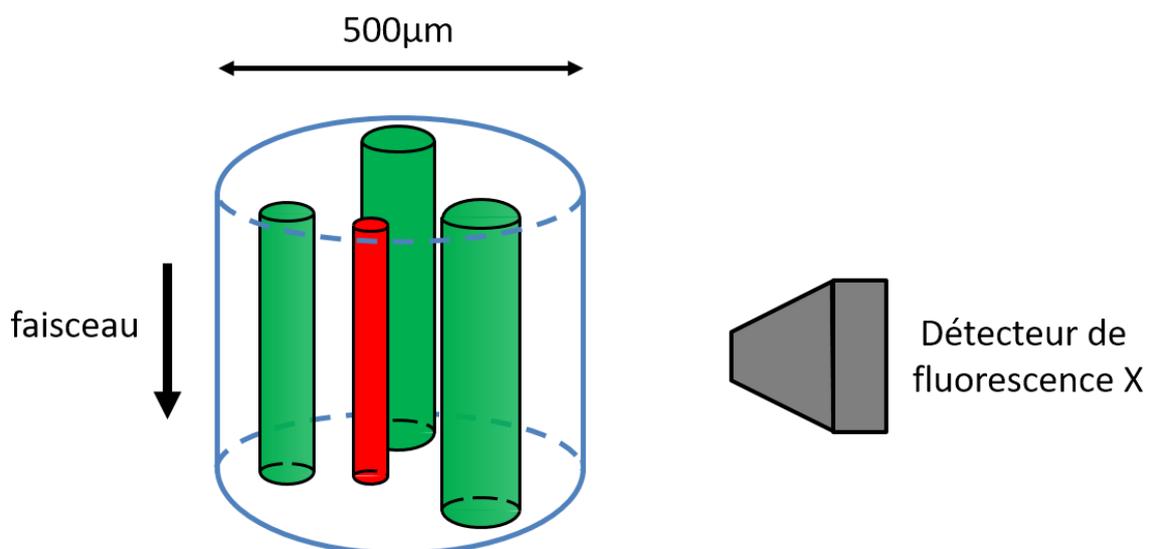


Figure 7.b : Schéma de l'échantillon utilisé pour la simulation. Le tube de Silicium est représenté en bleu, les fibres de Calcium en vert et le fil de cuivre en rouge.

²⁸ <http://cmib.curie.fr/en/download/software/phantomaj/phantomaj-00900>

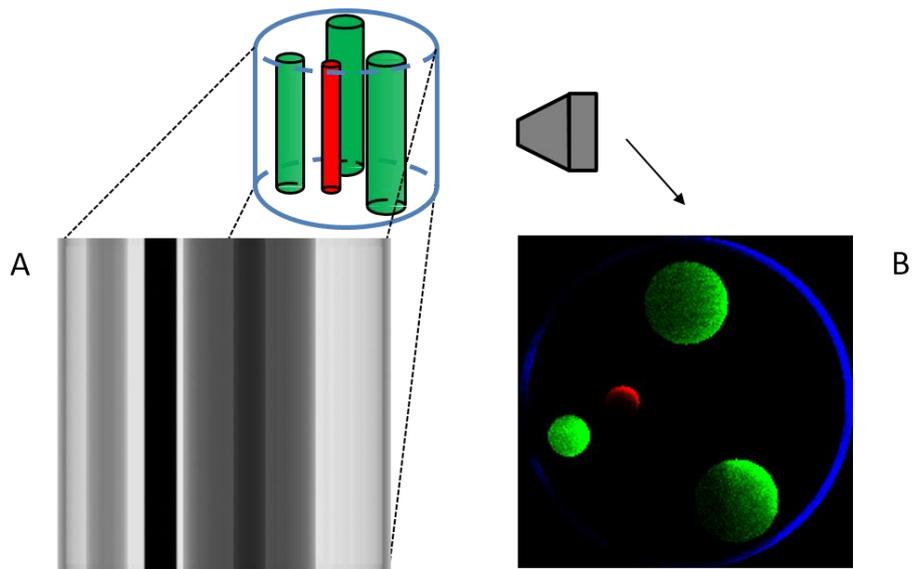


Figure 7.c : L'image **A** représente le contraste d'absorption obtenue grâce au détecteur en aval de l'échantillon. L'image **B** est la fluorescence X mesuré avec le détecteur placé à gauche de l'échantillon. L'image **B** est une représentation en vue de dessus par rapport à l'échantillon.

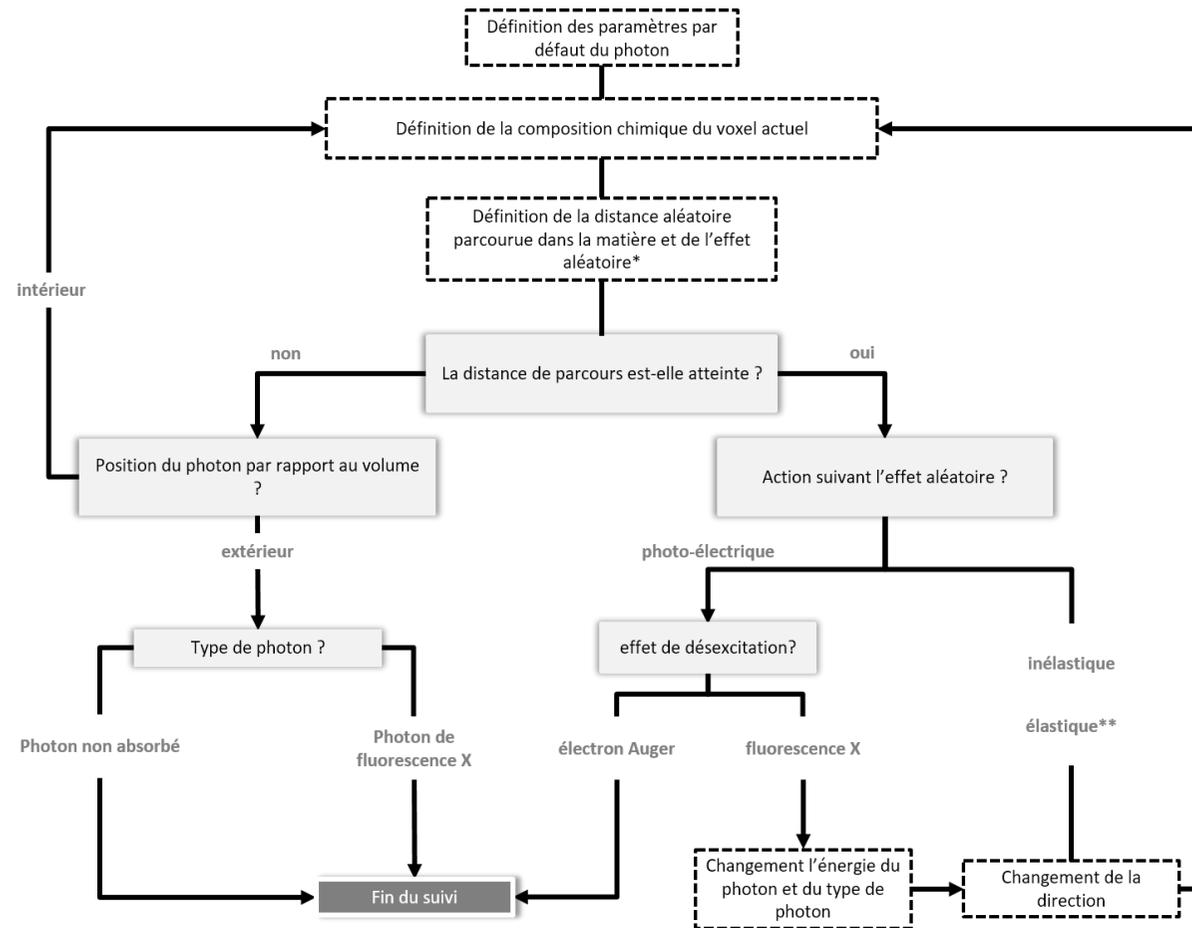


Figure 7.d

- : Processus de suivi du parcours d'un photon lors de la simulation Monte-Carlo. Les éléments encadrés en pointillés concernent la modification des paramètres du photon (i.e. énergie, direction, type de photon, distance à parcourir avant évènement) ou des paramètres de l'environnement (i.e. composition chimique du voxel dans lequel se situe le photon suivi). Le suivi d'un photon est déterminé comme fini, quand il est absorbé dans l'échantillon et ne produit pas de photon de fluorescence X. Le photon de fluorescence X sort du volume de simulation ou le photon initial est non-absorbé et sort du volume de simulation. * La liste des effets aléatoires sont l'effet photo-électrique et les interactions élastique et inélastique. ** dans le cas de la diffusion inélastique l'énergie du photon est modifiée aléatoirement.

Références

- Agostinelli, S., J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, et al. 2003. “Geant4— a Simulation Toolkit.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 506 (3): 250–303. doi:10.1016/S0168-9002(03)01368-8.
- Als-Nielsen, Jens, and Des McMorrow. 2011. *Elements of Modern X-Ray Physics: Als-Nielsen/Elements*. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc. <http://doi.wiley.com/10.1002/9781119998365>.
- Gürsoy, Doğa, Tekin Biçer, Antonio Lanzirotti, Matthew G. Newville, and Francesco De Carlo. 2015. “Hyperspectral Image Reconstruction for X-Ray Fluorescence Tomography.” *Optics Express* 23 (7): 9014–23. doi:10.1364/OE.23.009014.
- Hawkes, Peter W., and John C. H. Spence, eds. 2007. *Science of Microscopy*. New York, NY: Springer New York. <http://link.springer.com/10.1007/978-0-387-49762-4>.
- Jonge, Martin D de, and Stefan Vogt. 2010. “Hard X-Ray Fluorescence Tomography — an Emerging Tool for Structural Visualization.” *Current Opinion in Structural Biology* 20 (5): 606–14. doi:10.1016/j.sbi.2010.09.002.
- Marsaglia, George. 1972. “Choosing a Point from the Surface of a Sphere.” *The Annals of Mathematical Statistics* 43 (2): 645–46. doi:10.1214/aoms/1177692644.
- Messaoudi, Cédric, Thomas Boudier, Carlos OS Sorzano, and Sergio Marco. 2007. “TomoJ: Tomography Software for Three-Dimensional Reconstruction in Transmission Electron Microscopy.” *BMC Bioinformatics* 8 (1): 288. doi:10.1186/1471-2105-8-288.
- Metropolis, Nicholas, and S. Ulam. 1949. “The Monte Carlo Method.” *Journal of the American Statistical Association* 44 (247): 335–41. doi:10.1080/01621459.1949.10483310.
- Schoonjans, Tom, Antonio Brunetti, Bruno Golosio, Manuel Sanchez del Rio, Vicente Armando Solé, Claudio Ferrero, and Laszlo Vincze. 2011. “The Xraylib Library for X-Ray–matter Interactions. Recent Developments.” *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 66 (11–12): 776–84. doi:10.1016/j.sab.2011.09.011.
- Stangl, Julian, Cristian Mocuta, Virginie Chamard, and Dina Carbone. 2013. *Nanobeam X-Ray Scattering: Probing Matter at the Nanoscale*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. <http://doi.wiley.com/10.1002/9783527655069>.
- Von Neumann, J., and S. Ulam. 1945. “Random Ergodic Theorems.” *Bulletin of the American Mathematical Society* 51 (9): 660.

Chapitre 8

Conclusion générale

Cette thèse portant sur l'imagerie X multimodale par balayage rapide à haute résolution spatiale, a été réalisé sur la ligne Nanoscopium, du synchrotron SOLEIL. Cette technique, actuellement déployée sur la ligne, est un outil extrêmement puissant. En effet, elle permet de sonder, à différentes échelles de résolution, la morphologie et la composition chimique d'un échantillon en 2D/3D à travers les modalités d'imagerie par contraste d'absorption, de phase, de diffusion et de fluorescence X. La richesse d'informations ainsi collectées est fortement liée à l'importante volumétrie de données qu'elle est capable de fournir. Les processus de traitement et de reconstruction de telles données constituent la partie centrale de mon travail de thèse. Pour cela, j'ai conçu un logiciel permettant de facilement réaliser l'ensemble de ces processus depuis l'importation des données brutes jusqu'à la reconstruction tomographique multimodale.

L'importation et la réduction des données brutes ont été une grande partie de mon travail. Ces étapes ont été implémentées et optimisées pour réduire le temps de lecture tout en préservant l'exactitude des données réduites. En effet, les données produites sur Nanoscopium ont des tailles de l'ordre de la centaine de giga-octets, ces étapes sont donc critiques par le temps nécessaire à leurs réalisations. C'est pourquoi j'ai développé une librairie de lecture en continu des fichiers HDF5 afin d'accéder aux informations de manière optimisée. La réduction des données est automatiquement associée et/ou suivie par des étapes de corrections telles que le débruitage des données brutes, la normalisation et le recalage des cartographies sur une grille régulière. Ces corrections sont cruciales pour obtenir un résultat au plus proche de la réalité physique de l'échantillon étudié. C'est un important travail de tests, de méthodes et d'intégration que j'ai mené et qui permet aujourd'hui à MMX-I de produire automatiquement des images réduites possédant le minimum d'artefacts.

Les étapes de reconstruction sont également un important volet de ma thèse. L'intégration bidimensionnelle des gradients de phase afin d'obtenir l'information de phase peut être réalisée par un grand nombre de méthodes. Je me suis particulièrement concentré sur deux d'entre elles : l'intégration directe dans l'espace de Fourier et l'intégration itérative dans l'espace réel. Il a été démontré que les résultats obtenus sont quantitatifs. Il a également été établi que selon le cas étudié une méthode sera préférée à l'autre. En effet, dans le cadre d'une acquisition dont le champ de vue est plus petit que l'échantillon et/ou contenant de fortes discontinuités, nous montrons qu'il est préférable d'utiliser une méthode itérative dans l'espace réel.

Différentes méthodes de reconstruction tomographique ont été implémentées. Ces méthodes sont la rétroprojection filtrée et la reconstruction algébrique. Les algorithmes associés, décrits de manière exhaustive dans la littérature, ont été optimisés pour le traitement des données par balayage multimodal et permettent de répondre au besoin posé par la diversité des modalités. Il est par exemple possible d'utiliser les données d'absorption pour aligner les sinogrammes de « darkfield », ou d'utiliser un filtre de Hilbert pour la reconstruction de la phase dans un algorithme de rétroprojection filtrée.

Afin d'initier la réflexion vers de nouvelles méthodes, telles que la correction de l'auto-absorption, j'ai développé un outil de simulation Monte-Carlo. Cet outil permet de générer des jeux de données de fluorescence X exploitables par MMX-I. Ces données permettent d'une part d'avoir une meilleure compréhension du phénomène et d'autre part de pouvoir tester efficacement les algorithmes de correction existants ou en développement.

Tous les développements méthodologiques présentés dans cette thèse ont été implémentés dans le logiciel MMX-I. Une attention particulière a été portée lors de la conception de ce logiciel pour le rendre accessible à des développeurs tiers. Ainsi l'architecture et la structure des données ont été construites de manière modulaire et les sources sont disponibles et libres de droit. L'utilisation du logiciel est également accessible via une interface graphique développée en parallèle de la librairie de traitement durant la thèse. Les développements méthodologiques et logiciels pour le traitement de l'imagerie X multimodale par balayage produits pendant cette thèse sont donc accessibles à tous.

Le logiciel a été utilisé avec succès par des utilisateurs experts sur la ligne Nanoscopium. D'énormes quantités de données issues d'expériences multimodales dans les domaines de la géologie et de la biologie ont pu être traitées sur la ligne. Afin d'assurer la pérennité de MMX-I, le groupe informatique de Soleil a décidé de reprendre la librairie en vue de l'intégrer dans un outil logiciel générique utilisable par n'importe quelle ligne de SOLEIL. Cela ouvre de belles perspectives aux développements réalisés dans le cadre de cette thèse.

A Table des abréviations

ART	<i>Algebraic reconstruction technics</i> / Technique de reconstruction algébrique
CCD	<i>Coupled Charge Device</i> / Dispositif à transfert de charge
CMOS	<i>Complementary metal-oxide-semiconductor</i> / Semi-conducteur métal/oxyde complémentaire
CS	<i>Central stop</i> / Stop central
DPC	<i>Differential phase contrast</i> / Contraste de phase différentielle
FBP	<i>Filtered back projection</i> / Rétroprojection filtrée
FFT	<i>Fast Fourier transform</i> / Transformée de Fourier
FZP	<i>Fresnel zone plate</i> / Lentille de Fresnel
OSA	<i>Order sorting aperture</i> / Ouverture de sélection d'ordre
RMS	<i>Root mean square</i> / Racine carré de la moyenne au carré
ROI	<i>Region of interest</i> / Région d'intérêt
SDD	<i>Silicon drift detector</i> / Détecteurs Silicium à dérive de charge
SNR	<i>Signal to noise ratio</i> / Ratio signal sur bruit
SEM	<i>Scanning electron microscopy</i> / Microscopie électronique par balayage
STXM	<i>Scanning transmission X-ray microscopy</i> / Microscopie X en transmission par balayage
SXM	<i>Scanning X-ray microscopy</i> / Microscopie X par balayage
TXM	<i>Transmission X-ray microscopy</i> / Microscopie X en transmission
XRF	<i>X-ray fluorescence</i> / Fluorescence par rayons X

B Article MMX-I

MMX-I: data-processing software for multimodal X-ray imaging and tomography

Antoine Bergamaschi,^{a*} Kadda Medjoubi,^a Cédric Messaoudi,^{b,c} Sergio Marco^{b,c} and Andrea Somogyi^a

^aSynchrotron SOLEIL, BP 48, Saint-Aubin, 91192 Gif sur Yvette, France, ^bUMR 9187, Université Paris-Saclay, CNRS, Université Paris-Saclay, F-91405 Orsay, France, and ^cU1196, Institut Curie, INSERM, PSL Research University, F-91405 Orsay, France. *Correspondence e-mail: antoine.bergamaschi@synchrotron-soleil.fr

Received 17 November 2015
Accepted 20 February 2016

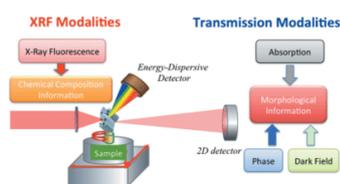
Edited by V. Favre-Nicolin, CEA and Université Joseph Fourier, France

Keywords: scanning multimodal X-ray imaging; scanning X-ray tomography; tomographic reconstruction; phase retrieval; scanning multimodal X-ray imaging; scanning X-ray tomography; tomographic reconstruction; phase retrieval.

A new multi-platform freeware has been developed for the processing and reconstruction of scanning multi-technique X-ray imaging and tomography datasets. The software platform aims to treat different scanning imaging techniques: X-ray fluorescence, phase, absorption and dark field and any of their combinations, thus providing an easy-to-use data processing tool for the X-ray imaging user community. A dedicated data input stream copes with the input and management of large datasets (several hundred GB) collected during a typical multi-technique fast scan at the Nanoscopium beamline and even on a standard PC. To the authors' knowledge, this is the first software tool that aims at treating all of the modalities of scanning multi-technique imaging and tomography experiments.

1. Introduction

The Nanoscopium beamline of Synchrotron SOLEIL (Somogyi *et al.*, 2015) is dedicated to scanning multi-technique X-ray imaging in the 5–20 keV energy range. It aims to offer two-dimensional/three-dimensional (2D/3D) quantitative information on the elemental composition and electronic density of samples with high spatial resolution (down to 50 nm in 3D) and analytical sensitivity, *i.e.* trace, sub-parts-per-million (sub-p.p.m.), detection limit. The beamline is especially well suited for hierarchical length-scale studies of highly heterogeneous samples providing simultaneous morphological, elemental and chemical information at multiple length scales. Indeed, the scanning range can be scaled from millimetres to micrometres with spatial resolution down to 50 nm. The main scientific fields of application at the beamline are biology, life sciences, geo-biology and environmental sciences. Distribution of biologically important transition metals in organic tissues and cells (Colvin *et al.*, 2015), elemental composition and morphology of geological and paleo-geological samples (Sforna *et al.*, 2014), metal uptake and sequestration mechanisms in plants are some representative examples of research which can be performed at the Nanoscopium beamline. The multi-technique 'FLYSCAN' data acquisition scheme developed at Synchrotron SOLEIL (Medjoubi *et al.*, 2013b; Leclercq *et al.*, 2015), based on the specific technical features of Nanoscopium, is crucial for such multi-length scale scanning imaging. It permits scanning X-ray fluorescence spectrometry combined with absorption, differential phase contrast and dark-field imaging to be performed with down to millisecond dwell time per pixel. As such, large-field-of-view measurements become feasible in a few hours of



OPEN ACCESS

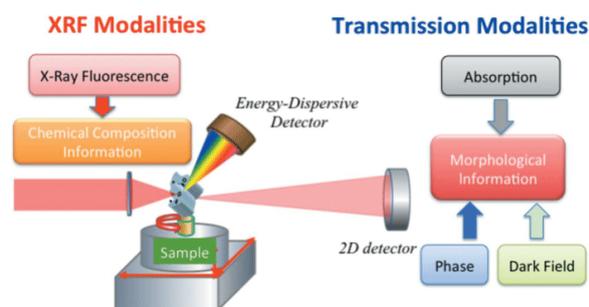


Figure 1 Principle of the scanning nanoprobe station. The sample is raster scanned in the focused beam while recording simultaneously the XRF spectra by energy-dispersive detectors and the transmitted beam by a fast and sensitive 2D detector. The resulting data matrix includes the XRF spectra, the 2D magnified transmission images, the values of the intensity, and beam position monitors and sample scan positions.

measurement time. The principle of the scanning nanoprobe station is presented in Fig. 1. During a usual experiment a large overview map of 2000×2000 pixels ($\sim 2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$) is recorded with millisecond dwell time per pixel. This results in a half-terabyte dataset in about 1 h. The large overview mapping is followed by a more resolved, but slower, scan performed on a $\leq 100\text{--}200 \mu\text{m}^2$ sized region. This produces a similar amount of data in 1–2 h. Obviously, on-line and off-line data processing is a crucial part of the success of the experiments. However, the treatment of such large datasets, regularly generated during synchrotron user experiments, still represents a challenge. These large amounts of raw data have to be imported, reduced, corrected and pre-processed within the time frame of the experiment for on-site data viewing. Moreover, it must also be feasible to perform these data treatment steps on a standard PC by users for thorough post-experimental data processing in their own home institutes, where they often do not possess a high-performance workstation. Such data-reconstruction software and algorithms must be easy to be used as well by users inexperienced in image processing. In order to cope with these challenges, we have developed a dedicated data processing tool at the Nanoscopium beamline, which will be proposed as freeware for the scientific community.

One of the main requirements for such a software tool, both for 2D imaging and tomography, is to extract the physical properties from the samples encoded in the raw data [recorded at SOLEIL in a single NeXus file (Poirier *et al.*, 2009)]. These properties are transformed into images of phase, scattering contrast, absorption contrast and elemental distribution maps. Moreover, calibrations and corrections for detector imperfections (*e.g.* hot pixels of the 2D detector) and for eventual positioning irregularities of the sample stage, have to be performed in a transparent manner. Furthermore, due to the large variety of samples, the sampling strategy and the recorded signals can be very different from one experiment to another (*e.g.* intensity, background). As such, several tomographic reconstruction algorithms and phase-retrieval

methods, tailored to the different measurement strategies and imaging contrasts, must be proposed.

Many open-source software or frameworks exist for transmission tomographic reconstruction or phase retrieval, such as *TomoPy* (Gürsoy *et al.*, 2014), *TomoJ* (Messoudii *et al.*, 2007), *AnkaPhase* (Weitkamp *et al.*, 2011) and *PITRE* (Chen *et al.*, 2012) (a non-exhaustive list). However, they are mostly oriented for full-field imaging and not for scanning imaging. To our knowledge, the open freewares mostly dedicated for scanning X-ray fluorescence (XRF) and X-ray absorption near-edge structure (XANES) applications are *PyMCA* (Solé *et al.*, 2007), *Mantis* (Lerotic *et al.*, 2014), *MAPS* (Vogt, 2003), *TXM-Wizard* (Liu *et al.*, 2012) and *Axis2000* (aXis2000, 1997).

This made it necessary to develop the open-source *MMX-I* software for the off-line processing of multimodal scanning X-ray imaging and tomography datasets. Taking into account the already existing widely used XRF spectrum-fitting software (*e.g.* *PyMCA*), we did not intend to develop such fitting tools for *MMX-I*. Instead, it is possible to import *PyMCA* results, namely elemental intensities obtained by fitting each pixel spectra, into *MMX-I* for further processing.

MMX-I has been designed following a modular architecture, based on the model view controller (MVC) pattern (Reenskaug, 1979). This allows enlarging its application even beyond scanning imaging by including the processing of any other imaging datasets requiring tomographic or phase reconstruction.

2. *MMX-I* for data reduction and processing

2.1. Software platform and workflow

The *MMX-I* project aims to offer both expert users and beginners the possibility of processing and analysing raw data, either on-site or off-site, for each scanning imaging technique included in the software and any of their combinations. Therefore we have developed a multi-platform (Mac, Windows and Linux 64-bit) data processing tool, which is easy to install, comprehensive, intuitive and user friendly.

As software developments based on scripting languages, such as Matlab or IDL, require the installation of rather expensive software packages, we preferred to develop *MMX-I* in Java. Java has a good synergy with the widely used (by different scientific communities) image processing software *ImageJ* (Saalfeld *et al.*, 2012; Schneider *et al.*, 2012; Rizk *et al.*, 2014). Several advantages have been considered with this choice: (i) Java code can run on all Java-supporting platforms without the need of recompilation; (ii) the software tool can be installed with a single executable file, which can even include the appropriate Java version; (iii) the application can be launched from a USB stick and, as such, is easily delivered to the users; (iv) Java includes a large number of scientific class libraries, which allows the easy development of numerical calculations adapted to our needs; (v) *ImageJ* libraries provide the basic image visualization and processing tools.

The *MMX-I* workflow is presented in Fig. 2. The data processing chain is divided into four modules: data importa-

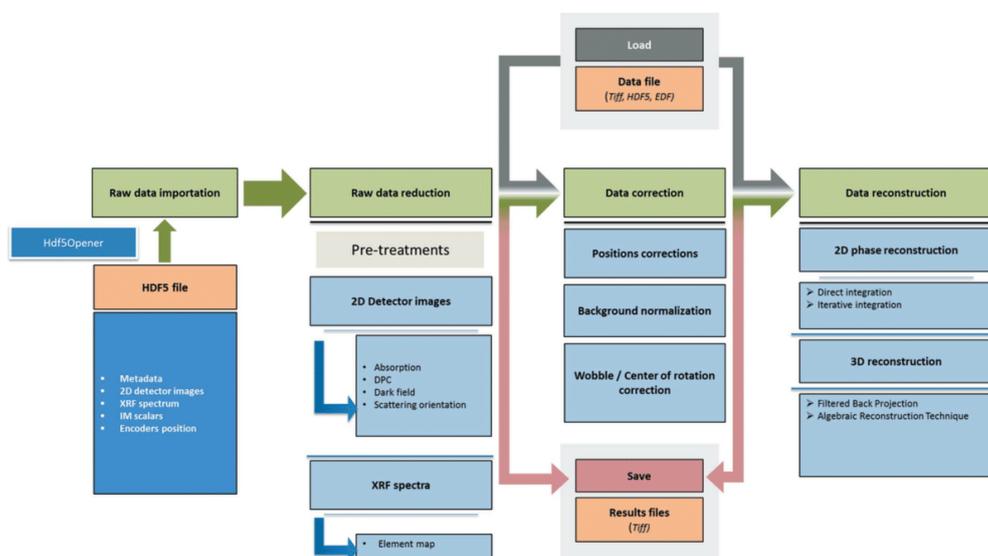


Figure 2 *MMX-I* workflow. Raw data are imported from an HDF5 file via Hdf5Opener and then reduced to absorption, dark-field, phase-contrast (DPC) and elemental maps. After this step data can be exported as tiff files or existing maps can be imported. This is followed by data correction and then data reconstruction.

tion, reduction, correction and reconstruction. Each module is detailed in the following sections.

2.2. Implemented modules

2.2.1. Data importation. At SOLEIL, raw data including metadata (such as scan parameters, sample identifier, beam-line parameters and timestamp), obtained during an experiment, are recorded in an HDF5 (The HDF Group, 2015a) file following the NeXus convention (Könnecke *et al.*, 2015). Fig. 3 presents a file tree of a single NeXus file of data taken during a multi-technique X-ray 2D scanning experiment at Nanoscopium. Being an HDF5 file it is opened using the *HDFView* software (The HDF Group, 2015b). The hierarchical HDF5 format facilitates data processing and interpretation, because the data from each subsystem (sensors, motors, *etc.*) are recorded in a single HDF5 file following the order of the acquisition process. The HDF5 is a binary file indexed in B-tree (tree data structure). In addition to being self-describing, the HDF5 format is quasi-unlimited in size (*i.e.* limited by the file system). HDF5 is well supported and continuously improved by the HDF Group in order to stay at the cutting edge of innovation.

Reading and processing large HDF5 files of 0.5–1 TB volumes, produced regularly by Flyscan at Nanoscopium, requires high computing performances, which is not available by standard PC or laptop computers. As such, the optimization of the computing resources was a crucial part of the *MMX-I* project in order to cope with the handling of big data files even by standard user-PCs. For this purpose, a dedicated readout API, named Hdf5Opener, has been developed. Indeed, reducing data takes only a small fraction of the computation power compared with file readout. The bottlenecks of the

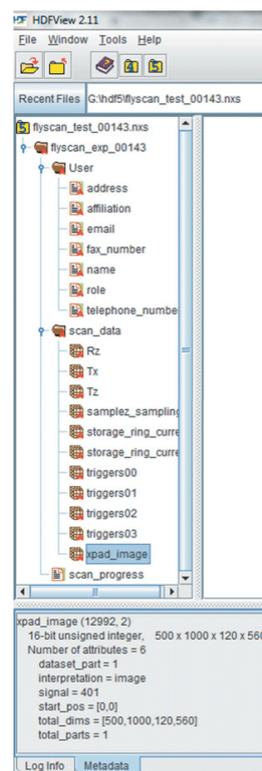


Figure 3 File tree of a single NeXus file corresponding to a 2D multi-technique scan. The images of the bi-dimensional detector are contained in a 4D matrix (each pixel of the 2D data map contains a 2D detector image), XRF spectra are in a 3D matrix, the positions and intensity values are in a 2D matrix.

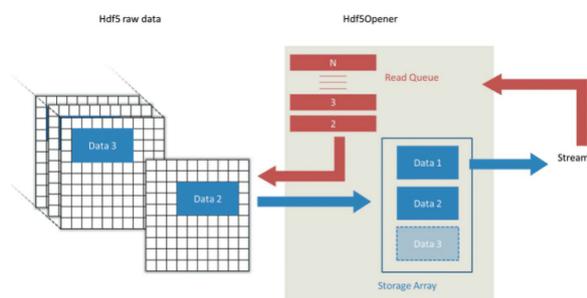


Figure 4
Scheme of the Hdf5Opener streaming process. The ‘Stream’ object passes to the Hdf5Opener (red arrow) to the read queue which consists of a list of read requests. Hdf5Opener reads sequentially, in ‘continuous’ mode, each read request and stores the result in the storage array (blue arrow).

reduction procedure are the memory available for the readout of the complete dataset contained in the file and the time necessary for data transfer from the disk to the memory. In order to address these problems, Hdf5Opener owns its own dedicated memory and execution thread, which allows working in parallel with the other processing threads of *MMX-I*. The strategy is to partially read the Hdf5 file and to separate data reading and processing. In detail, as shown in Fig. 4, a stream object sends to the API a list of read requests, each containing the selection of the partial dataset to be sequentially read out. After the readout of the first request of the list, the block of data is stored in the storage array and queued up to be processed. The operation is performed continuously for all elements of the list, according to the available memory size. Once one of the parallel-processing tasks on a given block of data is terminated, the corresponding memory space in the storage array is released. By default, the size of the block of data is set to be equal to the size of the first dimension of the scan. As an example, for a 2D scan, the block of data will contain the elements of one line. This strategy is detailed in §2.2.2.

The data contained in each block may not be necessarily adjacent in the pixel map. Indeed, for rapid overview of very large datasets, the API can read each second pixel of the map in all dimensions. This mode is called ‘low resolution’ in *MMX-I* and is described below. Moreover, it can be decided not to process parts of the dataset which are considered to be uninteresting (region outside of the sample or corresponding to beam loss *etc.*).

2.2.2.2. Data reduction. Data reduction consists of processing X-ray transmission and XRF raw data to obtain: (i) images from the transmitted signal; (ii) horizontal and vertical differential phase contrast images; (iii) dark-field images; (iv) the orientation of the scattering (to be implemented in the near future); (v) elemental distribution maps.

Previous to data reduction, raw data have to be pre-treated. For instance, the signal type (absorption, phase, dark field and fluorescence) contained in the treated data matrix has to be identified, denoised and calibrated.

Pre-treatment. Usually, the largest part of the total data volume is represented by the transmission images. In order to

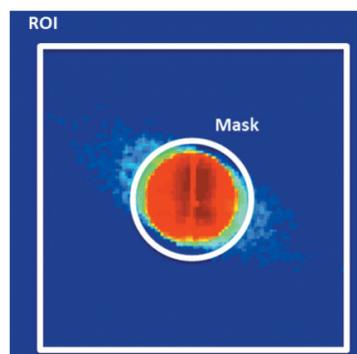


Figure 5
Transmitted X-ray beam recorded by the XPAD 2D photon-counting detector. The image is displayed on a log scale. Pixels used for data reduction are inside the default ROI marked with a white square. The white circle represents the outer limit of the default ‘illumination mask’ used for determining the pixels belonging to the dark field.

save computing resources and time, only those image-fractions [image region of interest (ROI)] of the detected raw transmission images will be read by Hdf5Opener, which contains ‘significant’ information for calculating the transmission modalities. To this end, when the raw data file is loaded for the first time, *MMX-I* will automatically read 10% of the whole transmission dataset, uniformly distributed in the coordinates of the scan. From this step, the ROI containing the whole transmitted and scattered beam is determined (see Fig. 5). In a second step, a mask of the illumination pattern is defined, which is especially important for the calculation of the dark-field images as described later. The ROI images are thresholded with a minimal value, transformed to binary images and then summed. The resulting ‘illumination mask’ represents for each pixel the number of times the pixel was illuminated by X-rays (above the threshold value) during the whole scan. To obtain a reasonable transmitted beam shape we only consider the pixels which are illuminated within the 95–100% range of the maximum value of the illumination mask (see Fig. 5). This ROI and illumination mask are then proposed to the user as the default ones (see §2.5). The default ROI and illumination mask can be customized by the user.

Hot pixels are removed from each 2D detector image before further data processing. A dedicated function has been developed in order to identify and remove those pixels, which are significantly different from their neighbours. For this, a local histogram statistics algorithm based on the variance value of each pixel in its neighbourhood (Gonzalez & Woods, 2006) is used. The available default parameters such as the convolution kernel, used to compute the variance, or the histogram threshold can be modified by the user. The positions of the reliably identified hot pixels are then recorded in a look-up table. Then, they are either replaced by the average intensity value of the neighbouring pixels or not considered at all in the reduction processes.

XRF is an analytical method for determining the chemical composition of the specimen. When a sample is exposed to an

X-ray beam with sufficient energy, characteristic X-ray fluorescence radiation will be emitted with discrete energies that are specific of the excited elements. By measuring their energies and intensities, it is possible to determine the concentration of the measured elements. This information for a given element is obtained by measuring, for each pixel of the map, the area of the corresponding peak. Energy calibration of the XRF spectra is a crucial step for the identification of the elements contained in the sample and the reconstruction of the elements maps. By default, *MMX-I* calculates the sum spectra separately for each X-ray fluorescence detector. The energy calibration of the spectrum is performed in the standard way (Grieken & Markowicz, 2001), by selecting at least two known X-ray lines. Then, the user can interactively select ROIs, containing the characteristic X-ray peaks of interest, which will be used during the further data reduction process. XRF spectrum deconvolution and background subtraction have not been integrated in *MMX-I*, since the strategy was not to re-create existing functions, which have been optimized and widely used in excellent software for several years, e.g. *PyMCA* (Solé *et al.*, 2007). Instead, *MMX-I* provides the possibility to export sum spectra in 'mca' file format in order to be processed by *PyMCA*. The resulting 'fit' file can be imported into *MMX-I* in order to create ROI images. An additional option allows fitted elemental maps obtained by *PyMCA* to be re-injected into *MMX-I* for further processing, e.g. for tomographic reconstruction.

Data reduction step. The data reduction step is performed by default for all the pixels of the scan. The transmission modalities are determined from the images of the transmitted beam (see Fig. 5). The transmission contrast image is calculated by the numerical summation of the pixels within the beam ROI (see the *Pre-treatment* section above) giving access to absorption contrast typical of conventional radiography.

The differential phase contrast (DPC) is proportional to the refraction angle (Mukaide *et al.*, 2009) as described in the following formulae,

$$\begin{aligned}\frac{\partial\varphi(x, y)}{\partial x} &= \frac{2\pi}{\lambda} \theta_x, \\ \frac{\partial\varphi(x, y)}{\partial y} &= \frac{2\pi}{\lambda} \theta_y,\end{aligned}\quad (1)$$

where φ is the phase, θ_x and θ_y are the respective refraction angles along the horizontal and vertical directions, and λ is the wavelength. The refractions angles are determined by calculating the centroid of the transmitted beam, inside the ROI, along the horizontal and vertical directions. DPC images are used for phase map reconstructions (described below). It has to be noted that the scanning DPC technique allows the phase to be measured beyond 2π and therefore does not suffer from any phase-wrapping effects (de Jonge *et al.*, 2008).

The dark-field data represent the intensity of the scattering signal. Its amplitude is linked to the density fluctuation on a length-scale smaller than the illuminated area (Menzel *et al.*, 2010) and is evaluated by integrating the scattered intensity outside of the transmitted beam, *i.e.* outside the illumination

mask shown in Fig. 5. The anisotropy of the scattering can also be exploited and provides contrast information on the orientation of structures in the sample. Orientation may be retrieved by dividing each integrated area of a large annulus ROI into smaller parts, spread over 360° , and then computing the angle by fitting the intensity of each part with a cosine function (Bunk *et al.*, 2009).

2.3. Data correction

In order to improve the quality of the reduced data images, an additional correction step is performed. This allows users to correct the effects of the beam intensity variation, the translation stage positioning errors, the image background variation and, for tomographic acquisition, the slight misalignment and eccentricity (called wobble) of the rotation axis. Correction of the reduced images is a crucial step in order to obtain reconstructed images with a high degree of fidelity. It is the reason why this image processing has been carefully developed in *MMX-I*.

In order to correct for the variation of the incoming beam flux, an intensity monitor is inserted upstream of the sample. As such, the transmission, XRF and dark-field modalities are normalized with the incoming beam intensity measured in each pixel.

In fast-scanning multi-technique nanoprobe methods, the sample is scanned in continuous motion along one dimension while the detectors (intensity monitor, 2D detector and XRF detectors) and the encoder positions are recorded for each pixel/voxel. The simultaneous data acquisition of each device is started by an external trigger signal. In the FLYSCAN architecture, the triggers are provided by a periodic TTL pulse generator. Due to motor acceleration/deceleration, motion speed stability and backlash, the pixel size of the map will not be equivalent in the whole scan. This inhomogeneity can strongly restrain the use of algorithms requiring data continuity. Therefore, each image has to be rescaled by the recorded encoder positions. *MMX-I* includes an algorithm to correct for such imperfections by positioning each measured pixel in a new perfect virtual grid. The virtual grid is created based on the measured motor position of each pixel. This grid is first reshaped in order to have pixels of the same size only. The new pixel size is defined as having the mean height and width of the measured pixels. The value of each measured pixel is then re-assigned in the virtual grid. Pixels from the virtual grid may contain the value of several measured pixels or none. To avoid these brutal discontinuities the virtual grid is finally smoothed where aberrant pixel values appear.

Obtaining absolute absorption, dark-field and phase modalities requires reference values, which correspond to the value of the modality obtained without sample. These can only be derived in the case of well isolated objects (producing background pixels on the right and left part of each row). In this case an automatic edge detection function is applied defining the reference 'background' value for each row. A reference background region can also be manually defined, which is recommended in the case of non-isolated specimens.

In the case of tomographic measurements, sinograms are extracted for each contrast modality from the projection images measured at different angles. For artefact-free tomography reconstruction, parameters such as the position of the axis of rotation have to be known and correction for irregular angular movements (wobble) has to be performed.

MMX-I includes correction algorithms for sample wobbling and slight misalignment of the rotation axis. The method, described in detail by Azavedo *et al.* (1990), consists of computing the centre of mass for each projection and fitting the resulting sinogram curve with a sinus function. In order to perform correctly, this method implies that the object must always be in the field of view of the projections. In addition, special care is given to the sine fit function to minimize the influence of noise. The offset of the fit gives the centre of rotation. The distance between the centre of mass and the fitted curve for each projection is used to correct for the wobble effect. This method requires using preferably a sinogram over 360°. The evaluated shift correction obtained from the modality which has the largest signal contrast is then applied for all the other modalities. In the example shown below, the shift correction is evaluated from the transmission sinograms.

2.4. Data reconstruction

Reconstruction is the last step of data processing in *MMX-I*. In the case of 2D imaging, reconstruction concerns the phase determination from the horizontal and vertical differential phase contrast images. The different phase-retrieval methods implemented in *MMX-I* are presented and compared in the next section.

For tomographic reconstruction, *MMX-I* provides both classical filtered back-projection (FBP) (Kak & Slaney, 2001) and iterative techniques, such the algebraic reconstruction technique (ART) and the simultaneous iterative reconstruction technique (SIRT) (Kak & Slaney, 2001). Each tomographic reconstruction method can be optimized independently for each contrast modality in order to extract the correct information. Tomographic reconstruction is described in §2.4.2.

2.4.1. Phase contrast reconstruction. Two methods have been implemented in *MMX-I* for quantitative phase reconstruction. The first is the Fourier integration method (Kottler *et al.*, 2007), which applies a Fourier derivative technique to integrate directional phase gradients. The second procedure is the finite-difference-based least-squares integration methods with Southwell (Southwell, 1980) configuration. The two methods and their performance on quantitative reconstruction of scanning X-ray phase contrast data are described and discussed below.

The Fourier technique is based on the properties of the Fourier transform of a derivative function. A 2D Fourier transform is performed on the complex image formed by the vertical and horizontal phase gradient images as real and imaginary parts, respectively. Thus, the phase image weighted by the complex sum of the frequency coordinates is obtained

in the Fourier space. An inverse Fourier transform of the phase image representation in frequency space is performed to determinate the quantitative phase shift φ information in the direct space,

$$\varphi(x, y) = \text{Real} \left\{ F^{-1} \left[\frac{F(\alpha_x + i\alpha_y)(u, v)}{2\pi i(u + iv)} \right] (x, y) \right\}, \quad (2)$$

where α_x and α_y are the horizontal and vertical phase gradients, u and v are the reciprocal coordinates, and $\text{Real}(\dots)$ indicates the real part of the complex function. The imaginary part of the inverse Fourier transform contains the error of the phase reconstruction and it is usually represented in terms of intensity less than 10% of the real part (Holzner, 2010).

Direct integration using the fast Fourier transform (FFT) algorithm is very fast and easy to implement. The drawback of methods based on discrete Fourier transform (DFT) is that the transformation assumes periodicity in the input image. Hence, when the investigated sample crosses the image boundaries, it will create artefacts in the reconstruction. To overcome this limitation, *MMX-I* offers the user the possibility to create Von-Neumann boundary conditions by mirror processing in both directions of the differential phase contrast images (see Fig. 6). The images are mirrored in both directions following either the mirrored derivative integration (MDI) or antisymmetric derivative integration (ASDI) (Bon *et al.*, 2012). Phase reconstruction is then carried out on the resulting images and automatically cropped to obtain the investigated phase. It has to be noted that, to avoid divergence in equation (2), the zero frequency value of the Fourier transform of the phase is set to zero. This means that the phase offset is lost and the sum of the integrated phase has to be null. Nevertheless, the phase shift can be calibrated using areas of the phase map where no objects are present.

Iterative approaches such as least-squares integration with Southwell configuration methods are well known to be efficient especially when strong discontinuities are present in the DPC images. The Southwell methods consist of the linear integration of the gradients in the horizontal and vertical directions. At each iteration step, the phase shift map φ_{jk}^{i+1} is calculated as follows,

$$\varphi_{jk}^{i+1} = \varphi_{jk}^i + w \left[\bar{\varphi}_{jk}^i + \frac{(\alpha_{j,k+1}^x - \alpha_{j,k-1}^x + \alpha_{j+1,k}^y - \alpha_{j-1,k}^y)}{2} - \varphi_{jk}^i \right], \quad (3)$$

where i is the iteration step, w the relaxation factor and j, k the pixel coordinates.

The relaxation factor w , which will make the solution converge towards the real phase value, is dependent on the algorithm update strategy. Jacobien and Gaussian Seidel algorithms are proposed to the users. In the first case, the phase is updated when the whole map has been processed. The relaxation factor must be defined in the interval]0, 1]. In the second case, the phase map is updated after the processing of each pixel. The relaxation w has an optimal value, which depends only on N , the number of measured gradient values,

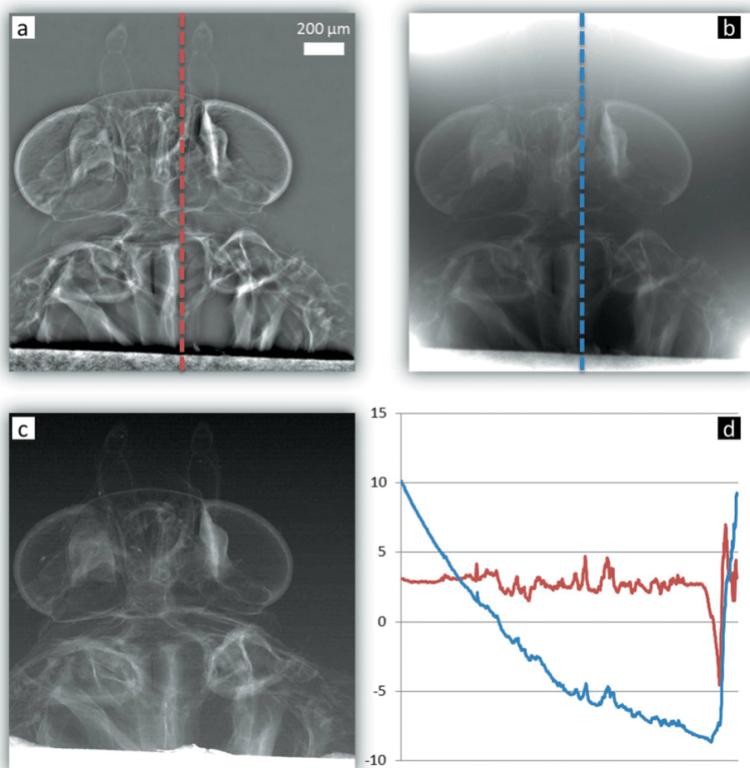


Figure 6
Phase retrieval of a moth head by using Southwell (a) and Fourier integration (b) techniques. Vertical profiles measured on both images are compared in (d). The absorption-contrast image (c) shows the high attenuation of the sample holder.

$$w_{\text{optimal}} = \frac{2}{1 + \sin[\pi/(N + 1)]}. \quad (4)$$

Fig. 6 presents an example of phase reconstruction, using both integration techniques, performed on scanning imaging data of a head of a moth (Medjoubi *et al.*, 2013b). The DPC shows a large discontinuity produced by the strong absorption of the sample holder (Fig. 6c). As expected, the Fourier reconstruction technique induced a large low-frequency intensity

variation, which contaminates the whole image and restrains any quantitative information. This effect is found to be more localized using the iterative methods: the artefacts are circumscribed in a region around the discontinuity. The figure presents two profiles taken in the phase images reconstructed, respectively, with both methods. It can be seen that the dynamic is strongly reduced with the FFT method compared with the iterative one. Meanwhile, the main drawback of the Southwell technique is the long computation time: it can reach several minutes in the case of a 1 Megapixel projection image like that of the moth.

By proposing in *MMX-I* these two phase integration methods, the user can make a sound compromise between calculation time and the expected more precise quantitative phase reconstruction.

Quantitative phase reconstruction has been investigated by using the Fourier integration method. In order to validate the reconstruction performed by *MMX-I*, DPC images of nylon wires have been measured at an energy of 14 keV. The relation among the phase shift φ of the X-ray beam having a wavelength λ within the sample of thickness t for which the real part of the refraction index is δ can be written as

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} t \delta. \quad (5)$$

The nominal diameters of the horizontal and vertical wires are 50 μm and 100 μm , respectively. The wire thickness distribution is determined from the phase-shift map by using equation (5) and is shown in Fig. 7(a). The real part of the refraction index at 14 keV and the density of the nylon used are, respectively, 1.63×10^{-6} and 1.13 g cm^{-3} (Keyriläinen *et al.*,

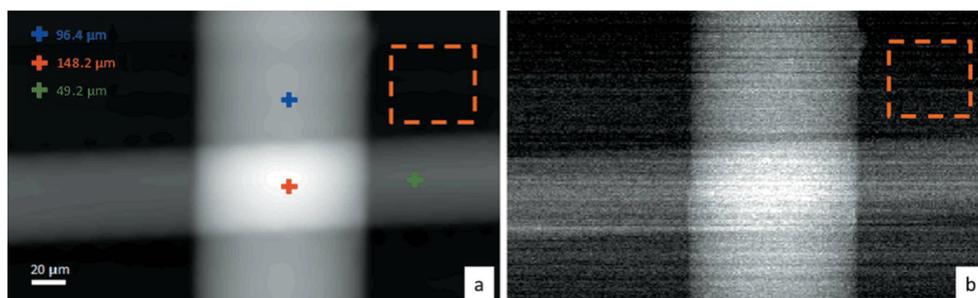


Figure 7
Quantitative thickness reconstruction obtained from phase-retrieval image (a) and absorption image (b).

2002). The calculated thickness presents a very good agreement with the nominal values. The error of the thickness reconstruction is estimated to be $\sim 1 \mu\text{m}$ RMS from the noise within an area outside of the sample (orange square in Fig. 7a). For comparison, the thickness distribution calculated from the absorption image is shown in Fig. 7(b); it is very noisy with a poor signal-to-noise ratio (SNR) compared with the thickness map reconstructed from the phase shift. Moreover, the noise evaluated outside the object is about $12 \mu\text{m}$ RMS (orange square in Fig. 7b).

2.4.2. Multimodal tomographic reconstruction. X-ray tomographic reconstruction algorithms are well known and well described in the literature (Kak & Slaney, 2001). Reconstruction algorithms such as FBP (Bracewell & Riddle, 1967) and ART (Gordon *et al.*, 1970) are implemented in *MMX-I*. Each processing method has specific filters and reconstruction parameters, which can be optimized for reconstruction calculations of each contrast modality.

FBP is based on the Fourier slice theorem (Kak & Slaney, 2001). This theorem describes the equality between the Fourier transform of a parallel 1D projection of an object obtained at a given angle and a profile taken at the same angle in the 2D Fourier transform of the object. When including additional projections, the frequency space is filled by additional rotational angles. The over-representation of low frequencies around the zero frequency is corrected by appropriate frequency weighting.

Weight functions such as the ramp function multiplied by a hamming window are widely used as generally they provide the best results for most of the contrast modalities. The differential phase contrast is a specific case. Indeed, by using the Hilbert filter (Pfeiffer *et al.*, 2007), phase integration is directly obtained from the DPC sinograms. Therefore, these two filters are implemented into *MMX-I*.

FBP is a very fast and robust method. Meanwhile, reconstructed images are artefact-free only if the total number of angular projections is superior or equal to half the mean resolution of the projection (Kak & Slaney, 2001) and if the SNR is high. In scanning methods, especially for the XRF modality (*e.g.* trace element detection), these two conditions are not always fulfilled. In this case, the iterative method is well adapted. It allows, in spite of being computationally expensive, fewer projections to be handled and low SNR. The method starts with an initial estimate of the density distribution of the object obtained by a simple back-projection. By comparing the projections predicted from this initial estimate with those that are actually acquired, changes are made to the estimated tomogram. Each projection P_i is modelled as follows,

$$P_i = \sum_{j=1}^N f_j w_{ij}, \quad (6)$$

with i the projection number (from 1 to M , the total number of projections), j the pixel number in the tomogram, N the total number of pixels of the tomogram image, f_j the attenuation value of the pixel j , and w_{ij} the weighting factor for the i th

projection and j th pixel. This latter corresponds to the fractional area of the j th pixel intercepted by the i th projection P_i . This can also be a logic value (0 or 1) in order to save time for creating the w matrix but is less accurate.

Two methods for the determination of f_j have been integrated into *MMX-I*: standard ART and SIRT (Gilbert, 1972). In the first case, the f_j value at the pixel j is updated by using one projection at each time. The corresponding expression of f_j for the k th iteration is

$$f_j^k = f_j^{k-1} + w_{ij} \frac{P_i - \sum_{j=1}^N f_j w_{ij}}{(\sum_{j=1}^N w_{ij})^2}. \quad (7)$$

In the SIRT technique, the f value at the pixel j is updated by using the whole projections. The corresponding expression of f for the k th iteration is

$$f_j^k = f_j^{k-1} + \frac{\sum_{i=1}^M P_i}{\sum_{i=1}^M \sum_{j=1}^N w_{ij}} - \frac{\sum_{i=1}^M \sum_{j=1}^N f_j w_{ij}}{\sum_{i=1}^M (\sum_{j=1}^N w_{ij})^2}. \quad (8)$$

The SIRT technique presents the advantage of strongly reducing the noise and the edge-enhancement artefacts (Leis, 2009). On the other hand, the SIRT method converges slower and requires more computational resources than the other techniques detailed in this paper.

As previously indicated, iterative approaches (ART and SIRT) are well suited for XRF tomography. In order to illustrate this, XRF tomography datasets acquired on a test sample at an energy of 14 keV (Medjoubi *et al.*, 2013a) were processed with *MMX-I*. This test sample consists of a glass capillary of 500 μm diameter containing three nylon fibres (two with a diameter of 100 μm and a 50 μm -diameter one) and a copper wire (40 μm in diameter). A virtual slice of the sample was measured through 500 angular projections equally distributed over 360° . One projection consisted of 500 pixels of 4 μm step size.

FBP and SIRT tomographic reconstructions have been performed using in one case all the 500 projections and in the other case a sub-dataset of only 30 projections. Results are presented in Fig. 8.

As expected, tomograms reconstructed with the SIRT method present a better SNR compared with FBP and are presenting fewer artefacts [*e.g.* missing star-like artefacts in Fig. 8(d) compared with Fig. 8(b)]. The signal in the XRF sinograms is usually low compared with transmission modalities. Under such conditions, even using the full dataset, the FBP reconstructed tomogram is noisy, as can be seen in Fig. 8(a), which is less the case for the SIRT reconstructed tomogram [*cf.* Figs. 8(c) and 8(d)]. With a large angular sampling interval, *i.e.* 12° between each projection (30 projections dataset), FBP produces significant star-like artefacts which superimpose on the useful signals. Such artefacts are not observed with SIRT. Moreover, the SNR of the SIRT tomogram is above 5, *i.e.* better than the Rose criteria (Rose, 1948). The spatial resolution is worse in the case of treating the 30 projections dataset, due to the limited angular projections.

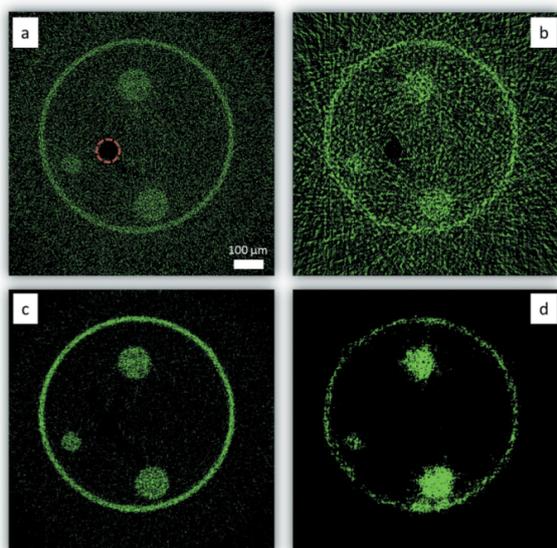


Figure 8
Reconstructed scattering (Rayleigh + Compton) distributions by FBP (top row) and SIRT (bottom row) by using 500 (*a* and *c*) and 30 angular projections (*b* and *d*) of a capillary containing three nylon fibres and a copper wire [marked by the red circle in (*a*) for clarity].

Regardless of the method used, tomographic reconstruction algorithms are based on combining the projections at different angles which requires that the sinograms are corrected for measurement errors, such as those depicted in §2.3, otherwise the reconstruction will contain artefacts resulting in reduced image quality. To treat this problem, correction algorithms have been carefully integrated into *MMX-I*.

2.5. User interface

The graphical user interface (GUI) has been designed in order to guide non-expert users through the complex data processing. It follows the panel structure of the workflow, starting from data importation to phase contrast and tomographic reconstruction. Each panel displays the main information required to validate or tune the default parameters of the actual process. Expert users find more options and parameters by navigating within the dedicated menu bar of each panel. Each step/panel of *MMX-I* is accessible in a specific order, which must be completed sequentially to ensure the input of the essential parameters of data processing. Only when a panel is completed may users advance to the next step, *i.e.* they can proceed to the next panel or they can return to a previous one to tune or

add parameters. The GUI is based on the *Swing* platform-independent Java widget toolkit and *ImageJ*, which has been used to display images and provide image interaction with user input.

The panel of the GUI corresponding to the raw data importation and visualization parts is presented in Fig. 9. In this panel the raw data of the HDF5 file, *e.g.* measured transmission images (as actually shown in the upper part of the figure), are displayed in the top right of the interface and the XRF spectrum panel in the bottom right. The current ROI for the 2D detector images is automatically shown and can be modified manually by the user. The shown data are updated while navigating with a scroll bar through the measured pixels of the scan. As an option, the sum spectrum of each XRF detector for the whole dataset can also be obtained by selecting the ‘mean function’ as shown in Fig. 9. This spectrum can be used, for example, for energy calibration. Moreover, ROIs in the XRF spectra, motor position correction and hot pixel removal parameters can be set in this tab.

3. Examples

The possibilities offered by *MMX-I* are illustrated here by some examples. Measurements were performed at the FZP-based micro-probe end-station of Nanoscopium.

3.1. Bi-dimensional multimodal imaging of a standard structure

A 2D fast-scanning imaging of a nanostructure calibration chart, which includes the SOLEIL logo (250 µm wide and 75 µm high), was measured with a 400 nm × 400 nm pixel size. For a scan of 300 × 800 pixels the total measurement time was less than 10 min and represents a data volume of 40 GBytes.

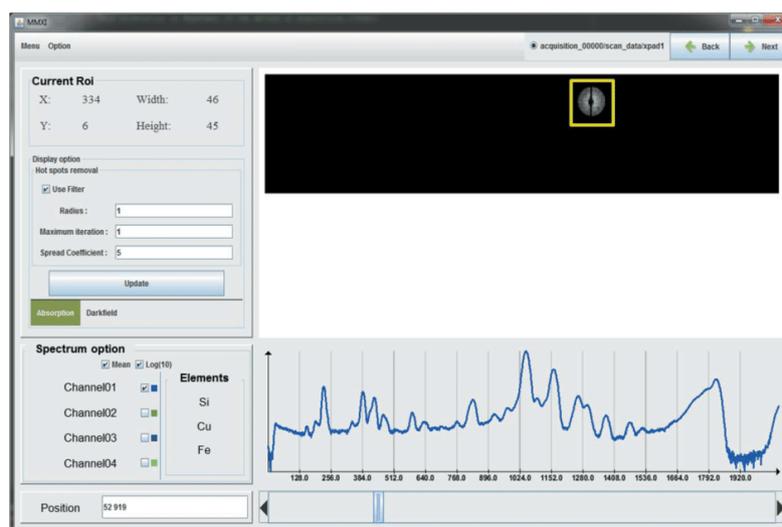


Figure 9
Graphical user interface of *MMX-I*.



Figure 10

Absorption (a), phase (b), dark-field (c) and XRF (d) images of the SOLEIL logo made of gold (in red) and nickel (in green) and with structure size down to 200 nm.

The absorption contrast, differential phase contrast, dark-field contrast, phase contrast and Au, Ni maps were reconstructed with *MMX-I* in less than 5 min with a laptop (Intel core i7-4900MQ, 16Go Ram, 1To Samsung SSD EVO 840) and can be seen in Fig. 10. The reconstructed phase shifts of the gold and nickel structures are 0.6 and 0.66 rad, respectively, which agree well with the thickness values extracted from the absorption image.

3.2. Multitechnique tomography of a microfossil

Microfossils are valuable tools for paleo-environmental interpretations. Due to their ubiquity in most marine environments and their abundance in the geological records from the Cambrian (>500 million of years) to the present times, foraminifera are one of the most widely studied groups of fossil records worldwide in paleoceanography (Fischer & Wefer, 1999).

Foraminifera are single-cell eukaryotes (Protozoa). Many species secrete shells, which are composed of calcium carbonate (CaCO_3). During its secretion, trace elements are incorporated into this calcareous shell from the sea water (Boyle, 1981; Munsel *et al.*, 2010), in concentrations depending on the ambient sea water conditions. As such, geochemical data obtained from foraminifera measurements are used as proxies also in paleo-climatology. Moreover, if we can understand how organisms in the past responded to environmental changes, then that information can be used to predict how future natural or anthropogenic environmental change might affect the Earth's biota. Understanding mechanisms of heavy metals incorporation during biomineralization processes in foraminifera is a fundamental key for interpretation of these geological records, where spatially resolved and high analytical sensitivity 3D elemental and morphological studies might bring important new information to the existing mostly bulk studies.

In order to test the possibility of scanning hard X-ray tomography on such samples, we performed 3D multi-technique tomography on a fossil foraminifera. Tomography has been performed with an angular step $\Delta\Theta = 1.8^\circ$ over 180° . We aimed at the acquisition of moderate $2\ \mu\text{m} \times 2\ \mu\text{m}$ spatial resolutions, due to the large $300\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m} \times 120\ \mu\text{m}$ size

of the sample. We measured 23 virtual slices in $1\ \mu\text{m}$ steps between the slices. The acquisition was accomplished slice by slice in the x (scanning line), Θ (rotation in the axis perpendicular to the scanning line) and z (axis perpendicular to the scanning line) sequence, by scanning a full horizontal line with $\Delta x = 1\ \mu\text{m}$ steps and then performing a rotational step ($\Delta\Theta$). The measurement time was 3 ms per pixel. The total measurement time of the $500 \times 200 \times 23$ voxels, each containing the XRF, the transmission data, data coordinate *etc.* as described above, was 3 h. It resulted

in a 500 GB data file. This dataset was analysed and the tomograms of the different modalities were reconstructed by *MMX-I*. In Fig. 11 the volume rendering of the reconstructed phase, dark field and the distributions of Fe and Ca are shown. The best morphological contrast is obtained by DPC in the case of the foraminifera, which contains a thin ($\sim 10\ \mu\text{m}$) CaCO_3 shell. The highest dark-field contrast indicating highly scattering granular structure corresponds to structures with lower absorption, which contain no Ca. These light highly scattering structures can be found mostly in the interior of the shell. Interestingly, Fe is distributed within the highly scattering internal structure and also as a small Fe grain at the exterior of the foraminifera. No significant Fe was found within other highly scattering structures.

4. Discussion and conclusion

The *MMX-I* software developed at the Nanoscopy beamline of SOLEIL is, to our knowledge, the first software tool that aims at treating all modalities (except ptychography) of scanning multi-technique imaging and tomography experiments.

MMX-I includes different data-correction and reconstruction methods both for 2D imaging and tomography. For each included contrast modality, which up to now is scanning XRF, differential phase contrast, absorption contrast and dark field, the software offers a dedicated default data-treatment and tomographic reconstruction method which is, according to our experience, the best suited to a given modality for most sample types. As such, users unfamiliar with X-ray imaging can readily use the software. This is well illustrated by the examples of the foraminifera and the standard structure, where the default ROI, 'illumination mask', reconstruction methods and variables were used for data treatment. Users experienced in the treatment of X-ray imaging have the possibility to modify and optimize all the parameters. This diversity and flexibility makes *MMX-I* a software tool well adapted to data treatment of fast multimodal imaging. Multimodal imaging opens the additional possibility of the combination of all modalities in order to obtain complete information for quantification. For light elements in strongly absorbing sample matrices, self-

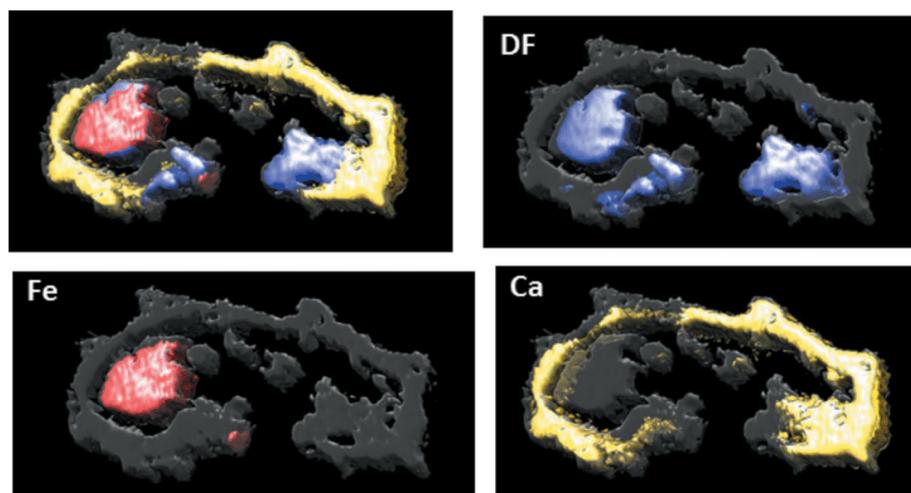


Figure 11
Multimodal volume rendering of a foraminifera sample. The reconstructed phase is shown in grey.

absorption correction of XRF tomographic data is crucial, which will be developed as a further option in *MMX-I*.

The modular construction of *MMX-I* makes the integration of other imaging modalities or reconstruction algorithms (Gürsoy *et al.*, 2015) easy and readily available. For example, it is possible to integrate other methods, *e.g.* full-field tomography, as a new modality which could be useful for correlative imaging. However, *MMX-I* does not intend to replace the already existing powerful full-field tomographic reconstruction software tools.

In addition, one of the important features of the software is the dedicated data read-in API, named Hdf5Opener, which makes the read-in and treatment of large, several hundred GB, data files possible also with standard and laptop user PCs. This is a crucial criterion for its utilization by a large user community. Moreover, fast data read-in provided by the beamline data-treatment server makes data pre-treatment and tomographic reconstruction possible during user experiments. The standalone Hdf5Opener API can be readily used by other software.

The *MMX-I* freeware is available for data treatment of scanning multimodal imaging both for users at the Nanoscopy beamline and for other user communities. The compiled version of *MMX-I* is available at <https://bitbucket.org/antoinebergamaschi/mmx-i/wiki/Home>. The source code is available from the authors on demand.

Acknowledgements

The authors are grateful for the continuous help, advice and expertise of the SOLEIL Support Groups. Special thanks for Nicolas Leclercq for his work with the development of the FLYSCAN. We acknowledge Isvan Mohacsi and Delphine Desmares for providing the test structures and foraminifera samples.

References

- Andrew Leis, B. R. (2009). *Trends Biochem. Sci.* **34**, 60–70.
- aXis2000 (1997). *aXis2000*, <http://unicorn.mcmaster.ca/aXis2000.html>.
- Azevedo, S. G., Schneberk, D. J., Fitch, J. & Martz, H. E. (1990). *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **37**, 1525–1540.
- Bon, P., Monneret, S. & Wattellier, B. (2012). *Appl. Opt.* **51**, 5698–5704.
- Boyle, E. A. (1981). *Earth Planet. Sci. Lett.* **53**, 11–35.
- Bracewell, R. N. & Riddle, A. C. (1967). *Astrophys. J.* **150**, 427.
- Bunk, O., Bech, M., Jensen, T. H., Feidenhans'l, R., Binderup, T., Menzel, A. & Pfeiffer, F. (2009). *New J. Phys.* **11**, 123016.
- Chen, R.-C., Dreossi, D., Mancini, L., Menk, R., Rigon, L., Xiao, T.-Q. & Longo, R. (2012). *J. Synchrotron Rad.* **19**, 836–845.
- Colvin, R. A., Lai, B., Holmes, W. R. & Lee, D. (2015). *Metalomics*, **7**, 1111–1123.
- Fischer, G. & Wefer, G. (1999). *Use of Proxies in Paleoclimatology*. Berlin/Heidelberg: Springer.
- Gilbert, P. (1972). *J. Theor. Biol.* **36**, 105–117.
- Gonzalez, R. C. & Woods, R. E. (2006). *Digital Image Processing*, 3rd ed. New Jersey: Prentice-Hall.
- Gordon, R., Bender, R. & Herman, G. T. (1970). *J. Theor. Biol.* **29**, 471–481.
- Grieken, R. V. & Markowicz, A. (2001). *Handbook of X-ray Spectrometry*, 2nd ed. New York: CRC Press.
- Gürsoy, D., Biçer, T., Lanzirotti, A., Newville, M. G. & De Carlo, F. (2015). *Opt. Express*, **23**, 9014–9023.
- Gürsoy, D., De Carlo, F., Xiao, X. & Jacobsen, C. (2014). *J. Synchrotron Rad.* **21**, 1188–1193.
- Holzner, C. (2010). *Hard X-ray Phase Contrast Microscopy – Techniques and Applications*. NY: Stony Brook University.
- Jonge, M. D. de, Hornberger, B., Holzner, C., Legnini, D., Paterson, D., McNulty, I., Jacobsen, C. & Vogt, S. (2008). *Phys. Rev. Lett.* **100**, 163902.
- Kak, A. C. & Slaney, M. (2001). *Principles of Computerized Tomographic Imaging*. Philadelphia: Society for Industrial and Applied Mathematics.
- Keyriläinen, J., Fernández, M. & Suortti, P. (2002). *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **488**, 419–427.
- Könnecke, M., Akeroyd, F. A., Bernstein, H. J., Brewster, A. S., Campbell, S. I., Clausen, B., Cottrell, S., Hoffmann, J. U., Jemian,

- P. R., Männicke, D., Osborn, R., Peterson, P. F., Richter, T., Suzuki, J., Watts, B., Wintersberger, E. & Wuttke, J. (2015). *J. Appl. Cryst.* **48**, 301–305.
- Kottler, C., David, C., Pfeiffer, F. & Bunk, O. (2007). *Opt. Express*, **15**, 1175–1181.
- Leclercq, N., Berthault, J., Langlois, F., Le, S., Poirier, S., Bisou, J., Blache, F., Medjoubi, K. & Mocuta, C. (2015). *FLYSCAN: A Fast and Multi-Technique Data Acquisition Platform for the SOLEIL Beamlines*. Melbourne, Australia.
- Lerotic, M., Mak, R., Wirick, S., Meirer, F. & Jacobsen, C. (2014). *J. Synchrotron Rad.* **21**, 1206–1212.
- Liu, Y., Meirer, F., Williams, P. A., Wang, J., Andrews, J. C. & Pianetta, P. (2012). *J. Synchrotron Rad.* **19**, 281–287.
- Medjoubi, K., Bonissent, A., Leclercq, N., Langlois, F., Mercère, P. & Somogyi, A. (2013a). *Proc. SPIE*, **8851**, 88510.
- Medjoubi, K., Leclercq, N., Langlois, F., Buteau, A., Lé, S., Poirier, S., Mercère, P., Sforina, M. C., Kewish, C. M. & Somogyi, A. (2013b). *J. Synchrotron Rad.* **20**, 293–299.
- Menzel, A., Kewish, C. M., Kraft, P., Henrich, B., Jefimovs, K., Vila-Comamala, J., David, C., Dierolf, M., Thibault, P., Pfeiffer, F. & Bunk, O. (2010). *Ultramicroscopy*, **110**, 1143–1147.
- Messaoudii, C., Boudier, T., Sanchez Sorzano, C. O. & Marco, S. (2007). *BMC Bioinformatics*, **8**, 288.
- Mukaide, T., Takada, K., Watanabe, M., Noma, T. & Iida, A. (2009). *Rev. Sci. Instrum.* **80**, 033707.
- Munsel, D., Kramar, U., Dissard, D., Nehrke, G., Berner, Z., Bijma, J., Reichart, G.-J. & Neumann, T. (2010). *Biogeosciences*, **7**, 2339–2350.
- Pfeiffer, F., Kottler, C., Bunk, O. & David, C. (2007). *Phys. Rev. Lett.* **98**, 108105.
- Poirier, S., Marechal, C., Ounsy, M., Buteau, A., Martinez, P., Gagey, B., Pierrot, P., Mederbel, M. & Rochat, J. (2009). *Experimental Data Storage Management in Nexus Format at Synchrotron Soleil*, p. 75. Kobe Japan.
- Reenskaug, T. (1979). *The Model-View-Controller (MVC) – Its Past and Present*, <https://heim.ifi.uio.no/~trygver/themes/mvc/mvc-index.html>.
- Rizk, A., Paul, G., Incardona, P., Bugarski, M., Mansouri, M., Niemann, A., Ziegler, U., Berger, P. & Sbalzarini, I. F. (2014). *Nat. Protoc.* **9**, 586–596.
- Rose, A. (1948). *J. Opt. Soc. Am.* **38**, 196–208.
- Saalfeld, S., Fetter, R., Cardona, A. & Tomancak, P. (2012). *Nat. Methods*, **9**, 717–720.
- Schneider, C. A., Rasband, W. S. & Eliceiri, K. W. (2012). *Nat. Methods*, **9**, 671–675.
- Sforina, M. C., Philippot, P., Somogyi, A., van Zuilen, M. A., Medjoubi, K., Schoepp-Cothenet, B., Nitschke, W. & Visscher, P. T. (2014). *Nat. Geosci.* **7**, 811–815.
- Solé, V. A., Papillon, E., Cotte, M., Walter, P. & Susini, J. (2007). *Spectrochim. Acta B*, **62**, 63–68.
- Somogyi, A., Medjoubi, K., Baranton, G., Le Roux, V., Ribbens, M., Polack, F., Philippot, P. & Samama, J.-P. (2015). *J. Synchrotron Rad.* **22**, 1118–1129.
- Southwell, W. H. (1980). *J. Opt. Soc. Am.* **70**, 998–1006.
- The HDF Group (2015b). *Hdf5View*. The HDF Group, Illinois, USA.
- The HDF Group (2015a). *The Hdf5 Group*, <https://www.hdfgroup.org/>.
- Vogt, S. (2003). *J. Phys. IV*, **104**, 4.
- Weitkamp, T., Haas, D., Wegrzynek, D. & Rack, A. (2011). *J. Synchrotron Rad.* **18**, 617–629.

