

Microscopie tomographique diffractive : vers une imagerie quantitative sans marquage super-résolue en 3D

Guillaume Maire
Aix-Marseille Université, Institut Fresnel

Habilitation à diriger des recherches

Soutenue le mardi 18 novembre 2014

Membres du jury :

Emmanuel FORT	<i>rapporteur</i>
Sylvain GIGAN	<i>rapporteur</i>
Olivier HAEBERLÉ	<i>rapporteur</i>
Frédérique DE FORNEL	<i>Présidente du jury</i>
Hugues GIOVANNINI	<i>examineur</i>
Brahim LOUNIS	<i>examineur</i>

Table des matières

A - Présentation du candidat	9
i Formation	9
ii Fonctions successives	9
iii Activités d'enseignement	10
1 Maître de Conférences à Aix-Marseille Université	10
2 Chercheur contractuel à l'Université Paris-Sud 11, vacances	10
3 ATER (demi-poste) à l'Université Paris-Sud 11	10
4 Doctorant à l'Université Paris-Sud 11, vacances	10
iv Encadrement de thèses et stages	11
v Implication dans des projets scientifiques	12
1 Porteur du projet	12
2 Membre du projet	12
vi Collaborations scientifiques externes au laboratoire	13
vii Liste des travaux	13
B - Synthèse des travaux	23
1 De la microscopie holographique numérique à la microscopie tomographique diffractive	25
1.1 Vers une imagerie 3D par microscopie de phase	25
1.1.1 Cas d'un échantillon volumique	25
1.1.2 Cas d'un échantillon surfacique	26
1.1.3 Conclusion	27
1.2 Tomographie 3D sous approximations linéaires	27
1.2.1 Approche géométrique	27
1.2.2 Approximation de Born	28
1.2.3 Approximation de Rytov	29
1.2.4 Conclusion	30
1.3 Mon approche pour appliquer la tomographie au delà des approximations linéaires	30
1.3.1 Intérêt de la démarche : un exemple édifiant	31
1.3.2 Modélisation rigoureuse du processus de diffraction	32
1.3.3 Reconstruction par procédure d'inversion itérative non linéaire	33

1.3.4	Conclusion	34
1.4	Dispositifs expérimentaux pour la microscopie tomographique diffractive	35
1.4.1	Contraintes expérimentales principales	35
1.4.2	Choix du montage développé au cours de mes travaux	39
1.4.3	Procédure de normalisation des données mise au point pour ce montage	41
1.5	Conclusion	43
2	Tomographie non linéaire appliquée aux objets 2D	45
2.1	Première validation expérimentale au delà du critère de Rayleigh	45
2.1.1	Caractéristiques des échantillons et de la mesure tomographique	45
2.1.2	Comparaison de la tomographie non linéaire à d'autres méthodes de caractérisation	46
2.1.3	Conclusions	47
2.2	Dépasser la limite de diffraction grâce à la diffusion multiple	48
2.2.1	Choix des échantillons et de la configuration d'illumination	48
2.2.2	Modifications du champ proche et du champ lointain en présence de diffusion multiple	49
2.2.3	Validation expérimentale	50
2.2.4	Bilan	53
2.3	Microscopie tomographique appliquée à la profilométrie	53
2.3.1	Contexte	53
2.3.2	Formulation du problème	54
2.3.3	Validation expérimentale	55
2.3.4	Conclusion	58
3	Tomographie non linéaire appliquée aux objets 3D	59
3.1	Tomographie 3D appliquée à des mesures scalaires	59
3.1.1	Reconstruction 3D avec mesure par capteur de front d'onde	60
3.1.2	Validation sur des objets à la limite du critère de Rayleigh	64
3.1.3	Influence de la présence du substrat sur la procédure d'inversion non linéaire	65
3.1.4	Conclusion	68
3.2	Tomographie 3D vectorielle	68
3.2.1	Limites de l'approche scalaire	68
3.2.2	Mesure tomographique vectorielle résolue en polarisation	68
3.2.3	Conclusion	74
3.3	Tomographie assistée par miroir	74
3.3.1	Principe	74
3.3.2	Validation sur données synthétiques	75
3.3.3	Conclusion	77

4	Conclusion générale et perspectives	79
4.1	Conclusion	79
4.2	Perspectives	80
4.2.1	Mesures résolues en longueur d'onde et multi-longueur d'onde . . .	80
4.2.2	Tomographie assistée par miroir et appliquée aux objets étendus .	81
4.2.3	Tomographie en illumination focalisée	82
4.2.4	Profilométrie tomographique	85
	C - Sélection d'articles	97

A - Présentation du candidat

Guillaume Maire

Né le 06 septembre 1978 à Schiltigheim (67), de nationalité française.

Maître de Conférences

Aix-Marseille Université

Institut Fresnel UMR 7249

Faculté des Sciences de Saint Jérôme

avenue Escadrille Normandie-Niemen

13397 Marseille Cedex 20

e-mail : guillaume.maire@fresnel.fr

Tel : + 33 (0) 491 28 28 37

i Formation

02-05 Thèse de doctorat (Physique) dirigée par G. Pauliat au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'optique, Université Paris-Sud 11. *Mémoires holographiques microstructurées à réseaux de Lippmann.*

01-02 DEA "Sciences des matériaux", Université Pierre et Marie Curie, Paris.

98-01 Ecole Nationale Supérieure de Physique de Grenoble (Institut National Polytechnique de Grenoble). Troisième année dans le département de Physique d'Imperial College, Londres.

96-98 Classes préparatoires aux grandes écoles, Lycée Sainte-Geneviève, Versailles.

ii Fonctions successives

07-.. Maître de Conférences à Aix-Marseille Université, Institut Fresnel (UMR 7249), Marseille.

Thématiques de recherche : imagerie optique à haute résolution, microscopie tomographique, microscopie de phase, inversion numérique.

06-07 Chercheur contractuel à l'Institut d'Electronique Fondamentale, Orsay.

Thématiques de recherche : optique intégrée, structures photoniques périodiques, adaptateurs de modes.

05-06 ATER (demi-poste) à l'Université Paris-Sud 11, Institut d'Electronique Fondamentale, Orsay.

Thématiques de recherche : cristaux photoniques 2D, ultra-réfraction.

iii Activités d'enseignement

1 Maître de Conférences à Aix-Marseille Université

Licence

2007-12 : Optique géométrique et ondulatoire, TD-TP, *L1 Maths-Info*

2007-14 : Electromagnétisme, TD, *L2 Sciences pour l'Ingénieur*

2007-14 : Electromagnétisme, TD, *L2 Maths-Physique CUPGE*

2009-12 : Optique géométrique, Cours-TD, *L3 Physique-Chimie*

2012-14 : Optique géométrique et ondulatoire, Cours-TD-TP, *L3 Sciences pour l'Ingénieur, parcours Physique Appliquée et Instrumentation*

2012-14 : Electromagnétisme, TP, *L3 Physique, télé-enseignement*

IUT Mesures Physiques

2007-14 : Optique géométrique, TD-TP, *1^{ère} année*

2007-14 : Optique ondulatoire, TD-TP, *2^{ème} année*

Master

2012-14 : Fundamentals in optical imaging and microscopy, TD, *Euromicrophotonics Erasmus Mundus Master, M1*

2013-14 : Physique et photonique, Cours-TD, *Polytech Marseille, Département Micro-électronique et Telecom, M1*

Vacations

2010-12, 2013-14 : Imagerie optique pour les nanotechnologies, Cours-TP, *Ecole Centrale Marseille, 2^{ème} année*

2 Chercheur contractuel à l'Université Paris-Sud 11, vacances

2006-07 : Profilométrie interférométrique, TP, *M2R "Micro et nanotechnologies", élèves ingénieurs IFIPS M1 et SupOptique M2*

3 ATER (demi-poste) à l'Université Paris-Sud 11

2005-06 : Electricité, cours-TD, *année préparatoire à la L1 Physique*

2005-06 : Electrocinétique-électronique, TD-TP-collés, *L2 Physique prépa concours ENSI*

4 Doctorant à l'Université Paris-Sud 11, vacances

2003-04 : Optique géométrique et ondulatoire, TP, *IUT d'Orsay, Chimie 1^{ère} année*

2003-05 : Informatique industrielle, TP, *SupOptique 1^{ère} année*

iv Encadrement de thèses et stages

Co-directeur de thèse de Charankumar Godavarthi (septembre 2013 - ...)

Directeur de thèse HDR Hugues Giovannini – Bourse financée sur contrat ANR (ANR SURMITO).

Co-directeur de thèse de Yi Ruan (octobre 2009 - septembre 2012)

"3D digital imaging with tomographic diffractive microscopy"

Directeur de thèse HDR Patrick Chaumet – Bourse du China Scholarship Council.

Publications avec le doctorant issues de ce travail :

- Y. Ruan et al., Optics Letters (2012).
- Arhab et al., Physical Review Letters (2013).
- G. Maire et al., Journal of the Optical Society of America A (2013).
- Zhang et al., Physical Review Letters (2013).

Participation à l'encadrement de la thèse de Jules Girard (octobre 2008 - septembre 2011)

"Microscopies de fluorescence et de diffraction super-résolues par éclairage multiple"

Publications avec le doctorant issues de ce travail :

- G. Maire et al., Physical Review Letters (2009).
- G. Maire et al., Journal of Modern Optics (2010).
- J. Girard et al., Physical Review A (2010).

Participation à l'encadrement de la thèse de Filip Drsek (octobre 2005 - septembre 2008)

"Mise au point d'un microscope optique tomographique à haute résolution fonctionnant en réflexion"

Publications avec le doctorant issues de ce travail :

- G. Maire et al., Physical Review Letters (2009).
- G. Maire et al., Journal of Modern Optics (2010).

Responsable de stage

- Laurent Milord, SupOptique 1^{ère} année (juillet 2010)
- Stage M2 de fin d'études : Maria Civita, Politecnico di Milano (octobre 2009 - mars 2010)
- Sonia Valls, SupOptique 1^{ère} année (juillet 2009)
- Cédric Coti, IUT Mesures Physiques 2^{ème} année (avril - juin 2009)
- Stage M2 de fin d'études : Francesco Formica, Politecnico di Milano (octobre 2008 - mars 2009)
- Elodie Forneron, IUT Mesures Physiques 2^{ème} année (avril - juin 2008)
- Yohann Fleury, IUT Mesures Physiques 2^{ème} année (avril - juin 2008)

Co-responsable de stage

- Romain Fournet, Centrale Marseille 2^{ème} année (mai - juin 2014)
- Stage M2 de fin d'études : Rocco Sergi, Université de Naples (février - juillet 2009)

v Implication dans des projets scientifiques

1 Porteur du projet

Projet de recherche C'Nano PACA SURPLASTO (2011-2013).

"Super-résolution assistée par résonance plasmon en microscopie tomographique diffractive", en collaboration avec l'IM2NP (UMR 7334).

Projet d'excellence BQR AMU (Appel d'offres 2010).

"Modulation et analyse de front d'onde pour la microscopie tomographique optique", en collaboration avec l'IM2NP (UMR 7334).

2 Membre du projet

Participation au projet ANR Blanche SURMITO (2013-2017).

"Super-résolution en microscopie tomographique optique par diffraction", en collaboration avec le LPN (UPR 20, Marcoussis), le LPMA (UMR 7599, Paris) et le L2S (UMR 8506, Gif sur Yvette).

Amélioration de la résolution en microscopie tomographique grâce à la diffusion multiple.

Participation au projet ANR Blanche 3DPtyCcoBio (2012-2016).

"Ptychographie tridimensionnelle pour l'analyse de la cohérence cristalline de biominéraux calcaires", en collaboration avec le LIONS (CEA, Saclay) et l'IDES (UMR 8148, Orsay).

Mise au point d'un démonstrateur optique de ptychographie.

Participation au projet exploratoire région PACA ISO microscopie (2011-2014).

"Microscopie optique tri-dimensionnelle à très haute résolution"

Développement de configurations de microscopie assistées par miroir pour atteindre une super-résolution isotrope.

Participation au projet DGA de recherches exploratoires innovation GENE-SUPRA (2009-2012).

"Génération de surfaces pseudo-régulières ou aléatoires", en collaboration avec l'IM2NP (UMR 7334) et Thales Optronique (Guyancourt).

Développement d'un profilomètre interférométrique super-résolu, multi-polarisations et multi-longueurs d'onde.

Participation au projet MRCT d'actions d'intérêt collectif interdisciplinaires MITHRA (2010-2012).

"Microscopie tomographique et holographique rapide", en collaboration avec le MIPS (EA 2332, Mulhouse), le CCQ (Université Lyon 1) et le TIMC (UMR 5525, Grenoble).
Elaboration de procédures de calibration pour la microscopie tomographique.

vi Collaborations scientifiques externes au laboratoire

Anne Talneau, Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS, Marcoussis.

Daniel Sentenac, European Gravitational Observatory, Cascina (Italie).

Ludovic Escoubas et l'équipe OPTO-PV, IM2NP, Marseille.

Benoît Wattelier, Phasics SA, Palaiseau.

vii Liste des travaux

Journaux internationaux à comité de lecture

17 - T. Zhang, Y. Ruan, **G. Maire**, D. Sentenac, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, A. Sentenac, *Full-polarized tomographic diffraction microscopy achieves a resolution about one-fourth of the wavelength*, Phys. Rev. Lett., Vol. 111, 243904, 2013.

16 - **G. Maire**, Y. Ruan, T. Zhang, P. C. Chaumet, H. Giovannini, D. Sentenac, A. Talneau, K. Belkebir, A. Sentenac, *High-resolution tomographic diffractive microscopy in reflection configuration*, J. Opt. Soc. Am. A, Vol. 30, p. 2133, 2013.

15 - S. Arhab, G. Soriano, Y. Ruan, **G. Maire**, A. Talneau, D. Sentenac, P. C. Chaumet, K. Belkebir, H. Giovannini, *Nanometric resolution with far-field optical profilometry*, Phys. Rev. Lett., Vol. 111, 053902, 2013.

14 - Y. Ruan, P. Bon, E. Mudry, **G. Maire**, P. C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, B. Wattelier, S. Monneret, and A. Sentenac, *Tomographic diffractive microscopy with a wavefront sensor*, Opt. Lett., Vol. 37, p. 1631, 2012.

13 - V. Brissonneau, L. Escoubas, F. Flory, G. Berginc, **G. Maire**, H. Giovannini, *Laser assisted fabrication of random rough surfaces for optoelectronics*, Appl. Surf. Sci., Vol. 258, p. 9171, 2012.

12 - J. Girard, **G. Maire**, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Sentenac, *Nanometric resolution using far-field optical tomographic microscopy in the multiple scattering regime*, Physical Review A, Vol. 82, 061801(R), 2010.

11 - E. Mudry, P. C. Chaumet, K. Belkebir, **G. Maire**, A. Sentenac, *Mirror-assisted tomographic diffractive microscopy with isotropic resolution*, Optics Letters, Vol. 35, p. 1857, 2010.

10 - **G. Maire**, J. Girard, F. Drsek, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Sentenac, *Experimental inversion of optical diffraction tomography data with a nonlinear algorithm in the multiple scattering regime*, Journal of Modern Optics, Vol. 57, p. 746, 2010.

09 - P.C. Chaumet, A. Sentenac, K. Belkebir, **G. Maire**, H. Giovannini, *Improving the*

resolution of grating-assisted optical diffraction tomography using a priori information in the reconstruction procedure, Journal of Modern Optics, Vol. 57, p. 798, 2010.

08 - **G. Maire**, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Sentenac, *Experimental demonstration of quantitative imaging beyond Abbe's limit with optical diffraction tomography*, Physical Review Letters, Vol. 102, 213905, 2009.

07 - **G. Maire**, L. Vivien, G. Sattler, A. Kazmierczak, B. Sanchez, K.B. Gylfason, A. Griol, D. Marris-Morini, E. Cassan, D. Giannone, H. Sohlström, and D. Hill, *High efficiency silicon nitride surface grating couplers*, Optics Express, Vol. 16, pp. 328-333, 2008.

06- D. Marris-Morini, E. Cassan, D. Bernier, **G. Maire**, L. Vivien, *Ultra-compact tapers for light coupling into two dimensional slab photonic crystal waveguides in the slow light regime*, Optical Engineering, Vol. 47, 014602, 2008.

05 - E. Cassan, D. Bernier, D. Marris-Morini, **G. Maire**, L. Vivien, *Design of photonic crystal directional couplers for electro-optical wavelength switching in Si technology*, Journal of Nanophotonics, Vol. 1, 013551, 2007.

04 - F. Guattari, **G. Maire**, K. Contreras, C. Arnaud, G. Pauliat, G. Roosen, S. Jradi, C. Carré, *Balanced homodyne detection of Bragg microholograms in photopolymer for data storage*, Optics Express, Vol. 15, p. 2234-2243, 2007.

03 - E. Cassan, D. Bernier, **G. Maire**, D. Marris-Morini, L. Vivien, *Bloch wave decomposition for prediction of light coupling efficiency into planar photonic crystals*, Journal of the Optical Society of America B, Vol. 24, p. 1211-1215, 2007.

02 - D. Bernier, E. Cassan, A. Lupu, **G. Maire**, D. Marris-Morini, L. Vivien, and S. Laval, *Analysis of ultra refraction properties in strong index contrast slab photonic crystals*, Optics Communications, Vol. 274, p. 241-247, 2007.

01 - **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *Homodyne readout for bit-oriented holographic memories*, Optics Letters, Vol. 31, p. 175-177, 2006.

Brevets

02 - P. Bon, B. Wattellier, S. Monneret, H. Giovannini, **G. Maire**, brevet WO2011/042674 *Method and system for structural analysis of an object by measuring the wavefront thereof*, publié le 14 avril 2011.

01 - G. Pauliat, **G. Maire**, G. Roosen, brevet WO2006/067331 *Holographic storage with homodyne detection*, publié le 29 juin 2006.

Pour les communications orales, mon nom est souligné si j'ai effectué la présentation en personne.

Communications invitées dans des conférences nationales

02 - **G. Maire**, J. Girard, Y. Ruan, E. Mudry, H. Giovannini, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Microscopie tomographique diffractive : vers une imagerie quantitative tri-dimensionnelle haute résolution*, Optique Marseille 2011, 4-7 juillet 2011, Marseille.

01 - **G. Maire**, J. Girard, P. Chaumet, K. Belkebir, H. Giovannini, A. Talneau, A. Sentenac, *Résolution nanométrique en champ lointain par microscopie tomographique diffractive*, Polaritons 2011 (Polaritons, Surface plasmons, Resonances : Sub-wavelength interactions in optics), 18-20 avril 2011, Marseille.

Communications dans des conférences internationales

30 - Y. Ruan, T. Zhang, **G. Maire**, P.C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, A. Sentenac, *High resolution 3D quantitative imaging with tomographic diffractive microscop*, First EOS Topical Meeting on Frontiers in Optical Imaging, 16-18 septembre 2013, Murten (Suisse).

29 - Y. Ruan, T. Zhang, E. Mudry, **G. Maire**, P.C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, A. Sentenac, *Tomographic diffractive microscopy with full vectorial 3D inversion algorithm*, Focus on Microscopy 2013, 24-27 mars 2013, Maastricht (Pays-Bas).

28 - S. Arhab, G. Soriano, **G. Maire**, P.C. Chaumet, K. Belkebir, Y. Ruan, H. Giovannini, *High resolution optical profilometry with tomographic diffractive microscopy*, Focus on Microscopy 2013, 24-27 mars 2013, Maastricht (Pays-Bas).

27 - G. Soriano, **G. Maire**, H. Giovannini, V. Brissonneau, F. Flory, L. Escoubas, G. Berginc, *Light scattering from photofabricated random rough surfaces*, SPIE Optical Complex systems 2011, 5-8 septembre 2011, Marseille.

26 - V. Brissonneau, F. Flory, L. Escoubas, G. Berginc, G. Soriano, **G. Maire**, H. Giovannini, *Random rough-surface photofabrication*, SPIE Optical Complex systems 2011, 5-8 septembre 2011, Marseille.

25 - Y. Ruan, P. Bon, E. Mudry, **G. Maire**, P.C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, B. Wattellier, S. Monneret, A. Sentenac, *Tomographic diffractive microscopy : towards quantitative high resolution 3D imaging*, Focus on Microscopy 2011, 17-20 avril 2011, Constance (Allemagne).

24 - J. Girard, Y. Ruan, E. Mudry, F. Drsek, **G. Maire**, P. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, A. Sentenac, *High resolution tomographic diffractive microscopy*, Novel techniques in microscopy, 4-6 avril 2011, Monterey, USA.

23 - V. Brissonneau, L. Escoubas, G. Soriano, F. Flory, **G. Maire**, and G. Berginc, *Design and fabrication of random optical surfaces by a modified speckle-based method*, Progress In Electromagnetics Research Symposium, 20-23 mars 2011, Marrakesh.

- 22** - Y. Ruan, E. Mudry, **G. Maire**, P. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, A. Sentenac, *Tomographic diffractive microscopy : towards high resolution 3D imaging in the multiple scattering regime*, European Optical Society Annual Meeting, 26-29 octobre 2010, Paris.
- 21** - J. Girard, **G. Maire**, H. Giovannini, K. Belkebir, P. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *High resolution quantitative imaging with optical diffraction tomography*, International Workshop on NanoBioPhotonics, 26-29 octobre 2009, Marseille.
- 20** - J. Girard, **G. Maire**, H. Giovannini, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Optical diffraction tomography with a total internal reflection microscopy configuration*, Focus on Microscopy 2009, 5-8 avril 2009, Cracovie (Pologne).
- 19** - A. Sentenac, P.C. Chaumet, **G. Maire**, K. Belkebir, J. Girard, S. Monneret, H. Giovannini, *Increasing the resolution of total internal fluorescence microscopes with periodic nanostructures*, 8th International Photonic and Electromagnetic Crystal Structures Meeting, 5-9 avril 2009, Sydney.
- 18** - A. Sentenac, P.C. Chaumet, **G. Maire**, K. Belkebir, J. Girard, S. Monneret, H. Giovannini, *Periodic nanostructures for focusing light spots beyond the diffraction limit*, 8th International Photonic and Electromagnetic Crystal Structures Meeting, 5-9 avril 2009, Sydney.
- 17** - **G. Maire**, H. Giovannini, F. Drsek, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Digital microscopy : towards quantitative and high resolution optical imaging*, European Optical Society Annual Meeting 2008, 29 septembre - 2 octobre 2008, Paris.
- 16** - D. Hill, B. Sanchez, A. Griol, **G. Maire**, F. Dortu, L. Vivien, A-S Stragier, D. Marris-Morini, E. Cassan, A. Kaźmierczak, D. Giannone, K. B. Gylfason, H. Sohlström, M. J. Bañuls, V. González-Pedro, A. Maquieira, C. A. Barrios, M. Holgado, R. Casquel, *Ultrahigh sensitivity slot-waveguide biosensor on a highly integrated chip for simultaneous diagnosis of multiple diseases*, Proceedings of the IEEE 21st International Semiconductor Laser Conference, 14-18 septembre 2008, Sorrento (Italie).
- 15** - **G. Maire**, L. Vivien, A-S Stragier, D. Marris-Morini, E. Cassan, A. Kazmierczak, D. Giannone, B. Sanchez, A. Griol, D. Hill, K.B. Gylfason, H. Sohlström, *Tolerance analysis of high efficiency silicon nitride surface grating couplers*, SPIE Photonics Europe 2008, 7-11 avril 2008, Strasbourg.
- 14** - G. Pauliat, **G. Maire**, C. Arnaud, F. Guattari, K. Contreras, G. Roosen, S. Jradi and C. Carré, *Lippmann Holographic Storage with Homodyne Detection and Single Side Access*, AIP (American Institute of Physics) Proceedings 992 RIAO/OPTILAS 6th Ibero-American Conference on Optics (RIAO) and the 9th Latin- American Meeting on Optics, Lasers and Applications (OPTILAS), pp. 350-355, Niklaus Wetter and Jaime Frejlich Eds., Published May 2008, ISBN 978-0-7354-0511-0.
- 13** - G. Pauliat, **G. Maire**, C. Arnaud, F. Guattari, K. Contreras, G. Roosen, S. Jradi, C. Carré, *Homodyne detection for Lippmann data storage*, OSA Optical Data Storage Topical Meeting, Portland (USA), 20-23 mai 2007.
- 12** - D. Bernier, E. Cassan, **G. Maire**, D. Marris-Morini, L. Vivien, *Self-collimated superprism effect using a photonic crystal with parallelogram lattice*, European Conference on Integrated Optics, Copenhagen, 25-27 avril 2007.

- 11** - E. Cassan, D. Bernier, **G. Maire**, D. Marris-Morini, L. Vivien, *Design of photonic crystal directional couplers for electro-optical wavelength switching*, European Conference on Integrated Optics, Copenhagen, 25-27 avril 2007.
- 10** - D. Bernier, E. Cassan, **G. Maire**, D. Marris-Morini, L. Vivien, *Photonic crystal beam propagation using a fourth order approximation of the band diagram*, International Workshop on Optical Waveguide Theory and Numerical Modelling, Copenhagen, 27-28 avril 2007.
- 09** - **G. Maire**, D. Bernier, E. Cassan, D. Marris-Morini, L. Vivien, *Optimization and metrics of a superprism based demultiplexer*, Nanometa 2007 : Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials, Seefeld (Autriche), 8-11 janvier 2007.
- 08** - E. Cassan, D. Bernier, **G. Maire**, A. Lupu, D. Marris-Morini, Laurent Vivien, *Influence of Bloch wave decomposition on light coupling into planar photonic crystals*, Nanometa 2007 : Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials, Seefeld (Autriche), 8-11 janvier 2007.
- 07** - D. Marris-Morini, E. Cassan, D. Bernier, **G. Maire**, L. Vivien, *Ultra-short tapers for coupling light into photonic crystal waveguides in the slow light regime*, Nanometa 2007 : Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials, Seefeld (Autriche), 8-11 janvier 2007.
- 06** - F. Guattari, **G. Maire**, K. Contreras, C. Arnaud, G. Pauliat, G. Roosen, *Balanced homodyne detection of Bragg microgratings in photopolymer for data storage*, EOS Annual meeting (Paris, 16-19 octobre 2006) Technical digest, TOM 6, p. 53-54, 2006.
- 05** - **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *Bit-oriented Lippmann and microfiber holographic memories*, Tenth International Conference on Photorefractive Effects, Materials and Devices (Sanya, Chine, 19-23 juillet 2005), OSA Trends in Optics and Photonics Series, Vol. 99, p. 637-642, 2005.
- 04** - **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *Homodyne detection applied to bit-oriented holographic memories*, Conference on Lasers and Electro-Optics, Munich, 12-17 juin 2005.
- 03**- **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *Improved readout procedures for bit-oriented holographic memories*, International Conference on Holography, Optical Recording and Processing of Information, Varna (Bulgarie), 21-25 mai 2005.
- 02**- **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *The holographic Lippmann disk : data storage performance modeling*, International Conference on Holography, Optical Recording and Processing of Information, Varna (Bulgarie), 21-25 mai 2005.
- 01** - **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *Discretization noise in microfiber holographic memories*, COST P8 meeting on Materials and Systems for Optical Data Storage and Processing, Paris, 16-17 septembre 2004.

Communications dans des conférences nationales

- 12** - C. Godavarthi, T. Zhang, **G. Maire**, H. Giovannini, P.C. Chaumet, A. Talneau, K. Belkebir, A. Sentenac, *Microscopie tomographique diffractive résolue en polarisation : vers une résolution sub- $\lambda/4$* , Journées d'imagerie optique non conventionnelle, 19-20 mars 2014, ESPCI, Paris.

- 11** - Y. Ruan, P. Bon, E. Mudry, **G. Maire**, P.C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, B. Wattellier, S. Monneret, A. Sentenac, *3D digital imaging with tomographic diffractive microscopy and nonlinear inversion procedures*, Journée Electromagnétisme, Polarisation et Optique Statistique, 25 novembre 2011, Marseille.
- 10** - Y. Ruan, E. Mudry, **G. Maire**, P. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, A. Sentenac, *Analyse de front d'onde en régime de diffusion multiple par microscopie tomographique diffractive : vers une imagerie 3D haute résolution*, Journées Recherche et Industrie de l'Optique Adaptative, 26-27 octobre 2010, Paris.
- 09** - A. Sentenac, P. C. Chaumet, **G. Maire**, E. Le Moal, K. Belkebir, J. Girard, S. Monneret, H. Giovannini, *Modulation de front d'onde pour la focalisation de spots sub-longueur d'onde. Application à la microscopie optique*, Journées Recherche Industrie de l'Optique Adaptative, 17-19 novembre 2009, Reims.
- 08** - E. Le Moal, J. Girard, **G. Maire**, P. C. Chaumet, S. Monneret, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Sentenac, *Microscopie optique de surface à haute résolution sur des substrats-réseaux*, Assemblée générale du GDR Ondes, 2-4 novembre 2009, Paris.
- 07** - J. Girard, **G. Maire**, H. Giovannini, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Tomographie optique par diffraction dans une configuration de microscopie en réflexion totale interne*, Journées d'Imagerie Optiques Non Conventionnelles, 11-12 mars 2009, Paris.
- 06** - **G. Maire**, F. Drsek, H. Giovannini, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Microscopie numérique : vers une imagerie optique quantitative haute résolution*, 9ème colloque francophone Méthodes et Techniques Optiques pour l'Industrie, 17-21 novembre 2008, Nantes.
- 05** - **G. Maire**, F. Drsek, K. Belkebir, P.C. Chaumet, H. Giovannini, A. Talneau, A. Sentenac, *Imagerie quantitative par tomographie optique par diffraction*, Journées d'Imagerie Optiques Non Conventionnelles, 19-20 mars 2008, Paris.
- 04** - F. Drsek, **G. Maire**, H. Giovannini, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Microscopie en champ lointain par tomographie optique par diffraction*, Assemblée générale du GDR Ondes, 21-23 novembre 2007, Bordeaux.
- 03** - D. Bernier, **G. Maire**, E. Cassan, A. Lupu, S. Laval, *Ultra-réfraction dans les cristaux photoniques à fort contraste d'indice*, Ecole thématique nanophotonique sur silicium, Dourdan, 2-7 juillet 2006.
- 02** - **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *Détection homodyne pour mémoires holographiques à réseaux de Lippmann*, 9ème Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (Dijon, 7-9 septembre 2005), J. Phys. IV France, Vol. 135, p. 231-233, 2006.
- 01** - **G. Maire**, G. Pauliat, G. Roosen, *Bruit de discrétisation dans une mémoire holographique à structure fibrée*, 8ème Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique - Horizons de l'Optique 03, Toulouse, 3-5 septembre 2003.

Colloques et meetings

- 04** - J. Girard, Y. Ruan, E. Mudry, **G. Maire**, H. Giovannini, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Tomographic diffractive microscopy : towards tri-dimensional*

high resolution quantitative imaging, 5èmes Journées Scientifiques C’Nano PACA, 14-16 mai 2012, Porquerolles.

03 - G. Maire, H. Giovannini, F. Drsek, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Development of new optical microscopes, applications for nano-components and biology*, 2nd French-Chinese Workshop for the research in Engineering Sciences, 19-22 mai 2008, Paris.

02 - G. Maire, H. Giovannini, F. Drsek, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Talneau, A. Sentenac, *Microscopie numérique : vers une imagerie optique quantitative haute résolution*, Journées Scientifiques C’Nano PACA, 28-30 avril 2008, Porquerolles.

01 - G. Maire, G. Pauliat, G. Roosen, *Bruit de discrétisation dans une mémoire holographique à structure fibrée*, 12ème colloque Jeunes Chercheurs en Physique de l’Université Paris-Sud (colloque Alain Bouyssy), Orsay, 26-27 février 2004.

Séminaires en laboratoire

04 - G. Maire, *Tomographic diffractive microscopy : towards tri-dimensional high resolution quantitative imaging*, Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, 13 novembre 2012, Marcoussis.

03 - G. Maire, *Mémoires holographiques microstructurées à réseaux de Lippmann*, Laboratoire de Physique des Lasers (Villetaneuse), mai 2006.

02 - G. Maire, *Stockage holographique de données ; Ultra-réfraction dans les cristaux photoniques planaires*, Laboratoire Lasers Plasma et Procédés Photoniques (Marseille), avril 2006.

01 - G. Maire, *Les mémoires holographiques microfibrées : étude du dispositif d’écriture-lecture*, Institut d’Optique (Orsay), avril 2004.

B - Synthèse de mes activités de recherche

Introduction

La microscopie optique classique est une technique bien établie et très populaire pour imager des objets à l'échelle microscopique. Elle souffre en revanche d'une résolution limitée par la longueur d'onde, et ne peut accéder à des détails dès lors qu'ils sont inférieurs à quelques centaines de nanomètres. D'autres techniques de microscopie, comme la microscopie de champ proche optique, la microscopie à force atomique et la microscopie électronique, sont elles capables d'observer des objets à l'échelle nanométrique. Leur mise en oeuvre reste cependant plus ardue : stabilisation d'une pointe à quelques nanomètres de l'objet, métallisation éventuelle de l'objet, observation sous vide... En comparaison, la microscopie optique classique reste particulièrement séduisante du fait de sa souplesse d'utilisation et de son caractère non invasif : illumination non destructive, intense et stable, détection déportée de l'objet, contrôle spatial aisé de la propagation de la lumière, accès au volume et aux trois dimensions de l'objet... Elle reste ainsi un outil incontournable pour mener des investigations aussi bien dans le domaine des matériaux, des micro et nano-composants technologiques et de la biologie.

Depuis une vingtaine d'années, des efforts de recherche considérables sont mis en oeuvre pour développer de nouvelles modalités optiques conservant le plus possible les avantages précédents tout en améliorant la résolution accessible. Les progrès les plus marquants ont concerné les techniques basées sur la fluorescence, appliquées essentiellement en biologie et nécessitant de marquer en molécules fluorescentes les échantillons observés. Des techniques comme la microscopie à illumination structurée [1], le PALM/STORM [2, 3] ou le STED [4] ont ainsi permis de se rapprocher, voire de dépasser la barrière des 100 nm de résolution. La fluorescence comporte cependant son lot d'inconvénients : faibles niveaux de signal, temps d'observation limité et effets phototoxiques induits par le marquage fluorescent. Dans ce contexte, les techniques sans marquage basées sur la détection du champ diffracté par l'objet en phase et en amplitude connaissent un regain d'intérêt conséquent ces dernières années [5–9]. Initialement utilisée pour améliorer le contraste d'imagerie en biologie, ou pour la profilométrie de surfaces et composants technologiques, la phase devient ainsi un moyen de reconstruire l'échantillon en 3D et avec une résolution accrue.

Mes travaux au sein de l'équipe SEMOX (Sondage ElectroMagnétique, Optique et rayons X) de l'Institut Fresnel, qui ont démarré en septembre 2007, s'inscrivent directement dans cette thématique d'imagerie de phase sans marquage, et portent plus parti-

culièrement sur la microscopie tomographique diffractive [10].

Dans ce manuscrit, je décrirai tout d'abord dans mon premier chapitre comment cette technique a récemment émergé, quels sont ses principes, et quelle est l'approche que j'ai adoptée pour la développer. Je présenterai ensuite dans le chapitre 2 les résultats que j'ai obtenus avec cette approche sur des objets bi-dimensionnels, afin d'obtenir des reconstructions super-résolues d'objets volumiques ou de surfaces. Le cas des objets tri-dimensionnels, plus ardu d'un point de vue aussi bien expérimental que numérique, est l'objet du chapitre 3. Je conclurai enfin sur l'ensemble des résultats présentés, et décrirai mes projets futurs pour poursuivre les avancées obtenues.

Chapitre 1

De la microscopie holographique numérique à la microscopie tomographique diffractive

Classiquement, la microscopie optique se cantonne la plupart du temps à mesurer l'intensité du champ diffracté par l'objet éclairé. La possibilité de mesurer en plus la phase de ce champ de manière reproductible est apparue dans les années 90, avec la microscopie holographique numérique [11–13]. Cela a conduit à essayer d'exploiter cette phase pour obtenir des informations quantitatives sur les dimensions axiales (selon l'axe optique du microscope) de l'objet, et ainsi en fournir une reconstruction en 3D. Les principales techniques de mesure de la phase en optique seront présentées en section 1.4. Dans un premier temps, je décrirai comment l'exploitation de mesures en module et en phase du champ diffracté a récemment évolué, de la microscopie holographique numérique vers une technique plus résolue et quantitative appelée microscopie tomographique diffractive (MTD).

1.1 Vers une imagerie 3D par microscopie de phase

La manière la plus directe d'exploiter la phase consiste à adopter une approche géométrique de propagation rectiligne de la lumière. La configuration usuelle consiste à illuminer l'objet d'intérêt avec un faisceau laser collimaté en incidence normale. Le front d'onde arrivant sur l'objet est donc plan. En sortie de l'objet, le front d'onde sera déformé par les variations de chemin optique induites par la présence de l'objet.

1.1.1 Cas d'un échantillon volumique

Prenons comme premier exemple un objet volumique comme une cellule biologique (cf Fig. 1.1). Le front d'onde déformé par l'objet est accessible en détectant la phase du champ dans un plan traversé par ce front d'onde, en pratique juste après l'objet. Ce plan objet est ainsi conjugué avec le plan image du microscope.

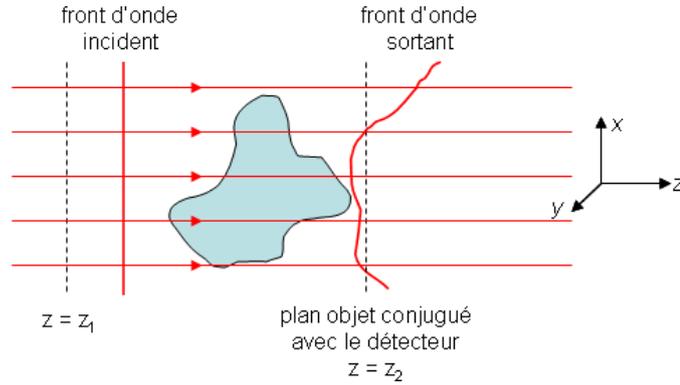


FIGURE 1.1 – Perturbation d’un front d’onde se propageant dans un échantillon volumique.

La phase $\varphi(x, y)$ du champ est alors interprétée en considérant l’objet traversé par des rayons parallèles non déviés par l’objet, qui parcourent chacun un chemin optique différent selon leurs positions dans l’objet. On obtient ainsi à une constante additive près :

$$\varphi(x, y) = k_0 \int_{z_1}^{z_2} n(x, y, z) dz \quad (2\pi), \quad (1.1)$$

où z_1 est la position d’un plan situé avant l’objet, z_2 celle du plan objet, n l’indice de réfraction dans l’espace et $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$ le nombre d’onde, avec λ la longueur d’onde d’illumination dans le vide. Les variations de la phase dans le plan objet sont donc proportionnelles aux variations de l’épaisseur optique de l’objet le long de l’axe z , à modulo 2π près. Une sensibilité de l’ordre de quelques nanomètres sur cette épaisseur est alors rendue possible [14]. Il va de soi que cette approche néglige les phénomènes de réfraction et de diffraction à l’intérieur de l’objet, et se limite donc aux faibles contrastes d’indice de réfraction.

1.1.2 Cas d’un échantillon surfacique

La même approche peut être utilisée pour la profilométrie de surfaces. Considérons une surface de profil de hauteur $h(x, y)$, séparant l’air d’un milieu de permittivité relative ε . Elle est tout d’abord illuminée en incidence normale par une onde plane (cf Fig. 1.2(a)) : les différents points sont donc éclairés avec un retard de phase proportionnel à la hauteur. Chacun des points diffracte ensuite la lumière selon différentes directions (cf Fig. 1.2(b)). Toutefois, si tous les points de la surface sont situés dans la profondeur de champ de l’objectif, ils sont considérés comme tous conjugués avec le plan image du microscope. Ainsi, le chemin optique entre un point et son image est le même quelque soit le trajet suivi, et la réflexion de la lumière par la surface induit un déphasage supplémentaire à nouveau proportionnel à la hauteur.

On obtient au final pour la phase du champ mesuré et pour la hauteur, à une constante

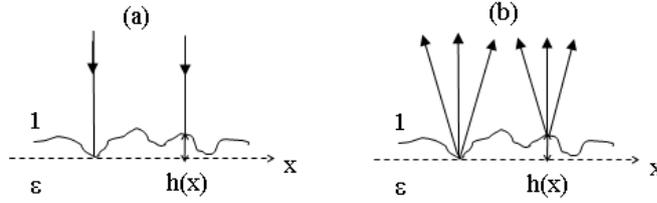


FIGURE 1.2 – (a) Illumination d'une surface par une onde plane ; (b) Diffraction issue des points de la surface.

additive près :

$$\varphi(x, y) = 2k_0 h(x, y) \quad (2\pi), \quad h(x, y) = \frac{\lambda}{4\pi} \varphi(x, y) \quad (\lambda/2). \quad (1.2)$$

Pour appliquer cette formule, il est nécessaire que les points de la surface ne s'éclairent pas mutuellement (pas de diffusion multiple). Les surfaces doivent donc présenter des pentes faibles ou verticales, mais le cas intermédiaire n'est pas adapté [15]. En outre, la hauteur étant calculée modulo $\lambda/2$, des décrochements verticaux supérieurs à $\lambda/4$ ne peuvent être déterminés, et il est nécessaire d'utiliser des algorithmes de dépliement de phase pour des profils de hauteur dont la plage excède $\lambda/2$ [16]. Ces contraintes peuvent cependant être réduites en combinant des mesures de phase à deux longueurs d'onde [17].

1.1.3 Conclusion

La phase permet donc d'accéder aux dimensions axiales de l'échantillon sondé, avec une sensibilité pouvant être de quelques nanomètres [15]. On ne peut toutefois pas parler de résolution axiale ni de vraie reconstruction 3D, car la phase fournit seulement une information intégrée le long de l'axe optique, qui ne permet en aucun cas de séparer plusieurs objets situés à différentes positions axiales.

1.2 Tomographie 3D sous approximations linéaires

La microscopie tomographique diffractive (MTD) vise à reconstruire la carte d'indice de réfraction tridimensionnelle d'un objet [10]. Elle se base sur la mesure du champ pour différentes orientations de l'objet par rapport au faisceau d'illumination, soit en appliquant des rotations à l'objet dans un faisceau fixe, soit en variant l'angle d'illumination du faisceau. Ces deux possibilités seront détaillées dans la section 1.4.1.

1.2.1 Approche géométrique

La méthode la plus directe consiste à étendre l'approche géométrique précédente pour différents angles d'illumination au travers de l'objet. Pour chaque angle, la phase mesurée est analysée avec l'équation 1.1. A partir d'un tel jeu de données, un algorithme

dit de "rétro-projection filtrée", basé sur une transformée de Radon, permet de décorrélérer l'indice de réfraction des dimensions de l'objet [18]. Le principe est le même que pour la tomographie sous rayons X, où l'intensité correspond à l'intégration du coefficient d'absorption de l'objet le long de rayons rectilignes. Cette méthode conserve toutefois comme limitations de ne prendre en compte ni la réfraction ni la diffraction générée par l'objet. Elle se limite donc aux très faibles contrastes (comme pour certains échantillons biologiques) et accède au mieux à des résolutions de plusieurs longueurs d'onde [5, 19, 20].

1.2.2 Approximation de Born

Une approximation moins brutale qui est la plus répandue en microscopie tomographique diffractive (MTD) est l'approximation de Born [21]. Elle exploite le champ diffracté en module et en phase, et considère la diffraction comme un phénomène de diffusion simple, négligeant toute contribution pouvant provenir de la diffusion multiple.

Cette approximation est valable lorsque le champ diffracté par l'objet \mathbf{E}_d est très faible par rapport au champ de référence \mathbf{E}_{ref} , qui est le champ existant dans l'espace en l'absence de l'objet. Ceci est la plupart du temps valable lorsque l'objet est faiblement contrasté, pour des valeurs typiques de contrastes d'indice de réfraction inférieures à $5 \cdot 10^{-2}$ (ou inférieures à 0.1 pour le contraste de permittivité relative). Le champ total \mathbf{E} régnant dans l'espace est donné par :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{\text{ref}} + \mathbf{E}_d. \quad (1.3)$$

L'approximation de Born revient au final à considérer que le champ total \mathbf{E} à l'intérieur de l'objet peut être approximé par \mathbf{E}_{ref} .

En pratique, cette approximation est utilisée en MTD avec deux simplifications supplémentaires [6–8, 10, 22–32]. Premièrement, tout effet de polarisation est négligé et le champ est considéré comme une grandeur scalaire. Deuxièmement, l'objet est situé en espace homogène, et E_{ref} devient alors égal au champ d'illumination E_i , à savoir une onde plane. Ainsi, en champ lointain, le champ diffracté selon une direction de vecteur d'onde \mathbf{k} pour une illumination de vecteur d'onde \mathbf{k}_i devient lié de manière linéaire au contraste de permittivité relative de l'objet [21] :

$$E_d(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i) \propto \tilde{\chi}(\mathbf{k} - \mathbf{k}_i), \quad (1.4)$$

où $\tilde{\chi}$ est la transformée de Fourier (TF) 3D du contraste de permittivité relative χ ($\chi = \varepsilon - 1$ si l'échantillon est dans l'air). Les vecteurs d'onde \mathbf{k} accessibles sont limités par l'ouverture numérique de l'objectif. On voit ainsi que les fréquences spatiales $\mathbf{K} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_i$ de l'objet accessibles dépendent de l'angle d'illumination. En utilisant un jeu de données où l'objet a été illuminé sous différents angles, l'objectif de la MTD est donc de reconstruire en 3D la carte de permittivité de l'objet et d'effectuer une synthèse d'ouverture [33]. A savoir, les fréquences spatiales obtenues pour chaque angle d'illumination sont combinées, ce qui permet d'accéder à un domaine de fréquences spatiales plus large que l'ouverture numérique de l'objectif.

L'objet est ensuite reconstruit par une procédure d'inversion numérique, en appliquant une simple transformée de Fourier inverse 3D à la carte de fréquences spatiales obtenue par synthèse d'ouverture. Avec cette approche, des reconstructions expérimentales 3D présentant des résolutions transverses légèrement meilleures que le critère de Rayleigh ont été obtenues [7, 10, 26].

Pour rappel, le critère de Rayleigh définit la résolution transverse accessible en microscopie plein champ classique, à savoir la plus petite distance centre à centre Δx_R entre deux objets ponctuels qu'il est possible de résoudre :

$$\Delta x_R = 0.61\lambda/\text{NA}, \quad (1.5)$$

où NA est l'ouverture numérique de l'objectif. Il est généralement considéré sous l'approximation de Born que la synthèse d'ouverture effectuée en microscopie tomographique permet d'atteindre une résolution transverse théorique améliorée Δx_S [33] :

$$\Delta x_S = 0.61\lambda/(\text{NA} + \text{NA}_i), \quad (1.6)$$

où NA_i est l'ouverture numérique d'illumination.

1.2.3 Approximation de Rytov

Une autre approximation linéaire du champ diffracté est l'approximation de Rytov [18, 34, 35]. Nous venons de voir que l'approximation de Born revient à considérer que le champ total à l'intérieur de l'objet peut être approximé par le champ incident, ce qui est généralement valable quand le contraste d'indice est faible. Toutefois, même un faible contraste peut conduire à un déphasage important entre les deux champs si l'objet est suffisamment grand. Il est usuellement considéré que l'approximation de Born peut rester valable tant que ce déphasage reste inférieure à π [18]. L'approximation de Rytov vise quant à elle à ne plus dépendre de la taille de l'objet. Elle est en revanche sensible au gradient de l'indice de réfraction. Notons que son application utilise les mêmes simplifications supplémentaires que pour l'approximation de Born, à savoir une approche scalaire et en espace homogène.

Sous cette approximation, les champs sont usuellement exprimés avec des phases complexes, ce qui conduit aux expressions suivantes pour le champ total E et le champ de référence E_{ref} :

$$E(\mathbf{r}) = e^{\phi(\mathbf{r})} \text{ et } E_{\text{ref}}(\mathbf{r}) = e^{\phi_{\text{ref}}(\mathbf{r})}. \quad (1.7)$$

L'approximation de Rytov a pour condition de validité :

$$\|\nabla(\phi(\mathbf{r}) - \phi_{\text{ref}}(\mathbf{r}))\|^2 \ll k_0^2 |\chi(\mathbf{r})|. \quad (1.8)$$

On peut alors montrer qu'en champ lointain, le champ diffracté $E_d(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i)$, le champ de référence $E_{\text{ref}}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i)$ et χ sont cette fois liés par la relation [36] :

$$E_{\text{ref}}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i) \ln \left[1 + \frac{E_d(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i)}{E_{\text{ref}}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i)} \right] \propto \tilde{\chi}(\mathbf{k} - \mathbf{k}_i). \quad (1.9)$$

Notons qu'en supposant l'objet faiblement absorbant, diffractant et à faible contraste d'indice Δn , $\nabla(\phi(\mathbf{r}) - \phi_{\text{ref}}(\mathbf{r})) \simeq k_0 \Delta n(\mathbf{r})$ et $\chi \simeq 2\Delta n$. La condition de validité se simplifie donc en $\Delta n(\mathbf{r}) \ll 1$ dans ce cas. En pratique, lorsque Δn dépasse quelques 10^{-2} , l'approximation se détériore rapidement, et ce même sur des petits objets [18].

L'approximation de Rytov n'est donc pas nécessairement toujours meilleure que l'approximation de Born, mais elle est plus adaptée aux grands objets faiblement contrastés. Elle a ainsi notamment permis de fournir des reconstructions 3D sans distorsion de cellules biologiques de tailles proches de $10 \mu\text{m}$, contrairement à l'approximation de Born [9, 36].

1.2.4 Conclusion

Sous approximations linéaires, à savoir Born et Rytov pour l'essentiel, la MTD a prouvé qu'il est possible de reconstruire en 3D la carte d'indice de réfraction d'objets faiblement contrastés. Les limitations des travaux adoptant cette approche sont toutefois résumées ici.

- Les approximations linéaires sont bien sûr limitées aux objets faiblement contrastés. Mais elles ont en outre été utilisées jusqu'à présent sous approximation scalaire, en négligeant tout effet de polarisation. De plus, elles ont été appliquées uniquement en espace homogène, où E_{ref} peut être assimilé à l'onde plane d'illumination. Ceci deviendrait par exemple faux pour des objets déposés sur substrat réfléchissant et compromettrait les reconstructions. Ces restrictions sont inhérentes aux procédures de reconstruction utilisées.

- Sous approximations linéaires, la MTD doit théoriquement permettre d'améliorer la résolution d'un facteur proche de deux par rapport au critère de Rayleigh. Même si des résolutions transverses légèrement meilleures que le critère de Rayleigh ont été reportées [7, 10, 26], il n'y pas eu de démonstration expérimentale claire atteignant la limite théorique. De plus, la résolution axiale est toujours typiquement trois fois moins bonne que la résolution transverse, du fait de configurations de microscopie restreignant les angles accessibles pour illuminer l'objet et détecter son champ diffracté ([21], p. 491).

- Le nombre d'angles d'illumination nécessaire est habituellement de plusieurs centaines, ce qui peut être néfaste pour obtenir des temps de mesure très rapides.

1.3 Mon approche pour appliquer la tomographie au delà des approximations linéaires

Dans cette section, je présente l'approche que j'ai étudiée et mise en oeuvre en MTD afin d'appliquer cette technique en dehors des approximations linéaires, et dépasser les autres limitations qui viennent d'être énoncées.

1.3.1 Intérêt de la démarche : un exemple édifiant

Tout d'abord, j'illustre sur un exemple d'objet simple à quel point l'apport de la tomographie non linéaire peut être conséquent. Je vais montrer que lorsque les approximations linéaires ne sont plus valables, l'application d'un modèle linéaire peut d'une part conduire à des reconstructions totalement erronées. D'autre part, l'utilisation d'un modèle non linéaire va non seulement rendre possible la reconstruction, mais aussi pouvoir améliorer sa résolution au-delà des limites imposées par le régime linéaire.

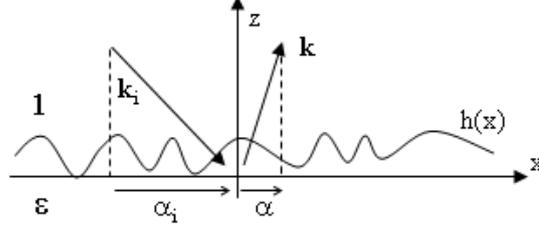


FIGURE 1.3 – Configuration de diffraction par une surface selon un modèle perturbatif.

Pour simplifier le modèle, considérons une surface 1D séparant l'air d'un milieu de permittivité relative ε supposée connue. Elle est décrite par son profil $z = h(x)$, avec $h(x)$ très petit par rapport à la longueur d'onde (Fig. 1.3). Avec une approche perturbative du second ordre en h , le champ diffracté en réflexion en champ lointain prend la forme [37] :

$$E_d(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i) = a_0(\varepsilon, \alpha, \alpha_i) + a_1(\varepsilon, \alpha, \alpha_i)\tilde{h}(\alpha - \alpha_i) + \int a_2(\varepsilon, \alpha, \alpha_i, \nu)\tilde{h}(\alpha - \nu)\tilde{h}(\nu - \alpha_i)d\nu, \quad (1.10)$$

où α et α_i sont respectivement les composantes transverses des vecteurs d'onde de diffraction \mathbf{k} et d'illumination \mathbf{k}_i , et a_0 , a_1 et a_2 sont des fonctions calculables.

- Le premier terme a_0 est la réflexion spéculaire sur le plan équivalent de la surface.
- Le deuxième terme en a_1 est celui correspondant à l'approximation de Born, avec \tilde{h} la transformée de Fourier 1D du profil de hauteur. Ce terme est calculé en supposant le champ au niveau de la surface égal au champ de référence, et correspond à la contribution de diffusion simple au champ diffracté.
- Le troisième terme en a_2 est celui de la diffusion double : chaque dipôle de l'objet rediffuse le champ diffusé par les dipôles environnants sous l'action du champ de référence. On constate que ce terme n'est plus lié de manière linéaire à l'objet.

En supposant $\alpha_i < k_0$ et le champ diffracté collecté avec $\alpha < k_0$, on constate que le terme de diffusion simple ne permet pas d'accéder à des fréquences spatiales de h supérieures à $2k_0$: cette limite pour la résolution est historiquement appelée limite d'Abbe. En revanche, avec le terme de diffusion double, et plus généralement en présence de diffusion multiple, toutes les fréquences spatiales de h sont impliquées. Il est ainsi en principe possible d'accéder à des fréquences spatiales plus hautes que $2k_0$ afin d'accroître la résolution.

Pour illustrer plus en détails ces caractéristiques, prenons l'exemple d'une superposition de deux réseaux de périodes respectives $\lambda/1.5$ et $\lambda/2.5$, et d'égale amplitude d , $h(x) = d \cos(\alpha_1 x) + d \cos(\alpha_2 x)$, avec $\alpha_1 = 1.5k_0$ et $\alpha_2 = 2.5k_0$.

– Si l'approximation de diffusion simple est valable, le champ diffracté contiendra juste la réflexion spéculaire et, si $|\alpha_i| > k_0/2$, des ordres diffractés pour $\alpha = \alpha_i \pm \alpha_1$, d'amplitudes proportionnelles à d . Le réseau de période $\lambda/1.5$ pourra donc être détecté mais pas celui de période $\lambda/2.5$.

– Si la diffusion double contribue aussi au champ diffracté, il contiendra la réflexion spéculaire, les ordres à $\alpha = \alpha_i \pm \alpha_1$ pour $|\alpha_i| > k_0/2$, et des ordres supplémentaires à $\alpha = \alpha_i \pm (\alpha_1 - \alpha_2)$, respectivement pour $\alpha_i > 0$ et $\alpha_i < 0$, d'amplitudes proportionnelles à d^2 . En appliquant à ce champ une procédure d'inversion linéaire basée sur la diffusion simple, à savoir une simple transformée de Fourier inverse 1D ici, on reconstruit un réseau de période $\lambda/1.5$ et un autre de période λ , avec des amplitudes différentes. Si par contre l'inversion tient compte de la diffusion double, et qu'une connaissance a priori existe sur l'amplitude d , il devient aisé de distinguer dans le champ diffracté les ordres dus à la diffusion simple de ceux dus à la diffusion double. Les ordres de diffusion simple permettent de calculer $\tilde{h}(\pm\alpha_1)$, qui permettent à leur tour d'extraire $\tilde{h}(\pm\alpha_2)$ via les expressions des ordres de diffusion double.

Cet exemple apporte deux enseignements importants. Il démontre d'une part qu'il est possible d'accroître la résolution au delà de la limite d'Abbe lorsque la diffusion multiple est présente et qu'elle est prise en compte dans la procédure d'inversion. D'autre part, l'utilisation d'un modèle de diffraction inexact dans cette procédure peut en revanche conduire à des erreurs de reconstruction importantes.

1.3.2 Modélisation rigoureuse du processus de diffraction

Pour appliquer la MTD dans le cas général, à savoir potentiellement sur n'importe quel type d'objet, il est nécessaire que la procédure de reconstruction s'appuie sur une modélisation rigoureuse de la diffraction. Celle-ci doit être capable de prendre en compte la non linéarité entre l'objet et le champ diffracté due à la diffusion multiple.

J'ai utilisé dans ce but la méthode des dipôles couplés (CDM), qui se base sur deux équations principales dans le cadre de la microscopie tomographique diffractive [38] :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_{\text{ref}}(\mathbf{r}) + \int_V \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \chi(\mathbf{r}') \mathbf{E}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (1.11)$$

$$\mathbf{E}_d(\mathbf{k}, \mathbf{k}_i) = \int_V \mathbf{g}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') \chi(\mathbf{r}') \mathbf{E}(\mathbf{r}', \mathbf{k}_i) d\mathbf{r}', \quad (1.12)$$

où V est le volume occupé par l'objet. G est le tenseur de Green, tel que $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{p}$ est le champ électrique en \mathbf{r} émis par un dipôle \mathbf{p} placé en \mathbf{r}' dans le milieu de référence, défini par la géométrie de l'espace en l'absence de l'objet. \mathbf{g} est le tenseur de Green en champ lointain, tel que $\mathbf{g}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') \mathbf{p}$ est le champ lointain émis dans la direction \mathbf{k} par un dipôle placé en \mathbf{r}' dans le milieu de référence.

Dans le cas général, on voit donc d'après l'Eq. 1.11 que \mathbf{E} dépend de χ . Ainsi, l'Eq. 1.12 lie de manière non linéaire \mathbf{E}_d et χ , sous l'effet de la diffusion multiple. Pour calculer le

champ diffracté par l'objet avec l'Eq. 1.12, il est nécessaire de déterminer au préalable le champ total à l'intérieur de l'objet. Pour cela, l'Eq. 1.11 est résolue numériquement en utilisant une discrétisation appropriée [39].

Si l'on adopte une approche scalaire du champ, que le milieu de référence est un milieu homogène, et que \mathbf{E} peut être approximé par \mathbf{E}_{ref} , on remarque que l'Eq. 1.12 se ramène alors à l'Eq. 1.4 établie pour l'approximation de Born.

Outre la prise en compte de la diffusion multiple et de la nature vectorielle du champ électrique, la CDM permet également d'étudier des configurations d'objet qui ne sont pas en espace homogène. Prenons l'exemple d'objets déposés sur un substrat réfléchissant connu. Si l'objet est éclairé par une onde plane, le champ \mathbf{E}_{ref} à utiliser est la somme de cette onde plane et de sa réflexion sur le substrat. Les tenseurs de Green \mathbf{G} et \mathbf{g} doivent eux-aussi tenir compte de la présence du substrat [40]. Des substrats plus complexes, multi-couches et/ou structurés périodiquement, peuvent aussi être considérés [41–43].

1.3.3 Reconstruction par procédure d'inversion itérative non linéaire

L'utilisation d'un modèle de diffraction rigoureux n'est qu'un ingrédient dans la procédure de reconstruction de l'objet. Le vrai problème à résoudre, dit "problème inverse", consiste à retrouver la carte de permittivité de l'objet à partir du champ diffracté mesuré. Cette procédure d'inversion se réduit à une simple transformée de Fourier inverse 3D dans le cas des approximations linéaires de Born et de Rytov (cf. Eqs. 1.4 et 1.9). Mais dans le cas général, du fait de la relation non linéaire entre le champ diffracté et le contraste de permittivité, une autre approche plus élaborée doit être adoptée.

L'approche que j'ai retenue est une démarche itérative. Elle s'appuie sur la définition d'un domaine Ω , que nous appellerons domaine d'investigation, dans lequel nous savons que l'objet est situé. A partir d'une estimation initiale, située dans Ω , nous allons modifier l'objet pas à pas, de manière à ce que le champ diffracté par celui-ci ressemble de plus en plus à celui mesuré.

Pour décrire plus en détails cette approche, je considère un jeu de mesures de champ diffracté en champ lointain \mathbf{f}_l , pour $l = 1, \dots, L$ angles d'illumination sur l'objet. Les Eqs. 1.11 et 1.12 sont simplifiées avec des notations tensorielles :

$$\mathbf{E}_l = \mathbf{E}_{\text{ref},l} + \underline{\underline{A}}\chi\mathbf{E}_l, \quad (1.13)$$

$$\mathbf{E}_{\text{d},l} = \underline{\underline{B}}\chi\mathbf{E}_l. \quad (1.14)$$

Les intégrales volumiques sont effectuées numériquement sur Ω en discrétisant le domaine en N cellules selon un réseau cubique de période bien inférieure à la longueur d'onde d'illumination. Le champ diffracté est quant à lui mesuré en champ lointain sur un domaine Γ comprenant M directions. L'opérateur $\underline{\underline{A}}$ est une matrice $3N \times 3N$ qui inclue les 9 composantes du tenseur de Green \mathbf{G} pour chaque position \mathbf{r} et \mathbf{r}' dans Ω . L'opérateur $\underline{\underline{B}}$ est une matrice $3N \times 3M$ qui inclue les 9 composantes du tenseur de Green en champ lointain \mathbf{g} pour chaque position \mathbf{r} dans Ω et chaque direction \mathbf{k} en champ lointain.

La procédure d'inversion se base sur un algorithme itératif qui minimise une fonction coût \mathcal{F} décrivant l'écart entre les mesures de champ diffracté et celui généré par les

estimations successives de l'objet. Au cours de mes travaux, j'ai plus précisément utilisé une fonction coût de la forme, à l'itération n :

$$\mathcal{F}^{(n)}(\chi^{(n)}, \mathbf{E}_l^{(n)}) = \frac{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{f}_l - \underline{\underline{B}}\chi^{(n)}\mathbf{E}_l^{(n)}\|_{\Gamma}^2}{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{f}_l\|_{\Gamma}^2} + \frac{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{E}_{\text{ref},l} - \mathbf{E}_l^{(n)} + \underline{\underline{A}}\chi^{(n)}\mathbf{E}_l^{(n)}\|_{\Omega}^2}{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{E}_{\text{ref},l}\|_{\Omega}^2}. \quad (1.15)$$

Cette fonction coût estime non seulement χ dans Ω à chaque itération, mais également le champ total \mathbf{E}_l . Son utilisation, connue sous le nom de "méthode hybride", est décrite précisément dans la référence [44]. La première fraction vise comme prévu à minimiser l'écart entre les mesures et le champ calculé à partir de l'objet estimé. La seconde permet de s'assurer que le champ total estimé dans Ω satisfait les équations de Maxwell pour les valeurs estimées de χ . La minimisation est effectuée à l'aide d'une procédure de gradient conjugué de Polak-Ribière [45], dont les modalités sont décrites en [44]. Elle nécessite un calcul du champ diffracté avec les équations 1.11 et 1.12 à chaque itération. Les deux séquences $\chi^{(n)}$ et $\mathbf{E}_l^{(n)}$ sont initialisées par une rétro-propagation du champ mesuré, à savoir l'application de la matrice transposée conjuguée de $\underline{\underline{B}}$ au jeu de données \mathbf{f}_l [40].

Outre la possibilité d'incorporer un modèle de diffraction rigoureux, cette approche de minimisation itérative peut permettre d'introduire au besoin des informations a priori sur l'objet dans la fonction coût. Il est en effet connu qu'en imposant des contraintes supplémentaires à la solution du problème inverse, la convergence de l'algorithme est améliorée et peut conduire à un gain spectaculaire en résolution sur la reconstruction finale de l'objet [46, 47]. C'est un autre avantage important par rapport aux procédures classiques d'inversion linéaire. Pour l'essentiel de mes travaux, les informations a priori introduites ont consisté à considérer χ comme une grandeur réelle et positive, ce qui reste général tant que les objets sondés sont peu absorbants. Dans l'ensemble de ce manuscrit, ce sont par défaut ces informations a priori qui seront utilisées, sauf si le contraire est explicitement mentionné. La contrainte de positivité, quoique tout à fait légitime dans le domaine optique, n'est pas anodine. Les techniques d'inversions linéaires classiques produisent en effet des artéfacts négatifs inhérents à la limite d'Abbe imposée sur les fréquences spatiales accessibles.

1.3.4 Conclusion

Pour conclure sur cette procédure d'inversion non linéaire, il faut garder à l'esprit que ce type d'approche est initialement issu du domaine du sondage électromagnétique en micro-ondes. La procédure a été mise au point dans notre équipe essentiellement par Kamal Belkebir, Patrick Chaumet, Anne Sentenac, et plus récemment Emeric Mudry lors de sa thèse. Son application sur des mesures expérimentales en optique était un champ d'investigation totalement nouveau quand j'ai débuté mes travaux. Dans les prochains chapitres, je montrerai que cette procédure a pu être appliquée avec succès à des configurations d'échantillons variées. Les temps de calcul et taille mémoire typiques requis pour sa mise en oeuvre seront quant à eux décrits en section 3.1.3.

1.4 Dispositifs expérimentaux pour la microscopie tomographique diffractive

1.4.1 Contraintes expérimentales principales

Angles d'illumination et de détection accessibles

Pour illustrer les contraintes induites par les configurations d'illumination et de détection dans le microscope, le plus adapté est de se placer dans le cadre de l'approximation de Born, la plus utilisée en MTD. D'après l'Eq. 1.4, il apparaît clairement que les fréquences spatiales accessibles de l'objet dépendent des angles d'illumination et de détection disponibles. Une configuration de mesure dite complète consisterait à utiliser tous les angles d'illumination et de détection possibles dans 4π stéradians. Il va toutefois de soi que cette configuration complète est très difficilement réalisable en pratique.

Pour changer l'angle d'illumination sur l'objet, les deux approches possibles dans un microscope tomographique sont soit de changer l'orientation de l'objet dans un faisceau d'illumination fixe [19, 20, 48], soit de modifier la direction de propagation de ce faisceau, l'objet restant fixe [5–7, 9, 10, 22–24, 26, 28, 29, 32, 36]. Notons que ces deux approches peuvent aussi être combinées [49]. La première solution est la moins répandue, car elle impose des contraintes importantes sur le mouvement de l'objet : celui-ci doit uniquement être dû à des rotations, à savoir l'origine du repère associé à l'objet doit rester fixe. Si des composantes de translation sont présentes, la reconstruction sera bien entendu dégradée car issue de mesures pendant lesquels l'échantillon a bougé. Il est donc en pratique plus aisé d'illuminer un objet fixe par un faisceau large dont l'angle d'incidence est contrôlé. C'est ce type d'approche qui sera considéré dans toute la suite de ce manuscrit.

Pour la configuration de détection, les deux cas possibles sont soit une détection en transmission par rapport à l'illumination, soit en réflexion. Chacune de ces deux configurations, combinée avec la variation de l'angle d'illumination, va conduire à des domaines de fréquences spatiales accessibles différents. On considère que l'angle maximum de détection et d'illumination par rapport à l'axe optique est θ_{\max} (cf Fig. 1.4).

L'ensemble des fréquences spatiales de χ accessibles définit la Fonction de Transfert Optique (FTO) du microscope tomographique. Dans l'espace de Fourier, elle se traduit par une fonction $\text{FTO}(\mathbf{K})$, où les composantes de \mathbf{K} , $K_{x,y,z}$, sont les fréquences spatiales de χ . La FTO est égale à 1 partout où les fréquences spatiales sont accessibles, et 0 partout ailleurs. Dans le cas idéal de la configuration complète, on construit à partir de l'Eq. 1.4 une FTO qui est une sphère pleine de rayon $2k_0$ (si l'on se trouve dans l'air). En pratique, les configurations en transmission ou en réflexion vont conduire à des FTO nettement différentes. Ces deux cas sont présentés Fig. 1.5, en considérant un angle maximum d'illumination et de détection θ_{\max} tel que l'ouverture numérique $\sin\theta_{\max} = 0.95$, ce qui correspond en pratique au maximum permis dans les microscopes. Seules des coupes $K_x - K_z$ des FTO sont montrées, les FTO en 3D sont obtenues par rotation autour de l'axe K_z .

Dans les deux cas, les FTO possèdent des volumes complètement différents : une

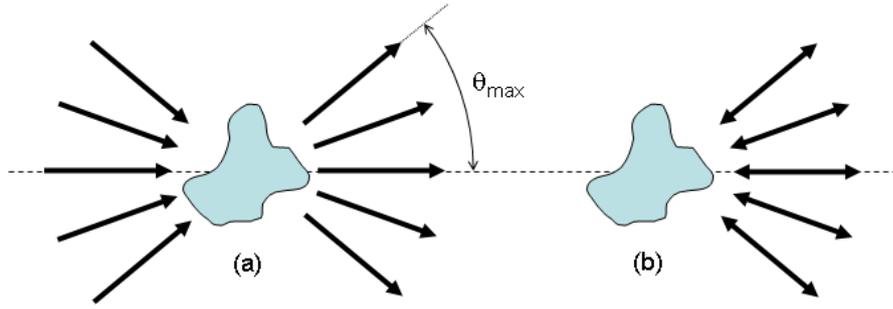


FIGURE 1.4 – (a) Illumination et détection en transmission ; (b) Illumination et détection en réflexion.

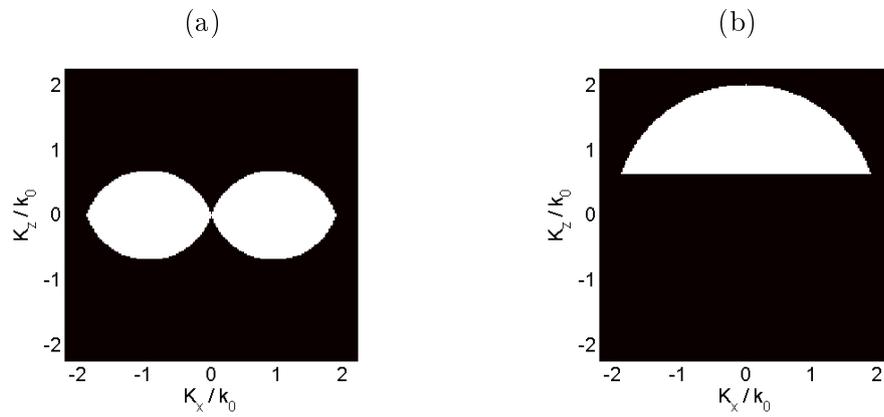


FIGURE 1.5 – Coupes $K_x - K_z$ des Fonctions de Transfert Optique pour une ouverture numérique de détection et d'illumination de 0.95 : (a) cas en transmission ; (b) cas en réflexion.

forme torique en transmission, et une portion de sphère en réflexion. Le domaine de fréquences K_z couvert n'est en outre pas du tout le même : centré sur les basses fréquences en transmission, et décalé vers les hautes fréquences en réflexion. Ceci va donc induire des reconstructions χ_{rec} différentes, χ_{rec} étant obtenue à partir des fréquences spatiales accessibles :

$$\chi_{\text{rec}}(\mathbf{r}) = \text{TF}^{-1}[\tilde{\chi}(\mathbf{K}) \times \text{OTF}(\mathbf{K})] = \chi(\mathbf{r}) \otimes \text{psf}(\mathbf{r}). \quad (1.16)$$

La reconstruction est la convolution de l'objet avec la fonction d'appareil ("point spread function"), $\text{psf}(\mathbf{r})$, qui n'est autre que la transformée de Fourier inverse de la FTO. $\text{psf}(\mathbf{r})$ est aussi l'image d'un point objet infiniment petit par la reconstruction tomographique.

Considérons le cas simple d'un objet non absorbant, où χ est un nombre réel. χ_{rec} sera alors donné par la convolution de χ et de la partie réelle de la fonction d'appareil. La Fig. 1.6 présente la partie réelle de $\text{psf}(\mathbf{r})$ pour les configurations complète, en transmission et en réflexion, ainsi que la reconstruction obtenue pour chacun de ces cas en prenant pour objet une sphère de diamètre une longueur d'onde, de χ uniforme normalisé à 1.

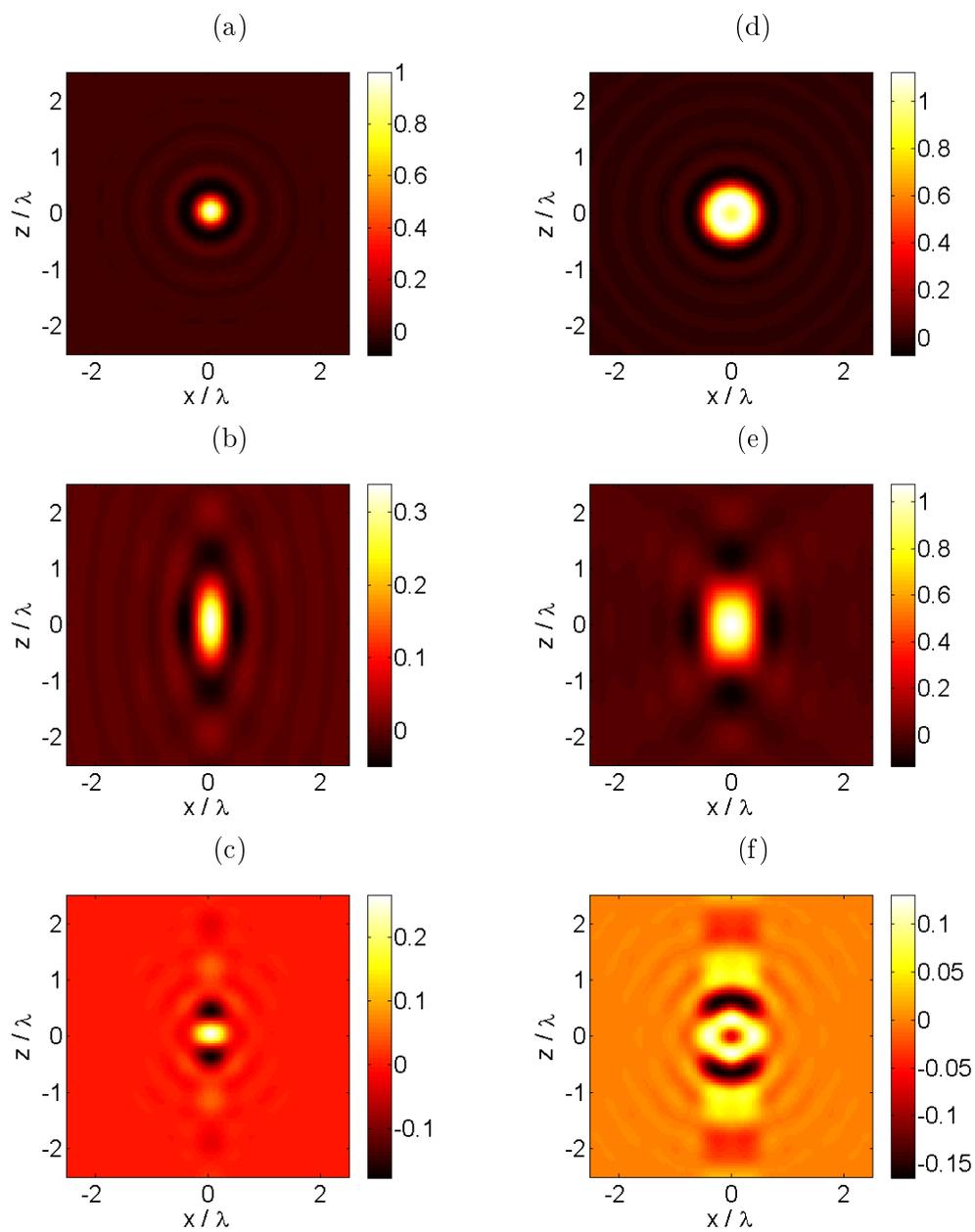


FIGURE 1.6 – (a), (b) et (c) : Partie réelle de la fonction d'appareil respectivement pour les configurations complète, en transmission et en réflexion. (d), (e) et (f) : Reconstruction obtenue pour ces 3 cas avec pour objet une sphère de diamètre une longueur d'onde et χ normalisé à 1.

Les parties réelles de fonctions d'appareil sont normalisées par rapport au maximum du cas complet. Il apparaît que le cas en transmission dégrade essentiellement la résolution axiale, selon z , par rapport à la configuration complète. Ceci était prévisible du fait du manque de hautes fréquences spatiales axiales dans la FTO. La reconstruction demeure cependant satisfaisante. En revanche, dans le cas en réflexion, la partie réelle de la fonction d'appareil comporte des rebonds négatifs importants selon l'axe z , qui détériorent énormément la reconstruction.

Ceci explique pourquoi les travaux effectués en MTD avec une approche linéaire classique sur des objets 3D ont jusqu'à présent exclusivement été réalisés en configuration en transmission. Cependant, je montrerai par la suite que l'approche itérative d'inversion présentée section 1.3.3 ne souffre pas de cette limitation, et a pu être appliquée à un dispositif en configuration en réflexion.

Mesures de la phase

Contrairement au domaine micro-ondes, la mesure de la phase en optique n'est pas directe du fait de la très haute fréquence du champ électrique (typiquement 100 THz dans le visible!). Seule l'intensité de ce champ est facilement mesurable. Différentes techniques de mesure indirecte de la phase ont donc vu le jour, et je décris ici brièvement les plus répandues.

- Interférométrie à décalage de phase : cette technique [12] consiste à faire interférer sur la caméra le champ diffracté par l'objet avec un champ de référence, en pratique un faisceau laser collimaté en incidence normale sur la caméra. Le chemin optique de ce faisceau de référence peut être contrôlé finement, habituellement soit par un modulateur de phase, soit par un miroir monté sur support piézoélectrique. Le champ diffracté en module et en phase est extrait d'une série de figures d'interférences obtenues avec différents déphasages imposés sur la voie de référence. Trois ou quatre déphasages sont usuellement suffisants. C'est aussi l'inconvénient principal de cette approche, qui nécessite de mesurer plusieurs images d'intensité pour aboutir à l'image en amplitude et en phase. Des perturbations extérieures (vibrations mécaniques, fluctuations de l'air ambiant...) peuvent donc altérer la séquence de déphasages. Il est possible de faire une moyenne sur plusieurs séquences pour diminuer la sensibilité aux fluctuations extérieures, au détriment d'une mesure plus longue.

- Interférométrie hors-axe (ou "off-axis") : dans ce cas, la voie de référence arrive sur la caméra avec un angle d'incidence non nul par rapport à l'axe optique du microscope [11, 13]. Une seule figure d'interférence est mesurée. En effectuant une transformée de Fourier 2D de cet hologramme numérique, il est possible de séparer dans l'espace de Fourier ses ordres 0, 1 et -1. Les ordres 1 et -1 sont respectivement proportionnels à la TF du champ diffracté d'une part, et celle du conjugué du champ diffracté d'autre part. En filtrant un de ces ordres et en lui appliquant une TF^{-1} , on peut donc retrouver le champ diffracté en module et en phase. Par rapport à la technique précédente, cette approche présente l'avantage d'être "single shot" et donc plus rapide, mais induit des contraintes supplémentaires de discrétisation sur la caméra.

- Capteurs de front d'onde : ces caméras spéciales permettent d'obtenir une image

en module et en phase sans passer par une figure d'interférence avec une voie de référence. Cela simplifie donc nettement le montage, et n'impose pas d'utiliser une source de lumière très cohérente. Il existe deux types principaux de capteurs de front d'onde : ceux utilisant un masque de Shack-Hartmann [50], et ceux basés sur l'interférométrie à décalage multilatéral [14]. Le deuxième type permet d'obtenir davantage de pixels (typiquement une matrice de 300×400 , contre 128×128 pour le premier type), mais nécessite qu'un fond lumineux suffisamment intense soit présent sur tout le capteur.

– Il existe également des techniques sans voie de référence qui permettent de retrouver le module et la phase du champ à partir de plusieurs mesures en intensité sur une caméra standard. Elles sont basées sur une redondance d'information présente sur les différentes mesures et un algorithme de traitement adapté. On trouve dans cette catégorie la Ptychographie, technique issue de la microscopie électronique [51], par la suite appliquée dans le domaine des rayons X [52] et plus récemment en optique [53]. Les méthodes dites de diversité de phase [54], notamment utilisées en optique adaptative, font également partie de cette catégorie. Par ailleurs, des travaux récents ont montré sous certaines conditions la possibilité de retrouver le champ complexe à partir d'une unique mesure en intensité et d'un algorithme itératif de traitement [55]. L'idée est de faire interférer le champ diffracté par l'objet avec un champ de référence généré par un élément diffusant connu placé en périphérie de l'objet.

Au final, les dispositifs de MTD adoptent en très grande majorité des architectures interférométriques avec voie de référence. Cette approche, bien que complexifiant le montage, reste en effet peu onéreuse d'un point de vue expérimental, et permet en pratique d'accéder de manière simple à la phase à partir des mesures. Un inconvénient reste cependant la sensibilité aux perturbations extérieures, qui dégrade la sensibilité temporelle du dispositif, à savoir la plus petite variation de phase mesurable au cours du temps. Des configurations interférométriques plus stables, où voie de référence et voie signal suivent le plus possible un trajet optique commun, ont ainsi récemment été optimisées pour améliorer cette sensibilité temporelle [9, 25, 27, 32].

1.4.2 Choix du montage développé au cours de mes travaux

Comme mentionné précédemment, les montages de microscopie tomographique diffractive ont jusqu'à présent été exclusivement utilisés en configuration de transmission pour reconstruire en 3D des objets volumiques. Dans une configuration en réflexion, les procédures de reconstruction classiques linéaires souffrent en effet particulièrement des distorsions générées par la PSF. Les fréquences spatiales de l'objet aux alentours de l'origine de l'espace de Fourier n'étant pas accessibles, cette PSF revient à considérer que les composantes de Fourier correspondantes sont nulles, et une erreur importante sur l'estimation de l'objet est ainsi commise. En revanche, dans le cadre de la procédure d'inversion itérative non linéaire que j'ai retenue, cette limitation n'est plus présente. L'optimisation itérative de la reconstruction est effectuée sur les seuls angles d'illumination et de détection effectivement mesurés. Il n'est donc pas considéré que le champ diffracté est nul pour les angles non mesurés. La solution produite sera celle qui génère

par calcul un champ diffracté le plus proche possible de celui mesuré. Elle n'a ainsi aucune raison de générer un champ nul en dehors du domaine de mesure accessible.

Cette procédure d'inversion donne donc accès à une configuration de tomographie en réflexion qui est avantageuse à plus d'un titre. Elle permet tout d'abord aussi bien de s'appliquer aux objets transparents que sur ceux déposés sur substrat non transparent. En outre, comme nous le montrerons par la suite, dans le cas d'un substrat miroir, elle permet d'accroître notablement la résolution axiale en comparaison du cas en transmission [56]. Enfin, d'un point de vue pratique, elle permet d'utiliser le même objectif pour l'illumination et la détection. Dans le cas en transmission, une lentille condenseur peut être utilisée pour l'illumination, mais des aberrations importantes sont alors généralement présentes aux fortes ouvertures numériques. Pour les éviter, l'achat d'un deuxième objectif dédié à l'illumination est possible, mais ceci induit un coût et des contraintes d'alignement supplémentaires non négligeables.

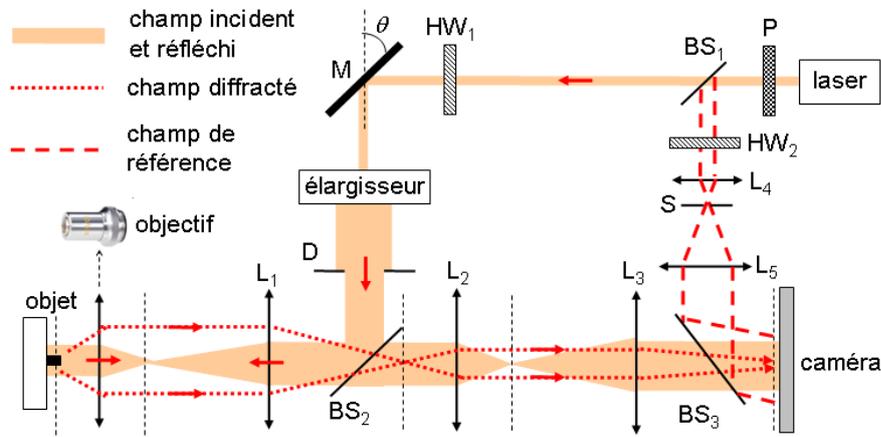


FIGURE 1.7 – Schéma de principe du microscope tomographique diffractif en réflexion. P : polariseur, BS : séparateur de faisceau, HW : lame demi-onde, M : miroir orientable, D : diaphragme, S : sténopé.

Dans ce contexte, j'ai donc choisi de développer un montage tomographique en réflexion, dont le schéma de principe se trouve Fig. 1.7. Le laser est polarisé linéairement, et des lames demi-onde présentes sur voies d'illumination et de référence permettent une éventuelle modification de la direction de la polarisation.

– **Illumination de l'objet** : Le miroir M, dont l'orientation est pilotable, permet de contrôler l'angle d'illumination sur l'objet. Le point d'impact du laser sur ce miroir est conjugué optiquement avec l'objet, ce qui garantit l'illumination avec un faisceau collimaté de la même zone de l'échantillon quel que soit l'angle d'incidence. L'élargisseur et le diaphragme D visent à générer un faisceau d'intensité quasiment uniforme, qui pourra être assimilé localement à une onde plane lors de l'illumination d'un objet de petite taille. La procédure d'inversion sera ainsi mise en oeuvre en considérant l'objet illuminé sous différentes incidences par des ondes planes.

– **Détection sur la caméra** : La caméra est placée dans un plan conjugué de celui de l’objet, et reçoit le champ diffracté par l’objet ainsi que la réflexion spéculaire de l’illumination si un substrat réfléchissant est présent. Les lentilles L_2 et L_3 permettent d’augmenter le grandissement global du microscope pour garantir un échantillonnage plus fin sur la caméra. Une fois le champ mesuré en module et en phase, il est transféré en champ lointain par une TF^{-1} 2D pour être compatible avec la procédure d’inversion itérative. La caméra est cependant placée préférentiellement dans un plan image plutôt que dans un plan de Fourier pour améliorer le rapport signal à bruit. Pour les petits objets, le champ diffracté sera en effet plus concentré dans un plan image, et laisse la possibilité de filtrer uniquement les zones du plan image porteuses de signal utile.

– **Voie de référence** : La voie de référence est un faisceau gaussien collimaté filtré spatialement, dirigé vers la caméra. Elle est représentée Fig. 1.7 en configuration d’interférométrie hors-axe. Lors de mes travaux, j’ai mis en oeuvre différents procédés de mesure de la phase : interférométrie à décalage de phase [57], interférométrie hors-axe [58], et capteur de front d’onde basé sur l’interférométrie à décalage multi-latéral [59]. Au final, c’est l’interférométrie hors-axe qui a présenté le meilleur compromis entre robustesse d’utilisation et facilité de mise en oeuvre. Sa contrainte principale concerne la restriction du nombre de pixels utilisable sur la caméra, mais n’a pas été préjudiciable à la procédure d’inversion itérative.

Pour ce qui concerne les temps d’acquisition en MTD, avec un miroir orientable galvanométrique comme celui avec lequel j’ai équipé le dispositif (Newport FSM-300), il est possible d’enregistrer plusieurs centaines d’angles d’illumination par dixième de seconde, pour peu que la caméra soit suffisamment rapide [6]. La cadence de mesure tomographique peut donc rester confortable. Dans notre cas, avec une caméra standard, le taux de transfert typique de 30 images par seconde devient le facteur limitant.

1.4.3 Procédure de normalisation des données mise au point pour ce montage

J’ai essentiellement mis en oeuvre le microscope tomographique en réflexion sur des échantillons déposés sur substrat plan réfléchissant. Comme mentionné en section 1.3.2, cet environnement non homogène pour l’objet ne permet pas d’appliquer une inversion classique par TF^{-1} 3D, même dans le cas où les approximations linéaires sont vérifiées. Il n’avait donc jusqu’à présent jamais été étudié en tomographie, alors qu’il est adapté à tout un champ d’applications nouvelles, notamment dans le domaine des micro-systèmes intégrés (MEMS, MOEMS...), habituellement déposés sur substrat semi-conducteur.

Cet environnement plus complexe que l’environnement homogène a toutefois nécessité que je développe une procédure spécifique de normalisation fine du jeu de données. Celle-ci doit permettre de le rendre compatible avec la procédure d’inversion itérative, afin d’aboutir à une reconstruction quantitative de l’objet, aussi bien en terme de dimensions que de valeur de permittivité. En environnement homogène, l’approche classique linéaire par TF^{-1} 3D normalise habituellement les champs diffractés obtenus d’une incidence à l’autre en exploitant la redondance d’information présente sur les différents angles d’illu-

mination. L'amplitude et la phase globale des champs sont ajustées pour qu'ils prennent des valeurs identiques aux fréquences spatiales de l'objet communes à différents angles d'illumination. Ceci devient impossible en présence d'un substrat réfléchissant, puisque champ diffracté et objet ne sont alors plus liés par une simple TF 3D.

La procédure de normalisation que j'ai élaborée s'articule autour de trois points principaux : la normalisation en amplitude, la normalisation en phase, et la correction du décalage de l'origine des phases. Elle a été complètement détaillée dans les articles [60] et [61], et je la présente donc ici uniquement dans ses grandes lignes.

– **Normalisation en amplitude** : La procédure itérative d'inversion suppose que l'échantillon est illuminé par des ondes planes ayant toutes une amplitude normalisée à un. Dans le jeu de données, l'amplitude d'illumination n'est pas connue, et elle est de plus susceptible de varier d'une incidence à l'autre (fluctuations du laser, coefficient de transmission global du montage pas totalement identique d'une incidence à l'autre...). La normalisation est effectuée en faisant en sorte que la valeur mesurée de la réflexion spéculaire sur le substrat corresponde à celle calculée par le modèle de la procédure d'inversion. Les valeurs de la permittivité du substrat et des angles d'illumination sont en effet supposées connues. Cette approche nécessite de pouvoir négliger le champ diffracté par l'objet dans la direction spéculaire, ce qui est vérifié tant que celui-ci est de petites dimensions.

– **Normalisation en phase** : Dans la procédure d'inversion, l'origine des phases pour calculer les champs est située sur le substrat. Pour chaque angle d'illumination, la normalisation en phase va ainsi consister à décaler la phase du champ mesuré pour que la réflexion spéculaire ait une phase égale à l'argument du coefficient de réflexion de Fresnel théorique. Les phases initialement mesurées aux réflexions spéculaires sont en effet corrompues par différentes dérives (mécanique, en température...) pouvant se produire au cours de la mesure, ou simplement par un chemin optique variant d'une incidence à l'autre. Cette approche nécessite toutefois que l'origine des phases expérimentale soit elle aussi située exactement sur le substrat. En pratique, il existe toujours un décalage entre les positions théorique et expérimentale. Sur le schéma du dispositif Fig. 1.7, ce décalage provient du fait que le champ mesuré sur la caméra n'est jamais parfaitement conjugué avec la position du substrat. Il est donc nécessaire de corriger ce décalage sur les données avant de normaliser leurs phases spéculaires sur les arguments des coefficients de réflexion de Fresnel.

– **Correction du décalage de l'origine des phases** : Une relation très simple permet de corriger la phase du champ mesuré une fois le décalage de l'origine des phases connu [60,61]. Celui-ci prend typiquement des valeurs de quelques centaines de nanomètres le long de l'axe optique du microscope, lorsqu'un objectif à forte ouverture numérique est utilisé. Deux méthodes sont possibles pour le déterminer [60,61].

Une première consiste à appliquer une TF^{-1} 3D au jeu de données, normalisé en considérant que le décalage est nul. Comme la TF^{-1} 3D ne prend pas en compte la présence du substrat réfléchissant et que les données sont imparfaitement normalisées

en phase, ceci conduit à une reconstruction nettement dégradée de l'objet. Dans le cas d'un objet peu épais déposé sur le substrat, ce type de reconstruction permet toutefois de déterminer simplement si le décalage de l'origine des phases a été corrigé ou non. Lorsque c'est le cas, la reconstruction se forme exactement au centre du domaine accessible par la TF^{-1} 3D et son module est maximisé. Sinon, la reconstruction a un module plus faible et l'écart entre son centre de gravité et le centre du domaine donne une première estimation du décalage de l'origine des phases. La TF^{-1} 3D est alors réappliquée aux données corrigées avec cette estimation, et après quelques itérations le décalage peut être déterminé avec une précision nettement accrue.

Une seconde méthode effectue une recherche itérative du décalage à partir d'une minimisation de fonction coût. Celle-ci permet de déterminer quel décalage, une fois corrigé sur le champ mesuré, conduit par rétro-propagation du champ à la meilleure estimation initiale pour la procédure d'inversion itérative. Cette méthode est plus générale et plus précise que la première pour l'estimation du décalage. Elle est en revanche plus longue à mettre en oeuvre, en particulier si le domaine d'investigation est étendu.

L'efficacité de la procédure de normalisation est illustrée Fig. 1.8. L'objet considéré est composé de 4 cylindres de résine disposés en carré sur un substrat silicium. Ils possèdent un diamètre de $1\ \mu\text{m}$, une hauteur de $120\ \text{nm}$, et sont espacés bord à bord de $1\ \mu\text{m}$. Le champ diffracté est visualisé dans l'espace de Fourier, pour un angle d'illumination de 32° . Le champ diffracté a été supprimé dans la zone de réflexion spéculaire (cercle noir dans la moitié supérieure des images en module) et pour des angles de diffraction trop éloignés de la réflexion spéculaire, du fait d'un signal trop faible. Les distorsions sur la phase avant normalisation sont dues à un décalage de l'origine des phases selon l'axe z évalué à $270\ \text{nm}$.

1.5 Conclusion

J'ai présenté dans ce chapitre l'approche originale que j'ai développée pour la microscopie tomographique diffractive (MTD). Elle transforme la procédure classique et directe de reconstruction linéaire en une procédure numérique itérative de résolution d'un problème inverse. Ceci vise non seulement à appliquer la MTD sur de nouveaux types d'échantillons, notamment à plus forts contrastes d'indice, mais aussi à de nouvelles configurations d'étude, en terme d'angles d'illumination, de détection et d'environnements spécifiques impliqués pour les échantillons. Je vais détailler dans les chapitres suivants les résultats que j'ai obtenus sur différents types d'échantillons. Je tiens à préciser qu'ils ont été rendus possibles grâce à ma collaboration avec Anne Talneau, Directeur de Recherche CNRS au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures de Marcoussis, qui a réalisé l'intégralité des échantillons nanostructurés présentés dans ce manuscrit.

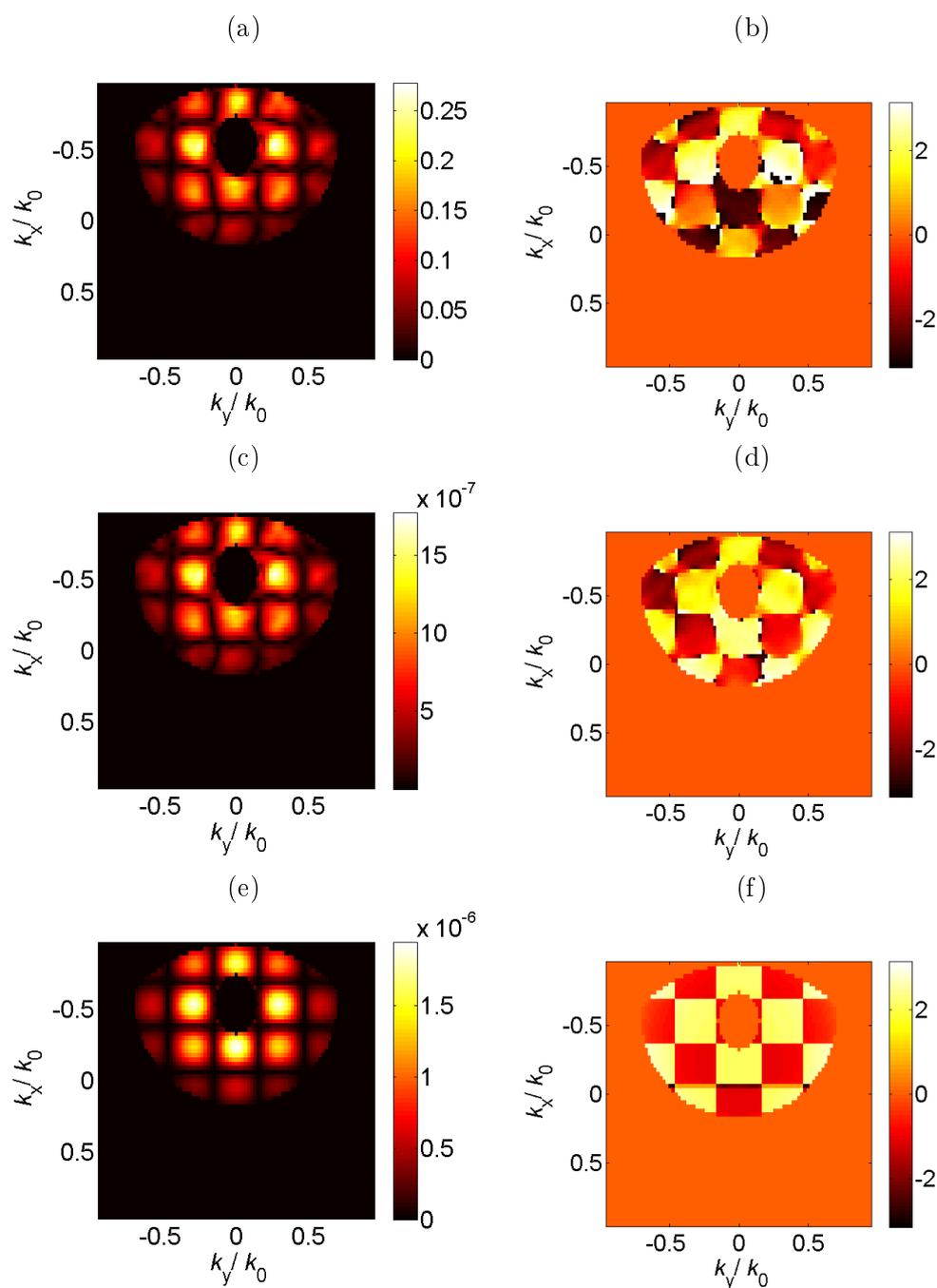


FIGURE 1.8 – Champ diffracté par 4 cylindres de résine déposés sur substrat silicium, visualisé dans l'espace de Fourier. (a), (b) : module et phase avant normalisation ; (c), (d) : après normalisation ; (e), (f) : module et phase théoriques. Les cylindres, disposés en carré, font $1 \mu\text{m}$ de diamètre, 120 nm de hauteur, et sont espacés bord à bord de $1 \mu\text{m}$. Ils sont illuminés avec une incidence de 32° .

Chapitre 2

Tomographie non linéaire appliquée aux objets 2D

Après avoir décrit dans le chapitre précédent l'approche que j'ai développée pour la microscopie tomographique diffractive (MTD), je présente ici les travaux que j'ai accomplis pour la mettre en oeuvre sur des objets en deux dimensions. Ceux-ci vont présenter une direction d'invariance dans le plan transverse du microscope (notée y par la suite), et des dimensions finies selon x et l'axe z du microscope. L'ensemble des illuminations aura ainsi un plan d'incidence orthogonal à l'axe y , et la polarisation est choisie parallèle à l'axe y . Cette configuration permet d'adopter une approche scalaire simplifiée dans un premier temps. Les angles d'illumination et de détection sont en effet confinés dans un plan, et l'inversion numérique est plus aisée à mettre en oeuvre, du fait d'un modèle de diffraction scalaire et d'une quantité restreinte de données et d'inconnues [62,63].

2.1 Première validation expérimentale au delà du critère de Rayleigh

2.1.1 Caractéristiques des échantillons et de la mesure tomographique

Les premiers échantillons que j'ai étudiés ont consisté en des pistes de résine déposées sur substrat silicium (cf Fig. 2.1(I)). De section rectangulaire, ces pistes sont regroupées par deux ou par trois avec des dimensions et des espacements variés afin de tester la résolution du microscope tomographique. Outre le contraste de permittivité élevé de la résine dans l'air ($\chi = 1.66$), la présence du substrat réfléchissant rend cette configuration impropre à l'utilisation d'une inversion linéaire.

Le microscope tomographique utilise ici un objectif d'ouverture numérique 0.75 et une longueur d'onde de 633 nm, ce qui génère un critère de Rayleigh de 500 nm. Lors de la réalisation des jeux de données, 10 angles d'incidence ont été utilisés sur une ouverture numérique d'illumination $NA_i = 0.53$, pour environ 600 angles de détection avec $NA = 0.75$.

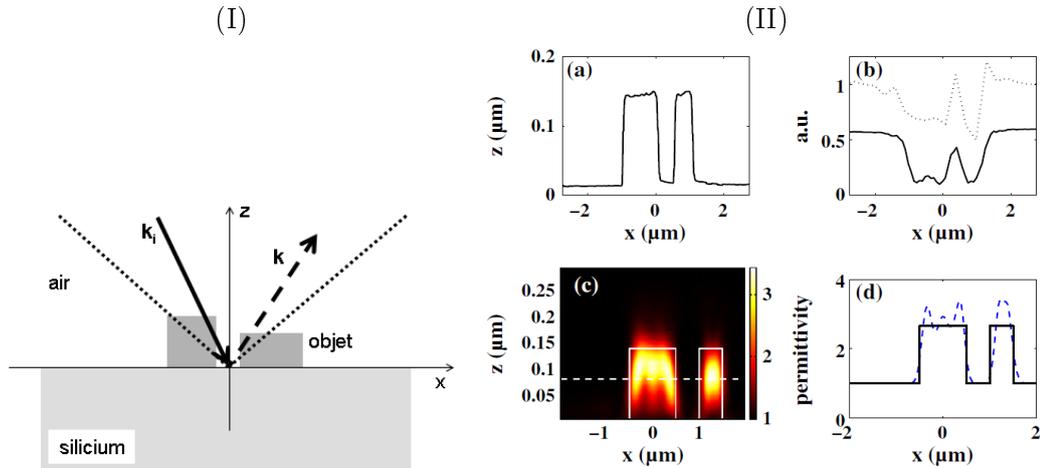


FIGURE 2.1 – (I) Configuration d'échantillon et de mesure. Les lignes pointillées indiquent l'ouverture numérique. (II) Reconstruction sur deux pistes de résine de largeurs $1 \mu\text{m}$ et 500 nm , séparation bord à bord de 500 nm et hauteur 140 nm . (a) Profil AFM. (b) Ligne pleine : profil d'intensité sur une image de microscopie plein champ, de mêmes longueur d'onde et ouverture numérique que le microscope tomographique ; ligne pointillée : module au carré de la réflectance équivalente reconstruite avec l'inversion linéaire présentée en [64]. (c) Carte de permittivité relative reconstruite avec la procédure d'inversion itérative non linéaire. (d) Profil de permittivité le long de la ligne hachurée blanche de (c) : valeur réelle en trait continu, et valeur reconstruite en trait hachuré bleu.

2.1.2 Comparaison de la tomographie non linéaire à d'autres méthodes de caractérisation

Pour différentes configurations d'échantillons, j'ai comparé les résultats de la procédure d'inversion itérative non linéaire avec ceux fournis par trois autres techniques [57]. Tout d'abord une caractérisation AFM (microscopie à force atomique), qui sert de mesure de référence. Puis une image de microscopie plein champ classique, présentant la même ouverture numérique que le microscope tomographique, ainsi que la même longueur d'onde, mais en éclairage incohérent. Enfin, une inversion linéaire sur les mêmes jeux de données basée sur un modèle approché [64]. Ces résultats sont présentés ici pour trois objets tests.

Dans le premier cas (Fig. 2.1(II)), l'objet est constitué de deux pistes de largeurs respectives $1 \mu\text{m}$ et 500 nm , avec une séparation bord à bord de 500 nm et une hauteur de 140 nm . Toutes ces dimensions sont bien confirmées par la mesure AFM en (a). En (b), le mesure de microscopie plein champ sépare bien les deux lignes, tandis que la réflectance équivalente reconstruite avec l'inversion linéaire développée en [64] n'apporte pas d'amélioration notable. (c) et (d) montrent les résultats obtenus avec l'inversion itérative non linéaire : toutes les dimensions des pistes sont estimées avec succès, ainsi que la valeur de la permittivité de la résine.

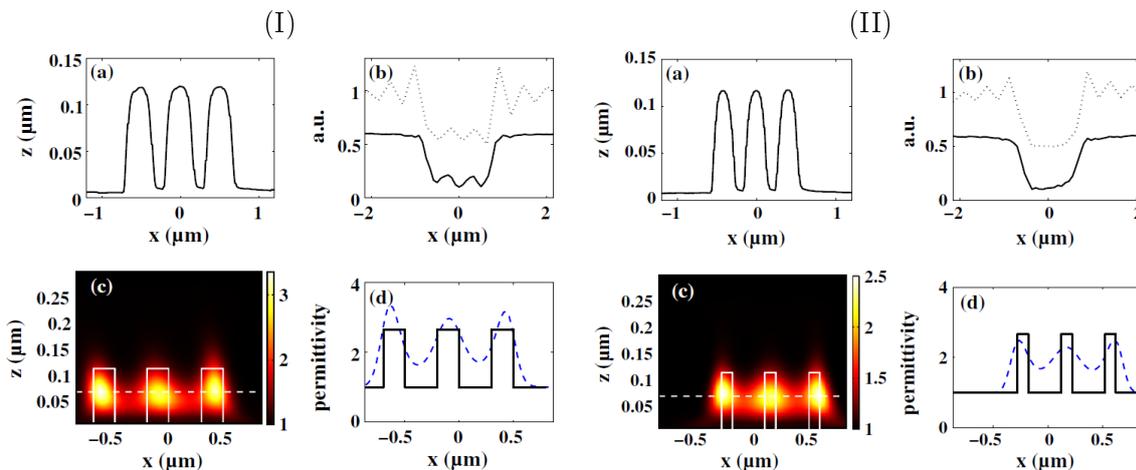


FIGURE 2.2 – Idem Fig. 2.1(B) avec deux autres échantillons : 3 pistes identiques de hauteur 110 nm, séparées bord à bord de 300 nm, de largeur 200 nm en (I), et 100 nm en (II).

Le deuxième échantillon présente une résolution à la limite du critère de Rayleigh : il s'agit de trois pistes de hauteur 110 nm espacées centre à centre de 500 nm (Fig. 2.2(I)). Il apparaît en (b) que la microscopie plein champ et l'inversion linéaire parviennent à peine à séparer les trois pistes. En revanche, l'inversion itérative non linéaire résout parfaitement les trois objets tout en estimant leur permittivité [(c) et (d)]. Dans le dernier cas, les trois pistes sont cette fois espacées de 400 nm centre à centre, soit nettement en dessous du critère de Rayleigh (Fig. 2.2(II)). Ni la microscopie plein champ et ni l'inversion linéaire ne parviennent à résoudre quoi que ce soit, alors que l'inversion itérative non linéaire garde quant à elle le même niveau de performance.

2.1.3 Conclusions

Ces résultats constituent les premières reconstructions expérimentales en imagerie optique à l'aide d'une procédure d'inversion numérique non linéaire [57]. Ils mettent en évidence de manière très probante l'apport de l'utilisation d'un modèle de diffraction rigoureux, qui prend en compte la diffusion multiple et la présence du substrat réfléchissant.

– Tout d'abord, la résolution transverse s'en trouve améliorée de manière notable par rapport aux méthodes classiques. Les performances de l'approche linéaire utilisée en [64] s'avèrent en regard décevantes. Basée sur la reconstruction d'une réflectance équivalente de l'échantillon sous approximation de Born, cette approche simplifiée montre que l'utilisation d'un modèle inadéquat peut même détériorer le résultat par rapport à la microscopie plein champ classique. Les oscillations visibles sur les bords des reconstructions Fig. 2.2(I)(b) et (II)(b) montrent en outre la sensibilité de cette approche au phénomène de Gibbs.

– L’inversion non linéaire a aussi permis d’estimer avec succès la permittivité de la résine, sans passer par une mesure préalable sur un échantillon de référence de permittivité connue, comme cela est fait habituellement en inversion linéaire classique [24,27]. Cette information supplémentaire peut permettre d’identifier la composition d’échantillons, et ainsi conduire à de nouvelles applications.

– Enfin, l’inversion non linéaire a permis d’estimer la hauteur des pistes avec une très haute sensibilité. La différence de hauteur de 30 nm entre l’échantillon à deux pistes et ceux à trois pistes est nettement perceptible sur les cartes de permittivité. Aucune méthode de profilométrie optique classique ne serait en mesure de fournir de telles performances, car les objets sont ici de très fines couches transparentes déposées sur un substrat réfléchissant. J’ai notamment pu vérifier que l’application de la profilométrie de phase, décrite section 1.1.2, ne peut retrouver la hauteur des pistes, du fait de l’interférence entre les champs réfléchis par les interfaces air-résine et résine-silicium.

Ces résultats ont été obtenus lors de mon encadrement de la fin de thèse de Filip Drsek, et sont davantage détaillés en référence [57].

2.2 Dépasser la limite de diffraction grâce à la diffusion multiple

2.2.1 Choix des échantillons et de la configuration d’illumination

J’ai ensuite cherché à utiliser le microscope tomographique sur des échantillons présentant un très fort régime de diffusion multiple. L’idée sous-jacente est de faire une démonstration expérimentale sans ambiguïté qu’il est possible de tirer partie de la diffusion multiple pour accroître la résolution au delà des limites classiques du régime linéaire [37, 65, 66], comme je l’avais décrit dans la section 1.3.1. En effet, les résultats précédents ont certes permis de dépasser le critère de Rayleigh, mais restaient toutefois en deçà de la limite de résolution prévue par la synthèse d’ouverture en régime linéaire (Eq. 1.6).

Pour les objets 2D, la diffusion multiple augmente linéairement avec la contraste de permittivité. J’ai donc choisi un matériau de permittivité très élevée pour les échantillons suivants : le germanium, de permittivité relative $\varepsilon = 29.8 + 7.3i$. Pour accroître la résolution transverse dans le microscope, j’ai par ailleurs fait évoluer la configuration de tomographie pour permettre d’illuminer l’objet en réflexion totale interne. A cette fin, l’objectif est cette fois à immersion (huile) d’ouverture numérique 1.3, et les pistes de germanium sont déposées sur une lame de verre de microscopie d’épaisseur 120 μm . Les pistes sont ainsi éclairées au travers de la lame (cf Fig. 2.3). Pour une illumination en réflexion totale interne, l’objet est donc sondé par une onde évanescente. La longueur d’onde de travail reste $\lambda = 633$ nm.

Les échantillons sur lesquels j’ai travaillé ont auparavant été caractérisés par microscopie électronique au LPN par Anne Talneau, afin de connaître leurs dimensions précises.

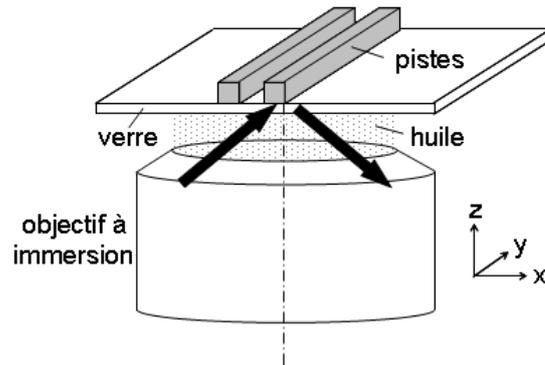


FIGURE 2.3 – Configuration de tomographie en réflexion totale interne

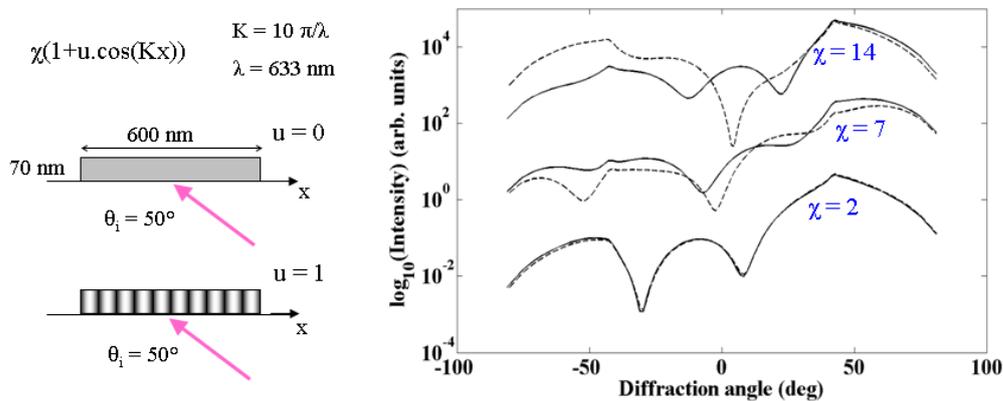


FIGURE 2.4 – Intensité diffractée en champ lointain par une piste rectangulaire homogène (courbe continue) et une piste de permittivité modulée par un réseau de période $\lambda/5$ (courbe pointillée), pour différents contrastes de permittivité moyens χ .

2.2.2 Modifications du champ proche et du champ lointain en présence de diffusion multiple

En régime de diffusion multiple, d'après l'équation 1.10, le champ diffracté en champ lointain porte l'empreinte de fréquences spatiales de l'objet qui peuvent être bien supérieures à la limite de diffraction, générées par des ondes évanescentes à l'intérieur de l'objet. Ceci est illustré Fig. 2.4, qui présente l'intensité diffractée en champ lointain calculée avec notre code pour une piste de hauteur 70 nm et largeur 600 nm, illuminée avec $\lambda = 633$ nm à 50° d'incidence. Deux configurations sont utilisées : une piste homogène, et une piste dont le contraste de permittivité moyen χ est modulé par un réseau de période $\lambda/5$. Pour $\chi = 2$, les deux configurations génèrent la même intensité diffractée. Mais lorsque χ augmente, ainsi que la diffusion multiple, les deux signatures en champ lointain deviennent nettement différentes.

Cette modification fait suite à celle du champ total à l'intérieur de l'objet, que la

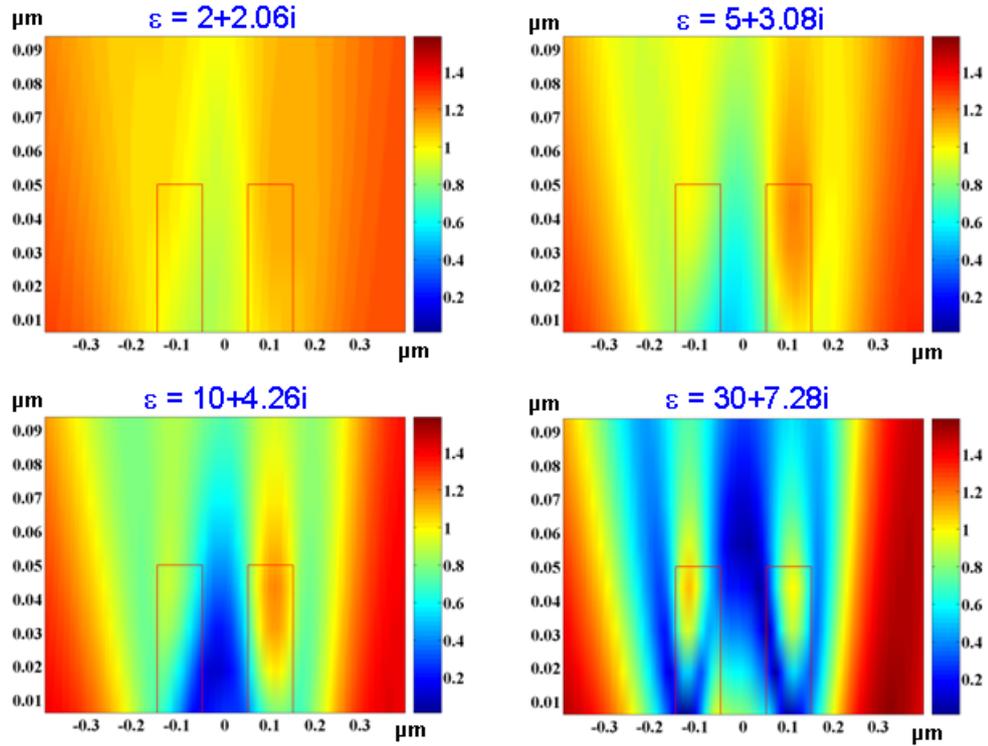


FIGURE 2.5 – Module du champ total lors de l’illumination sous une incidence de 12.5° de deux pistes de largeur et espacement bord à bord 100 nm, et de hauteur 50 nm (profil délimité par les lignes rouges). Différentes valeurs de permittivité ε des pistes sont présentées.

diffusion multiple structure à des échelles très largement sub-longueur d’onde du fait des interactions évanescentes mises en jeu. Ceci est bien visible Fig. 2.5, pour un échantillon constitué de deux pistes de largeur et espacement bord à bord 100 nm, et de hauteur 50 nm (profil délimité par les lignes rouges). Le module du champ total y est calculé dans un domaine incluant les pistes pour différentes valeurs de la permittivité ε des pistes, illuminées avec une incidence de 12.5° . La partie réelle de ε varie de 2 à 30, et la partie imaginaire est ajustée pour présenter la même absorption que le germanium dans tous les cas. Le cas où la permittivité est maximale correspond au germanium, et confirme le fort régime de diffusion multiple que peut générer ce matériau.

2.2.3 Validation expérimentale

La diffusion multiple s’apparente donc à un moyen de sonder l’objet avec un champ présentant des fréquences spatiales bien plus élevées qu’en diffusion simple. Notamment, l’apparition de spots d’illumination largement sub-longueur d’onde permet de sonder très localement les détails de l’objet, et l’utilisation de plusieurs angles d’illumination permet

de reconfigurer le champ pour sonder finement d'autres localisations.

Afin de valider l'augmentation de résolution par diffusion multiple au-delà des limites imposées par le régime linéaire, l'échantillon choisi consiste en deux pistes de germanium de largeur et séparation bord à bord 50 nm, pour une hauteur de 25 nm. La séparation centre à centre de 100 nm entre les deux pistes est ainsi bien inférieure au critère de Rayleigh, ici de 300 nm, mais aussi surtout inférieure au critère de synthèse d'ouverture, fixé à 160 nm lors des mesures avec une ouverture numérique d'illumination $NA_i = 1.16$. 10 angles d'illumination ont été utilisés, pour environ 700 angles de détection.

Les résultats sont présentés Fig. 2.6. Deux cas sont étudiés : d'une part les deux pistes de germanium, et d'autre part des pistes de même géométrie mais de permittivité très faible, fixée à 1.01. Dans ce cas, l'inversion a lieu sur des données simulées par le code numérique pour les mêmes angles d'illumination et de détection que ceux expérimentaux. Pour l'inversion des données sur germanium, la permittivité reconstruite a été considérée comme réelle. Il est en effet apparu que la partie imaginaire joue un rôle négligeable pour ces dimensions de pistes.

(a) et (b) présentent les modules du champ total dans le domaine d'inversion, pour un angle d'illumination à -50° en réflexion totale interne. Comme attendu, ce module est très similaire à celui du champ d'illumination pour le cas faiblement contrasté (régime de diffusion simple), tandis qu'il génère un nano-spot sur une des pistes dans le cas du germanium. Ce spot est déplacé au sein de l'objet lorsque l'angle d'illumination est modifié.

(c) montre la carte de permittivité reconstruite avec les données simulées à faible contraste. L'inversion a été stoppée lorsque la fonction coût \mathcal{F} atteint environ 1%, valeur nettement inférieure à celles obtenues en pratique sur données expérimentales. Elle échoue clairement à séparer les deux pistes, contrairement au cas de données simulées sur pistes fortement contrastées, de permittivité égale à celle du germanium (résultat non présenté ici). Ceci est confirmé par l'inversion expérimentale sur germanium montrée en (d) : les deux pistes apparaissent parfaitement séparées, pour une fonction coût \mathcal{F} qui ne décroît pas en dessous de 28%. Un profil des pistes obtenu par microscopie à force atomique (AFM) est superposé en (d), et confirme que les dimensions transverse et axiale ont été estimées avec une très bonne précision par la procédure d'inversion.

(e) et (f) présentent les profils de permittivité obtenus le long des lignes pointillées blanches des reconstructions en (c) et (d). La séparation des pistes en (f) dans le cas du germanium apparaît ainsi meilleure que sur le profil AFM de (d). La transformée de Fourier des profils (e) et (f) apparaît en (g), respectivement en ligne hachurée et ligne continue. La limite d'Abbe à $2k_0$ imposée sous régime linéaire est indiquée en ligne pointillée noire. Il apparaît clairement que les fréquences spatiales de l'objet ne sont pas restituées au delà de cette limite dans le cas à faible contraste, tandis qu'elles sont estimées sur une plage accrue s'étendant jusqu'à trois fois la limite d'Abbe pour le germanium.

Par ailleurs, la reconstruction d'une piste unique de germanium est présentée Fig. 2.7. La piste fait 30 nm de hauteur et 42 nm de largeur, dimensions restituées avec une très bonne sensibilité par la procédure d'inversion.

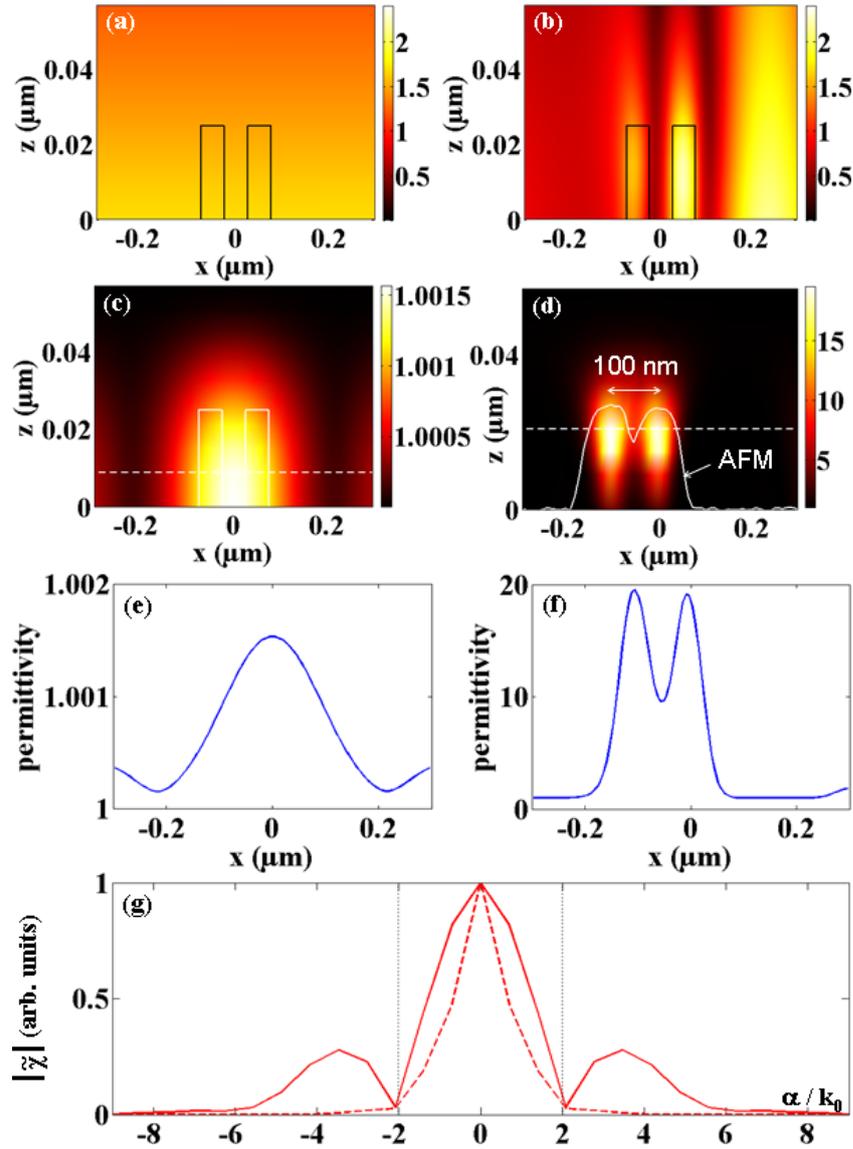


FIGURE 2.6 – Reconstruction de deux pistes (largeur et distance bord à bord 50 nm, hauteur 25 nm), en diffusion simple ou diffusion multiple. (a, c, e) Les pistes ont une permittivité relative de 1.01. (b, d, f) Les pistes ont une permittivité relative de $29.8 + 7.3i$ (germanium pour $\lambda = 633$ nm). (a, b) Module du champ total simulé dans le domaine d'inversion pour une incidence de -50° (profil des pistes en ligne noire). (c) Carte de permittivité reconstruite à partir de données simulées. (d) Carte de permittivité reconstruite à partir des mesures expérimentales (la courbe blanche est la mesure du profil en microscopie à force atomique). (e, f) Profil de permittivité le long des lignes blanches hachurées de (c) ou (d). (g) Module normalisé de la transformée de Fourier du profil de permittivité en (e) (ligne hachurée) et (f) (ligne continue); les fréquences spatiales sont normalisées par k_0 ; les lignes pointillées verticales indiquent la limite d'Abbe.

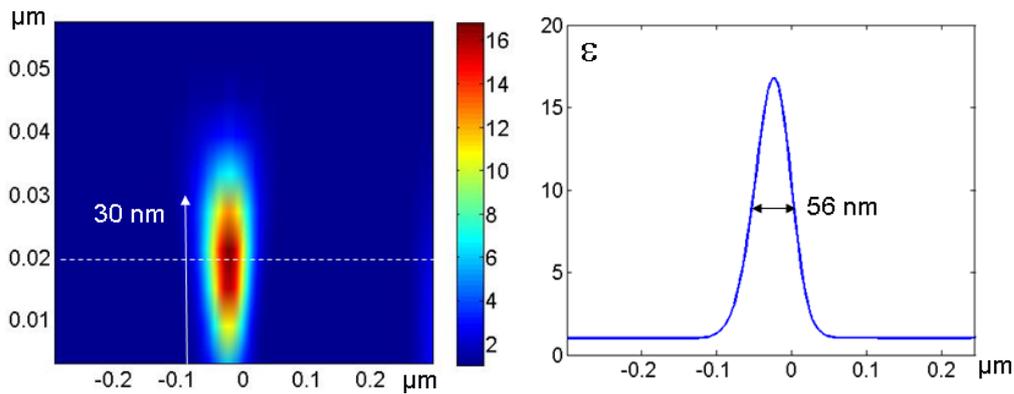


FIGURE 2.7 – Carte de permittivité reconstruite pour une piste de germanium de hauteur 30 nm et largeur 42 nm (gauche). Coupe de permittivité le long de la ligne hachurée blanche (droite).

2.2.4 Bilan

Ces résultats montrent que la tomographie en régime fortement non linéaire peut atteindre une résolution du même ordre que celle des techniques de champ proche. Le nano-spot d'illumination généré Fig. 2.6(b) sur une des pistes, et déplacé ensuite sur sa voisine, n'est pas sans rappeler les techniques basées sur le scan de sondes de champ proche [67]. Ceci met aussi en évidence le point critique des techniques d'imagerie en présence de diffusion multiple : leurs performances dépendent de la manière dont le champ interne sonde l'objet lorsque l'angle d'illumination est modifié.

Ces résultats ont été obtenus lors de mon encadrement du début de thèse de Jules Girard, et sont davantage détaillés en référence [68].

2.3 Microscopie tomographique appliquée à la profilométrie

2.3.1 Contexte

Le domaine d'application de la microscopie tomographique diffractive ne se cantonne pas aux objets volumiques, elle peut aussi s'appliquer à des objets surfaciques et devenir ainsi une technique de profilométrie de surfaces.

Les profilomètres optiques actuels sont en effet essentiellement basés sur des montages interférométriques, et utilisent soit la profilométrie de phase brièvement décrite dans la section 1.1.2 du chapitre 1, soit la profilométrie interférométrique à balayage en lumière blanche [15]. Ces profilomètres ont pour intérêt principal de permettre sous certaines conditions d'obtenir le profil de la surface avec une sensibilité axiale sur sa hauteur qui peut atteindre quelques nanomètres. Cette sensibilité axiale doit être bien distinguée de la résolution axiale : elle concerne une différence de hauteur entre deux points de la surface situés à des positions transverses différentes. La résolution axiale est par contre limitée au mieux à environ $1 \mu\text{m}$: c'est l'épaisseur minimale d'une couche transparente

dont le profilomètre optique va pouvoir séparer les deux interfaces. Pour ce qui concerne la résolution transverse, elle souffre des mêmes limitations que la microscopie optique classique, à savoir le critère de Rayleigh. Dans tous les cas, ces profilomètres ne sont capables de restituer le profil de hauteur des surfaces qu'en absence de diffusion multiple : les différents points de la surface ne doivent pas s'éclairer mutuellement. En pratique, cela limite leur utilisation à des surfaces présentant des pentes faibles ou verticales, mais pas de pentes intermédiaires [15].

Dans ce contexte, notre approche de MTD présente des atouts majeurs : pouvoir s'appliquer à des profils de surface beaucoup plus variés, notamment en régime de diffusion multiple, tout en améliorant la résolution transverse au delà du critère de Rayleigh. Des résultats récents ont d'ailleurs mis en évidence ce gain en résolution dans le cadre d'une approximation de diffusion simple, l'approximation de Kirchhoff-Fraunhofer [69].

2.3.2 Formulation du problème

Comme dans l'ensemble de ce chapitre, nous considérons ici un espace 2D xOz et une approche scalaire pour le calcul du champ diffracté. Pour appliquer la MTD en profilométrie, il est nécessaire de développer une procédure d'inversion dédiée, s'appuyant sur une modélisation rigoureuse basée non pas sur une intégration volumique, mais sur une intégration surfacique. Les inconnues se trouvent ainsi uniquement au niveau de la surface, en nombre nettement moins important.

L'objet à reconstruire est cette fois la surface uni-dimensionnelle (ou l'interface), potentiellement étendue, entre deux milieux de permittivité homogène. On considère que le profil de hauteur de cette surface peut être paramétré par la fonction $h(x)$. La méthode des moments en formulation intégrale surfacique permet alors d'exprimer E_d , le champ diffracté en champ lointain par la surface pour un angle d'illumination et de diffraction donnés, à partir de l'opérateur de diffraction non linéaire $\underline{\underline{F}}$ par la relation tensorielle [70, 71] :

$$E_d = \underline{\underline{F}}h. \quad (2.1)$$

Comparé au cas des objets volumiques, l'opérateur de diffraction $\underline{\underline{F}}$ présente un degré de non linéarité bien plus élevé, notamment du fait que le paramètre recherché h est inclus à l'intérieur des fonctions de Green impliquées lors de l'intégration surfacique. C'est ce qui a motivé la mise au point d'une procédure d'inversion itérative qui effectue une minimisation de fonction coût non pas par une méthode de gradient conjugué, comme dans le cas volumique, mais par la méthode de Newton-Kantorovitch [72–74].

Dans ce cas, à l'itération i , l'estimation du profil de la surface est corrigée à partir de l'estimation précédente selon la relation :

$$h_i = h_{i-1} + \delta h_i, \quad (2.2)$$

où la correction δh_i est la solution au sens des moindres carrés de l'équation :

$$\delta E_d = \underline{\underline{D}}\delta h_i. \quad (2.3)$$

δE_d est l'erreur résiduelle entre le champ diffracté mesuré et celui généré par le profil estimé à l'itération $i - 1$, tandis que $\underline{\underline{D}}$ est la dérivée de Fréchet de l'opérateur $\underline{\underline{F}}$. La détermination de $\underline{\underline{D}}$ est explicitée pour le cas d'une surface parfaitement conductrice dans les références [70, 71, 74], et pour le cas d'une surface de permittivité finie en [75]. A chaque fois, les deux cas d'illumination en polarisations TE et TM sont traités.

L'adaptation de notre procédure d'inversion à cette configuration surfacique a été effectuée essentiellement par Kamal Belkebir, Gabriel Soriano, ainsi que Slimane Ahrab lors de sa thèse.

2.3.3 Validation expérimentale

Procédure de calibration des données

Précédemment, j'ai présenté des résultats de reconstruction d'objets volumiques déposés sur substrat connu. Dans le cas de la reconstruction d'un profil de surface, l'inconnue recherchée par la procédure d'inversion est le profil h , mais la permittivité de la surface y est supposée connue, ce qui n'est pas nécessairement le cas en pratique. J'ai donc mis en place une procédure de calibration sur une surface de référence, à savoir ici un simple substrat plan de silicium de permittivité connue. En ajoutant un polariseur tournant devant la caméra, le microscope tomographique peut être utilisé pour effectuer une mesure d'ellipsométrie [76]. Réalisée sur la surface de référence, elle fournit le coefficient de transmission complexe global des éléments optiques situés entre la surface et la caméra. Appliquée ensuite à la surface inconnue, elle fournit alors sa permittivité.

Une fois le jeu de données tomographique mesuré sur la surface à reconstruire, la procédure de normalisation est la même que dans le cas volumique (cf section 1.4.3 du chapitre 1). Il est toutefois nécessaire que le champ diffracté par la surface reste négligeable dans la direction de la réflexion spéculaire, ce qui sera bien vérifié sur les échantillons étudiés ici.

Comparaison des reconstructions obtenues par différentes méthodes

Les surfaces analysées sont des sillons gravés chimiquement sur un substrat plan d'InP. La direction de gravure [011] du substrat permet d'obtenir des sillons dont les pentes font 45° . Deux cas seront présentés ici : un profil avec deux sillons trapézoïdaux de largeurs 3 et $2 \mu\text{m}$, profondeur 130 nm et séparés de $2 \mu\text{m}$, un autre avec trois sillons triangulaires de largeur 200 nm, profondeur 80 nm, et séparés de 200 nm. Comme l'extension transverse de ces sillons est faible par rapport à la zone d'illumination et au champ de vision sur la caméra, la réflexion spéculaire sera effectivement bien plus intense que le champ diffracté dans sa direction.

Le profil des sillons est caractérisé par microscopie électronique (mesure de référence), microscopie à force atomique (Park Systems XE100, Nanoworld NCH tip), profilomètre interférométrique à balayage en lumière blanche (Zygo NewView 7300, $NA = 0.85$), et enfin par le microscope tomographique. Celui-ci est ici équipé d'un objectif d'ouverture numérique 0.95, et fonctionne toujours à $\lambda = 633 \text{ nm}$. La mesure ellipsométrique a fourni

pour l'InP une permittivité $\varepsilon = 13.6 + 1.5i$, en bon accord avec ce qui peut être trouvé dans la littérature. Pour le jeu de mesures tomographique, 22 angles d'illumination et 313 angles d'observation sont utilisés dans une ouverture numérique restreinte à 0.85. Les deux cas de polarisation d'illumination TE et TM sont mesurés. Ce jeu de mesures est d'une part exploité avec la procédure d'inversion itérative non linéaire de Newton-Kantorovitch (NK), et d'autre part avec une inversion linéaire basée sur l'approximation de Kirchhoff-Fraunhofer (KF) [13,77]. Celle-ci, tout comme l'approximation de Born, est basée sur l'hypothèse de diffusion simple et mise en oeuvre par une simple transformée de Fourier inverse. Elle est directement appliquée sur le jeu de données en polarisation TE. La procédure itérative NK est quant à elle d'abord appliquée aux données TE, avec comme estimée initiale une surface plane. Le résultat obtenu est ensuite utilisé comme estimée initiale pour l'inversion des données TM, ce qui permet d'accroître la résolution. C'est en effet avec une illumination en polarisation TM que le régime de diffusion multiple est le plus fort [71].

Les reconstructions obtenues pour les sillons trapézoïdaux sont présentées Fig. 2.8. Dans ce cas, toutes les méthodes restituent avec un bon accord leur profil, même celles approchées. En effet, les larges dimensions transverses et le fort rapport d'aspect entre celles-ci et la profondeur font que l'hypothèse de diffusion simple est valable. Dans le cas des sillons triangulaires, dont la largeur est bien inférieure à celle de la fonction d'appareil pour $NA = 0.85$, le rapport d'aspect est considérablement diminué et la diffusion multiple ne peut plus être négligée [75]. C'est ce qui est montré Fig. 2.9, puisque ni l'inversion tomographique avec l'approximation KF ni le profilomètre Zygo ne sont capables d'estimer la profondeur et le profil des sillons. En revanche, l'inversion non linéaire sépare nettement les trois sillons et restitue leur profondeur avec une précision comparable à celle du microscope à force atomique. Des artefacts sont néanmoins présents sur les bords des sillons. Les inversions non linéaires sur données synthétiques présentées Fig. 2.10 montrent qu'ils peuvent être diminués en augmentant l'ouverture numérique d'illumination et de détection.

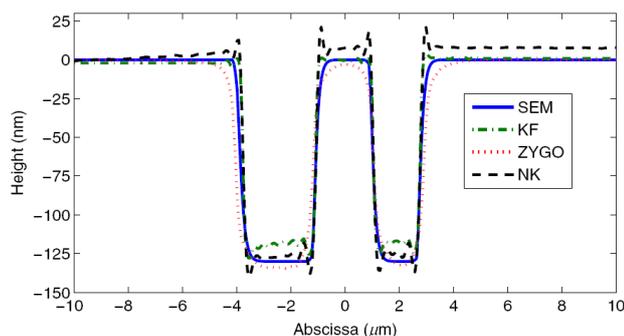


FIGURE 2.8 – Profil de deux sillons trapézoïdaux obtenu par microscopie électronique (ligne continue bleue), profilométrie interférométrique commerciale (ligne pointillée rouge), inversion tomographique linéaire sous approximation de Kirchhoff-Fraunhofer (ligne hachurée verte), et inversion tomographique non linéaire (ligne hachurée noire).

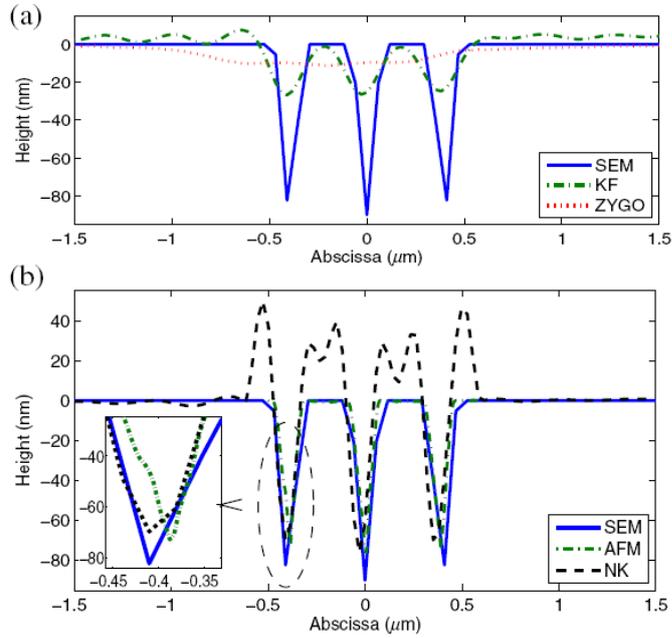


FIGURE 2.9 – Profil de trois sillons triangulaires obtenu par microscopie électronique (ligne continue bleue), montré en (a) et (b). (a) Profil fourni par profilométrie interférométrique commerciale (ligne pointillée rouge) et inversion tomographique linéaire sous approximation de Kirchhoff-Fraunhofer (ligne hachurée verte). (b) Profil fourni par inversion tomographique non linéaire (ligne hachurée noire) et microscopie à force atomique (ligne hachurée verte).

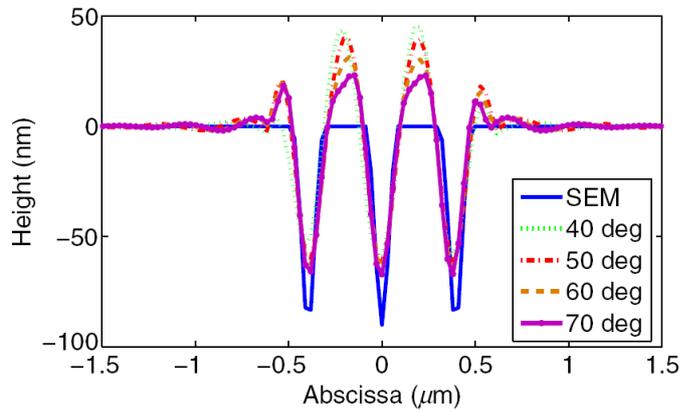


FIGURE 2.10 – Profil de trois sillons triangulaires reconstruit par inversion tomographique non linéaire sur des données synthétiques générées avec différentes ouvertures numériques servant à la fois à l'illumination et à la détection (l'angle limite de l'ouverture numérique est indiqué). Le profil de référence fourni par la microscopie électronique est indiqué en bleu.

2.3.4 Conclusion

Ces travaux apportent une démonstration expérimentale de l'intérêt indéniable de la microscopie tomographique couplée à une procédure d'inversion non linéaire pour des applications en profilométrie [75]. La prise en compte de la diffusion multiple dans le modèle de diffraction surfacique permet d'améliorer de manière notable la résolution et l'estimation du profil des surfaces, en comparaison d'une inversion linéaire classique et plus encore des profilomètres interférométriques commerciaux. Les reconstructions présentées ici pourraient de plus être encore améliorées par l'utilisation d'informations a priori [46,47], comme par exemple le fait que le profil de hauteur est ici forcément négatif par rapport au plan du substrat.

Chapitre 3

Tomographie non linéaire appliquée aux objets 3D

Pour mettre en oeuvre notre approche de tomographie sur des objets 3D, il a été au préalable nécessaire d'étendre la procédure d'inversion au calcul vectoriel de champs diffractés [44]. Du côté du dispositif expérimental, la détection était effectuée directement dans l'espace de Fourier pour les objets 2D. Dans le cas 3D, elle a été déplacée dans l'espace image pour améliorer le rapport signal sur bruit, car le champ diffracté par les objets est ainsi concentré au voisinage de leurs images sur le détecteur. J'ai dû de ce fait adapter la procédure de normalisation des données à cette nouvelle configuration de détection, comme elle a été décrite en section 1.4.3 du chapitre 1.

Ces travaux ont eu pour contexte la thèse de Yi Ruan, que j'ai co-dirigée avec Patrick Chaumet.

3.1 Tomographie 3D appliquée à des mesures scalaires

Même si les calculs de la procédure d'inversion tiennent compte de la polarisation et de la nature vectorielle du champ diffracté, la mesure effectuée par un microscope tomographique dans une configuration classique n'en demeure pas moins scalaire. Dans le cas le plus fréquent où la phase est mesurée par interférométrie avec une voie de référence, faisceau d'illumination et voie de référence possèdent la même polarisation linéaire, et c'est alors la projection du champ diffracté sur cette polarisation qui est mesurée. Si un capteur de front d'onde est utilisé, l'information sur la polarisation du champ diffracté est également perdue.

Pour traiter ces cas scalaires, la procédure d'inversion compare dans le premier terme de la fonction coût décrite en section 1.3.3 du chapitre 1 (Eq. 1.15) non pas les champs vectoriels, mais la mesure scalaire et la projection sur la polarisation d'illumination du champ vectoriel généré par l'estimation de l'objet.

Je présente dans cette section les résultats que j'ai obtenus en inversion scalaire sur des échantillons calibrés qui consistent en des cylindres de résine déposés sur substrat silicium (cf Fig. 3.1), éclairés à $\lambda = 633$ nm. La résine employée a ici une permittivité

relative proche de 2. Les cylindres ont un diamètre et une distance bord à bord notée D , et une hauteur h . Les axes des cylindres sont situés sur les sommets d'un carré de côté $2D$. Différentes valeurs ont été testées pour ces paramètres, D restant inférieur ou égal au micron et h compris entre 100 et 200 nm. Ces échantillons sont ainsi bien adaptés pour tester la résolution transverse selon x et y , et la capacité à restituer une faible hauteur d'échantillon transparent déposé sur substrat réfléchissant. Les polarisations de l'illumination et de la voie de référence sont toutes deux linéaires selon la direction transverse y .

Pour cette étude, le microscope tomographique est équipé d'un objectif d'ouverture numérique $\text{NA} = 0.95$, ce qui fournit ici un critère de Rayleigh à 400 nm.

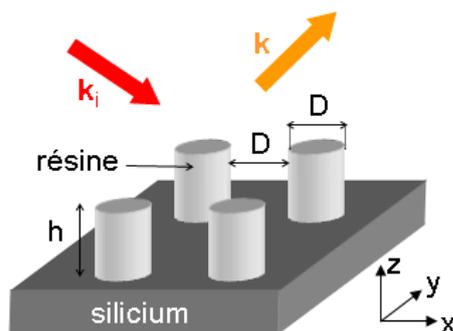


FIGURE 3.1 – Echantillons sub-microniques calibrés de cylindres de résine ($\varepsilon \simeq 2$) déposés sur substrat silicium. Les axes des cylindres sont sur les sommets d'un carré de côté $2D$.

3.1.1 Reconstruction 3D avec mesure par capteur de front d'onde

Dans un premier temps, je me suis intéressé à la possibilité de simplifier le dispositif expérimental en utilisant un capteur de front d'onde pour mesurer le champ diffracté. Ce type d'appareil n'a jamais été utilisé en microscopie tomographique, car il dispose d'un nombre de pixels habituellement bien plus faible que pour une caméra classique. Les capteurs de front d'onde les plus répandus, de type Shack-Hartmann [50], peuvent en effet difficilement disposer d'une matrice de plus de 200×200 pixels, avec une taille de pixel dépassant largement $100 \mu\text{m}$, ce qui est peu adapté à la microscopie.

Plus récemment, un nouveau type de capteur a été commercialisé par la société Phasics, créée en 2003. Basé sur l'interférométrie à décalage multilatéral [14], ce capteur permet de combiner une matrice de 300×400 pixels avec une taille de pixel de $30 \mu\text{m}$. J'ai donc choisi d'explorer son utilisation dans le cadre de l'imagerie tomographique à haute résolution, ce qui a notamment conduit à un brevet déposé avec la société Phasics [78].

Avantages et limitations de cette approche

Les avantages de l'utilisation d'un capteur de front d'onde sont clairs par rapport à une mesure interférométrique classique. La suppression de la voie de référence simplifie

le montage tomographique et le rend plus robuste aux perturbations extérieures, puisque la lumière ne suit qu'un seul trajet optique de la source jusqu'à la caméra. Les capteurs de front d'onde sont en outre achromatiques, et permettent d'utiliser des sources à faible cohérence temporelle. Ainsi, les interférences parasites (bruit de speckle) générées par le montage (notamment les réflexions résiduelles sur les différents éléments optiques) peuvent être considérablement réduites.

Le capteur Phasics permet de détecter une différence de phase entre deux pixels adjacents comprise entre 0.01 et 2.9 radians, pour $\lambda = 633$ nm [14]. Cela correspond à une différence de marche comprise entre 1 nm et 292 nm. Cette plage de mesure est donc très confortable, les contraintes imposées par la borne supérieure étant considérablement relâchées dès que la fonction d'appareil du dispositif est bien échantillonnée sur le capteur grâce à un grandissement adapté. En revanche, l'interférométrie à décalage multilatéral ne peut fonctionner que si le champ diffracté par l'objet est superposé à un fond lumineux présent sur toute l'image (issu du faisceau d'illumination en champ large, réfléchi par le substrat pour les échantillons étudiés ici) [79]. Ceci induit certaines limitations.

Tout d'abord, cette technique fournit en premier lieu le gradient de la phase, et il s'est avéré que les algorithmes d'intégration utilisés ne peuvent restituer la phase de manière fiable que s'il existe un chemin d'intégration restant situé sur le fond lumineux et entourant la zone où se trouvent le ou les objet(s) à imager. Ceci est par exemple incompatible avec des objets présentant une direction d'invariance dans le plan du capteur, car ils séparent le champ de vision en deux zones de fond lumineux non reliées entre elles.

En outre, l'information sur le gradient de phase est extraite à partir de la démodulation d'une figure d'interférence, ce qui nécessite une bonne visibilité des franges. Dans le cas où le fond lumineux est créé par la réflexion spéculaire sur un substrat, son intensité est susceptible de fortement varier au fil des illuminations dans un jeu de données tomographique, du fait des variations d'angles d'incidence et de polarisation, à dominante TE ou TM. Elle va notamment devenir très faible proche de l'angle de Brewster. Comme le temps d'intégration du capteur Phasics ne peut être modifié en cours d'acquisition, la visibilité des franges va donc également varier.

Validation expérimentale

Afin d'effectuer une première démonstration de microscopie tomographique avec un capteur de front d'onde, j'ai restreint les angles d'illumination à une valeur maximale d'environ 30° pour limiter la diminution de visibilité des franges. Je présente ici les résultats obtenus sur un échantillon avec des cylindres de résine de diamètre $D = 1$ μm et hauteur $h = 120$ nm (cf Fig. 3.1). Six angles d'illumination ont été utilisés dans le plan d'incidence xOz en polarisation TE (polarisation perpendiculaire au plan d'incidence), et six autres dans le plan d'incidence yOz en polarisation TM (polarisation incluse dans le plan d'incidence). Les mesures ont été effectuées avec le capteur Phasics mais aussi en interférométrie à décalage de phase, avec une voie de référence, à titre comparatif. Les deux types de mesure fournissent des champs diffractés en module et en phase en bon accord sur l'ensemble des illuminations. En guise d'exemple, la Fig. 3.2 les compare dans

l'espace de Fourier pour un angle d'incidence de 32° en polarisation TM.

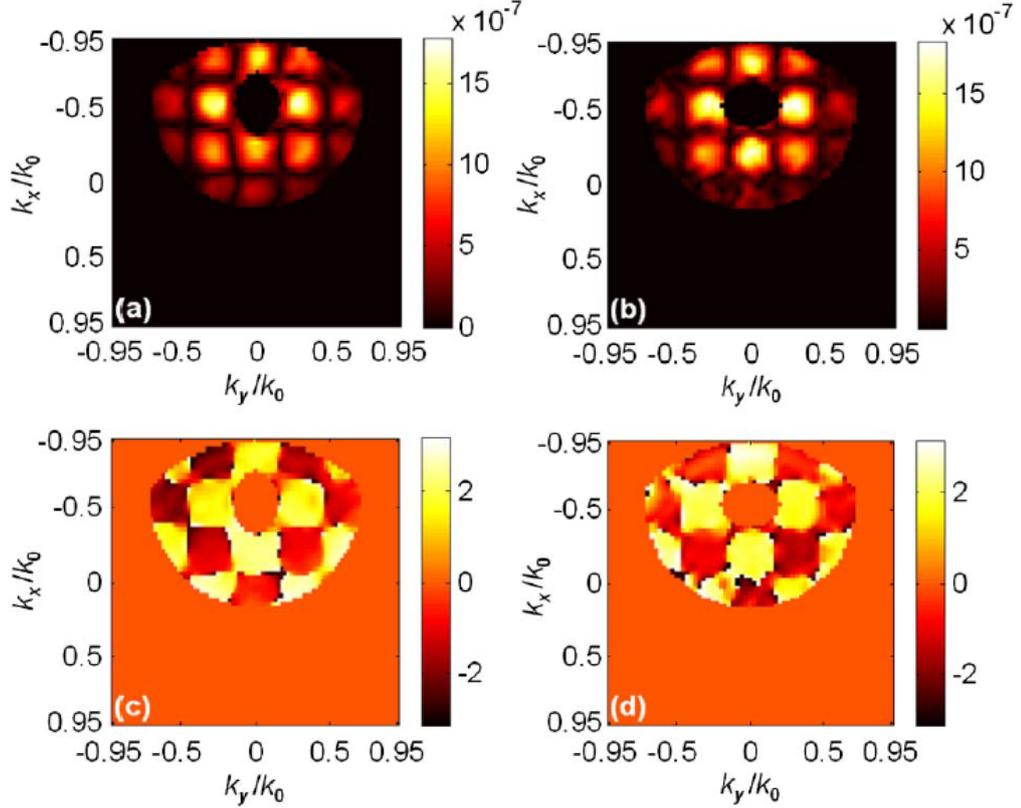


FIGURE 3.2 – Champ diffracté par 4 cylindres de résine déposés sur substrat silicium, visualisé dans l'espace de Fourier. Les cylindres ont un diamètre de $1 \mu\text{m}$, une hauteur de 120 nm , et sont illuminés en polarisation TM avec un angle d'incidence de 32° . (a), (c) Module et phase mesurés avec le capteur de front d'onde. (b), (d) Module et phase mesurés en interférométrie à décalage de phase. k_x et k_y sont les fréquences spatiales.

Je m'attache à présent à démontrer l'apport de notre procédure d'inversion non linéaire par rapport à une inversion linéaire classique par TF^{-1} 3D [59]. La Fig. 3.3 présente les reconstructions 3D de l'objet dans trois cas : l'inversion linéaire classique (discrétisation de 53 nm), la procédure d'inversion non linéaire pour un domaine d'investigation de hauteur $1.6 \mu\text{m}$ et discrétisé avec un maillage de 200 nm , et pour un domaine de hauteur $0.4 \mu\text{m}$ et discrétisé avec un maillage de 50 nm .

Il apparaît clairement que l'inversion linéaire classique conduit à une reconstruction très dégradée de l'objet, spécialement selon l'axe z . En effet, cette technique possède une fonction d'appareil nettement déformée en configuration en réflexion (cf Fig. 1.6), et ne prend pas en compte la présence du substrat réfléchissant, ce qui la conduit à reproduire une image reflet de l'objet de manière symétrique au substrat. En outre, elle

est très sensible aux points de mesure manquants dans l'espace de Fourier, vu que le jeu de mesures ne contient que 12 angles d'illumination. C'est nettement moins que les plusieurs centaines d'illuminations habituellement mises en jeu pour ce type d'inversion linéaire [5–7, 10, 23, 29].

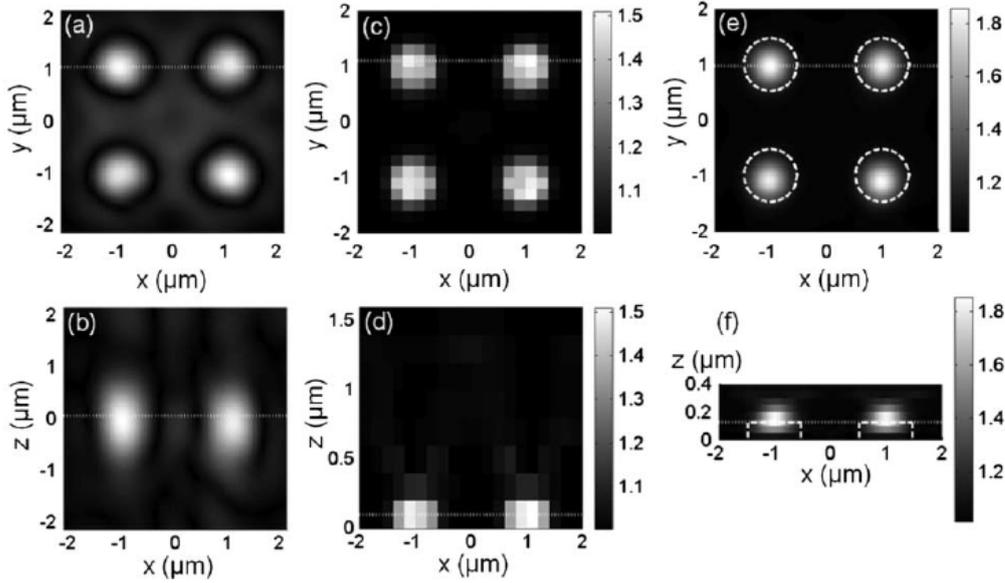


FIGURE 3.3 – Comparaison du module de la TF^{-1} 3D du jeu de données (maillage de 53 nm) [(a), (b)] et de la carte de permittivité restituée par la procédure d'inversion non linéaire [(c) à (f)]. (c), (d) La hauteur du domaine d'investigation est de $1.6 \mu\text{m}$ et le maillage de 200 nm. (e), (f) Zoom sur l'échantillon avec une hauteur de $0.4 \mu\text{m}$ et un maillage de 50 nm (la ligne blanche hachurée montre la géométrie réelle de l'objet). Les figures de la ligne supérieure présentent des coupes transverses à $z = 53$ (a), 100 (e), et 125 nm (e), celles de la ligne inférieure des coupes axiales à $y = 1 \mu\text{m}$. Les coupes sont effectuées selon les lignes pointillées blanches.

Dans le cas de la procédure d'inversion non linéaire, il est nécessaire de choisir la taille du domaine d'investigation où sera reconstruit l'objet. La face inférieure du domaine est ici prise sur l'interface air-substrat. Les dimensions transverses du domaine peuvent être facilement estimées à partir de l'image de l'objet sur le capteur. Pour sa hauteur, une première estimation peut être obtenue à partir de la TF^{-1} 3D, ou à partir de la profondeur de champ de l'objectif et du defocus induit sur l'image en déplaçant l'objet le long de l'axe optique. Un premier domaine suffisamment large est ainsi obtenu, auquel une inversion peu discrétisée est appliquée. À partir du résultat obtenu, le domaine d'investigation est diminué pour s'adapter à la taille de l'objet, et un maillage plus fin est utilisé pour une seconde inversion plus résolue. Ces deux cas sont illustrés Fig. 3.3. On constate que les dimensions de l'objet sont restituées de manière précise même avec le maillage peu résolu. La permittivité est quant à elle convenablement estimée une fois le maillage fin employé. Avec cette procédure d'inversion, seules quatre itérations ont été nécessaires

pour converger sur la reconstruction. Des résultats similaires ont été obtenus aussi bien avec le capteur de front d'onde (cas illustré ici) qu'avec l'interférométrie à décalage de phase.

Ces premiers résultats montrent donc que la procédure d'inversion non linéaire a été étendue avec succès au cas 3D [59]. Même dans ce cas, elle permet d'utiliser un faible nombre d'angles d'illumination, et sa supériorité par rapport à l'approche linéaire classique est démontrée. Par ailleurs, la possibilité de simplifier le microscope tomographique avec l'utilisation d'un capteur de front d'onde a été mise en évidence.

3.1.2 Validation sur des objets à la limite du critère de Rayleigh

Dans un deuxième temps, j'ai appliqué le dispositif à des échantillons aux dimensions transverses plus petites, afin de mieux quantifier la résolution sur objet 3D de notre approche. Je présente ici les résultats obtenus sur des cylindres de diamètre $D = 200$ nm et hauteur $h = 150$ nm [61]. Ils présentent donc un espacement centre à centre de 400 nm à la limite du critère de Rayleigh de l'objectif.

Les mesures utilisent 20 angles d'illumination dans les plans d'incidence xOz et yOz , 10 en polarisation TE et 10 en polarisation TM, pour un angle maximum de 55° . Pour pouvoir effectuer les mesures dans de bonnes conditions à ces forts angles, l'acquisition a cette fois été effectuée uniquement en interférométrie à décalage de phase.

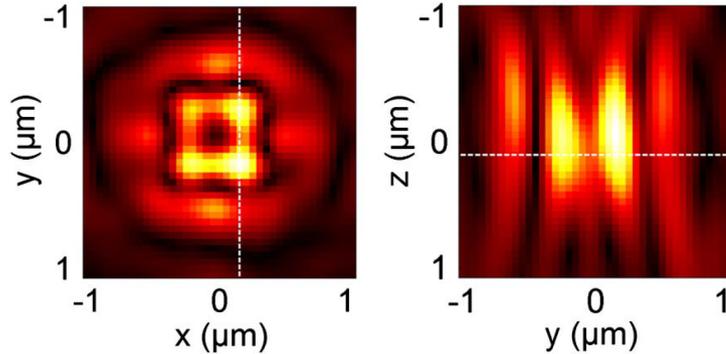


FIGURE 3.4 – Coupes transverse (gauche) et axiale (droite) du module de la TF^{-1} 3D du jeu de données pour des cylindres de diamètre 200 nm et hauteur 150 nm. Les coupes sont faites selon les lignes pointillées blanches.

Les figures 3.4, 3.5 et 3.6 présentent les reconstructions obtenues respectivement avec l'inversion linéaire par TF^{-1} 3D, et avec l'inversion non linéaire dans un domaine d'investigation large, puis dans un plus restreint. Pour les mêmes raisons que dans la section précédente, la TF^{-1} 3D fournit une reconstruction fortement dégradée (discrétisation de 53 nm), cette fois plus encore dans le plan transverse, vu que l'échantillon est à la limite du critère de Rayleigh : les quatre cylindres peuvent à peine être distingués. En revanche, même dans ces conditions l'inversion non linéaire continue à résoudre parfaitement les

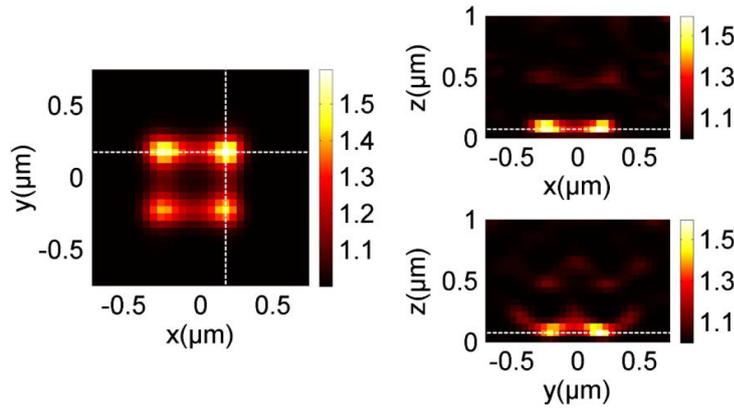


FIGURE 3.5 – Coupes transverse (gauche) et axiales (haut et bas) de la carte de permittivité reconstruite par l’inversion non linéaire pour des cylindres de diamètre 200 nm et hauteur 150 nm, dans un domaine d’investigation assez large. Les coupes sont faites selon les lignes pointillées blanches.

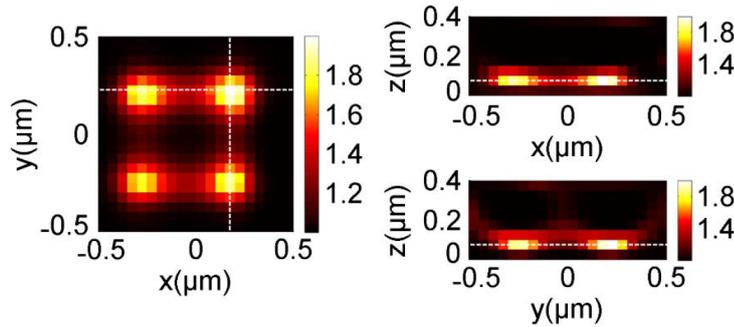


FIGURE 3.6 – Même chose qu’en Fig. 3.5 avec un domaine d’investigation plus restreint.

quatre cylindres, et à fournir une bonne estimation de leurs dimensions et permittivité. La même discrétisation de 50 nm est cette fois utilisée aussi bien pour le domaine large que pour le plus restreint. L’amélioration de la reconstruction dans ce dernier cas provient alors de la diminution du nombre d’inconnues par rapport à la quantité de données disponibles dans les mesures.

3.1.3 Influence de la présence du substrat sur la procédure d’inversion non linéaire

L’amélioration spectaculaire de la reconstruction avec l’inversion non linéaire comparée au cas linéaire classique possède plusieurs origines. La procédure non linéaire effectue un calcul rigoureux du champ diffracté : elle prend en compte la diffusion multiple ainsi que l’environnement particulier de l’objet, ici déposé sur un substrat réfléchissant, grâce aux équations 1.13 et 1.14. Elle assume de plus que la permittivité à restituer est un

nombre réel positif, et contraint la reconstruction à se trouver dans un domaine d'investigation borné choisi. Le prix à payer pour cette modélisation rigoureuse concerne l'effort numérique de calcul, qui est particulièrement important pour obtenir l'opérateur $\underline{\underline{A}}$ et résoudre l'Eq. 1.13 à chaque itération. Pour illustrer ce point, les reconstructions des figures 3.5 et 3.6 ont été obtenues après 10 itérations, respectivement en 90 min avec 10 GB de mémoire RAM, et 25 min avec 5 GB de mémoire RAM, sur un ordinateur équipé d'un processeur standard.

Il est ainsi utile d'effectuer des inversions non linéaires avec des calculs approximatifs du champ diffracté, à la fois pour mieux cerner l'origine de l'amélioration des reconstructions et accélérer la procédure. Je me concentre ici sur une prise en compte plus ou moins partielle de la présence du substrat réfléchissant dans l'inversion [61]. Il intervient dans les Eqs. 1.13 et 1.14 pour les calculs de \mathbf{E}_{ref} et des opérateurs $\underline{\underline{A}}$ et $\underline{\underline{B}}$. Pour comparer les différents cas considérés, je choisis de présenter ci-après les coupes des reconstructions passant à chaque fois par leur pixel de permittivité maximale. Les différentes inversions sont strictement appliquées aux mêmes données, qui ont été au préalable normalisées selon la procédure décrite section 1.4.3.

Inversion négligeant totalement la présence du substrat

L'inversion non linéaire est appliquée ici aux données en négligeant totalement la présence du substrat, comme si l'objet était environné par de l'air. Il est instructif de garder en tête que le champ diffracté par un objet situé au dessus d'un miroir et éclairé par une onde plane peut être approximé par le champ diffracté par deux objets en milieu homogène, symétriques par rapport au plan où se trouverait le miroir, et éclairés par deux ondes planes symétriques cohérentes. Ainsi, le domaine d'investigation est ici choisi symétrique par rapport au plan où se trouve le substrat.

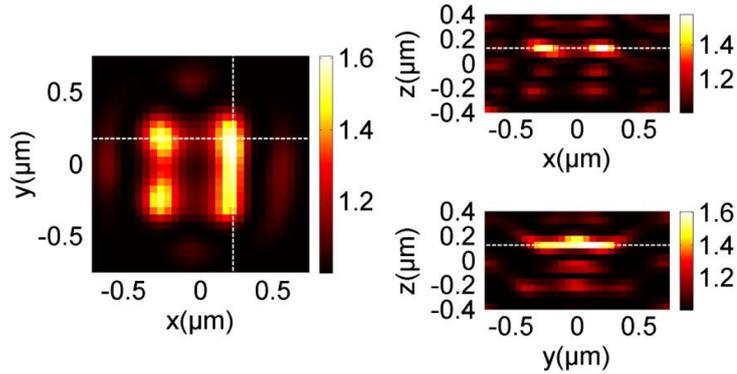


FIGURE 3.7 – Carte de permittivité 3D reconstruite par l'inversion non linéaire si la présence du substrat est totalement négligée, avec un domaine d'investigation symétrique par rapport au plan du substrat ($z = 0$).

La reconstruction, présentée Fig. 3.7, est nettement dégradée par rapport au cas sans approximation des Figs. 3.5 et 3.6, mais reste meilleure que celle fournie par la TF^{-1} 3D.

Des artefacts polluent cette reconstruction, mais on distingue aussi l'image miroir des cylindres, toutefois de bien plus faible permittivité vu que le substrat n'agit pas comme un miroir parfait. Si le domaine d'investigation est seulement pris au dessus du substrat, la reconstruction, non présentée ici, est encore plus détériorée.

Inversion prenant en compte le substrat pour \mathbf{E}_{ref} uniquement

Une première amélioration consiste à considérer la présence du substrat pour le calcul de \mathbf{E}_{ref} . Cela signifie que l'objet est éclairé par la superposition cohérente de l'onde plane incidente et de sa réflexion spéculaire sur le substrat. Ce calcul est fait sans aucun effort dans la procédure d'inversion. La reconstruction, présentée Fig. 3.8, est améliorée par rapport au cas précédent : le nombre d'artefacts a diminué et les quatre cylindres sont maintenant presque résolus. Toutefois, leur séparation centre à centre peut être estimée à 500 nm sur la coupe transverse, au lieu de 400 nm en réalité. Il apparaît de plus sur la coupe axiale du bas que la séparation des cylindres n'est pas parfaite. La fidélité de cette reconstruction n'est donc toujours pas satisfaisante. Par ailleurs, un domaine d'investigation placé uniquement au dessus du substrat conduit à nouveau à une reconstruction davantage dégradée.

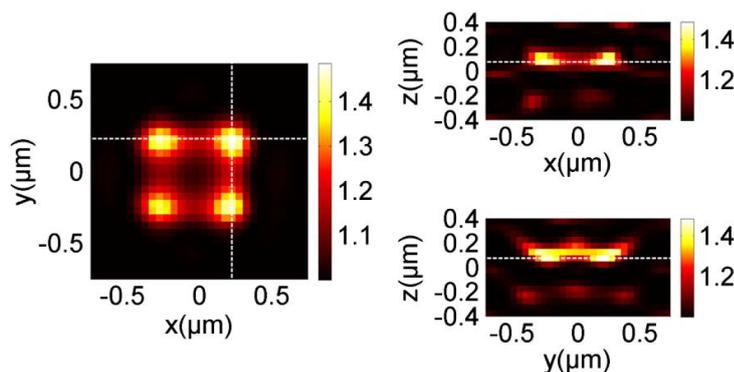


FIGURE 3.8 – Même chose qu'en Fig. 3.7 quand le substrat est pris en compte pour le calcul de \mathbf{E}_{ref} uniquement.

Inversion prenant en compte le substrat pour \mathbf{E}_{ref} et $\underline{\underline{B}}$

L'amélioration suivante est la prise en compte du substrat pour le calcul de l'opérateur $\underline{\underline{B}}$. Ce calcul se fait rapidement puisqu'il existe une expression analytique pour cet opérateur en champ lointain [40]. Le domaine d'investigation peut alors à nouveau être placé au dessus du substrat. La seule approximation restante concerne l'opérateur en champ proche $\underline{\underline{A}}$, qui est calculé en espace libre.

Les reconstructions en domaines large et plus restreint, non présentées ici, sont alors quasiment identiques à celles des Figs. 3.5 et 3.6 [61]. La différence principale est ici une légère surestimation de la permittivité, comportement déjà observé sur des données

synthétiques par le passé [40,43,80]. Ceci montre donc que pour ce type d'objet, l'influence du substrat sur l'estimation du champ total à l'intérieur de l'objet peut être négligée en première approximation. En espace libre, l'opérateur \underline{A} prend alors une forme analytique qui permet d'accélérer la résolution de l'Eq. 1.13 de manière significative.

3.1.4 Conclusion

Notre procédure d'inversion non linéaire permet donc de reconstruire de manière quantitative et précise des objets 3D transparents déposés sur substrat réfléchissant à partir de mesures scalaires et d'un nombre limité d'illuminations (au maximum 20 ici), et ce jusqu'à la limite de Rayleigh. La supériorité de cette approche en comparaison d'une inversion linéaire classique a ainsi été démontrée [59,61]. Notamment, la prise en compte de la présence du substrat, impossible pour cette dernière, s'avère primordiale pour obtenir des reconstructions de qualité [61].

Dans la partie suivante, je montre comment parvenir à dépasser le critère de Rayleigh avec l'inversion non linéaire sur ce type d'objets 3D.

3.2 Tomographie 3D vectorielle

3.2.1 Limites de l'approche scalaire

Comme je viens de le présenter, la configuration scalaire classique de la microscopie tomographique consiste à utiliser une polarisation linéaire unique pour éclairer l'objet, et à détecter un champ diffracté scalaire. Cette approche, couplée à la procédure d'inversion non linéaire, s'est avérée suffisante pour résoudre les cylindres de résine décrits précédemment jusqu'à la limite de Rayleigh. En revanche, comme le montre la Fig. 3.9, elle ne permet plus de les séparer en dessous du critère de Rayleigh, lorsqu'ils ont pour diamètre $D = 150$ nm, même si elle continue à faire beaucoup mieux que l'inversion linéaire classique, incapable de résoudre aucun des cylindres. Ici, les mêmes angles d'illumination que pour le cas $D = 200$ nm sont utilisés, et les polarisations d'illumination et de détection sont à nouveau selon l'axe y (configuration notée $\hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$).

Selon la théorie linéaire classique en microscopie tomographique, la meilleure résolution accessible doit pouvoir atteindre une distance de séparation centre à centre entre deux objets pratiquement deux fois meilleure que la critère de Rayleigh [33]. En pratique, seules des résolutions légèrement meilleures que le critère de Rayleigh ont au mieux été reportées sur des objets 3D [7,10,26], de l'ordre de $\lambda_m/2$, où λ_m est la longueur d'onde dans le milieu environnant l'objet. Ceci peut donc susciter des questions sur la validité de l'hypothèse scalaire de cette théorie appliquée aux objets 3D.

3.2.2 Mesure tomographique vectorielle résolue en polarisation

Pour sortir totalement d'une configuration de mesure scalaire, le microscope tomographique doit à la fois pouvoir jouer sur la polarisation de l'illumination et celle du champ diffracté détecté. Ceci est rendu possible par la présence de lames demi-onde sur

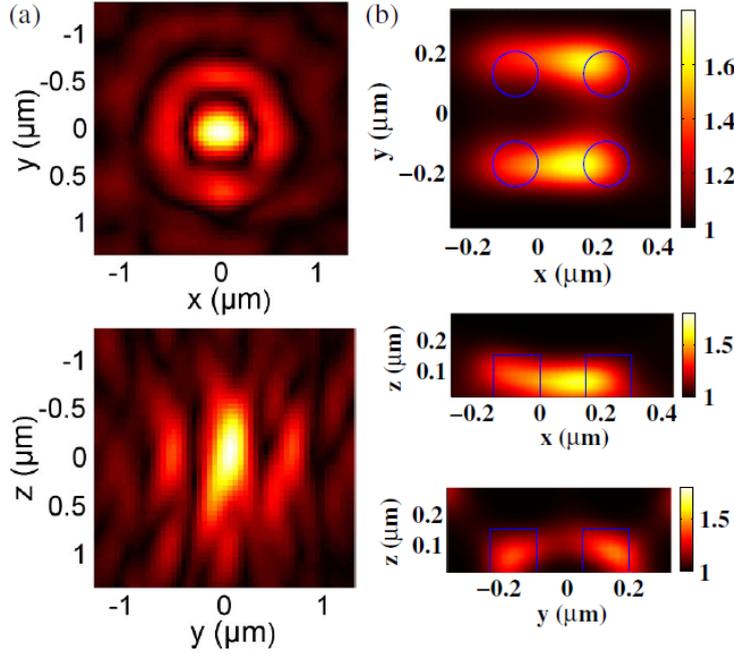


FIGURE 3.9 – (a) Module de la TF^{-1} 3D du jeu de données scalaire pour des cylindres de diamètre $D = 150$ nm, haut : coupe transverse, bas : coupe axiale. (b) Carte de permittivité reconstruite par l'inversion non linéaire, haut : coupe transverse, bas : coupes axiales. Polarisation d'illumination et de détection sont selon l'axe y : configuration $\hat{y}\hat{y}$.

les voies d'illumination et de référence (cf Fig. 1.7). Une mesure résolue en polarisation va alors consister à utiliser deux bases de polarisations linéaires pour ces deux voies, chaque base comportant deux états. En effectuant les quatre combinaisons possibles entre les états de ces deux bases, on obtient un jeu de mesures à partir duquel il est possible de générer le champ total vectoriel diffracté par l'objet, et ce pour toute polarisation linéaire d'illumination. Grâce au fort grandissement du microscope (proche de 300), les angles de propagation du champ diffracté devant la caméra sont si faibles (bien inférieurs à 1°) qu'il est possible de négliger toute composante de polarisation selon l'axe optique z .

Les deux bases de polarisation choisies sont les états verticaux et horizontaux pour la voie d'illumination, et les deux états diagonaux à $+45^\circ$ ou -45° pour la voie de référence. Les deux bases ne sont pas prises identiques, car alors les mesures en polarisations croisées supprimeraient la réflexion spéculaire et empêcheraient d'appliquer la procédure de normalisation au jeu de données.

Apport de la polarisation d'illumination

Le jeu de mesures vectoriel consiste donc à répéter les quatre combinaisons de polarisations sur les mêmes angles d'illumination que le cas scalaire. La Fig. 3.10 compare ses résultats [(d)-(f)] à ceux d'un jeu scalaire qui est la somme des données obtenues en

polarisation $\hat{x}\hat{x}$ et $\hat{y}\hat{y}$ [(a)-(c)]. Dans les deux cas, les quatre cylindres sont résolus et leur hauteur évaluée avec précision, mais l'estimation de la permittivité et la résolution sont meilleures dans le cas du jeu vectoriel. Si la résolution est définie comme la largeur à mi-hauteur des pics de permittivité reconstruits, elle peut être estimée à environ $\lambda/4$ [(c), (f)] [58].

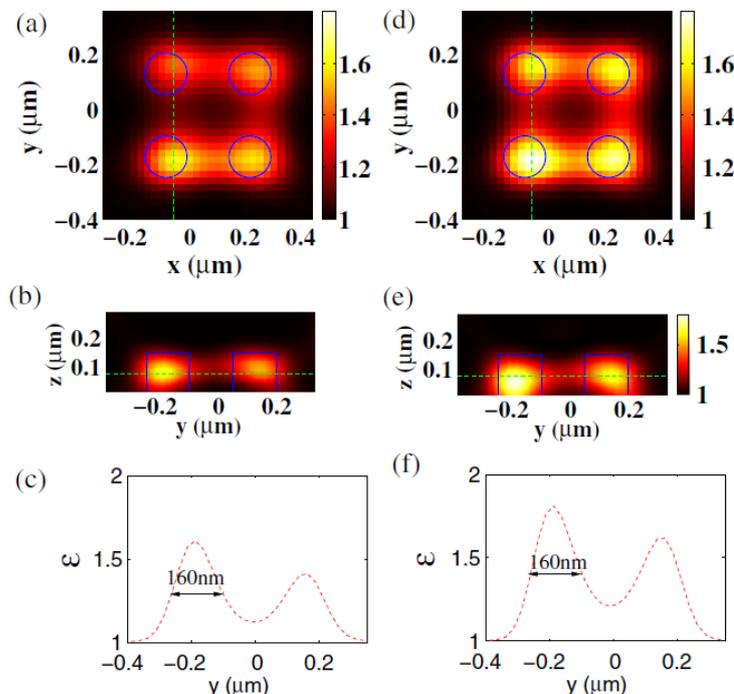


FIGURE 3.10 – Carte de permittivité 3D reconstruite par l’inversion non linéaire à partir d’un jeu de données combinant les polarisations $\hat{x}\hat{x}$ et $\hat{y}\hat{y}$ [(a)-(c)] et d’un jeu de mesures vectoriel [(d)-(f)]. (a),(d) coupes xy ; (b),(e) coupes yz prises le long des lignes hachurées de (a),(d); (c),(f) coupes de permittivité le long des lignes hachurées de (b),(e).

Le rôle de la polarisation d’illumination dans ces reconstructions peut être mieux cerné en comparant les champs diffractés dans l’espace de Fourier à fort angle d’illumination pour les deux cas possibles : polarisation TE ou TM dans le plan d’incidence. La Fig. 3.11 compare ainsi les modules du champ diffracté théorique et expérimental pour un angle d’illumination de 50° dans le plan d’incidence xOz . Les cas TE et TM correspondent alors à des polarisations initiales respectivement selon \hat{y} et \hat{x} . Il apparaît que le champ diffracté en bord d’ouverture numérique à l’opposé de la réflexion spéculaire est deux fois plus intense en polarisation TM qu’en TE. Or d’après l’Eq. 1.4 c’est à cet emplacement que le champ diffracté est porteur des fréquences spatiales les plus élevées pour l’objet. A bruit de mesure équivalent, la polarisation TM permet donc d’extraire plus facilement ces hautes fréquences spatiales. C’est ce qui explique la meilleure résolution obtenue selon la direction \hat{y} pour l’inversion scalaire $\hat{y}\hat{y}$ en Fig. 3.9(b).

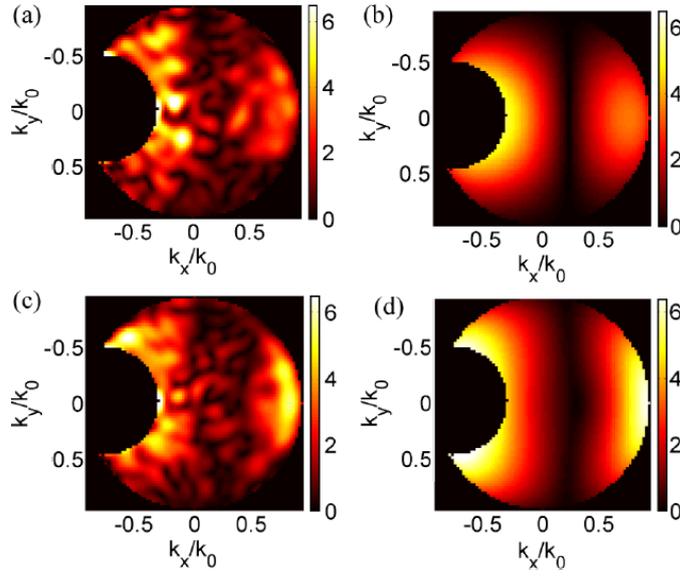


FIGURE 3.11 – Module du champ diffracté expérimental [(a),(c)] et théorique [(b),(d)] dans l'espace de Fourier lorsque l'objet est illuminé dans le plan xOz avec un angle de 50° . Le champ est normalisé par l'amplitude incidente multipliée par 10^8 . Le disque noir à gauche masque la zone angulaire non exploitable dominée par la réflexion spéculaire. (a),(b) Illumination polarisée TE ; (c),(d) Illumination polarisée TM. Le champ diffracté en bord d'ouverture numérique à droite, qui code les fréquences spatiales transverses les plus élevées de l'objet, est deux fois plus intense dans le cas TM comparé au cas TE.

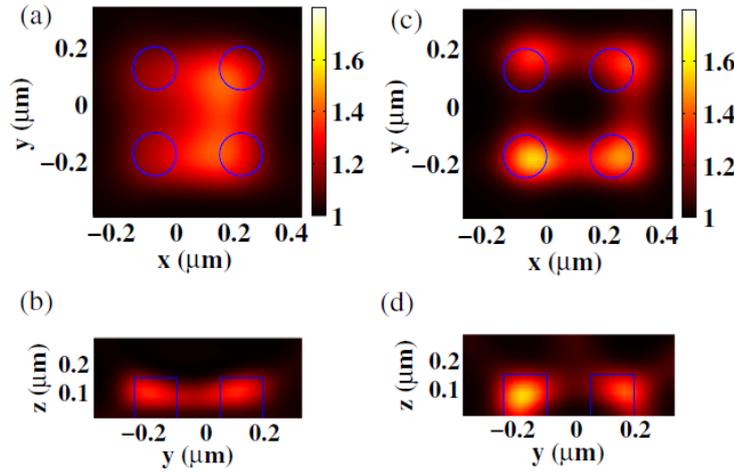


FIGURE 3.12 – Carte de permittivité 3D reconstruite par l'inversion non linéaire à partir du jeu de mesures vectoriel en ne considérant que les polarisations d'illumination TE [(a),(b)] ou TM [(c),(d)].

Ceci est confirmé par les résultats de la Fig. 3.12, qui présente les cartes de permittivité reconstruites avec le jeu de mesures vectoriel en ne considérant que les polarisations d'illumination TE ou TM. La reconstruction dans le cas TM demeure très bien résolue, alors que celle du cas TE est totalement brouillée.

Apport de la mesure vectorielle du champ diffracté

Sur la Fig. 3.10, une première illustration de l'apport de la mesure vectorielle du champ diffracté par rapport au jeu de données combinant les deux configurations scalaires $\hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}}$ et $\hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$ est présentée. La super-résolution au delà du critère de Rayleigh y est en outre démontrée essentiellement selon les directions $\hat{\mathbf{x}}$ et $\hat{\mathbf{y}}$. Un échantillon plus ambitieux à reconstruire est présenté Fig. 3.13(a). Il s'agit d'une étoile de résine à 12 branches déposée sur substrat silicium. Chaque branche fait 140 nm de haut, 100 nm de large et 300 nm de long, elles sont séparées bord à bord de 100 nm au centre de l'étoile, pour 300 nm à l'extérieur. Cet objet présente donc une structuration à l'échelle sub-Rayleigh qui est isotrope dans le plan transverse. La mesure se fait toujours à $\lambda = 633$ nm, mais comporte cette fois huit angles d'illumination à 55° , répartis régulièrement selon un cône avec un pas azimutal de 45° . Les plans d'incidence sont ainsi les plans xOz , yOz et leurs deux plans bissecteurs diagonaux.

Pour étudier cet objet, la procédure de mesure a été améliorée pour diminuer le bruit de mesure généré par le faisceau d'illumination et sa réflexion spéculaire lors du trajet dans le microscope. Chaque mesure du champ diffracté par l'objet est complétée par une mesure du champ de la réflexion spéculaire à vide, sur substrat nu, et la différence des deux champs complexes permet d'obtenir le champ diffracté dû uniquement à la présence de l'objet. C'est ce champ différentiel qui est alors utilisé dans l'inversion non linéaire. En faisant la somme des intensités du champ différentiel pour tous les angles d'illumination et toutes les combinaisons de polarisation, on obtient l'équivalent d'une image de microscopie de champ sombre. Elle est présentée Fig. 3.13(b), et ne permet de distinguer aucune des branches de l'étoile. Le module de la TF^{-1} 3D du jeu de mesures, non présenté ici, ne permet pas davantage de les séparer.

L'inversion non linéaire du jeu de mesures vectoriel, montrée Fig. 3.13(c), permet quant à elle de résoudre toutes les branches jusqu'à environ la moitié de leur longueur [58]. En comparaison, l'inversion du jeu en polarisations $\hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}} + \hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$ induit une perte notable de résolution sur les branches diagonales (Fig. 3.13(d)). Ceci est encore plus visible sur la coupe de permittivité de la Fig. 3.13(e) : un pic apparaît pour chaque branche dans le cas vectoriel, tandis que les branches diagonales ne sont plus résolues dans le cas $\hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}} + \hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$.

Pour ces deux jeux de mesures les polarisations d'illumination sont les mêmes, mais dans un cas toutes les composantes du champ diffracté sont mesurées, tandis que dans l'autre seule sa projection sur la polarisation d'illumination est détectée. Ceci montre donc bien l'apport d'une mesure vectorielle du champ diffracté, qui contient davantage d'information sur l'objet et permet ici d'atteindre une résolution isotrope dans le plan transverse, avec des objets séparés bord à bord d'environ $\lambda/4$.

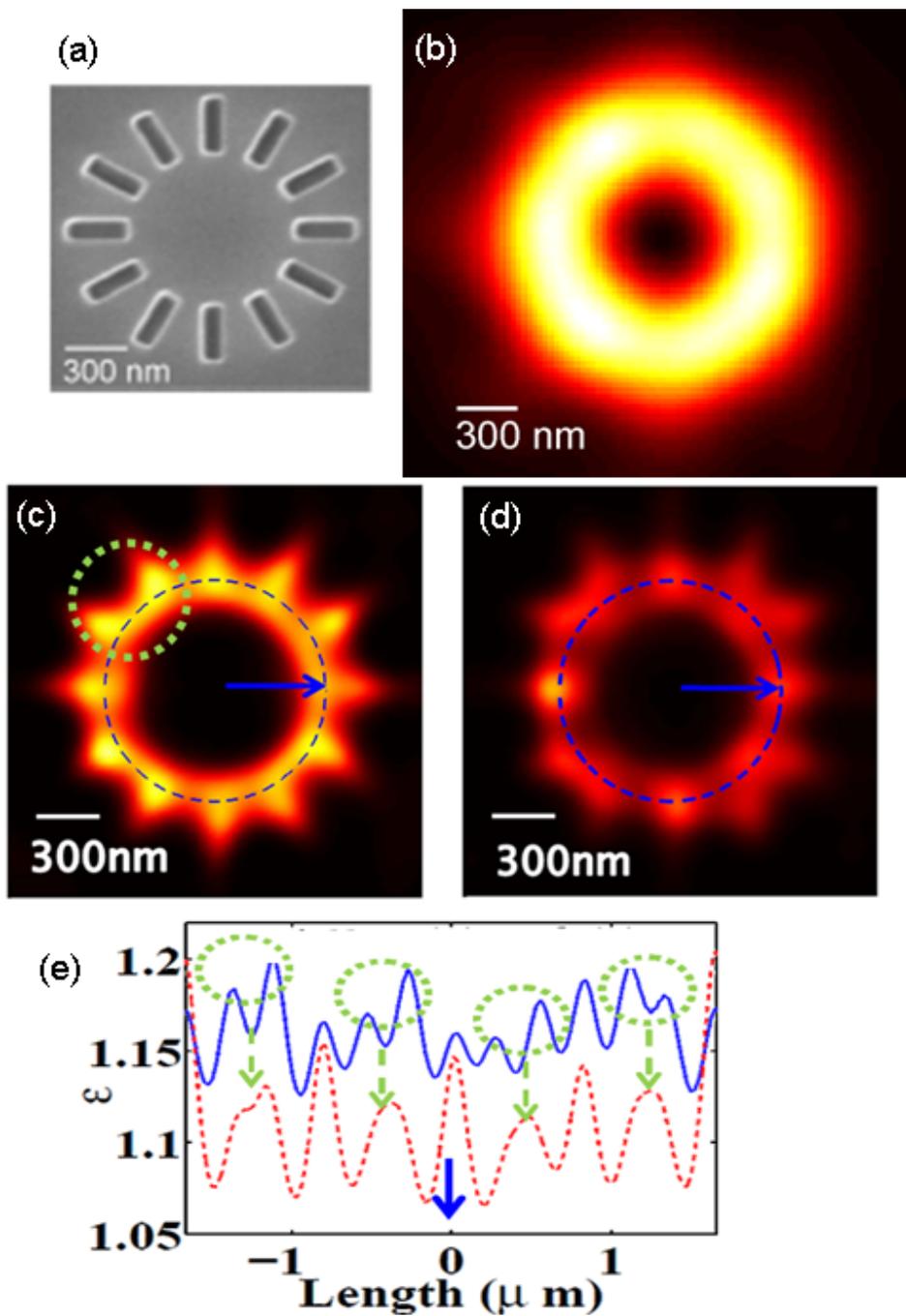


FIGURE 3.13 – (a) Image en microscopie électronique d'une étoile de résine à 12 branches. (b) Image en microscopie de champ sombre. Permittivité moyennée sur la hauteur de l'objet reconstruite par l'inversion non linéaire avec les jeux de mesures vectoriel (c) et $\hat{x}\hat{x} + \hat{y}\hat{y}$ (d). (e) Coupe de permittivité le long des cercles pointillés bleu de (c) (courbe bleue) et (d) (courbe hachurée rouge); l'origine des abscisses est prise sur la flèche bleue; les zones entourées en hachuré vert correspondent aux branches diagonales.

3.2.3 Conclusion

Avec la microscopie tomographique vectorielle, j'ai donc développé le premier microscope optique capable d'exploiter l'ensemble de l'information portée par le processus de diffraction : intensité, phase et état de polarisation du champ diffracté, ce pour tout angle d'incidence (à l'intérieur de l'ouverture numérique de l'objectif) et tout état de polarisation linéaire du faisceau d'illumination. Les cartes de permittivité obtenues présentent une résolution isotrope dans le plan transverse d'environ $\lambda/4$, résultat inégalé par toute autre technique de microscopie optique sans marquage en champ lointain. Ces travaux mettent donc en évidence l'apport décisif de la prise en compte de l'état de polarisation du champ diffracté pour atteindre ce niveau de super-résolution [58].

3.3 Tomographie assistée par miroir

3.3.1 Principe

Comme indiqué en section 1.4.1 du chapitre 1, si l'on se place dans le cadre de l'approximation de Born, utiliser des angles d'illumination et de détection dans toutes les directions possibles, sous 4π stéradians, permet d'obtenir une résolution parfaitement isotrope pour reconstruire l'objet : c'est la configuration dite complète. Elle est en revanche difficilement réalisable en pratique, et la quasi totalité des microscopes tomographiques adoptent une configuration en transmission qui doit permettre de faire mieux que le critère de Rayleigh en résolution transverse, mais dont la résolution axiale est nettement moins bonne, et ce d'au moins un facteur 3 ([21], p. 491). Peu de travaux ont cherché à pallier à ce défaut, mais on peut néanmoins citer une approche en transmission combinant variation de l'angle d'illumination et rotation de l'échantillon autour d'un axe transverse [49].

Si l'on suppose une ouverture numérique suffisamment proche de 1, la configuration complète peut être approximée en la décomposant successivement en une mesure en transmission et deux mesures en réflexion, selon les deux orientations possibles de l'axe optique. On peut s'en convaincre en considérant le support des fréquences spatiales accessibles dans l'espace de Fourier pour chaque configuration. Pour combiner ces différentes étapes et se rapprocher autant que possible de la configuration complète, l'approche que j'ai initiée consiste à placer l'objet à reconstruire au voisinage d'un miroir, et à utiliser une configuration tomographique en réflexion [56]. Le miroir est perpendiculaire à l'axe optique du microscope, et l'échantillon est situé entre ce miroir et l'objectif (cf Fig. 3.14). Le champ diffracté est alors la superposition cohérente des champs qui seraient obtenus en transmission et de part et d'autre de l'objet en réflexion. Même si l'approximation de Born est valable, il est donc impossible de reconstruire l'objet par une simple TF^{-1} 3D. Utiliser la procédure d'inversion non linéaire prenant explicitement en compte la présence du miroir permet alors de s'affranchir de cette difficulté.

Dans cette configuration assistée par miroir, il est nécessaire de ne pas placer l'objet trop près du miroir. En effet, comme mentionné précédemment dans la section 3.1.3, le champ diffracté par l'objet peut être approximé par celui généré sans miroir par l'objet

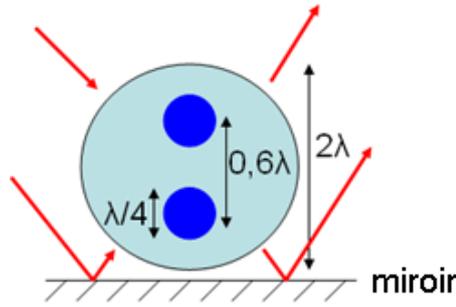


FIGURE 3.14 – Configuration de tomographie assistée par miroir. L’objet synthétique utilisé pour les inversions est une sphère diélectrique ($\varepsilon = 1.01$) de diamètre 2λ comportant deux inclusions absorbantes ($\varepsilon = 1.01 + 0.02i$) de diamètre $\lambda/4$.

et son reflet symétrique par rapport au plan du miroir [56]. La reconstruction va donc tendre à également reconstruire cet objet reflet convolué avec la fonction d’appareil. Son interférence avec l’objet réel reconstruit devient cependant totalement négligeable dès que l’objet est placé à environ une longueur d’onde du miroir. En outre, proche de la surface du miroir, l’intensité résultant de l’interférence entre l’onde incidente et sa réflexion spéculaire est en moyenne faible sur l’ensemble des angles d’illumination, et donc peu propice à y éclairer efficacement l’objet.

3.3.2 Validation sur données synthétiques

Des inversions effectuées sur données synthétiques mettent en évidence l’intérêt de la tomographie assistée par miroir (cf Fig. 3.15). L’objet test est celui présenté Fig. 3.14 : il s’agit d’une sphère diélectrique de permittivité $\varepsilon = 1.01$ contenant deux inclusions sphériques absorbantes de permittivité $\varepsilon = 1.01 + 0.02i$. Le champ diffracté simulé est corrompu avec un rapport bruit sur signal de 5%. Une ouverture numérique de 0.95 est utilisée, à l’intérieur de laquelle 64 angles d’incidence en polarisation TE et 121 angles de détection régulièrement espacés sont utilisés. La procédure d’inversion non linéaire utilisée ici est légèrement différente de celle décrite en section 1.3.3 du chapitre 1, dans la mesure où la fonction coût ne comprend pas la deuxième fraction de l’Eq. 1.15 et où aucune information a priori n’est utilisée sur la permittivité à reconstruire.

La Fig. 3.15 présente ainsi les parties réelle et imaginaire de la permittivité reconstruite pour les quatre configurations suivantes : transmission, réflexion, réflexion en présence de miroir, et complète [56]. Il apparaît en (b) que la configuration en transmission ne peut restituer les deux inclusions du fait de son faible pouvoir de résolution axiale. La configuration en réflexion conduit quant à elle en (c) et (d) à des cartes de permittivité complètement brouillées, car elle mélange permittivités réelle et imaginaire du fait de sa fonction d’appareil qui comporte une partie réelle et une partie imaginaire. Au final, la configuration assistée par miroir fournit des reconstructions quasiment identiques à celles de la configuration complète, tant pour la partie réelle que pour la partie imaginaire.

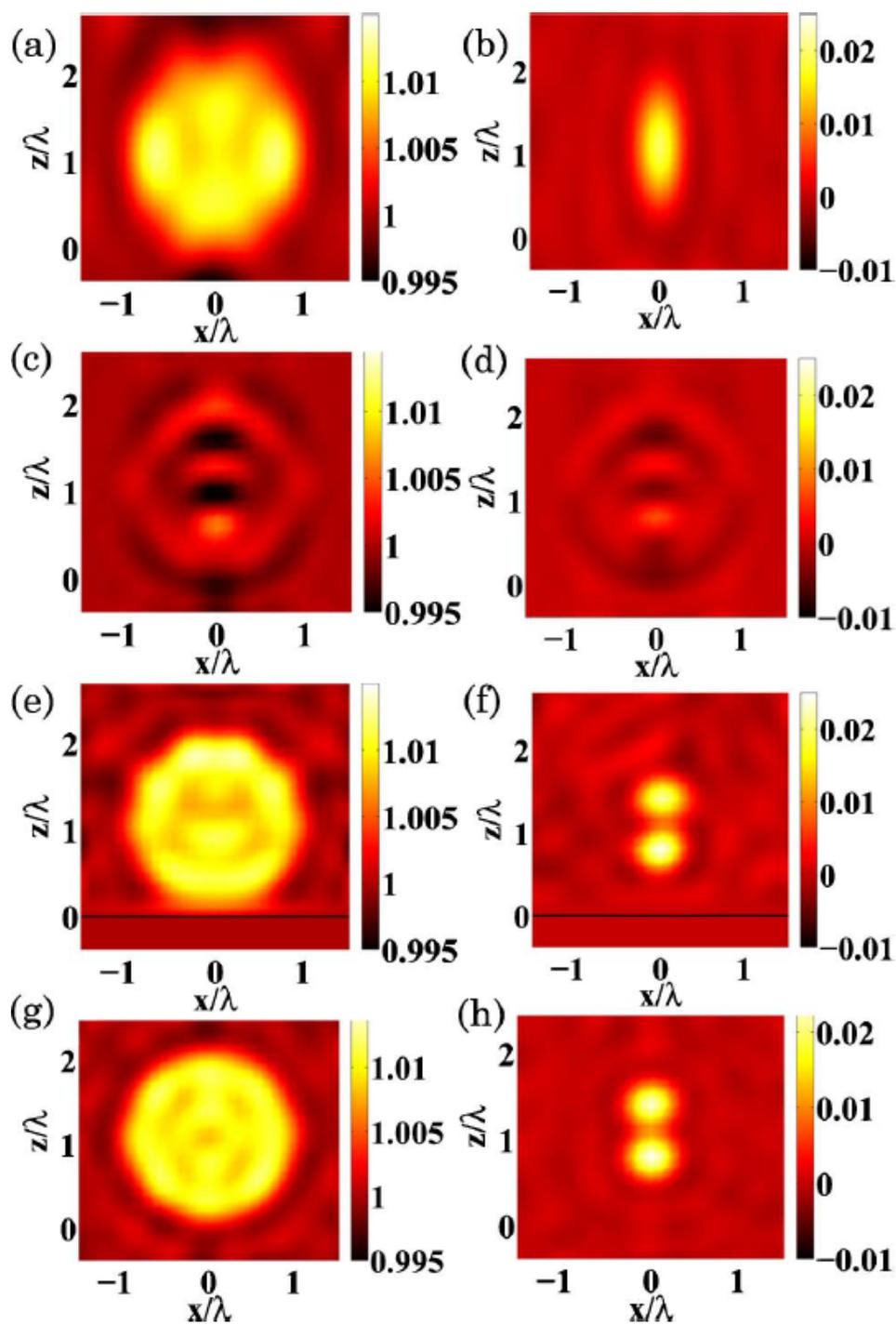


FIGURE 3.15 – Parties réelle et imaginaire de la permittivité reconstruite pour la configuration en transmission [(a) et (b)], réflexion [(c) et (d)], réflexion assistée par miroir [(e) et (f)] (l'objet est placé à $\lambda/10$ au dessus du miroir), et la configuration complète [(g) et (h)].

3.3.3 Conclusion

La tomographie assistée par miroir est donc très prometteuse pour obtenir une super-résolution isotrope en 3D [56]. Le point crucial est de prendre en compte le miroir dans la procédure d'inversion, sinon la reconstruction est totalement déformée et inutilisable. Les inversions expérimentales présentées dans les sections précédentes de ce chapitre ont bien validé la prise en compte d'un substrat réfléchissant pour les objets étudiés, qui ont été reconstruits avec une sensibilité axiale bien inférieure à 100 nm, mais n'ont pas permis de quantifier la résolution axiale. Après le succès sur données synthétiques présenté ici, il s'agit à présent d'aller plus loin en validant expérimentalement l'utilisation du miroir pour améliorer la résolution axiale et séparer des objets très rapprochés. Comme je le décrirai dans mon chapitre de perspectives, c'est un des points sur lesquels je travaille actuellement. Par ailleurs, il est à noter que notre équipe a par le passé déjà montré expérimentalement l'apport de l'utilisation d'un miroir pour obtenir une fonction d'appareil mieux résolue axialement en microscopie confocale de fluorescence [81–83].

Chapitre 4

Conclusion générale et perspectives

4.1 Conclusion

Dans ce manuscrit, j'ai décrit l'approche originale de microscopie tomographique diffractive que j'ai développée et mise en oeuvre depuis mon arrivée à l'Institut Fresnel en septembre 2007, au sein de l'équipe SEMOX et en étroite collaboration avec l'ensemble de ses membres. Sa spécificité est d'utiliser un algorithme d'inversion itératif non linéaire pour reconstruire l'objet à partir des données, en effectuant une modélisation rigoureuse du processus de diffraction. J'ai pu adapter cette approche sur un dispositif expérimental optique performant, et obtenir des résultats qui sont à l'heure actuelle inégalés en terme de résolution par toute autre technique d'imagerie optique sans marquage en champ lointain [58,68,75]. Pour y parvenir, j'ai tout d'abord fait évoluer le microscope tomographique dans un cadre simplifié scalaire, sur des échantillons bi-dimensionnels générant un fort rapport signal sur bruit. Ceci m'a permis de me concentrer sur la procédure de normalisation fine à élaborer pour que les données expérimentales soient en accord avec les hypothèses du modèle impliqué dans la procédure d'inversion. J'ai pu ensuite transposer avec succès cette approche au cas tri-dimensionnel, en améliorant la configuration de mesure du microscope pour restituer avec qualité le champ diffracté en phase et en module par des objets 3D de petites tailles. L'évolution suivante a consisté à passer d'une mesure scalaire à une mesure vectorielle du champ diffracté, pour ainsi exploiter l'intégralité des informations qu'il contient.

Au final, j'ai atteint une résolution transverse isotrope de $\lambda/4$ sur des objets 3D [58], et de $\lambda/8$ sous forte diffusion multiple sur des objets 2D [68]. Ceci est à comparer à une résolution guère meilleure que $\lambda/2$ avec les approches classiques linéaires de microscopie tomographique. L'intérêt de l'inversion itérative non linéaire ne s'arrête toutefois pas à une amélioration notable de la résolution transverse. Elle permet de plus d'appliquer la microscopie tomographique en configuration de réflexion, plus adaptée pour atteindre également de hautes résolutions axiales [56], et sur des échantillons aux contrastes de permittivité variés. En outre, elle permet de prendre en compte un environnement spécifique des échantillons (ici déposés sur substrat réfléchissant), de les étudier avec un nombre restreint d'illuminations (ici au maximum une vingtaine), et en incorporant si

besoin des informations a priori pour améliorer l'estimation des inconnues restantes.

4.2 Perspectives

Mes travaux de recherches futurs vont consister à poursuivre l'amélioration des performances de la microscopie tomographique diffractive en exploitant son potentiel selon différentes modalités encore inexplorées. J'en fournis ici quelques exemples, déjà initiés ou qui le seront à plus ou moins long terme. Dans ce contexte, je co-dirige avec Hugues Giovannini la thèse de Charankumar Godavarthi, qui a démarré en septembre 2013.

4.2.1 Mesures résolues en longueur d'onde et multi-longueur d'onde

En plus de la possibilité de varier l'angle d'illumination et la polarisation, un degré de liberté supplémentaire peut être ajouté à notre microscope tomographique : la variation de la longueur d'onde. En guise d'illustration, la Fig. 4.1(a) présente la reconstruction obtenue sur l'échantillon en étoile de la section 3.2.2 du chapitre 3 avec une illumination par une diode laser émettant à 488 nm. L'utilisation d'une longueur d'onde plus faible a comme attendu conduit à une reconstruction plus résolue.

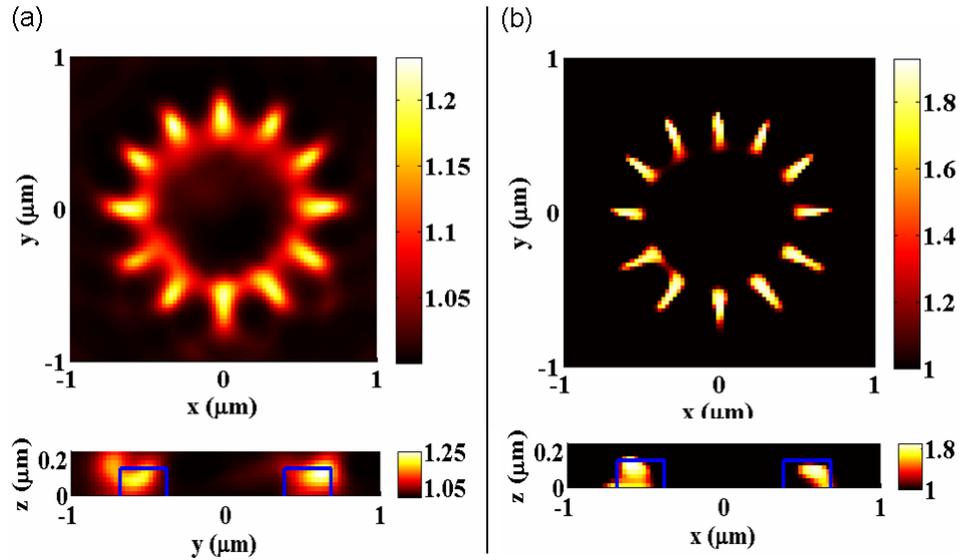


FIGURE 4.1 – (a) Coupe transverse (haut) et axiale (bas) de la carte de permittivité de l'échantillon en étoile de la section 3.2.2 du chapitre 3 pour une illumination à $\lambda = 488$ nm. (b) Même chose en insérant l'information a priori sur la permittivité maximale de l'objet ($1 < \varepsilon < 2$).

L'exploitation de la longueur d'onde ne se limite toutefois pas à la diminuer au maximum. Il s'avère que combiner des mesures effectuées successivement à plusieurs longueurs d'onde permet d'améliorer encore davantage la qualité des reconstructions, en

s'inspirant des techniques de "frequency-hopping" mises en oeuvre dans le domaine des micro-ondes [84]. L'idée est d'utiliser les longueurs d'onde les plus élevées pour reconstruire la forme globale de l'objet, et les longueurs d'onde plus faibles afin d'affiner les détails accessibles. Ceci permet de diminuer les artefacts de reconstruction par rapport à une reconstruction directe à faible longueur d'onde, plus sensible au bruit de mesure. Une telle approche multi-échelle peut au besoin incorporer un modèle de dispersion. Elle s'avère en outre très intéressante pour reconstruire des objets étendus, nécessitant un nombre important de données.

Une autre possibilité est de sonder un échantillon présentant des résonances à certaines longueurs d'onde (résonances de Mie, résonances plasmoniques...). Lors d'une résonance, la diffusion multiple est fortement exaltée, et peut être exploitée pour accéder en champ lointain à des fréquences spatiales de l'objet très élevées, du domaine évanescent. C'est ce qui a permis d'obtenir une résolution similaire à celle de la microscopie de champ proche sur des échantillons 2D fortement contrastés [68]. La différence dans le cas des objets 3D est qu'un fort régime de diffusion multiple est plus difficile à générer et nécessite de sonder une résonance [85]. Hors résonance, la reconstruction peut à nouveau servir à obtenir la forme globale de l'objet. Ce type d'approche pourra dans un premier temps être testé sur des nanostructures métalliques calibrées.

Pour pouvoir mettre en oeuvre ces mesures multi-longueur d'onde, il est à noter que j'ai récemment intégré au montage tomographique une source à supercontinuum dans le visible (NKT Photonics, SuperK EXW-12), équipée d'un système de filtrage nous permettant de sélectionner à notre guise la portion de spectre émise. On obtient ainsi une source accordable de longueur de cohérence proche au mieux de $50 \mu\text{m}$. Par rapport à l'utilisation d'un laser standard, il est donc nécessaire de bien équilibrer les longueurs des bras du montage interférométrique, mais la longueur de cohérence bien plus faible a l'avantage de diminuer le bruit de speckle lors de la mesure.

4.2.2 Tomographie assistée par miroir et appliquée aux objets étendus

L'intérêt de la tomographie assistée par miroir pour améliorer la résolution axiale a été démontrée sur des données synthétiques [56], mais il importe à présent d'en apporter une démonstration expérimentale. J'effectue ainsi actuellement des travaux sur des échantillons structurés selon la direction axiale : des nano-piliers comportant deux couches de matériau à haut indice (dioxyde de titane) séparées par une couche à bas indice (silice), le tout étant déposé sur un miroir d'aluminium (cf Fig. 4.2).

Une fois la super-résolution axiale démontrée sur ces objets tests, je m'attaquerai à des objets plus complexes et étendus en 3D. L'idée est d'obtenir une très haute résolution isotrope à large échelle, sur des échantillons biologiques comme des cellules de levure, de dimensions typiques $3 \times 3 \times 7 \mu\text{m}^3$. Sur des domaines d'investigation aussi larges, il sera nécessaire d'accélérer la procédure d'inversion itérative et de diminuer la quantité de mémoire requise, notamment en optimisant les méthodes numériques de calcul des tenseurs de Green. Des travaux en ce sens sont actuellement déjà en cours dans l'équipe. L'intérêt d'utiliser des objets biologiques, faiblement contrastés, est en outre que des approxima-

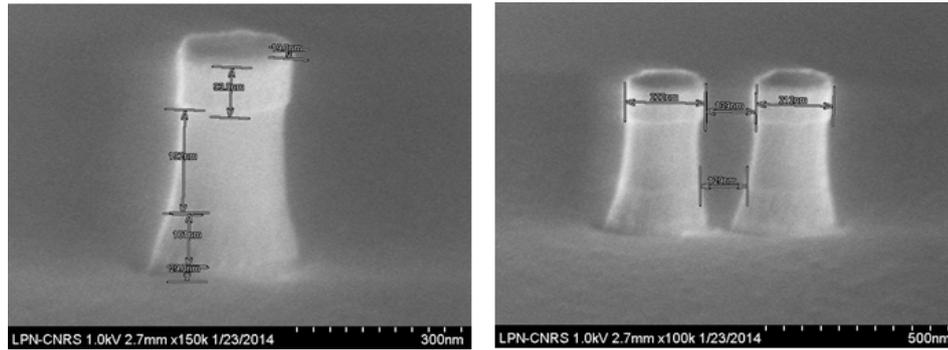


FIGURE 4.2 – Nano-piliers composés de 3 couches déposés sur miroir d’aluminium (une couche de passivation de silice de 200 nm est intercalée entre miroir et piliers). Réalisation Anne Talneau, LPN Marcoussis.

tions linéaires comme Born et Rytov pourront être testées. L’étape coûteuse en temps (et en mémoire) de calcul du champ total partout à l’intérieur du domaine à chaque itération est ainsi évitée. Afin d’accroître davantage la résolution, des informations a priori sur les bornes inférieure et supérieure de la permittivité de l’échantillon seront insérées [46, 47]. L’amélioration est flagrante sur l’échantillon en étoile de la section 3.2.2, comme le montre la Fig. 4.1(b), où l’information supplémentaire d’une permittivité comprise entre 1 et 2 a été rajoutée dans l’algorithme.

Il sera par ailleurs nécessaire de développer une nouvelle procédure de normalisation en amplitude et en phase du jeu de données. Elle ne pourra en effet plus se baser sur la réflexion spéculaire, qui sera perturbée par la présence de l’objet étendu. La normalisation pourra en revanche exploiter le principe de réciprocité [86], qui garantit une redondance d’information entre les différents angles d’illumination du fait de la configuration de mesure en réflexion.

4.2.3 Tomographie en illumination focalisée

Avec les approches classiques linéaires, la microscopie tomographique diffractive ne peut fonctionner qu’en éclairant l’objet par une onde plane sous différentes incidences successives. La seule alternative présentée jusqu’à présent consiste à utiliser une somme d’ondes planes incohérentes selon un cône d’illumination, à condition d’adopter une configuration de mesure particulière, utilisant notamment un modulateur spatial de lumière [8, 27, 30].

Il est donc totalement exclu avec ces approches d’utiliser des illuminations focalisées, qui permettraient pourtant de sonder localement et avec un meilleur rapport signal sur bruit les zones d’intérêt de l’échantillon, sans polluer le signal par du bruit généré par un environnement indésirable.

Un degré de liberté encore très peu exploré de la procédure d’inversion non linéaire présentée dans ce manuscrit est sa capacité à prendre en compte des schémas d’illumination très variés. Plus particulièrement, les illuminations focalisées peuvent être mises

en oeuvre selon deux modalités décrites ci-dessous.

Utilisation d'illuminations agiles

Une première solution consiste à conserver un schéma d'illumination par onde plane sous différentes incidences successives, mais à analyser le jeu de données obtenu pour générer de manière synthétique dans l'inversion des illuminations se focalisant sélectivement sur les zones diffractantes principales de l'échantillon [87]. Les différentes ondes planes d'illumination sont ici utilisées comme une base, dont les combinaisons adéquates sont déterminées à partir de techniques comme la décomposition de l'opérateur de retournement temporel (DORT), issues de l'acoustique et des micro-ondes [88, 89], et récemment appliquées à des données expérimentales en optique [90].

Outre le fait qu'elle ne modifie que très peu la configuration de mesure, un des intérêts notables de cette approche est qu'à partir d'un balayage angulaire 2D de l'éclairage, elle permet de générer des illuminations agiles reconfigurables en 3D pour s'adapter à l'échantillon étudié. Elle est par ailleurs compatible avec la tomographie assistée par miroir pour accroître la résolution axiale des reconstructions [91].

Microscopie confocale de Fourier

Une seconde approche consiste à éclairer directement l'objet en illumination focalisée dans le microscope tomographique. Au lieu d'illuminer l'objet par une onde plane sous différentes incidences successives grâce à un balayage angulaire 2D, l'idée est d'envoyer simultanément toutes les ondes planes de manière cohérente, et d'effectuer un balayage en 2D de la position du spot d'illumination dans un plan transverse. Ces deux configurations sont équivalentes du point de vue de l'information accessible sur l'objet, qui peut donc être reconstruit en 3D dans les deux cas.

Dans le cas de l'illumination focalisée, il est plus adapté de détecter le champ diffracté dans un plan de Fourier par rapport à celui de focalisation, et ce pour différentes raisons que je vais détailler ci-après. Cette nouvelle configuration de tomographie que je propose s'apparente donc à la microscopie confocale pour le schéma d'illumination, mais s'en distingue toutefois du fait de la détection dans l'espace de Fourier. Il paraît donc approprié de la nommer "microscopie confocale de Fourier", pour la distinguer à la fois des configurations classiques de microscopies confocales et tomographiques. Elle est schématisée Fig. 4.3.

Les avantages de la détection dans un plan de Fourier (conjugué avec le plan focal image de l'objectif) sont les suivants. Tout d'abord, si la caméra était placée dans un plan image, le signal détecté serait essentiellement celui issu du plan de focalisation. En effet, le signal diffracté en dehors de ce plan serait atténué à la fois par l'intensité d'illumination et par la profondeur de champ de l'objectif en détection. Ainsi, placer la caméra dans un plan de Fourier permet de détecter de manière plus efficace le champ diffracté généré tout le long de la propagation du faisceau dans l'échantillon. Par ailleurs, en ajustant le diamètre du trou confocal, conjugué avec le spot de focalisation, il est possible de contrôler l'extension axiale de cette zone générant un signal détectable. La microscopie confocale

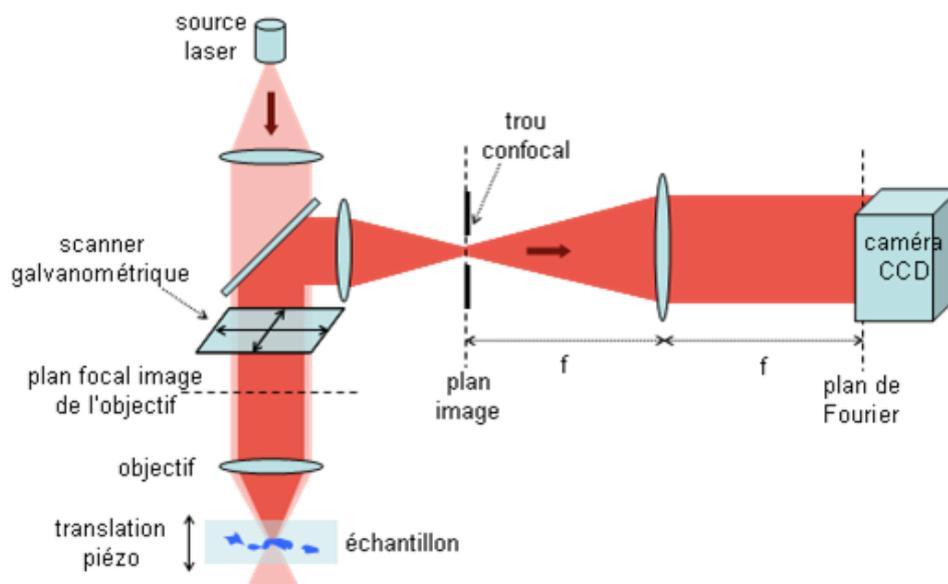


FIGURE 4.3 – Schéma de principe de la microscopie confocale de Fourier.

de Fourier conserve donc tous les avantages de la microscopie confocale classique, mais ne se contente pas d'intégrer le signal diffracté sur un détecteur ponctuel placé juste derrière le trou confocal : elle va en effectuer une analyse bien plus fine dans l'espace de Fourier.

En outre, la détection dans l'espace de Fourier, combinée à une illumination focalisée, rend possible la restitution de la phase du champ diffracté à partir d'une mesure en intensité seulement. En effet, cette configuration est très similaire à celle utilisée en imagerie cohérente à rayons X pour appliquer la ptychographie [52]. Cette technique est par ailleurs déjà parfaitement maîtrisée par notre équipe [92, 93]. De plus, la microscopie confocale de Fourier reste compatible avec l'utilisation d'un miroir pour accroître la résolution axiale. Dans ce cas, l'intensité rayonnée en tout point de l'espace de Fourier résultera de l'interférence entre l'illumination focalisée réfléchie et le champ diffracté par l'objet. Leur phase relative sera donc encodée dans le signal, ce qui peut permettre d'améliorer encore davantage la robustesse de la restitution de phase [94].

La microscopie confocale de Fourier est donc un projet très novateur. Elle demande de modifier à la fois le dispositif expérimental et la procédure d'inversion. Par rapport à la microscopie tomographique classique, elle présente des avantages particulièrement attrayants. Elle permet d'atteindre les mêmes performances théoriques, mais avec une mesure en intensité seulement, sur un dispositif simplifié compatible avec les microscopes confocaux classiques. Elle est par ailleurs bien plus séduisante d'un point de vue rapport signal sur bruit par rapport à une illumination plein champ. La puissance lumineuse est en effet focalisée sur une zone restreinte de l'échantillon, et la région d'intérêt générant le signal détecté peut être sélectionnée en 3D.

4.2.4 Profilométrie tomographique

Je poursuivrai également les travaux prometteurs initiés pour appliquer la microscopie tomographique en profilométrie [75]. Nous travaillons actuellement à son application sur des profils 1D ne pouvant pas être décrits par des fonctions $z = h(x)$, à savoir des profils présentant des dévers (pentes supérieures à 90°). Aucune autre technique de profilométrie (profilomètre optique, microscope à force atomique...) ne permet actuellement de traiter ce cas de figure de manière satisfaisante. Notre approche devra par ailleurs être appliquée à des surfaces étendues, et généralisée à des surfaces 2D.

Comme pour le cas des objets volumiques étendus, il sera nécessaire de développer une nouvelle procédure de normalisation des données sur surface étendue, exploitant par exemple le principe de réciprocité [86]. De plus, à moins de tronquer les données sur la caméra, l'illumination en onde plane d'une surface étendue générera une grande quantité de données. Notre approche de tomographie surfacique est dans ce contexte également compatible avec l'architecture en illumination focalisée (microscopie confocale de Fourier) présentée précédemment, afin de générer un jeu de données à fort rapport signal sur bruit sur une partie localisée de la surface.

Bibliographie

- [1] M. Gustafsson. Surpassing the lateral resolution limit by a factor of two using structured illumination microscopy. *J. Microsc.*, 198 :82–87, 2000.
- [2] E. Betzig, G. H. Patterson, P. Sougrat, W. Lindwasser, S. Olenych, J. S. Bonifacino, M. W. Davidson, and J. Lippincott-Schwartz. Imaging intracellular fluorescent proteins at nanometer resolution. *Science*, 313 :1642–1645, 2006.
- [3] M. J. Rust, M. Bates, and X. Zhuang. Sub-diffraction-limit imaging by stochastic optical reconstruction microscopy. *Nat. Methods*, 3 :793–796, 2006.
- [4] M. Hofman, C. Eggeling, S. Jakobs, and S. W. Hell. Breaking the diffraction barrier in fluorescence microscopy at low light intensities by using reversibly photoswitchable proteins. *PNAS*, 102 :17565–17569, 2005.
- [5] W. Choi, C. Fang-Yen, K. Badizadegan, S. Oh, N. Lue, R. R. Dasari, and M. S. Feld. Tomographic phase microscopy. *Nat. Methods*, 4 :717–719, 2007.
- [6] Moonseok Kim, Youngwoon Choi, Christopher Fang-Yen, Yongjin Sung, Ramachandra R. Dasari, Michael S. Feld, and Wonshik Choi. High-speed synthetic aperture microscopy for live cell imaging. *Opt. Lett.*, 36(2) :148–150, Jan 2011.
- [7] Y. Cotte, F. Toy, P. Jourdain, N. Pavillon, D. Boss, P. Magistretti, P. Marquet, and C. Depeursinge. Marker-free phase nanoscopy. *Nature Photonics*, 7(3) :113–117, 2013.
- [8] T. Kim, R. Zhou, M. Mir, S. D. Babacan, P. S. Carney, L. L. Goddard, and G. Popescu. White-light diffraction tomography of unlabelled live cells. *Nature Photonics*, 8 :256–263, 2014.
- [9] Y. Kim, H. Shim, K. Kim, H. Park, J. H. Heo, J. Yoon, C. Choi, S. Jang, and Y. Park. Common-path diffraction optical tomography for investigation of three-dimensional structures and dynamics of biological cells. *Optics Express*, 22(9) :10398–10407, 2014.
- [10] V. Lauer. New approach to optical diffraction tomography yielding a vector equation of diffraction tomography and a novel tomographic microscope. *J. Microsc.*, 205 :165–176, February 2002.
- [11] U. Schnars and W. Jüptner. Direct recording of holograms by a ccd target and numerical reconstruction. *Appl. Opt.*, 33 :179–181, 1994.

- [12] I. Yamaguchi and T. Zhang. Phase-shifting digital holography. *Opt. Lett.*, 22(16) :1268–1270, 1997.
- [13] Etienne Cuche, Pierre Marquet, and Christian Depeursinge. Simultaneous amplitude-contrast and quantitative phase-contrast microscopy by numerical reconstruction of fresnel off-axis holograms. *Appl. Opt.*, 38(34) :6994–7001, Dec 1999.
- [14] P. Bon, G. Maucort, and B. Wattellier ad S. Monneret. Quadriwave lateral shearing interferometry for quantitative phase microscopy of living cells. *Opt. Express*, 17 :13080–13094, 2009.
- [15] A. Bosseboeuf and S. Petitgrand. Interference Microscopy Techniques for Microsystem Characterization. *Optical Inspection of Microsystems*, 2006.
- [16] R. M. Goldstein, H. A. Zebker, and C. L. Werner. Satellite radar interferometry : twodimensional phase unwrapping. *Radio Science*, 23 :713–720, 1988.
- [17] J. Kühn, T. Colomb, F. Montfort, F. Charriere, Y. Emery, E. Cuche, P. Marquet, and C. Depeursinge. Real-time dual-wavelength digital holographic microscopy with a single hologram acquisition. *Opt. Express*, 15 :7231–7242, 2007.
- [18] A. C. Kak and M. Slaney. *Principles of computerized tomographic imaging*. IEEE Press, 1999.
- [19] F Charriere, A Marian, F Montfort, J Kuehn, T Colomb, E Cuche, P Marquet, and C Depeursinge. Cell refractive index tomography by digital holographic microscopy. *Opt. Lett.*, 31(2) :178–180, JAN 15 2006.
- [20] Florian Charrière, Nicolas Pavillon, Tristan Colomb, Christian Depeursinge, Thierry J. Heger, Edward A. D. Mitchell, Pierre Marquet, and Benjamin Rappaz. Living specimen tomography by digital holographic microscopy : morphometry of testate amoeba. *Opt. Express*, 14(16) :7005–7013, 2006.
- [21] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Cambridge University Press, 1999.
- [22] B. Simon, M. Debailleul, V. Georges, V. Lauer, and O. Haeberlé. Tomographic diffractive microscopy of transparent samples. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, 44 :29–35, 2008.
- [23] M. Debailleul, B. Simon, V. Georges, O. Haeberlé, and V. Lauer. Holographic microscopy and diffractive microtomography of transparent samples. *Meas. Sci. Technol.*, 19(7) :074009, JUL 2008.
- [24] M. Debailleul, V. Georges, B. Simon, R. Morin, and O. Haeberlé. High-resolution three-dimensional tomographic diffractive microscopy of transparent inorganic and biological samples. *Opt. Lett.*, 34(1) :79–81, 2009.
- [25] R. Fiolka, K. Wicker, R. Heintzmann, and A. Stemmer. Simplified approach to diffraction tomography in optical microscopy. *Opt. Express*, 17(15) :12407–12417, 2009.
- [26] B. Simon, M. Debailleul, A. Beghin, Y. Tourneur, and O. Haeberlé. High-resolution tomographic diffractive microscopy of biological samples. *J. Biophoton.*, 3 :462–467, 2010.

- [27] Z. Wang, D. L. Marks, P. S. Carney, L. J. Millet, M. U. Gillette, A. Mihi, P. V. Braun, Z. Shen, S. G. Prasanth, and G. Popescu. Spatial light interference tomography (slit). *Opt. Express*, 19 :19907–19918, 2011.
- [28] Moonseok Kim, Youngwoon Choi, Christopher Fang-Yen, Yongjin Sung, Kwanyung Kim, Ramachandra R. Dasari, Michael S. Feld, and Wonshik Choi. Three-dimensional differential interference contrast microscopy using synthetic aperture imaging. *J. Biomed. Opt.*, 17 :026003, 2012.
- [29] Y. Sung, W. Choi, N. Lue, R. R. Dasari, and Z. Yaqoob. Stain-free quantification of chromosomes in live celles using regularized tomographic phase microscopy. *PLoS ONE*, 7 :e49502, 2012.
- [30] M. Mir, S. D. Babacan, M. Bednarz, M. N. Do, I. Golding, and G. Popescu. Visualizing Escherichia coli sub-cellular structure using sparse deconvolution spatial light interference tomography. *PLoS ONE*, 7 :e39816, 2012.
- [31] Y. Kim, K. Kim, H. Park, J. C. Ye, and Y. Park. Real-time visualization of 3D dynamic microscopic objects using optical diffraction tomography. *Optics Express*, 21(26) :32269–32277, 2013.
- [32] W.-C. Hsu, J.-W. Su, T.-Y. Tseng, and K.-B. Sung. Tomographic diffractive microscopy of living cells based on a common-path configuration. *Opt. Lett.*, 39 :2210–2213, 2014.
- [33] O. Haeberlé, K. Belkebir, H. Giovaninni, and A. Sentenac. Tomographic diffractive microscopy : basics, techniques and perspectives. *Journal of Modern Optics*, 57(9) :686–699, 2010.
- [34] A. J. Devaney. Inverse-scattering theory within the Rytov approximation. *Opt. Lett.*, 6 :374–376, 1981.
- [35] R. Carminati. Phase properties of the optical near field. *Phys. Rev. E*, 55 :4901–4904, 1997.
- [36] Yongjin Sung, Wonshik Choi, Christopher Fang-Yen, Kamran Badi zadegan, Ramachandra R. Dasari, and Michael S. Feld. Optical diffraction tomography for high resolution live cell imaging. *Opt. Express*, 17(1) :266–277, 2009.
- [37] C.-A Guérin and A. Sentenac. Second-order perturbation theory for scattering from heterogeneous rough surfaces. *J. Opt. Soc. Am. A*, 21 :1251–1260, 2004.
- [38] P. C. Chaumet, K. Belkebir, and A. Sentenac. Superresolution of three-dimensional optical imaging by use of evanescent waves. *Opt. Lett.*, 29 :2740–2742, 2004.
- [39] P. C. Chaumet, A. Sentenac, and A. Rahmani. Coupled dipole method for scatterers with large permittivity. *Phys. Rev. E*, 70 :036606–6, 2004.
- [40] K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac. Superresolution in total internal reflection tomography. *J. Opt. Soc. Am. A*, 22 :1889–1897, 2005.
- [41] P. C. Chaumet, A. Rahmani, and G. W. Bryant. Generalization of the coupled dipole method to periodic structure. *Phys. Rev. B*, 67 :165404–5, 2003.

- [42] P. C. Chaumet and A. Sentenac. Numerical simulations of the electromagnetic field scattered by defects in a double-periodic structure. *Phys. Rev. B*, 72 :205437–8, 2005.
- [43] A. Sentenac, P. C. Chaumet, and K. Belkebir. Beyond the Rayleigh criterion : Grating assisted far-field optical diffraction tomography. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :243901–4, 2006.
- [44] Emeric Mudry, Patrick C Chaumet, Kamal Belkebir, and Anne Sentenac. Electromagnetic wave imaging of three-dimensional targets using a hybrid iterative inversion method. *Inverse Probl.*, 28(6) :065007, 2012.
- [45] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolski, and W. T. Vetterling. *Numerical recipes. The art of scientific computing*. Cambridge University Press, 1986.
- [46] P. C. Chaumet, K. Belkebir, and A. Sentenac. Experimental microwave imaging of three-dimensional targets with different inversion procedures. *J. Appl. Phys.*, 106 :034901–8, 2009.
- [47] P. C. Chaumet, A. Sentenac, K. Belkebir, G. Maire, and H. Giovannini. Improving the resolution of grating-assisted optical diffraction tomography using a priori information in the reconstruction procedure. *J. Mod. Opt.*, 57 :798–808, 2010.
- [48] S. Vertu, J.-J. Delaunay, I. Yamada, and O. Haeberlé. Diffraction microtomography with sample rotation : influence of a missing apple core in the recorded frequency space. *Centr. Eur. J. of Phys.*, 7 :22–31, 2009.
- [49] S. Vertu, J. Flügge, J.-J. Delaunay, and O. Haeberlé. Diffraction microtomography with sample rotation : influence of a missing apple core in the recorded frequency space. *Centr. Eur. J. of Phys.*, 9 :969–974, 2011.
- [50] R. V. Shack and B. C. Platt. Production and use of a lenticular Hartmann screen. *J. Opt. Soc. Am. A*, 61 :656, 1971.
- [51] J. M. Rodenburg and H. M. L. Faulkner. A phase retrieval algorithm for shifting illumination. *Appl. Phys. Lett.*, 85 :4795–4797, 2004.
- [52] J. M. Rodenburg, A. C. Hurst, A. G. Cullis, B. R. Dobson, F. Pfeiffer, O. Bunk, C. David, K. Jefimovs, and I Johnson. Hard-X-ray lensless imaging of extended objects. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :034801, 2007.
- [53] A. M. Maiden, M. J. Humphry, F. Zhang, and J. M. Rodenburg. Superresolution imaging via ptychography. *Journal of the Optical Society of America*, 28(4) :604–612, 2011.
- [54] S. M. Jefferies, M. Lloyd-Hart, E. K. Hege, and J. Georges. Sensing wave-front amplitude and phase with phase diversity. *Appl. Opt.*, 41 :2095–2102, 2002.
- [55] A. Jesacher, W. Harm, S. Bernet, and M. Ritsch-Marte. Quantitative single-shot imaging of complex objects using phase retrieval with a designed periphery. *Optics Express*, 20(5) :5470–5480, 2012.
- [56] E. Mudry, P. C. Chaumet, K. Belkebir, G. Maire, and A. Sentenac. Mirror-assisted tomographic diffractive microscopy with isotropic resolution. *Opt. Lett.*, 35(11) :1857–1859, 2010.

- [57] G. Maire, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac. Experimental Demonstration of Quantitative Imaging beyond Abbe's Limit with Optical Diffraction Tomography. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :213905–4, 2009.
- [58] T. Zhang, Y. Ruan, G. Maire, D. Sentenac, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac. Full-polarized tomographic diffraction microscopy achieves a resolution about one-fourth of the wavelength. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :243904, 2013.
- [59] Y. Ruan, P. Bon, E. Mudry, G. Maire, P. C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, B. Wattellier, S. Monneret, and A. Sentenac. Tomographic diffractive microscopy with a wavefront sensor. *Opt. Lett.*, 37(10) :1631–1633, May 2012.
- [60] G. Maire, J. Girard, F. Drsek, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac. Experimental inversion of optical diffraction tomography data with a nonlinear algorithm in the multiple scattering regime. *J. Mod. Opt.*, 57 :746–755, 2010.
- [61] G. Maire, Y. Ruan, T. Zhang, P. C. Chaumet, H. Giovannini, D. Sentenac, A. Talneau, K. Belkebir, and A. Sentenac. High-resolution tomographic diffractive microscopy in reflection configuration. *J. Opt. Soc. Am. A*, 30 :2133–2139, 2013.
- [62] K. Belkebir and A. G. Tijhuis. Modified² gradient method and modified Born method for solving a two-dimensional inverse scattering problem. *Inverse Probl.*, 17(6) :1671–1688, December 2001.
- [63] K. Belkebir and A. Sentenac. High resolution optical diffraction microscopy. *J. Opt. Soc. Am. A*, 20(7) :1223–1229, 2003.
- [64] Sergey A. Alexandrov, Timothy R. Hillman, Thomas Gutzler, and David D. Sampson. Synthetic aperture fourier holographic optical microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 97(16) :168102, OCT 20 2006.
- [65] F. Simonetti. Multiple scattering : The key to unravel the subwavelength world from the far-field pattern of a scattered wave. *Phys. Rev. E*, 73 :036619–13, 2006.
- [66] A. Sentenac, C.-A. Guérin, P. C. Chaumet, F. Drsek, H. Giovannini, N. Bertaux, and M. Holschneider. Influence of multiple scattering on the resolution of an imaging system : a Cramer-Rao analysis. *Opt. Express*, 15 :1340–1347, 2007.
- [67] F. de Fornel. *Evanescent Waves*, volume 73 of *Optical Sciences*. Springer Verlag, 2001.
- [68] Jules Girard, Guillaume Maire, Hugues Giovannini, Anne Talneau, Kamal Belkebir, Patrick C. Chaumet, and Anne Sentenac. Nanometric resolution using far-field optical tomographic microscopy in the multiple scattering regime. *Phys. Rev. A*, 82(6) :061801, Dec 2010.
- [69] H. Liu, J. Bailleul, B. Simon, M. Debailleul, B. Colicchio, and O. Haeberlé. Tomographic diffractive microscopy and multiview profilometry with flexible aberration correction. *Appl. Opt.*, 53(4) :748–755, 2014.
- [70] S. Arhab, G. Soriano, K. Belkebir, A. Sentenac, and H. Giovannini. Full wave optical profilometry. *J. Opt. Soc. Am. A*, 28(4) :576–580, Apr 2011.

- [71] S. Arhab, H. Giovannini, K. Belkebir, and G. Soriano. Full polarization optical profilometry. *J. Opt. Soc. Am. A*, 29(8) :1508–1515, Aug 2012.
- [72] L. Tsang, J. A. Kong, K. H. Ding, and C. O. Ao. *Scattering of Electromagnetic Waves : Numerical Simulations*. Wiley Series in Remote Sensing (Wiley-Interscience), 2001.
- [73] O. Mata Mendez, A. Roger, and D. Maystre. Numerical solution for an inverse scattering problem of non-periodic rough surfaces. *Applied Physics B*, 32(4) :199–206, 1983.
- [74] A. Roger. Newton-Kantorovitch algorithm applied to an electromagnetic inverse problem. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 29(2) :232–238, 1981.
- [75] S. Arhab, G. Soriano, Y. Ruan, G. Maire, A. Talneau, D. Sentenac, P.C. Chaumet, K. Belkebir, and H. Giovannini. Nanometric resolution with far-field optical profilometry. *Phys. Rev. Lett.*, 111(5) :053902, 2013.
- [76] R.M.A. Azzam and K. Bashara. *Ellipsometry and Polarized Light*. North-Holland, Amsterdam, 1977.
- [77] N. Destouches, C. A. Guérin, M. Lequime, and H. Giovannini. Determination of the phase of the diffracted field in the optical domain. application to the reconstruction of surface profiles. *Opt. Commun.*, 198 :233–239, 2001.
- [78] P. Bon, B. Wattellier, S. Monneret, H. Giovannini, and G. Maire. Method and system for structural analysis of an object by measuring the wavefront thereof. *Brevet WO2011/042674*, publié le 14 avril 2011.
- [79] J. Primot and L. Sogno. Achromatic three-wave (or more) lateral shearing interferometer . *J. Opt. Soc. Am. A*, 12 :2679, 1995.
- [80] P. C. Chaumet, K. Belkebir, and A. Sentenac. Numerical study of grating-assisted optical diffraction tomography. *Phys. Rev. A*, 76(1) :013814–7, JUL 2007.
- [81] E. Mudry, E. Le Moal, P. Ferrand, P. C. Chaumet, and A. Sentenac. Isotropic diffraction-limited focusing using a single objective lens. *Phys. Rev. Lett.*, 105(20) :203903, 2010.
- [82] E. Le Moal, E. Mudry, P. C. Chaumet, P. Ferrand, and A. Sentenac. Isotropic single-objective microscopy : theory and experiment. *J. Opt. Soc. Am. A*, 28 :1586–1594, 2011.
- [83] E. Le Moal, E. Mudry, P. C. Chaumet, P. Ferrand, and A. Sentenac. Isotropic single-objective microscopy : theory and experiment. *Opt. Lett.*, 37 :85–87, 2012.
- [84] A. Dubois, K. Belkebir, and M. Saillard. Retrieval of inhomogeneous targets from experimental frequency diversity data. *Inverse probl.*, 21(16) :S65–S79, 2005.
- [85] K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac. Influence of multiple scattering on three-dimensional imaging with optical diffraction tomography. *J. Opt. Soc. Am. A*, 23 :586–595, 2006.
- [86] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley, 2nd ed. edition, 1975.

- [87] T. Zhang, P. C. Chaumet, E. Mudry, A. Sentenac, and K. Belkebir. Electromagnetic wave imaging of targets buried in a cluttered medium using a hybrid inversion-dort method. *Inverse Probl.*, 28(12) :125008, 2012.
- [88] C. Prada, S. Manneville, D. Spoliansky, and M. Fink. Decomposition of the time reversal operator : detection and selective focusing on two scatterers. *J. Acoust. Soc. Am.*, 9 :2067–2076, 1996.
- [89] H. Tortel, G. Micolau, and M. Saillard. Decomposition of the time reversal operator for electromagnetic scattering. *J. Electromag. Waves Appl.*, 13 :687–719, 1999.
- [90] S. M. Popov, A. Aubry, G. Lerosey, M. Fink, A. C. Boccarda, and S. Gigan. Exploiting the time-reversal operator for adaptative optics, selective focusing, and scattering pattern analysis. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :263901–4, 2011.
- [91] T. Zhang, P. C. Chaumet, A. Sentenac, and K. Belkebir. Three-dimensional imaging of targets buried in a cluttered semi-infinite medium. *J. Appl. Phys.*, 114 :143101, 2013.
- [92] P. Godard, G. Carbone, M. Allain, F. Mastropietro, G. Chen, L. Capello, A. Diaz, T. H. Metzger, J. Stangl, and V. Chamard. Three-dimensional high-resolution quantitative microscopy of extended crystals. *Nature Communications*, 2 :568, 2011.
- [93] P. Godard, M. Allain, and V. Chamard. Imaging of highly inhomogeneous strain field in nanocrystals using x-ray bragg ptychography : a numerical study. *Phys. Rev. B.*, 84 :144109, 2011.
- [94] M. D’Urso, K. Belkebir, L. Crocco, T. Isernia, and A. Litman. Phaseless imaging with experimental data : facts and challenges. *J. Opt. Soc. Am. A*, 25(1) :271–281, JAN 2008.

C - Sélection d'articles

Tomographie non linéaire appliquée aux objets 2D

G. Maire, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Sentenac, *Experimental demonstration of quantitative imaging beyond Abbe's limit with optical diffraction tomography*, Physical Review Letters, Vol. 102, 213905, 2009.

J. Girard, G. Maire, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P.C. Chaumet, A. Sentenac, *Nanometric resolution using far-field optical tomographic microscopy in the multiple scattering regime*, Physical Review A, Vol. 82, 061801(R), 2010.

S. Arhab, G. Soriano, Y. Ruan, G. Maire, A. Talneau, D. Sentenac, P. C. Chaumet, K. Belkebir, H. Giovannini, *Nanometric resolution with far-field optical profilometry*, Phys. Rev. Lett., Vol. 111, 053902, 2013.

Tomographie non linéaire appliquée aux objets 3D

Y. Ruan, P. Bon, E. Mudry, G. Maire, P. C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, B. Wattellier, S. Monneret, and A. Sentenac, *Tomographic diffractive microscopy with a wavefront sensor*, Opt. Lett., Vol. 37, p. 1631, 2012.

G. Maire, Y. Ruan, T. Zhang, P. C. Chaumet, H. Giovannini, D. Sentenac, A. Talneau, K. Belkebir, A. Sentenac, *High-resolution tomographic diffractive microscopy in reflection configuration*, J. Opt. Soc. Am. A, Vol. 30, p. 2133, 2013.

T. Zhang, Y. Ruan, G. Maire, D. Sentenac, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, A. Sentenac, *Full-polarized tomographic diffraction microscopy achieves a resolution about one-fourth of the wavelength*, Phys. Rev. Lett., Vol. 111, 243904, 2013.

Experimental Demonstration of Quantitative Imaging beyond Abbe's Limit with Optical Diffraction Tomography

Guillaume Maire,^{1,2} Filip Drsek,^{1,2} Jules Girard,^{1,2} Hugues Giovannini,^{1,2} Anne Talneau,³ Denis Konan,⁴
Kamal Belkebir,^{1,2} Patrick C. Chaumet,^{1,2} and Anne Sentenac²

¹Universités d'Aix-Marseille I & III, Marseille, France

²CNRS, Institut Fresnel, Campus de Saint Jérôme 13013 Marseille, France

³CNRS, Lab Photon & Nanostruct, 91460 Marcoussis, France

⁴Institut National Polytechnique Houphouët Boigny BP 1083 Yamoussoukro, Ivory Coast

(Received 25 August 2008; revised manuscript received 1 April 2009; published 29 May 2009)

Optical diffraction tomography (ODT) is a recent imaging technique that combines the experimental methods of phase microscopy and synthetic aperture with the mathematical tools of inverse scattering theory. We show experimentally that this approach permits us to obtain the map of permittivity of highly scattering samples with axial and transverse resolutions that are much better than that of a microscope with the same numerical aperture.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.213905

PACS numbers: 42.30.Wb, 42.25.Fx

There has been a considerable recent interest in the development of new optical imaging systems that are able to give the three-dimensional optical properties of a sample, as encoded in the spatial variations of the permittivity, at the nanoscale [1–3]. Potential applications range across multiple fields in life and material science. For instance, in nanofabrication, one important objective is to control the manufacturing of heterogeneous stacked platforms with typical length scales about 100 nm. In biology, the study of the inner structure of unstained cells is recognized as increasingly important [4]. Standard optical microscopes do not provide quantitative information on the sample permittivity [5] as crucial information is lost when only the intensity of the field diffracted by the sample is detected. Moreover, their resolution is limited by Abbe's criterion and becomes too low in numerous applications. To circumvent these two difficulties, it has been proposed to measure the field in the near vicinity of the sample and to use an inversion algorithm to reconstruct the permittivity of the object from the complex-valued data [1,6]. Though full of promises, this approach is experimentally challenging and the observed transverse resolution remained close to that of a conventional microscope. Another technique, simpler from an experimental point of view, consists in measuring the diffracted field in a far-field microscope for many incident angles [4,7–11]. An inversion algorithm is then used to form the image from the multiple data set. This approach, generically known as optical diffraction tomography (ODT) or synthetic aperture digital holography, has stirred a wealth of research in the last five years and various setups, adapted to biological applications [4,8,11] or to surface imaging [7,9,10] were proposed.

In all these pioneering experimental works, the model for the wave-object interaction is based on the single-scattering assumption. This assumption is widespread in most tomographic imaging systems, from the acoustical to

the x-ray domains, as it yields fast and simple linear inversion algorithms. Yet, it is valid only for weakly scattering objects or specific geometries and it cannot be applied to samples presenting high or moderate permittivity contrasts, such as those encountered in the nanofabrication domain. Hence, an important field of applications is still out of reach of this new imaging tool.

In this work, we develop an ODT setup that operates with a nonlinear inversion algorithm accounting for multiple scattering. We show experimentally that this approach can provide the map of permittivity of highly scattering nanostructures with an axial and transverse resolutions far beyond that of an analogical microscope or that obtained with the commonly used linear inversion procedures.

The principles of ODT [7–11] is depicted in Fig. 1. The sample is illuminated by a monochromatic plane wave with wavelength λ and the reflected scattered far field is detected for various observation angles θ_d varying between

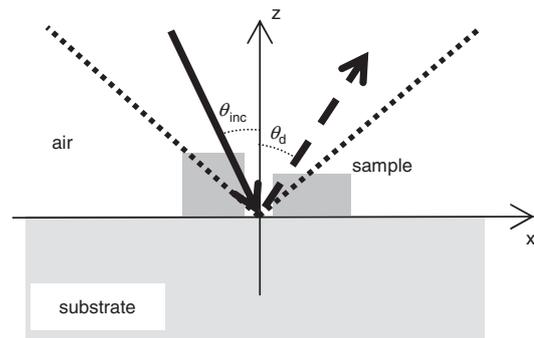


FIG. 1. Schematic view of an ODT experiment in a reflection configuration. θ_{inc} is the angle of the incident illumination on the sample, θ_d is the angle indexing the diffraction directions. The dotted lines indicate the numerical aperture of the objective that collects the diffracted light.

$[\pm\theta_{d_{\max}}]$. To increase the resolution of the system, multiple sets of scattered far-field are recorded for different incident angles θ_{inc} varying between $[\pm\theta_{\text{inc,max}}]$.

The experimental setup is basically a conventional reflection microscope which has been modified to allow the measurement of the phase of the diffracted field and the successive illumination of the sample under various incident angles (Fig. 2). Note that in a reflection microscope, the sample is also illuminated under various incident angles though in a simultaneous (and incoherent) manner.

The emitted light at 633 nm by a 10 mW Helium-Neon laser is divided into a reference beam, passing through an electro-optic phase modulator, and a signal beam directed towards the sample. The latter illuminates the sample with a collimated beam over a wide range of incidence angles (typically $\pm 32^\circ$) and with a homogeneous intensity.

The field diffracted by the object is collected by the microscope objective L_1 (Zeiss ‘‘Fluar’’ $\times 20$ with a numerical aperture $\text{NA} = 0.75$ in the air). An intermediary image of the sample is obtained at the object focal plane of L_4 , where a field diaphragm D_2 permits to adjust the field of view without changing the diameter of the illumination beam. The diffracted field and the reference field are superimposed coherently thanks to beam splitter B_3 . A digital hologram of the diffracted field is then recorded in the Fourier plane on a charge-coupled device (CCD) camera (758×568 pixels) by phase-shifting interferometry thanks to phase modulator (PM) [12]. The CCD camera also detects the specular reflection of the incident beam on the sample substrate. The amplitude and phase matching of the fields over the different incidences is performed through a normalization that ensures that each specularly reflected field is equal to the theoretical complex reflectivity of the bare substrate. This implies that the permittivity of the substrate is known and that the amplitude of the diffracted field is negligible as compared to that of the

specular beam [8]. This assumption is verified even for strongly scattering samples if the overall size of the scattering objects is small compared to that of the field of view.

Once the digital holograms are recorded in the Fourier plane for all incidences, the image of the sample is reconstructed by a numerical procedure. The simplest algorithm, that is used in most ODT surface imaging [7,9,10], amounts to joining all the holograms into a global set of data and performing a 2D inverse Fourier transform. This linear inversion procedure relies on an approximate modelization of the field existing at the object focal plane of the microscope, that is,

$$E(\mathbf{r}_{\parallel}) = R(\mathbf{r}_{\parallel})E_{\text{inc}}(\mathbf{r}_{\parallel}), \quad (1)$$

where $\mathbf{r}_{\parallel} = (x, y)$, R is the reflectance of the structured sample, and E_{inc} is the incident field [7]. Under this approximation, the hologram obtained in the Fourier plane at the reciprocal variable \mathbf{k}_{\parallel} is proportional to $\tilde{R}(\mathbf{k}_{\parallel} - \mathbf{k}_{\parallel\text{inc}})$, where \tilde{R} is the 2D Fourier transform of R and $\mathbf{k}_{\parallel\text{inc}}$ is the transverse wave vector of the incident plane wave. Hence, the use of several incidences permits us to enlarge the accessible domain of spatial frequencies of R . As a result, the power of resolution of the reconstructed image with ODT is much better than that obtained with single incidence holography. It should be, in principle, also better than that obtained with wide-field microscopy with incoherent illumination because ODT does not dim the accessible highest spatial frequencies of the object contrary to analogical microscopy [5,7]. In this work, we have replaced this ODT classical linear inversion algorithm (ODT-LIA) by a nonlinear reconstruction algorithm that is based on a rigorous model of the light-sample interaction. Our approach permits the retrieval, quantitatively, of the map of permittivity of the sample in the transverse and axial directions from the measured holograms.

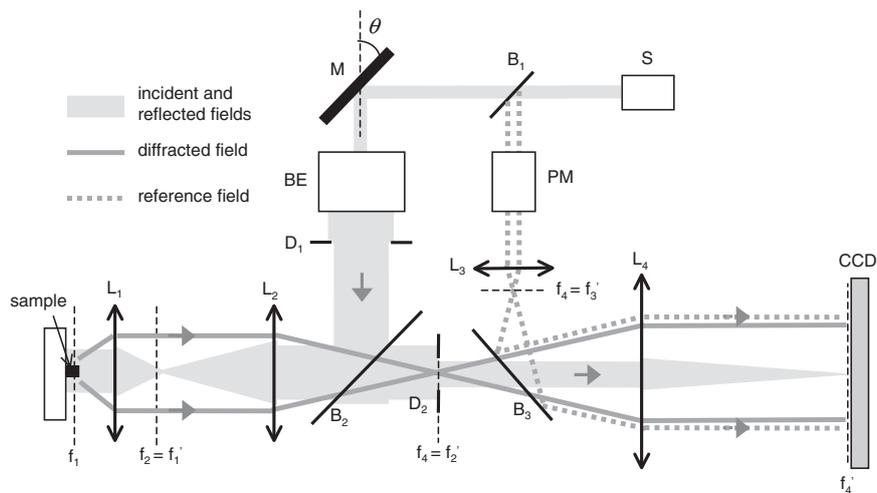


FIG. 2. Sketch of the experimental setup. L_1, L_2, L_3, L_4 , lenses; f_i and f'_i , associated object and image focal planes; S , laser source emitting at 633 nm; M , adjustable mirror; B_1, B_2, B_3 , beam splitters; BE , beam expander; PM , phase modulator; D_1, D_2 , diaphragms.

We considered samples that are invariant along the y axis and illuminated by an incident plane wave with a wave vector belonging to the plane normal to \hat{y} with an electric field directed along \hat{y} (see Fig. 1). In this case, the diffraction problem is scalar. We use the *a priori* information that the sample is made of lossless dielectric objects deposited on a substrate with known permittivity. The complex amplitude of the total field directed along \hat{y} can be written as [13],

$$E(x, z) = E_{\text{ref}}(x, z) + \int G(x - x', z, z') \chi(x', z') E(x', z') dx' dz', \quad (2)$$

where E_{ref} is the field that would exist without the objects, $G(x - x', z, z')$ denotes the field at (x, z) radiated by a line source placed at (x', z') above the substrate and $\chi(x', z') = 1 - \varepsilon(x', z')$ is the permittivity contrast which is nonzero only in the objects. Equation (2) can be used in the far-field zone to describe the scattered field measured in the Fourier plane and in the near-field zone to estimate the field inside the objects. If single scattering and paraxial approximation are assumed, Eq. (2) reduces to Eq. (1) and the scattered far field is related to only one spatial frequency of the sample reflectance. Outside these conditions, it can be shown from Eq. (2) that the scattered far-field depends, in a complex

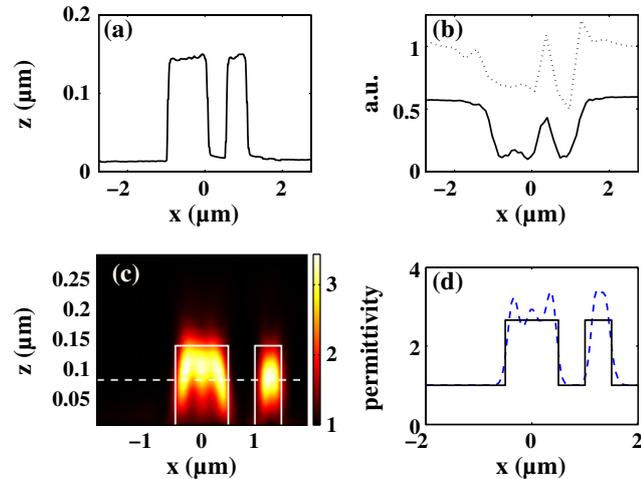


FIG. 3 (color online). The sample is constituted of two rectangular rods of resin deposited on a silicon substrate. The rods height is 140 nm and their widths are 1 μm and 500 nm. The rods are separated by 500 nm side to side. (a) Height profile provided by the AFM. (b) Dotted line: squared modulus of the reflectance obtained with ODT-LIA approach [7]. Solid line: Intensity measured at the image plane of a wide-field optical microscope with $\text{NA} = 0.75$ and red incoherent light. (c) Map of the permittivity obtained with the Non-Linear Inversion Algorithm applied to the same data as that used in the ODT-LIA approach. (d) Comparison along the dashed line plotted in (c) of the reconstructed permittivity (dashed line) with the actual value (solid line).

way, on all the object spatial frequencies [14,15]. While the latter cannot be unraveled explicitly, several works have pointed out that inversion algorithms based on a rigorous simulation of the diffracted field could give images containing spatial frequencies above that given by the single-scattering analysis [15–18].

To reconstruct the permittivity map of the sample, we developed a nonlinear inversion algorithm [13] in which χ , restricted to a bounded investigating domain above the substrate, is updated gradually by minimizing a cost function that describes the discrepancy between the measured scattered far-field and the simulated one. Multiple scattering within the sample is taken into account by computing rigorously at each iteration step the field inside the investigating domain. We have considered several samples consisting in parallel rods of resin, with rectangular cross-sections, deposited on a silicon substrate. The relative permittivity of the silicon and the resin is $\varepsilon = 15.07$ and $\varepsilon = 2.66$, respectively. We used 10 incidences with angles θ_{inc} varying between $\pm\theta_{\text{inc,max}} = 32^\circ$ and collected the scattered field for about 600 observation angles θ_d ranging between $\pm\theta_{d,\text{max}} = 46^\circ$. With such incident and collection numerical apertures, the Abbe limit is given by $\lambda/(\sin\theta_{\text{inc,max}} + \sin\theta_{d,\text{max}}) \approx 500$ nm.

The first sample (Fig. 3) is made of two rods of height 140 nm and widths 1 μm and 500 nm, separated by 500 nm. The second sample (Fig. 4), consists of three rods of height 110 nm and width 200 nm separated by 300 nm. The third sample (Fig. 5) is similar to the second one except that the rod width is 100 nm. Figures 3(a), 4(a), and 5(a) show the profile of the rods as measured by an atomic force microscope. For the three samples, we plot the intensity given by a standard wide-field microscope with $\text{NA} = 0.75$ and enlargement $\times 100$, the squared modulus of the reflectance given by the standard inverse

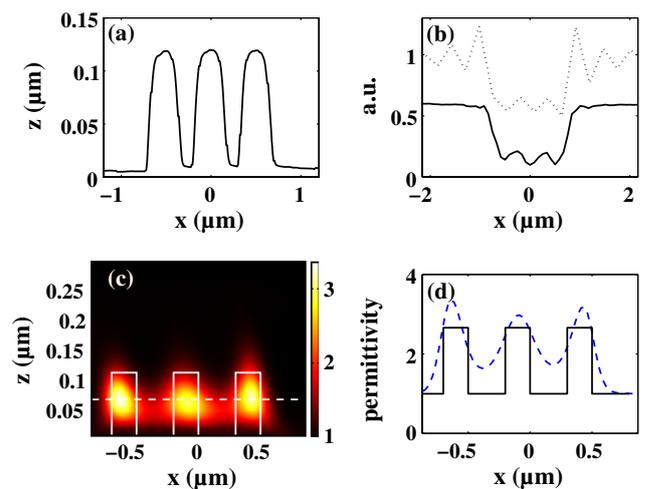


FIG. 4 (color online). Same as Fig. 3 except that the sample is constituted of three identical resin rods of height 110 nm and width 200 nm separated by 300 nm side to side.

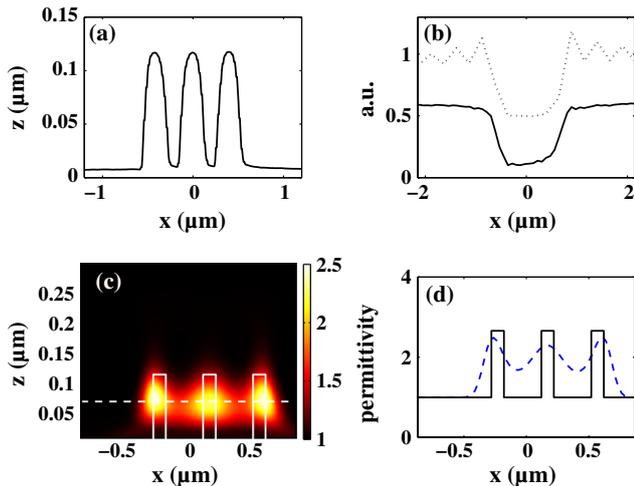


FIG. 5 (color online). Same as in Fig. 4 but the rods width is 100 nm.

Fourier algorithm, and the map of permittivity given by the nonlinear inversion algorithm.

We observe that, in all examples, the power of resolution of ODT-LIA is similar to that of the wide-field microscopy while it is clearly outperformed by the same ODT approach combined with the Non-Linear Inversion Algorithm (ODT-NLIA). The disappointing performances of ODT-LIA, as compared to those of the wide-field microscope, stem mainly from the Gibbs phenomenon and the strong sensitivity to the data noise that deteriorate the reconstructed reflectance.

The superiority of the ODT-NLIA is particularly blatant in Fig. 5 where the center interdistance of the rods, equal to 400 nm is smaller than the Abbe limit. Indeed, ODT-LIA fails to separate the rods [Fig. 5(b)], contrary to the ODT-NLIA [Fig. 5(d)]. In this last case, the separation between the rods is so marked that it is likely that 400 nm is not the ultimate resolution of the imager. In our opinion, the significant improvement brought by the ODT-NLIA is essentially due to the fact that, first, it takes advantage of the *a priori* information that the objects are deposited on a known substrate and that their permittivity is positive; second, it is based on a rigorous calculation of the diffracted field so that it is not plagued by any model error and it has potentially access to spatial frequencies that are higher than that given by the single-scattering analysis.

Note that, besides the gain in transverse resolution, the ODT-NLIA is also able to estimate the height of the objects with a high sensitivity: the 30 nm difference between the

heights of the rods in Figs. 3–5, is clearly visible on the reconstructed map of permittivity.

In conclusion, we believe that combining ODT with inversion algorithms resorting to accurate modeling of the wave-object interaction is a promising path for high resolution quantitative imaging of complex objects. The quantitative information provided by this kind of imager (permittivity distribution with high axial and transverse resolutions), is, to our knowledge, out of reach of all present imaging systems. Sub-100 nm resolution in both axial and transverse directions is expected with the latest objectives presenting a numerical aperture of about 1.5, or with the recently proposed grating-assisted ODT approach [2]. Note that digital imaging should be all the more interesting now that computation facilities are increasing.

- [1] P.S. Carney, R.A. Frazin, S. Bozhevolnyi, V.S. Volkov, A. Boltasseva, and J.C. Schotland, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 163903 (2004).
- [2] A. Sentenac, P.C. Chaumet, and K. Belkebir, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 243901 (2006).
- [3] Z. Liu, H. Lee, Y. Xiong, C. Sun, and X. Zhang, *Science* **315**, 1686 (2007).
- [4] W. Choi, C. Fang-Yen, K. Badizadegan, S. Oh, N. Lue, R. Dasari, and M. Feld, *Nat. Methods* **4**, 717 (2007).
- [5] N. Streibl, *J. Opt. Soc. Am. A* **2**, 121 (1985).
- [6] G.Y. Panasyuk, V.A. Markel, P.S. Carney, and J.C. Schotland, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 221116 (2006).
- [7] S.A. Alexandrov, T.R. Hillman, T. Gutzler, and D.D. Sampson, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 168102 (2006).
- [8] V. Lauer, *J. Microsc.* **205**, 165 (2002).
- [9] A. Neumann, Y. Kuznetsova, and S.R. Brueck, *Opt. Express* **16**, 6785 (2008).
- [10] V. Mico, Z. Zalevsky, P. Garcia-Martinez, and J. Garcia, *J. Opt. Soc. Am. A* **23**, 3162 (2006).
- [11] M. Debailleul, B. Simon, V. Georges, O. Haeberlé, and V. Lauer, *Meas. Sci. Technol.* **19**, 074009 (2008).
- [12] I. Yamaguchi and T. Zhang, *Opt. Lett.* **22**, 1268 (1997).
- [13] K. Belkebir and A. Sentenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **20**, 1223 (2003).
- [14] C.-A. Guérin and A. Sentenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **21**, 1251 (2004).
- [15] F. Simonetti, *Phys. Rev. E* **73**, 036619 (2006).
- [16] F.C. Chen and W.C. Chew, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3080 (1998).
- [17] K. Belkebir, P.C. Chaumet, and A. Sentenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **23**, 586 (2006).
- [18] A. Sentenac, C.-A. Guérin, P.C. Chaumet, F. Drsek, H. Giovannini, N. Bertaux, and M. Holschneider, *Opt. Express* **15**, 1340 (2007).

Nanometric resolution using far-field optical tomographic microscopy in the multiple scattering regime

Jules Girard,¹ Guillaume Maire,¹ Hugues Giovannini,¹ Anne Talneau,² Kamal Belkebir,¹
Patrick C. Chaumet,¹ and Anne Sentenac¹

¹*Institut Fresnel (CNRS UMR 6133), Aix-Marseille Université, F-13013 Marseille, France*

²*CNRS, Lab Photon & Nanostruct, F-91460 Marcoussis, France*

(Received 30 July 2010; published 10 December 2010)

The resolution of optical far-field microscopes is classically diffraction-limited to half the illumination wavelength. We show experimentally that this fundamental limit does not apply in the multiple scattering regime. We used tomographic diffractive microscopy at 633 nm to image two pairs of closely spaced rods (with a width and interdistance of 50 nm) of widely different diffractive properties. Using an inversion algorithm accounting for multiple scattering, only the pair of highly diffracting rods could be clearly visualized with a resolution similar to that of an atomic force microscope.

DOI: [10.1103/PhysRevA.82.061801](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.82.061801)

PACS number(s): 42.30.Wb, 42.25.Fx

It is generally accepted that the resolution of far-field optical imagers cannot fall below half the wavelength in the observation medium, $\lambda/2$. This fundamental limit stems from the fact that, for frequencies above $k_0 = 2\pi/\lambda$, the Fourier components of the diffracted field vanish exponentially as they leave the object. Since these evanescent waves encode the high spatial frequency components of the object, their detection is the major challenge of optical imaging. The common strategy of the various techniques that have permitted imaging of nonfluorescent objects with a resolution well beyond the diffraction limit consists in placing the object in the close vicinity of a material probe. This probe can be a subwavelength tip that is moved a few nanometers above the object, as in near-field microscopy [1]. It can also be a structured substrate, viewed as an extended probe, as in grating-assisted microscopy [2,3] or in hyperlense microscopy [4]. In all these cases, the super-resolution is explained by the phenomenon of multiple scattering between the object and the probe. Basically, the evanescent field radiated by the object is scattered by the probe into propagative waves that are detectable in the far field. Conversely, the incident propagative waves can be converted by the probe into high-frequency evanescent fields [2,5–7]. Multiple scattering can also take place within an object made of highly diffracting material. Potentially, such an object could act as a near-field probe for itself. In this case, the question remains whether super-resolved images could be obtained from its sole diffracted far field. This fundamental issue has received particular attention in the past five years [8–10] with mixed or even controversial results due to its complexity. Generally, multiple scattering is seen as a major drawback for imaging as it breaks the linear link between the diffracted field and the object. In this regime, meaningful images cannot be obtained analogically and henceforth advanced inversion procedures are required. The resolution of such numerically reconstructed images is difficult to quantify as it depends on, among other factors, *a priori* information on the object and the noise level [11–13]. Hence, there is still no clear demonstration that multiple scattering can benefit the imaging process in the optical domain.

In this work we show that, in the multiple scattering regime, sub- $\lambda/2$ features of the sample can strongly modify the diffracted far field. Tomographic diffractive microscopy can take advantage of this phenomenon to obtain super-resolved images. As a result, samples made of highly diffracting material could be resolved well beyond the standard $\lambda/2$ limit.

We consider a reflection microscope in which the sample is placed on a glass substrate and possibly illuminated under total internal reflection (Fig. 1). For the sake of simplicity and for illustrative purposes, we assume that the sample is invariant along the y axis and is described by its permittivity contrast $\xi(x, z) = \varepsilon(x, z) - 1$, which can be written as $\eta(x)h(z)$, where $h(z) = 1$ for $0 < z < H$ and 0 elsewhere. The sample is illuminated by a s -polarized monochromatic plane wave (in which the electric field is directed along the y axis) in the (x, z) plane depicted by its x -component wave vector $\alpha_i = k_0 \sin \theta_i$, where $k_0 = 2\pi/\lambda$ and θ_i is the incidence angle. From Maxwell's equations, the total electric field E satisfies the self-consistent integral equation [14,15]

$$E(x, z) - E_{\text{ref}}(x, z) - \int G(x - x', z, z') \xi(x', z') E(x', z') dx' dz' = 0, \quad (1)$$

where E_{ref} is the field that would exist without the sample and $G(x - x', z, z')$ denotes the field at (x, z) radiated by a line source located at (x', z') above the substrate. Both the diffracted far field and the total field inside the sample can be calculated from Eq. (1). If the sample is weakly diffracting, one can assume that $E \approx E_{\text{ref}}$. This assumption is known as the Born or the single scattering approximation. In this case, straightforward calculations from Eq. (1) show [14] that, if $\lambda \gg H$, the far field diffracted by the sample in the direction specified by the x -component wave vector $\alpha_d = k_0 \sin \theta_d$ reads

$$e(\alpha_i, \alpha_d) \propto \tilde{\eta}(\alpha_d - \alpha_i), \quad (2)$$

where $\tilde{\eta}(\alpha)$ is the Fourier transform of $\eta(x)$. The linear relationship between the object and the diffracted field given by Eq. (2) is at the basis of most far-field imaging techniques. Since $|\alpha_i| < k_0$ and $|\alpha_d| < k_0$, spatial frequencies α of the

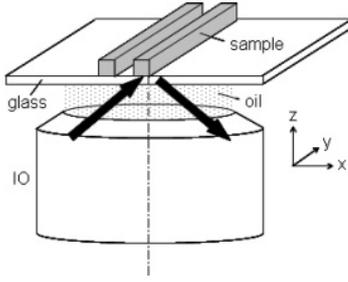


FIG. 1. Reflection microscope: Samples are deposited on a glass substrate and illuminated through the substrate by an immersion objective (IO). The backscattered field is collected by the same IO.

object that are accessible under single-scattering analysis are contained in the interval $\Omega = [-2k_0, 2k_0]$. The frequency limit $2k_0$, which is obtained for an imaging configuration allowing grazing illumination and detection, corresponds to the diffraction frequency limit (Abbe's limit).

If the sample is strongly diffracting and multiple scattering is present, the link between the diffracted field and the sample is no longer linear. For example, assuming a double-scattering process, the second-order development of the Born series of Eq. (1) reads [14]

$$e(\alpha_i, \alpha_d) \propto \tilde{\eta}(\alpha_d - \alpha_i) + \int B(\alpha_d, \alpha_i, \alpha) \tilde{\eta}(\alpha - \alpha_i) \tilde{\eta}(\alpha_d - \alpha) d\alpha. \quad (3)$$

In this case one observes that the diffracted far field depends on all the spatial Fourier components of the object permittivity contrast. Hence, information on spatial frequencies of the object beyond $2k_0$ could possibly be obtained in the far field if the permittivity contrast is strong enough for the integral term in Eq. (3) to be significant.

To illustrate this assertion, we have considered samples defined by $\eta(x) = \Delta\epsilon(1 + u \cos Kx)l(x)$, where $l(x) = 1$ for $-L/2 < x < L/2$ and 0 elsewhere. When u is equal to zero, the object is a homogeneous rod of width L , height H , and permittivity contrast $\Delta\epsilon$. When $u = -1$ the permittivity contrast of this rod is modulated by a cosine with spatial frequency K . From rigorous simulations performed by solving Eq. (1) [15] we represent in Fig. 2 the angular behavior of the intensity of the far field diffracted from homogeneous and modulated rods. Calculations have been performed for an illumination wavelength of 633 nm, $L = 600$ nm, $H = 70$ nm, $K = 5k_0$, $\theta_i = 50^\circ$, and different permittivity contrasts $\Delta\epsilon = 2, 7$, and 14. Note that the modulation frequency is larger than twice the Abbe frequency limit. When the contrast is small, the single-scattering approximation is valid and the far field is accurately described by $\tilde{\eta}$. In this case, the intensities of the homogeneous and modulated rods are identical. When $\Delta\epsilon$ increases, the difference between the homogeneous and modulated rod intensities is strongly accentuated, showing that high-frequency object modulations modify significantly the diffracted far field. Imaging techniques accounting for multiple scattering could thus take advantage of this far-field signature for obtaining super-resolved images.

We have implemented a tomographic diffractive microscopy experiment in which the sample lies on a glass

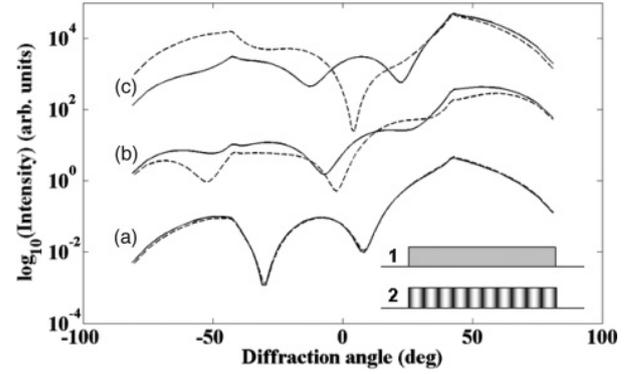


FIG. 2. Computation of the far-field intensity diffracted by a rectangular rod of width 600 nm and height 70 nm, when its permittivity contrast is constant (solid line, inset 1) or modulated by a cosine of spatial frequency $K = 5k_0$ (dashed line, inset 2). The insets represent the sample with η in gray scale. The illumination wavelength is 633 nm and the incident angle is 50° . Permittivity contrast values are (a) $\Delta\epsilon = 2$, (b) $\Delta\epsilon = 7$, and (c) $\Delta\epsilon = 14$.

cover and is illuminated through an oil immersion microscope objective (Nikon $\times 40$, numerical aperture $NA = 1.3$) with a collimated laser beam of wavelength 633 nm (see Fig. 1). The backscattered field is collected by the same objective and measured in the rear focal plane using a phase-shifting interferometry technique [11,16]. Far-field measurements are carried out for 10 incidence angles θ_i and for about 700 observation angles θ_d distributed over the objective NA.

To retrieve the permittivity map of the sample from the diffracted field, we use an iterative inversion scheme accounting for multiple scattering, described in Refs. [16,17]. At each iteration step, both ξ and E are simultaneously estimated within a box corresponding to the field of view W of the microscope by minimizing a cost function $\mathcal{F}(\xi, E)$ of the form [17]

$$\mathcal{F}(\xi, E) = \frac{\sum_{\theta_i, \theta_d} |\rho_{\text{far}}(\theta_i, \theta_d)|^2}{\sum_{\theta_i, \theta_d} |E_{\text{meas}}(\theta_i, \theta_d)|^2} + \frac{\sum_{\theta_i} \sum_{x, z \in W} |\rho_{\text{near}}(\theta_i, x, z)|^2}{\sum_{\theta_i} \sum_{x, z \in W} |E_{\text{ref}}(\theta_i, x, z)|^2}. \quad (4)$$

E_{meas} is the measured scattered far field, ρ_{far} is the difference between E_{meas} and the simulated far field for the estimates of ξ and E , and ρ_{near} is the left-hand side of Eq. (1) evaluated with the same estimates of ξ and E . The minimization of ρ_{near} ensures that the field inside the sample is accurately computed even when multiple scattering is present.

Like all inversion procedures, our reconstruction algorithm assumes the finite extent of the object (indicated by the investigating domain W). Now, it is known that, if the sample is bounded, images with infinite resolution can theoretically be obtained from the diffracted far field even under the single-scattering approximation because of the analyticity of $\tilde{\eta}$ [18]. However, the inversion process, which consists in extending $\tilde{\eta}$ in the whole Fourier space from its known restriction in Ω , is curtailed by the presence of noise [13]. Therefore, in practice, it does not permit a significant improvement of the resolution beyond the Abbe limit. Adding more *a priori* information on the object is another way to improve the quality and the resolution of the reconstructions [12]. Here, only the positivity

of the object permittivity contrast is used in the algorithm. Yet, this comment highlights the difficulty in assessing the origin of the resolution improvement when numerical reconstruction procedures are used inasmuch as the noise, the size of W , and the amount of *a priori* knowledge all play a crucial role.

To overcome this issue, we have considered two samples with the same topography but with different permittivities so that one falls within the single-scattering approximation whereas the other supports significant multiple scattering (Fig. 3). The samples consist of two rods of a width of 50 nm, a height of 25 nm, and a separation distance of 50 nm. These dimensions fall far below the Abbe limit of the imager. The relative permittivity of the highly scattering sample is $29.8 + i7.3$, which corresponds to germanium at 633 nm, and that of the low contrast object is 1.01. We have checked that the permittivity losses play a negligible role with such object dimensions. We first plot in Figs. 3(a) and 3(b) the modulus of the field $|E|$ within W obtained by solving Eq. (1) for both samples with a total internal reflection illumination at $\theta_i = -50^\circ$. As expected, $|E|$ is close to the reference field modulus $|E_{\text{ref}}|$ for the weakly contrasted sample and very different from $|E_{\text{ref}}|$ for the highly diffracting rods. In this latter case, one observes a hot subdiffraction spot localized in one rod. Varying θ_i induces a displacement of the spot within the object. Unsurprisingly, the far field (not shown) diffracted by the weakly scattering rods is very different from that diffracted by the strongly scattering rods in shape, modulus (with one being 2000 times higher than the other), and phase.

We display in Fig. 3(c) the reconstructed permittivity obtained by the nonlinear inversion algorithm for the weakly diffracting rods. The far-field data used in the inversion procedure were simulated with Eq. (1) so that they were only spoiled by numerical errors (discretization and truncature). We stopped the inversion procedure when the minimized cost function \mathcal{F} reached a value about 1%. We observe that, even without noise and with the *a priori* knowledge of finite extent of the object and positivity of its permittivity contrast, the reconstruction scheme fails in separating the two rods. We then studied the case of the highly diffracting rods using the same data simulation and inversion procedures. In this case, the two highly diffracting rods could be clearly resolved (results not shown). To confirm this result experimentally, measurements were performed with the tomographic diffractive microscope on germanium rods. The rods were fabricated by electron beam lithography, coupled to reactive ion etching and lift-off techniques, and characterized after the fabrication with a scanning electron microscope. The experimental noise, evaluated as the squared modulus of the relative difference between the simulated and the measured diffracted fields, reaches 39%. During the inversion, \mathcal{F} did not decrease below 28%. Yet, the two rods could be easily separated on the reconstructed map of permittivity [Fig. 3(d)]. For comparison, we have plotted in Fig. 3(d) the atomic force microscope (AFM) profile of the sample, which confirmed that both the transverse and axial dimensions of the rods were accurately retrieved. Figures 3(e) and 3(f) show the permittivity profile along the white dashed line of Figs. 3(c) and 3(d), respectively, and Fig. 3(g) presents the normalized modulus of the Fourier transforms of these permittivity profiles, as a function of the transverse spatial frequency in k_0 units. While the object

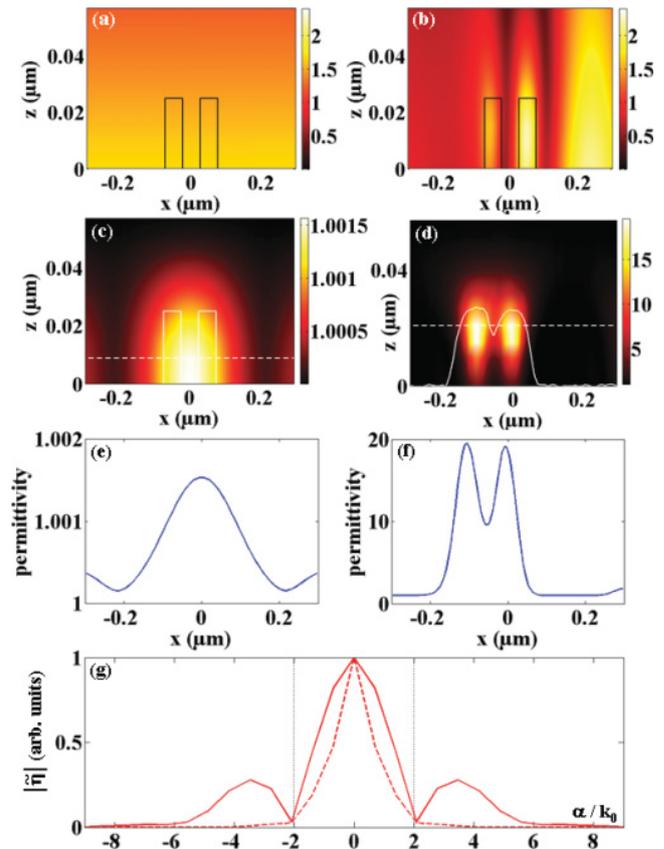


FIG. 3. (Color online) Imaging of two rods (width = 50 nm, height = 25 nm, and interdistance = 50 nm) in the single or multiple scattering regimes. (a, c, e) The rods have a relative permittivity of 1.01. (b, d, f) The rods have a relative permittivity of $29.8 + i7.3$ (germanium at 633 nm). (a, b) Map of the electric field modulus $|E|$ simulated inside the investigation domain W for an incident angle of -50° . (c) Permittivity map reconstructed from simulated far-field data (where the solid white line is the actual height profile). (d) Permittivity map reconstructed from the experimental data obtained with the tomographic diffractive microscope (where the solid white line is the experimental AFM height profile of the same sample). (e, f) Permittivity profile along the dashed white line shown in (c) or (d). (g) Normalized modulus of the Fourier transform of the permittivity profile of (e) (dashed line) and (f) (solid line); spatial frequencies are shown in k_0 units; dotted vertical lines indicate the Abbe frequency limit.

spatial frequencies are not retrieved beyond the Abbe limit (dotted vertical lines) in the low-permittivity case (dashed line), they are accurately estimated in an extended range up to three times the Abbe limit in the high-permittivity case (solid line). We believe that this achievement is due to the multiple scattering phenomenon, which yields a selective illumination of the rods depending on the incident angle, as seen in Fig. 3(b). Actually, this subdiffraction light spot that first focuses on one rod and then moves to the other is quite similar to that which would be generated by a scanning near-field probe [1]. This observation points out the major issue of imaging techniques in the multiple scattering regime: Their performances depend on how the internal field probes the sample when the incidence angle is varied. In Fig. 4(a) we

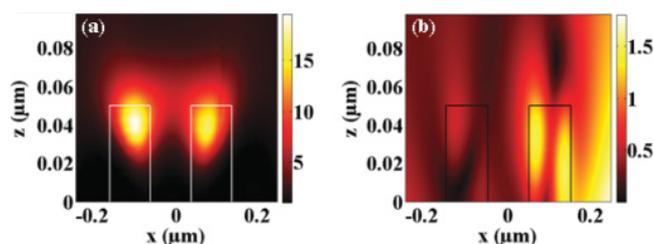


FIG. 4. (Color online) (a) Reconstructed permittivity map for two rods spaced by 100 nm, with a width of 100 nm and a height of 50 nm. (b) Modulus of the field $|E|$ simulated when the rods are illuminated at -50° .

plot the reconstructed permittivity obtained from experimental data of two germanium rods spaced by 100 nm, with width of 100 nm and a height of 50 nm (where the white line represents the actual height profile). The simulated total field modulus $|E|$ in W displayed in Fig. 4(b) shows that, similarly to Fig. 3(b), multiple scattering yields subdiffraction bright spots that are likely to probe the fine details of the object. Yet, the total field intensity averaged in W over all the incidence angles is mostly localized at the top of the rods (result not shown).

As a result, the reconstructed permittivity is localized in this region. However, it still provides accurate estimates of the height, width, and interdistance of the rods.

Hence, with these highly diffracting samples, our approach was able to distinguish rods heights of 25 and 50 nm, rod widths of 50 and 100 nm, or rod interdistances of 50 and 100 nm. This achievement demonstrates that the power of resolution of digital far-field microscopes in the multiple scattering regime can be much better than the classical Abbe limit provided inversion algorithms based on a rigorous modeling of the wave-sample interaction are used. The quality of the retrieved permittivity maps could be further improved by using additional *a priori* knowledge of the sample [12] and regularization terms in Eq. (4) [19]. The main issue is that the resolution limit of this approach cannot be easily defined as it depends both on the optical setup and on the sample under study. Yet, we believe that this method could be most interesting for imaging nanostructured devices like those manufactured in the microelectronic domain.

The authors are profoundly grateful to Sonia Valls for her contribution to the measurement campaign.

-
- [1] F. de Fornel, *Evanescent Waves: From Newtonian Optics to Atomic Optics*, vol. 73 of Optical Sciences Series (Springer-Verlag, Berlin, 2001).
- [2] A. Sentenac, P. C. Chaumet, and K. Belkebir, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 243901 (2006).
- [3] Z. Liu, S. Durant, H. Lee, Y. Pikus, N. Fang, Y. Xiong, C. Sun, and X. Zhang, *Nano Lett.* **7**, 403 (2007).
- [4] Z. Liu, H. Lee, L. Xiong, C. Sun, and X. Zhang, *Science* **315**, 1686 (2007).
- [5] G. Lerosey, J. de Rosny, and M. Fink, *Science* **315**, 1120 (2007).
- [6] A. Sentenac and P. C. Chaumet, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 013901 (2008).
- [7] M. J. Steel, B. Marks, and A. Rahmani, *Opt. Express* **18**, 1487 (2010).
- [8] A. Sentenac, C.-A. Guérin, P. C. Chaumet, F. Drsek, H. Giovannini, N. Bertaux, and M. Holschneider, *Opt. Express* **15**, 1340 (2007).
- [9] F. Simonetti, *Phys. Rev. E* **73**, 036619 (2006).
- [10] J. de Rosny and C. Prada, *Phys. Rev. E* **75**, 048601 (2007).
- [11] G. Maire, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 213905 (2009).
- [12] P. C. Chaumet, K. Belkebir, and A. Sentenac, *J. Appl. Phys.* **106**, 034901 (2009).
- [13] P. J. Sementilli, B. R. Hunt, and M. S. Nadar, *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 2265 (1993).
- [14] C.-A. Guérin and A. Sentenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **21**, 1251 (2004).
- [15] J.-J. Greffet, *Opt. Commun.* **72**, 274 (1989).
- [16] G. Maire, J. Girard, F. Drsek, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *J. Mod. Opt.* **57**, 746 (2010).
- [17] K. Belkebir and A. Sentenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **20**, 1223 (2003).
- [18] G. Toraldo di Francia, *J. Opt. Soc. Am.* **45**, 497 (1955).
- [19] K. Belkebir and M. Saillard, *Inverse Probl.* **21**, S1 (2005), and references therein.

Nanometric Resolution with Far-Field Optical Profilometry

S. Arhab,¹ G. Soriano,¹ Y. Ruan,¹ G. Maire,¹ A. Talneau,² D. Sentenac,³ P. C. Chaumet,¹
K. Belkebir,¹ and H. Giovannini¹

¹*Aix-Marseille Université, CNRS, Centrale Marseille, Institut Fresnel, UMR 7249, 13013 Marseille, France*

²*Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS, 91460 Marcoussis, France*

³*European Gravitational Observatory, 56021 Cascina (PI), Italy*

(Received 10 April 2013; published 2 August 2013)

We show experimentally that a resolution far beyond that of conventional far-field optical profilometers can be reached with optical diffraction tomography. This result is obtained in the presence of multiple scattering when using an adapted inverse scattering algorithm for profile reconstruction. This new profilometry technique, whose resolution can be compared to that of atomic microscopes, also gives access to the permittivity of the surface.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.053902](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.053902)

PACS numbers: 42.30.Wb, 41.20.-q, 42.25.Fx

Determining the topography of surfaces at the nanoscale is a crucial issue in different domains ranging across optics, mechanics, nanotechnology, and surface science. Depending on the required resolution and on the conditions of observation, different types of interaction between the probe and the sample can be used. A subnanometer resolution can be reached with scanning electron microscopes (SEMs). The main drawback in this case is that the sample must be placed in vacuum and, in certain cases, depositing a thin layer of metal on the surface is necessary. In near-field scanning optical microscopes, a tapered optical fiber placed in the vicinity of the surface couples out the evanescent components of the field that carry out information on the subwavelength details of the profile. However, the coupling between the local probe and the sample makes the topography difficult to retrieve from these data. In atomic force microscopes (AFMs) a tip having a radius of curvature of a few nanometers is in contact with the sample. This technique provides nanometric resolution; however, its implementation is restrictive to a laboratory environment. Optical profilometers based on far-field reflectance measurements [1–5] may circumvent the problems mentioned above. However, their lateral resolution is limited by diffraction. Moreover, accurate results can only be obtained if the scattering from the surface can be approximated by single reflections from horizontal tangent planes, which is relevant only when slopes of the profile are small.

In view of these considerations, developing a new non-contact optical profilometry technique having subwavelength resolution, capable of dealing with randomly rough profiles while giving also the value of the dielectric constant of the surface, appears to be of high interest for a wide range of applications. Recent progress in optical diffractive tomographic microscopy (ODTM) has shown that this quantitative metrology technique can be very powerful for imaging three-dimensional objects [6,7]. In ODTM, the modulus and the phase of the scattered far field are measured for various incidence angles. A numerical

inversion algorithm is then applied to determine the geometrical parameters (shape, permittivity distribution within the sample) from the scattered far-field data. The scattering regime plays a key role in the performances in terms of resolution. In the single scattering regime, the resolution limit is given by the Rayleigh-Abbe criterion. It has been demonstrated that this limit can be strongly overcome when multiple scattering becomes predominant [8–10]. In this case numerical inversion algorithms based on a rigorous resolution of Maxwell's equations must be used. Recently preliminary numerical simulations have demonstrated [11,12] the potentialities of ODTM applied to profilometry.

In this Letter we develop a profilometry setup based on an ODTM configuration. We show that, in the presence of multiple scattering, resolutions far beyond those obtained with far-field optical profilometers are obtained. We show in particular that using a nonlinear inversion algorithm based on a rigorous theory of surface scattering is the key for obtaining resolutions beyond the Rayleigh-Abbe criterion. We compare reconstructed profiles to those measured with electronic and atomic force microscopes and we show that the permittivity of the surface can be determined with the same setup.

The setup is depicted in Fig. 1 [13]. The light emitted at 632.8 nm by a 10 mW HeNe laser is divided in two parts. The first part is sent to the sample, which is illuminated by parallel beams whose angles of incidence θ_{inc} can be varied thanks to the rotation of the mirror. For each incidence angle θ_{inc} , the reflected diffracted far-field E_d is collected for various observation angles θ_d by the microscope objective (Zeiss Epiplan-Apochromat 50 \times with numerical aperture NA = 0.95 in air). An image is obtained in the focal plane of L_3 . The second beam is spatially filtered by a pinhole to generate an aberration-free collimated reference wave. The reference beam is superimposed, through the beam splitter BS₃, to the image field coming from the sample. An off-axis digital hologram of the diffracted field

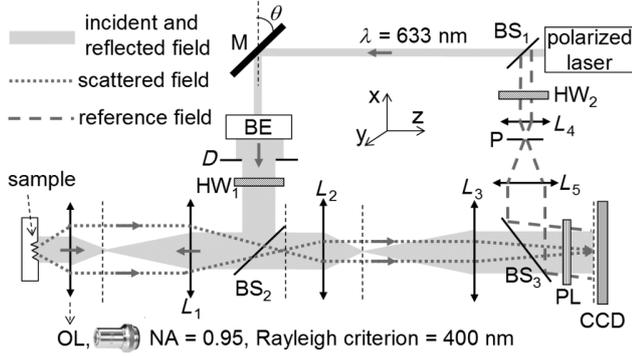


FIG. 1. Schematic of the full-polarized ODTM setup. M is the rotative mirror. BE is the beam expander. D is the diaphragm. P is the pinhole. BS is the beam splitter. OL is the objective lens. L_1 is the tube lens. L_2 and L_3 are the relay lenses ($f' = 3.5$ cm and 20 cm, respectively). HW_1 and HW_2 are the half-wave plates on the incident field and reference field, respectively, to measure in the TE or TM configuration. Polarizer PL can be rotated in order to perform ellipsometric measurements on the specular reflected beam.

is then recorded on a CCD camera (Kappa PS4-1020) placed in the focal plane of the lens L_3 . The polarization of the incident beam and of the reference one can be adjusted thanks to the half-wave plates HW_1 and HW_2 . It is then possible to study the cases of the TE and TM polarizations. Polarizer PL can be rotated in order to perform ellipsometric measurements on the reflected specular beams. In this Letter we limit our study to samples invariant along the y axis. In this case the electromagnetic problem of scattering in TE and in TM polarization can be split in two scalar cases.

Once the measurements of the scattered fields E_d are carried out for various incidence angles, the surface profile is reconstructed using an inverse scattering algorithm. Under single scattering models such as the Kirchhoff-Fraunhofer (KF) or Born approximations, the surface profile is derived by applying inverse Fourier transformations of the measured scattered fields [14,15]. When multiple scattering is predominant, the inverse scattering problem is traditionally expressed as an optimization problem solved iteratively. The Newton-Kantorovich (NK) iterative procedure is one of the techniques that solve the inverse scattering problem [16–18]. The basic idea underlying the NK method is to retrieve gradually the surface profile by minimizing a cost functional describing the discrepancy between the measurement and the field that would be obtained via the scattering forward rigorous model [16]. Assume that the scattered field E_d is linked to the surface, parametrized by the height h , through the scattering operator \mathbf{A}

$$E_d^l = \mathbf{A}^l h, \quad (1)$$

where the superscript $l = 1, \dots, L$ indexes the L incidence angles for which the scattered field is measured. At the i th

iteration step, the estimation of the surface profile is corrected from the previous one $h_i = h_{i-1} + \delta h_i$ where the correction δh_i is the mean least square solution of

$$\delta E_d = \mathbf{D} \delta h_i. \quad (2)$$

The Fréchet derivative \mathbf{D} is determined by solving an adjoint forward scattering problem. Details of the derivation of \mathbf{D} for the perfectly conducting case are reported in Refs. [11,12,18]. In the present Letter, the derivation of \mathbf{D} is extended to the case of surfaces having a finite relative permittivity ϵ . Hence, we have expressed the Fréchet derivative for a given contrast of permittivity $\chi = \epsilon - 1$. The residual error on the scattered field $\delta E_d^{m,l}$, for an incident angle θ_l and a scattering angle θ_m , writes as a contour integral over the profile Γ . For the TE polarization case, two total fields E_Γ^l and \tilde{E}_Γ^m on Γ are involved. The field E_Γ^l is the solution of the forward problem with the incidence angle θ_l , while \tilde{E}_Γ^m is the solution of an adjoint scattering problem with angle $-\theta_m$. The variation of the scattered field with respect to the variation of the height h of the surface Γ , expressed symbolically in Eq. (2), takes the following explicit form

$$\delta E_d^{m,l} = k^2 \chi \int_\Gamma E_\Gamma^l \tilde{E}_\Gamma^m \delta h d\Gamma, \quad (3)$$

where $k = 2\pi/\lambda$ is the wave number in vacuum. For the TM polarization case, both the normal and tangential derivatives of the two fields E_Γ and \tilde{E}_Γ on Γ are involved instead of the fields and

$$\delta E_d^{m,l} = \int_\Gamma \left(\chi \partial_n E_\Gamma^l \partial_n \tilde{E}_\Gamma^m + \frac{\chi}{1 + \chi} \partial_t E_\Gamma^l \partial_t \tilde{E}_\Gamma^m \right) \delta h d\Gamma, \quad (4)$$

where ∂_n and ∂_t denote the normal and the tangential derivative of the relevant field, respectively. As described in Ref. [12], to improve the resolution, we first apply the NK algorithm to the TE-polarized data using as the initial guess a plane. The final result is used as the initial estimate for the inversion of the TM-polarized data.

Different normalization steps are done in order to calibrate the setup. Measurements are firstly made on the specular reflection of a reference flat surface of known permittivity. Here we have used a flat silicon sample (permittivity $\epsilon = 15.1 + 0.15i$). The measurement of the intensity distribution on the camera for the different angles of incidence allows us to determine the incident intensity distribution on the sample. This information will be used to normalize the measured scattered amplitudes. Ellipsometric measurements performed at a known incidence angle by rotating polarizer PL [19] permit us to determine the unknown complex reflection and transmission coefficients of the optical components present between the source and the camera. Then the sample under investigation is placed in the setup. We assume that the amplitude of the field scattered from the sample in the specular direction is negligible compared to the amplitude

of the specular reflection. This assumption is valid when the size of the corrugated region is negligible compared to the size of the illuminated surface. It is therefore well adapted to the samples studied here that consist of grooves of small dimensions etched in an indium phosphate (InP) substrate. The permittivity of the InP surface is determined from the ellipsometric normalized measurements made on the specular beam. In order to compensate for possible phase fluctuations between the successive illuminations caused by random variations of the optical path, the measured phase of the scattered field for each illumination angle is shifted so that the phase in the specular direction is set to the argument of the Fresnel reflection coefficient of the flat surface.

A linear inversion under the Born approximation is first applied. In this case, the scattering sources (here the grooves) can be reconstructed from a simple inverse Fourier transform. Although not valid here, this approximation is useful to obtain a coarse reconstruction of the sample and defines an appropriate domain of investigation for the NK algorithm. The surface to be reconstructed can then be assumed flat outside of this domain. This approach also permits us to correct a residual defocus of the data set due to an imperfect adjustment of the camera in the image plane. This correction is required in order to set the phase origin in the NK algorithm.

In the calculations and in the experiments we have considered grooves etched on an InP surface. We have obtained experimentally a value of the permittivity $\varepsilon = 13.6 + 1.5i$ which is close to the value that can be found for bulk InP at 632.8 nm. We used 22 incidences with angles θ_{inc} varying between $\pm\theta_{\text{inc}}^{\text{max}} = 55.6^\circ$ and 313 observation angles θ_d varying between $\theta_d^{\text{max}} = 58.4^\circ$. This corresponds to a numerical aperture of illumination and collection $\text{NA} \approx 0.85$. The profiles of the samples have been measured with an electron microscope which will be considered as the reference measurement. Measurements have also been made with a scanning white light optical profilometer (ZYGO NewView 7300, $\text{NA} = 0.85$) and with an AFM (Park Systems XE100, Nanoworld NCH tip). The samples considered in this Letter are composed of sets of grooves chemically etched on an InP surface with a HCl/H₃PO₄ mixture (1:3) in the [011] direction. The slopes of the grooves are oriented at 45° with respect to the z axis.

The first sample is made of two trapezoidal grooves of width $3 \mu\text{m}$ and $2 \mu\text{m}$ at the bottom, of height 130 nm, and separated by $2 \mu\text{m}$. Figure 2 shows the results of the reconstructions obtained with the KF approximation (dot dashed line) and with the NK method (dashed line). As expected, for this sample the KF approximation gives satisfactory results. Indeed, for these lateral dimensions and for this aspect factor, scattering can be approximated by reflections on horizontal planes. This is confirmed by the accuracy of the reconstruction obtained with the Zygo

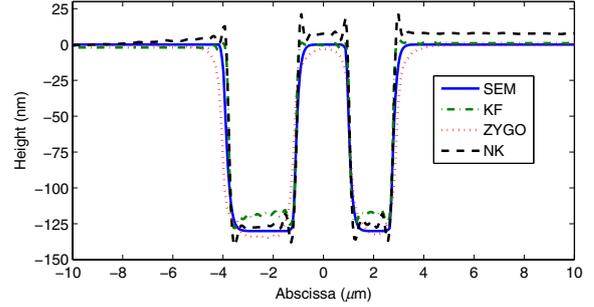


FIG. 2 (color online). The solid line shows the profile given by the SEM. The reconstructed profile given by the KF algorithm (dot dashed line), the Zygo profilometer (dotted line), and NK algorithm (dashed line).

profilometer (dotted line). The reconstruction with the NK method is also very close to the reference profile. In order to test the performances of the ODTM profilometer, we have considered a sample with three triangular grooves of width 200 nm at the surface, with a depth of 80 nm, and separated by 200 nm. In Fig. 3 we show in color scale the reconstruction obtained with the Born approximation, which assumes single scattering. This approach can only reconstruct the scattering sources on the substrate, and not directly the profile of the sample. The transverse resolution is $1.22\lambda/(4\text{NA}) = 227 \text{ nm}$ at $\lambda = 632.8 \text{ nm}$. This method can locate the grooves but is unable to retrieve the profile of the surface.

From the results of Fig. 4(a) one can see that, as expected, the KF approximation cannot be applied in this case. Indeed, the optogeometrical parameters (slopes at 45° , dimensions much smaller than the diffraction limit) of the sample lead to multiple scattering effects that are not described accurately by approximated theories of diffraction. The Zygo profilometer also fails in retrieving the shape of the object. Indeed, the orientations of the slopes at 45° with respect to the optical axis strongly modify the optical path of the reflected part of the field. In addition the dimensions of the grooves are far below the resolution limit given by the numerical aperture of the system. Thus,

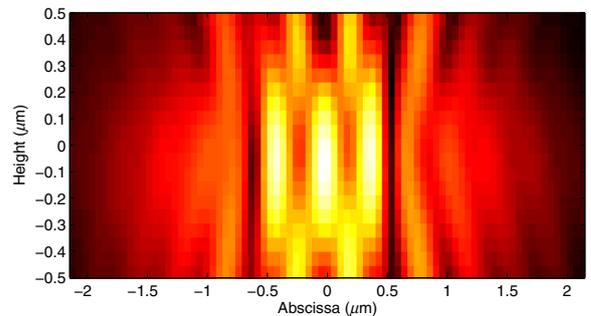


FIG. 3 (color online). Fourier transform of the scattered data measured in TM polarization. The profile under study is given in Fig. 4(a) (solid line). The color scale is in arbitrary units.

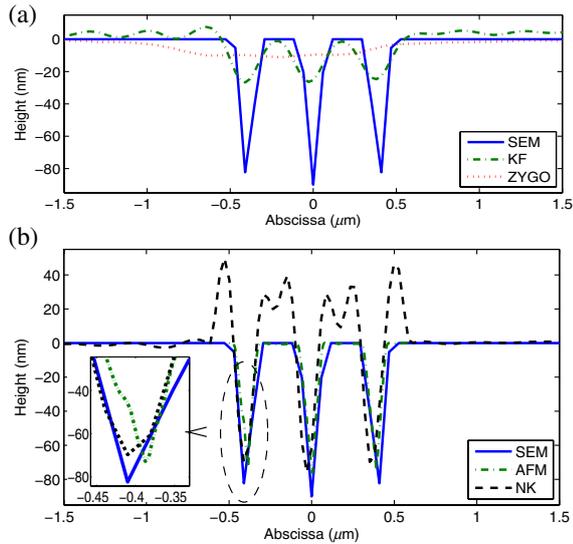


FIG. 4 (color online). The reference profile given by the SEM is plotted in (a) and (b) as a solid line. (a) Reconstruction given by KF method (dot dashed line) and Zygo profilometer (dotted line). (b) Reconstruction given by NK algorithm (dashed line) and AFM (dot dashed line).

scattering cannot be described by reflections on horizontal planes. When the ODTM measurements are processed with the NK method [see the dashed line in Fig. 4(b)] the profile is retrieved with a very good accuracy that can be compared to that of AFM measurements [see the dot dashed line in Fig. 4(b)], in particular at the bottom of the grooves. The resolution obtained in this case is far better than the Rayleigh criterion. However at the top of the surface, on each side of the grooves, residual bumps appear in the reconstructed profile. In order to understand the origin of these bumps we have made numerical simulations with different numerical apertures of illumination and collection. Figure 5 shows that the higher the numerical aperture is, the better is the accuracy.

The origin of the super resolution obtained in TM polarization with the ODTM profilometer has been discussed in previous papers [11,12]. The long-range

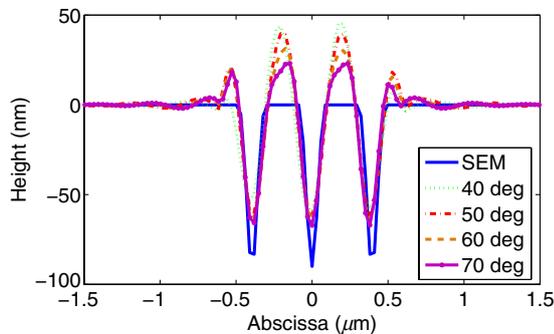


FIG. 5 (color online). Reconstructions given by NK algorithm for different maximum angles of illumination and collection.

interactions produced by multiple scattering within the metallic surface lead to a strong coupling between the spatial frequencies of the field. The propagating components of the field carry information on the high spatial frequencies. This information, which is taken into account by the model of diffraction in the NK method of reconstruction, permits us to retrieve the subwavelength details of the object. Moreover the NK method is compatible with the use of *a priori* information. For instance, to enhance the quality of the reconstruction, one may use prior information stating that the height h is negative in order to avoid the bumps reported in Fig. 5. The same kind of *a priori* knowledge has been successfully used in ODTM [20].

In conclusion, ODTM coupled to a NK reconstruction algorithm can provide a resolution that is out of reach of all optical profilometers working in far field. This technique gives also the value of the surface permittivity. We believe that the results presented in this Letter pave the way to the development of a new optical profilometry technique.

This work has been financed by the ANR SURMITO. The authors acknowledge A. Ronda of IM2NP for the AFM measurements. The ZYGO profilometer handled by C. Hecquet was acquired within the framework of the Espace Photonique facility and funded by the French Department of Industry, the Région PACA, and the European Community. The authors thank the unknown reviewers for their constructive suggestions that have improved the quality of the Letter.

- [1] C. J. Brakenhoff, P. Blom, and P. Barends, *J. Microsc.* **117**, 219 (1979).
- [2] D. Huang, E. A. Swanson, C. P. Lin, J. S. Shuman, W. G. Stinson, W. Chang, M. R. Hee, T. Flotte, K. Gregory, C. A. Puliafito, and J. G. Fujimoto, *Science* **254**, 1178 (1991).
- [3] T. Wilson and C. J. R. Sheppard, *Theory and Practice of Scanning Optical Microscopy* (Academic, New York, 1984).
- [4] G. Q. Xiao, T. R. Corle, and G. S. Kino, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 716 (1988).
- [5] H. J. Tiziani and H. M. Uhde, *Appl. Opt.* **33**, 1838 (1994).
- [6] O. Haeberlé, K. Belkebir, H. Giovannini, and A. Sentenac, *J. Mod. Opt.* **57**, 686 (2010).
- [7] W. Choi, C. Fang-Yen, K. Badizadegan, S. Oh, N. Lue, R. R. Dasari, and M. S. Feld, *Nat. Methods* **4**, 717 (2007).
- [8] G. Maire, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 213905 (2009).
- [9] F. Simonetti, *Phys. Rev. E* **73**, 036619 (2006).
- [10] J. Girard, G. Maire, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *Phys. Rev. A* **82**, 061801 (2010).
- [11] S. Arhab, G. Soriano, K. Belkebir, A. Sentenac, and H. Giovannini, *J. Opt. Soc. Am. A* **28**, 576 (2011).

- [12] S. Arhab, H. Giovannini, K. Belkebir, and G. Soriano, *J. Opt. Soc. Am. A* **29**, 1508 (2012).
- [13] The experiment was automatized using the free software OpticsBenchUI (see <http://www.opticsbenchui.com/>).
- [14] N. Destouches, C.A. Guérin, M. Lequime, and H. Giovannini, *Opt. Commun.* **198**, 233 (2001).
- [15] E. Cuche, P. Marquet, and C. Depeursinge, *Appl. Opt.* **38**, 6994 (1999).
- [16] L. Tsang, J. A. Kong, K. H. Ding, and C. O. Ao, *Scattering of Electromagnetic Waves: Numerical Simulations*, Wiley Series in Remote Sensing (Wiley, New York, 2001).
- [17] O. M. Mendez, A. Roger, and D. Maystre, *Appl. Phys. B* **32**, 199 (1983).
- [18] A. Roger, *IEEE Trans. Antennas Propag.* **29**, 232 (1981).
- [19] R. M. A. Azzam, K. Bashara, *Ellipsometry and Polarized Light* (North-Holland, Amsterdam, 1977).
- [20] P.C. Chaumet, K. Belkebir, and A. Sentenac, *J. Appl. Phys.* **106**, 034901 (2009).

Tomographic diffractive microscopy with a wavefront sensor

Y. Ruan,¹ P. Bon,^{1,2} E. Mudry,¹ G. Maire,^{1,*} P. C. Chaumet,¹ H. Giovannini,¹ K. Belkebir,¹
A. Talneau,³ B. Wattelier,² S. Monneret,¹ and A. Sentenac¹

¹Institut Fresnel, CNRS, Aix-Marseille Université, Ecole Centrale Marseille, Campus de St. Jérôme, 13013 Marseille, France

²PHASICS SA, XTEC Bt. 404, Campus de l'Ecole Polytechnique, Route de Saclay, 91128 Palaiseau, France

³Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, 91460 Marcoussis, France

*Corresponding author: guillaume.maire@fresnel.fr

Received January 12, 2012; accepted January 26, 2012;
posted January 31, 2012 (Doc. ID 161421); published May 7, 2012

Tomographic diffractive microscopy is a recent imaging technique that reconstructs quantitatively the three-dimensional permittivity map of a sample with a resolution better than that of conventional wide-field microscopy. Its main drawbacks lie in the complexity of the setup and in the slowness of the image recording as both the amplitude and the phase of the field scattered by the sample need to be measured for hundreds of successive illumination angles. In this Letter, we show that, using a wavefront sensor, tomographic diffractive microscopy can be implemented easily on a conventional microscope. Moreover, the number of illuminations can be dramatically decreased if a constrained reconstruction algorithm is used to recover the sample map of permittivity. © 2012 Optical Society of America

OCIS codes: 180.6900, 110.1758.

Tomographic diffractive microscopy (TDM) has recently emerged as a powerful imaging technique for retrieving the three-dimensional (3D) map of permittivity of unstained samples [1,2] with high resolution. It consists in recording hundreds of holograms of the probed object under various illumination angles and processing these data with an inversion algorithm to estimate the object permittivity map. This technique has been successfully applied to biological samples, where the permittivity contrast is weak and linear approximations (such as the Born approximation) can be used to model the link between the holograms and the permittivity [3–6]. In this case, the permittivity map can be retrieved by Fourier transforming the data. Axial and transverse resolutions about twice better than that of wide-field and confocal microscopy have been observed with this approach [2].

Although the theoretically and experimentally observed performances of TDM make it a very promising imaging technique for nonfluorescent samples, its development remains hindered by the complexity and slowness of its practical implementation. The necessity to measure both the phase and the amplitude of the scattered field is generally accomplished by adding a reference beam to the setup and recording an interference pattern in an on-axis or an off-axis arrangement [2]. This approach, which requires the use of light sources with high temporal coherence, is plagued by the speckle noise stemming from the parasitic reflections and scattering along the light path. The phase-stepping methods in the on-axis technique are generally time consuming and very sensitive to stability perturbations, whereas the off-axis technique imposes additional constraints on the data discretization. Since hundreds of holograms under different illumination angles are typically required to reconstruct the 3D permittivity map of the samples with the usual Fourier-transform-based inversion algorithms [3–5], the experimental difficulty (especially concerning the stability of the interferometric method) and the recording time of TDM are significantly increased.

To ameliorate the practical performances of TDM, a high-speed setup [5] and a common path interferometer geometry [6] have been reported, but these solutions cannot be readily implemented in a standard microscope. In this Letter, we show that it is possible to accelerate dramatically the TDM image recording while simplifying its adaptation to any standard microscope by using a wavefront sensor and an efficient inversion algorithm.

Our TDM setup is based on a reflection microscope, as seen in Fig. 1, in which the camera has been replaced by a wavefront sensor. A collimated laser beam (He-Ne, $\lambda = 633$ nm), controlled by a mirror mounted on step motors (Newport NSA12), illuminates the sample through an objective with NA = 0.95 (Zeiss Epiplan-Apochromat 50 \times) under various angles of incidence. The backscattered field is imaged with a 290 \times magnification on a high-resolution wavefront sensor (Phasics SID4-HR, 400 \times 300 pixels) based on quadriwave lateral shearing interferometry [7]. No reference path is needed, and both the phase and the intensity of the imaged field are retrieved with a single shot measurement. To demonstrate the potential of our setup for reconstructing the permittivity map of 3D samples, we consider a test object made of four resin cylinders deposited on a reflective silicon substrate. The cylinders have a diameter close

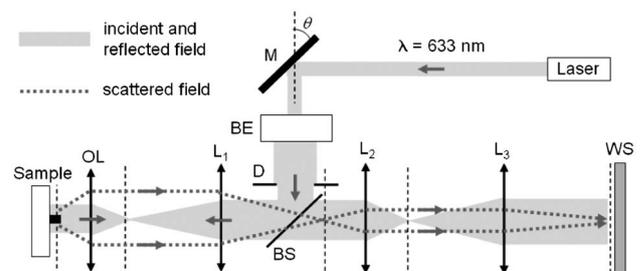


Fig. 1. Schematic of the TDM setup. M, rotative mirror; BE, beam expander; D, diaphragm; BS, beam splitter; OL, objective lens; L1, tube lens; L2, L3, relay lenses ($f' = 3.5$ and 20 cm); WS, wavefront sensor.

to 1 μm , a height of 120 nm, and their axes are placed at the corners of a square with 2 μm side.

Generally, wavefront sensors are used to estimate slow phase variations like those produced by aberrations of lenses or weakly scattering biological samples. At $\lambda = 633$ nm, our wavefront sensor can detect a phase difference between two adjacent pixels from 0.01 to 2.9 rad [7]. The constraint imposed by this upper bound is greatly relaxed by sampling the point spread function of the setup with about eight pixels (105 nm per pixel with the magnification). To verify that the sensor is able to recover quantitatively the phase and amplitude scattered by our relatively contrasted samples, we compared, for the same successive illumination angles, its image fields to those given by on-axis phase-shifting interferometry with a standard CCD camera. For the wavefront sensor, a phase reference is measured on the bare substrate for each illumination prior to imaging the sample, and single shot measurements are performed. This reference further diminishes speckle noise that is already greatly reduced by the multi-illumination measurement. For phase-shifting interferometry, 30 images are averaged for each illumination to increase the signal-to-noise ratio. We have used six illuminations in the plane (x,z) with the electric field orthogonal to the plane of incidence and six illuminations in the plane (y,z) with the electric field parallel to the plane of incidence, with polar angles varying in the $[-30,30]$ deg range. Figure 2 shows a comparison of the phase and amplitude of the scattered far field within the objective NA for both techniques, obtained by Fourier transforming the measured image fields. The data have been restricted to about 2000 scattering angles centered on the specular reflection on the substrate. The missing circle in the data corresponds to the domain where the field scattered by the sample is masked by this reflection. A very good agreement has been obtained between the two measurement methods for the whole data set.

To reconstruct the permittivity map of the sample, most reconstruction procedures assume that the far field

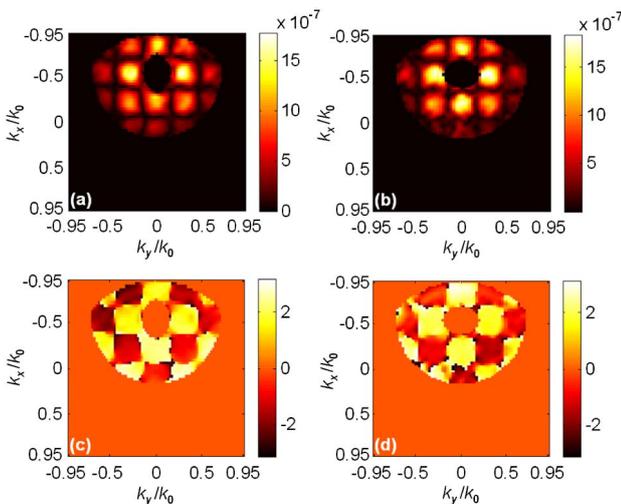


Fig. 2. (Color online) (a), (c) Wavefront sensor, amplitude, and phase of the scattered far field (30° illumination angle); (b), (d) same data for phase-shifting interferometry. k_x and k_y , spatial frequencies; k_0 , wavenumber.

scattered in the \mathbf{k}_d direction by an object illuminated by a plane wave with wave vector \mathbf{k}_i is proportional to the Fourier transform of the relative permittivity contrast χ of the object [1,3,5,6] taken at $(\mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i)$. For each illumination, the measured scattered field gives access to the Fourier components of the permittivity on a cap of sphere centered about \mathbf{k}_i [2]. Changing the illumination angle permits us to explore another Fourier domain. Thus, the permittivity map can be simply retrieved by Fourier transforming the whole data set. This approach, valid for weakly contrasted samples, typically requires hundreds of illuminations to fill the whole accessible Fourier domain with fine enough discretization steps for the Fourier transform to be accurate.

In our configuration, the sample is deposited on a reflective substrate (for improving the axial resolution [8]), and the permittivity contrast of the resin in the air, close to 1, is higher than the ones usually met in biological samples (≤ 0.1). To image the sample with a limited number of views and to account for the substrate and the possible multiple scattering phenomenon, we have developed an iterative inversion technique based on a rigorous vectorial modeling of the wave-sample interaction. This algorithm has already been applied with success to the imaging of highly contrasted two-dimensional objects [9–11]. The inversion problem consists in retrieving the unknown relative permittivity contrast χ inside an investigation domain W from the measurements \mathbf{f}_l , with $l = 1, \dots, L$, of the scattered field in the far-field domain Γ obtained for L different illuminations. It relies on the relationship between χ and the scattered far field \mathbf{E}_l^d , which involves the total field that is formed inside the sample, \mathbf{E}_l [12]. The latter reads in operator notation,

$$\mathbf{E}_l = \mathbf{E}_l^0 + \underline{\underline{A}}\chi\mathbf{E}_l, \quad (1)$$

$$\mathbf{E}_l^d = \underline{\underline{B}}\chi\mathbf{E}_l, \quad (2)$$

where \mathbf{E}_l^0 is the reference field that would exist in W in the absence of the sample for the l th illumination, and $\underline{\underline{A}}_{i,j}$ ($\underline{\underline{B}}_{i,k}$) gives the field radiated at point j in W (k in Γ) by a dipole source placed at point i in W . Note that $\underline{\underline{A}}$ and $\underline{\underline{B}}$ account for the presence of the substrate. In our approach, both χ and \mathbf{E}_l are estimated iteratively so as to minimize the cost functional,

$$\mathcal{F}(\chi, \mathbf{E}_l) = C_\Gamma \sum_{l=1}^L \|\mathbf{f}_l - \underline{\underline{B}}\chi\mathbf{E}_l\|_\Gamma^2 + C_W \sum_{l=1}^L \|\mathbf{E}_l - \mathbf{E}_l^0 - \underline{\underline{A}}\chi\mathbf{E}_l\|_W^2, \quad (3)$$

where C_Γ and C_W are normalization coefficients. The first term of \mathcal{F} ensures that the field scattered by the estimated object will be close to the measurements, while the second term ensures that the estimated total field in W will satisfy Maxwell equations for the estimated value of χ [9]. The initial guesses for \mathbf{E}_l and χ are obtained by backpropagating the measurements [12]. The inversion procedure is first applied to a large investigating domain W with a coarse meshing. Then W is downsized to a box

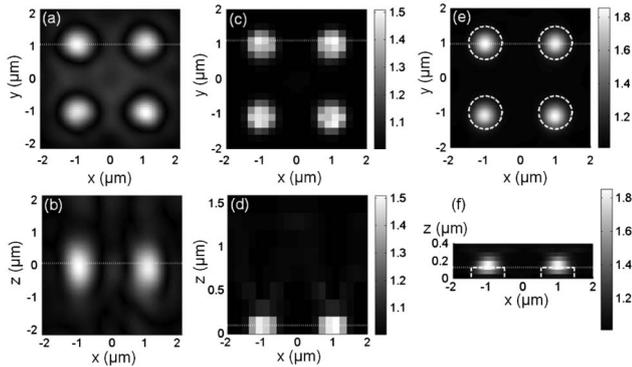


Fig. 3. Comparison of the modulus of the 3D inverse Fourier transform of the data set (53 nm meshing) [(a), (b)] and of the permittivity map retrieved with the iterative inversion algorithm [(c), (d), (e), (f)]. (c), (d) The height of the investigating domain is $1.6 \mu\text{m}$ with a mesh size of 200 nm. (e), (f) Zoom on the sample with a height of $0.4 \mu\text{m}$ and a mesh size of 50 nm (dashed white line, actual geometry of the sample). The figures in the top row show transverse cuts at (a), $z = 53$, (c) 100, and (e) 125 nm, and the ones in the bottom row longitudinal cuts at $y = 1 \mu\text{m}$. Cuts are along the white dotted lines.

adapted to the sample size, and the mesh is tightened for an improved resolution. Note that, in all our reconstructions, the absorption of the sample is neglected so that χ is sought as a positive real number.

Figure 3 compares the reconstructions, obtained from the wavefront sensor data, of the Fourier transform technique [Figs. 3(a) and 3(b), 53 nm meshing] and the iterative inversion procedure for different heights of W and different meshing: a height of $1.6 \mu\text{m}$ with 200 nm mesh size [Figs. 3(c) and 3(d)] and a height of 400 nm with 50 nm mesh size [Figs. 3(e) and 3(f)]. We observe that the Fourier transform technique provides a noisy reconstruction particularly distorted along the z axis. Indeed, the presence of the reflective surface is interpreted as a mirror object symmetrically placed along this axis. Moreover, this technique is very sensitive to the missing points in the Fourier space due to the restricted amount of data. Usually, several hundreds of illuminations are required to fill the Fourier space adequately. On the contrary, our reconstruction procedure estimates accurately the sample dimensions, even with the coarse meshing. Only four iterations were needed for the convergence of the iterative process, and similar reconstructions were obtained with the interferometric measurements. To our knowledge, this is the first time that such an iterative

inversion procedure is successfully applied to 3D experimental data in optics. As only 12 illuminations were used, an acquisition time gain of more than 10 can be expected using our algorithm compared to the Fourier transform technique. On the other hand, as Eq. (1) has to be solved rigorously at each iteration, the computational time is significantly increased. Yet this rigorous calculation of \mathbf{E}_l in W is necessary only if the sample supports multiple scattering. If the Born approximation is valid, \mathbf{E}_l can be replaced by \mathbf{E}_l^0 , and the computation time then remains comparable to that of the inverse Fourier transform.

In conclusion, the setup complexity and the long acquisition time of TDM can be dramatically ameliorated by using a wavefront sensor and constrained inversion procedures. With these improvements, TDM can be implemented in a conventional wide-field microscope, with low-cost weakly coherent sources, and the number of illuminations can be significantly reduced while retaining the high resolution and quantitative imaging performances of the technique.

The authors are very grateful to Laurent Milord for his contribution to the data treatment procedure.

References

1. V. Lauer, *J. Microsc.* **205**, 165 (2002).
2. O. Haeberlé, K. Belkebir, H. Giovannini, and A. Sentenac, *J. Mod. Opt.* **57**, 686 (2010).
3. M. Debailleul, B. Simon, V. Georges, O. Haeberlé, and V. Lauer, *Meas. Sci. Technol.* **19**, 074009 (2008).
4. Y. Sung, W. Choi, C. Fang-Yen, K. Badizadegan, R. R. Dasari, and M. S. Feld, *Opt. Express* **17**, 266 (2009).
5. M. Kim, Y. Choi, C. Fang-Yen, Y. Sung, R. Dasari, M. S. Feld, and W. Choi, *Opt. Lett.* **36**, 148 (2011).
6. R. Fiolka, K. Wicker, R. Heintzmann, and A. Stemmer, *Opt. Express* **17**, 12407 (2009).
7. P. Bon, G. Maucort, B. Wattellier, and S. Monneret, *Opt. Express* **17**, 13080 (2009).
8. E. Mudry, P. C. Chaumet, K. Belkebir, G. Maire, and A. Sentenac, *Opt. Lett.* **35**, 1857 (2010).
9. G. Maire, J. Girard, F. Drsek, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *J. Mod. Opt.* **57**, 746 (2010).
10. G. Maire, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 213905 (2009).
11. J. Girard, G. Maire, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *Phys. Rev. A* **82**, 061801(R) (2010).
12. K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **22**, 1889 (2005).

High-resolution tomographic diffractive microscopy in reflection configuration

Guillaume Maire,^{1,*} Yi Ruan,¹ Ting Zhang,¹ Patrick C. Chaumet,¹ Hugues Giovannini,¹ Daniel Sentenac,³ Anne Talneau,² Kamal Belkebir,¹ and Anne Sentenac¹

¹Aix Marseille Université, CNRS, Centrale Marseille, Institut Fresnel, UMR 7249, 13013 Marseille, France

²Lab Photon & Nanostruct, 91460 Marcoussis, France

³European Gravitational Observatory, 56021 Cascina (PI), Italy

*Corresponding author: guillaume.maire@fresnel.fr

Received August 1, 2013; revised September 3, 2013; accepted September 3, 2013;
posted September 5, 2013 (Doc. ID 195079); published September 30, 2013

Tomographic diffractive microscopy (TDM) is a label-free imaging technique that reconstructs the 3D refractive index map of the probed object with an improved resolution compared to confocal microscopy. In this work, we consider a TDM implementation in which the sample is deposited on a reflective substrate. We show that this configuration requires calibration and inversion procedures that account for the presence of the substrate for getting highly resolved quantitative reconstructions. © 2013 Optical Society of America

OCIS codes: (180.6900) Three-dimensional microscopy; (110.6955) Tomographic imaging; (110.3200) Inverse scattering; (110.1758) Computational imaging.
<http://dx.doi.org/10.1364/JOSAA.30.002133>

1. INTRODUCTION

Tomographic diffractive microscopy (TDM) has recently emerged from digital holographic microscopy (DHM) as a powerful technique to reconstruct in 3D the map of relative permittivity of the probed sample with a high resolution [1]. Like DHM, it retrieves both the amplitude and the phase of the field scattered by the sample, classically from the interference pattern produced with a reference beam, in an on-axis arrangement or an off-axis one. Whereas in DHM the sample is illuminated at normal incidence only, TDM additionally requires to perform this detection successively for hundreds of different illumination angles, which permits to obtain a 3D reconstruction and increases the resolution. TDM is also known in the literature under other appellations, like synthetic aperture microscopy, phase tomography, or optical tomography. So far, this technique has been applied successfully for 3D samples mainly in the case of biological samples, where the permittivity contrast is weak and linear approximations (such as the Born approximation) can be used to calculate the scattered field [2–7]. In this case, the sample is reconstructed by applying a linear inversion algorithm to the set of data. The transverse resolution gain through the multi-illumination measurement can then be quantified by synthetic aperture generation: the equivalent numerical aperture (NA) of the system becomes equal to the sum of the NA used to collect the scattered field and the one defined by the illumination angle range [8]. Resolutions beyond the classical Rayleigh criterion have been obtained using this approach [1,3,6].

In most TDM implementations, the illumination and detection are operated from two opposite sides of the sample (transmission configuration) and the sample is assumed to be plunged in an homogeneous medium. This assumption is valid when imaging biological objects deposited on a coverslip

and immersed in an index-match liquid. On the other hand, it does not hold when considering samples coming from the material science or the microelectronic domain, which are generally obtained on nontransparent substrates. Moreover, it has been shown theoretically [9] that the axial resolution of TDM could be significantly ameliorated if the samples were deposited on a highly reflecting substrate [9–11]. Hence, to ameliorate TDM performances and enlarge its application domain, it appears highly desirable to adapt the experimental mounting and the inversion procedures to the reflection configuration.

Up to now, TDM in reflection has been essentially used to recover qualitative two-dimensional (2D) super-resolved images of the sample reflectance [12–14], whereas our group used it to retrieve quantitative super-resolved 2D profiles of samples invariant along one of the transverse directions [15–17]. In a recent letter by our group [18], we have shown that, using an appropriate reconstruction procedure accounting for the presence of the substrate, TDM could yield the three-dimensional (3D) permittivity distribution of samples deposited on highly reflective substrates. In addition to providing 3D quantitative images, our iterative reconstruction approach permitted to decrease by a factor of 10 the number of illumination angles that are generally required for Fourier-based inversion algorithms [18], thus diminishing significantly the acquisition time. In this paper, we detail the experimental mounting, the calibration procedures and we describe different inversion methods adapted to reflection TDM. We test our system on well-controlled subwavelength resin nanostructures deposited on a silicon wafer.

The paper is structured as follows. Section 2 recalls the basics of TDM and compares the principles of the standard Fourier-based reconstruction procedure to that of our iterative inversion algorithm. In Section 3, the experimental setup

is described along with the normalization procedure that has to be applied to the data in order to get quantitative results. Last, Section 4 displays the reconstructions obtained with the Fourier-based algorithm and that obtained with the iterative procedure under various approximations.

2. BASICS OF TDM AND COMPARISON BETWEEN THE CONVENTIONAL FOURIER-BASED INVERSION PROCEDURE AND THE ITERATIVE NONLINEAR RECONSTRUCTION TECHNIQUE

Basically, TDM consists of recording the complex field $E^s(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l)$ that is scattered by the sample in the \mathbf{k} direction when the illumination is a plane wave with \mathbf{k}_l wave vector. This is done along M scattering directions \mathbf{k} for L successive illuminations \mathbf{k}_l accessible within the NA of the microscope objective. These data are processed with an inversion algorithm in order to get the 3D relative permittivity ε of the sample.

At the core of any TDM inversion method is the interaction model that links the scattered field $E^s(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l)$ to the sample permittivity contrast χ with $\chi = \varepsilon - 1$ if the sample is in air. From Maxwell equations, one shows that the scattered field, which is equal to the total macroscopic field \mathbf{E} minus the reference field \mathbf{E}^{ref} that would exist in absence of the sample, verifies

$$E^s(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l) = \int_V \mathbf{g}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') \chi(\mathbf{r}') E(\mathbf{r}', \mathbf{k}_l) d\mathbf{r}', \quad (1)$$

where V is the sample support and \mathbf{g} is the far-field Green tensor, $\mathbf{g}(\mathbf{k}, \mathbf{r}')\mathbf{p}$ is the far field emitted in the \mathbf{k} direction by a dipole \mathbf{p} placed at \mathbf{r}' in the reference medium (which is defined as the geometry without the sample). In general, the total field \mathbf{E} depends on χ so that the relationship between E^s and χ is nonlinear.

A. Fourier-Based Inversion Method

To reconstruct the sample, most TDM inversion procedures are based on a linearized approximation of Eq. (1), the Born approximation, which is obtained by assuming that the field inside the probed object is close to the reference field. It is valid for small and weakly contrasted samples, ($\chi \ll 1$). Moreover, the vectorial nature of the recorded field is usually overlooked and the reference medium is assumed to be homogeneous. With this scalar approach, the far-field Green tensor can be assimilated to a simple Fourier operator, $g(\mathbf{k}, \mathbf{r}')p \propto \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}')p$ [1,3–6,8,14,19], and the reference field to a simple plane wave, $E^{\text{ref}}(\mathbf{r}, \mathbf{k}_l) \propto \exp(i\mathbf{k}_l \cdot \mathbf{r})$. As a consequence, the scattered field can be written as

$$E^s(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l) \propto \tilde{\chi}(\mathbf{k} - \mathbf{k}_l), \quad (2)$$

where $\tilde{\chi}$ is the 3D Fourier transform of χ . Hence, for a given illumination angle and for all the \mathbf{k} wave vectors allowed by the NA used for the detection, the scattered far field gives access to the Fourier components of the permittivity contrast on a cap of sphere centered on the extremity of vector $-\mathbf{k}_l$ [19,20]. Changing the illumination angle permits to shift this cap of sphere in the Fourier space and measure different Fourier components. Therefore, merging the data collected

for various angles enlarges the accessible Fourier domain. This synthetic aperture generation enables a 3D reconstruction of the object and ameliorates the resolution compared to images obtained with classical confocal microscopy. In practice, the measured scattered fields for a given $\mathbf{k} - \mathbf{k}_l$ are added and averaged for reducing the experimental noise. Note that extracting the scattered field from the measured total field for $\mathbf{k} - \mathbf{k}_l \approx 0$ is usually not possible in the standard experimental configuration as the scattered signal is overwhelmed by the reference field. Then, the object can be reconstructed in 3D by simply applying a 3D inverse Fourier transform to the whole dataset. However, this approach typically requires hundreds of illuminations to fill the whole accessible Fourier domain with fine enough discretization steps for the Fourier transform to be accurate.

B. Nonlinear Iterative Inversion

To ameliorate the reconstruction procedure, we have developed an inversion method based on a rigorous vectorial modeling of the field scattered by the object [18,21–24]. Our approach does not assume that the field inside the sample is close to the incident field and is adapted to a reference medium with a reflecting substrate.

1. Formulation of the Forward Scattering Problem

The scattered far field satisfies Eq. (1) with a far-field Green tensor that accounts for the interface [21]. To calculate the total field inside the sample, one uses the self-consistent integral equation [23],

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}^{\text{ref}}(\mathbf{r}) + \int_V \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \chi(\mathbf{r}') E(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (3)$$

where $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')\mathbf{p}$ is the electric field at \mathbf{r} emitted by a dipole placed at \mathbf{r}' in the reference medium. When both \mathbf{r} and \mathbf{r}' are above the substrate, it corresponds to the sum of the free-space radiated field [25] and of the substrate reflected field (which is computed *via* a quadrature [26]). The reference field is also the sum of the incoming plane wave and its reflected outgoing counterpart. Equation (3) can be solved numerically using an appropriated discretization [23].

2. Formulation of the Inverse Scattering Problem

The iterative inversion procedure consists of retrieving simultaneously the sample permittivity contrast χ and the total field \mathbf{E}_l in a bounded investigation domain Ω (outside Ω , χ is assumed to be null) from the set of scattered field data \mathbf{f}_l recorded on the far-field surface Γ for $l = 1, \dots, L$ incident directions. In most of the following examples, Ω is located above the substrate and its lower boundary lays at the air–substrate interface. Starting from an initial guess, χ and \mathbf{E}_l are gradually adjusted so as to minimize some cost functional involving the measured data. For the sake of simplicity, symbolic notation is introduced for describing the far-field and self-consistent near-field integral equations,

$$\mathbf{E}_l^s = \underline{\underline{B}}\chi\mathbf{E}_l, \quad (4)$$

$$\mathbf{E}_l = \mathbf{E}_l^{\text{ref}} + \underline{\underline{A}}\chi\mathbf{E}_l. \quad (5)$$

In Eq. (4), the volume integral is performed over Ω and numerically solved by discretizing Ω into N subunits on a cubic lattice with period much smaller than the wavelength of illumination. The operator \underline{B} is a $3N \times 3M$ matrix including the nine components of the far-field Green tensor for each \mathbf{r} in Ω and each \mathbf{k} on Γ . The operator \underline{A} is a $3N \times 3N$ matrix including the nine components of the near-field Green tensor for each \mathbf{r} and \mathbf{r}' in Ω . It is worth noting at this point that solving the self-consistent near-field equation is time consuming and may be impossible for large Ω .

For the present work we have used a cost functional that reads (for iteration number n)

$$\mathcal{F}_n(\chi_n, \mathbf{E}_{l,n}) = \frac{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{h}_{l,n}^{(1)}\|_{\Gamma}^2}{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{f}_l\|_{\Gamma}^2} + \frac{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{h}_{l,n}^{(2)}\|_{\Omega}^2}{\sum_{l=1}^L \|\mathbf{E}_l^{\text{ref}}\|_{\Omega}^2} \quad (6)$$

$$= W_{\Gamma} \sum_{l=1}^L \|\mathbf{h}_{l,n}^{(1)}\|_{\Gamma}^2 + W_{\Omega} \sum_{l=1}^L \|\mathbf{h}_{l,n}^{(2)}\|_{\Omega}^2, \quad (7)$$

where W_{Γ} and W_{Ω} are normalization coefficients, and $\mathbf{h}_{l,n}^{(1)}$ and $\mathbf{h}_{l,n}^{(2)}$ are two residual errors for Eqs. (4) and (5), respectively:

$$\mathbf{h}_{l,n}^{(1)} = \mathbf{f}_l - \underline{B}\chi_n\mathbf{E}_{l,n}, \quad (8)$$

$$\mathbf{h}_{l,n}^{(2)} = \mathbf{E}_l^{\text{ref}} - \mathbf{E}_{l,n} + \underline{A}\chi_n\mathbf{E}_{l,n}. \quad (9)$$

The minimization is performed with the hybrid gradient procedure described in [24], which requires to solve one forward problem at each iteration. The two sequences χ and \mathbf{E}_l are initiated by applying the complex conjugate transposed matrix \underline{B} to the dataset \mathbf{f}_l [26].

3. EXPERIMENTAL SETUP AND PROCEDURE

A. Setup Architecture

We have developed a TDM setup based on a synthetic aperture digital microscope working in reflection, presented in Fig. 1 [27]. The linearly polarized light emitted at 633 nm by a 10 mW helium–neon laser is divided into a reference beam, passing through an electro-optic phase modulator (PM), and a beam directed toward the sample. A rotating mirror (M) permits to control the deflection of this latter beam, while a beam expander (BE) and diaphragm (D) generate a wide collimated beam with near-homogeneous power density. This beam illuminates the sample after transmission through the microscope objective (OL) and the associated tube lens (L_1). It can be locally assimilated to a plane wave since the dimensions of the object are small compared to the width of the beam. The center of the mirror is conjugated with the center of the sample through the BE, the tube lens, and the microscope objective. Thus, rotating the mirror varies the incidence angle without shifting laterally the illumination beam on the object. The polar angle of the illumination can be varied over the whole NA of the objective. The field scattered by the object is collected by the microscope objective (Zeiss Epiplan-Apochromat 50 \times , NA = 0.95) and imaged on a CCD camera (Kappa PS4-1020) after passing through relay lenses L_2 and L_3 to

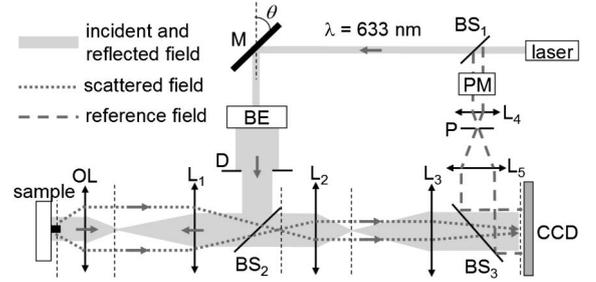


Fig. 1. Sketch of the experimental setup: M, rotating mirror; BE, beam expander; D, diaphragm; OL, objective lens; $L_{1, \dots, 5}$, lenses; $BS_{1, \dots, 3}$, beam splitters; PM, phase modulator; P, pinhole.

obtain a global magnification of about 290. This provides a very high sampling of 26 nm per pixel, that easily satisfies the Shannon criterion even at half the Abbe limit (the Abbe limit is here $0.5\lambda/\text{NA} = 333$ nm). After spatial filtering with a pinhole (P) and collimation, the reference field is coherently superimposed on the image field thanks to beam splitter BS_3 .

For each illumination l , the amplitude and phase of the image field \mathbf{E}_l^{im} are retrieved by phase-shifting interferometry. \mathbf{E}_l^{im} is detected on a plane conjugated with the microscope object focal plane. Now, our nonlinear inversion procedure requires the scattered far-field \mathbf{f}_l for all possible $\mathbf{k} \in \Gamma$. Thus, the measurements \mathbf{E}_l^{im} have to be transferred numerically to the far field with a 2D discrete inverse Fourier transform. The directions of \mathbf{k} that are close to the specular reflection on the silicon substrate are discarded, since the field scattered by the object is there masked by the specular reflection. Note that what is effectively measured at the image plane is a projection of the vectorial image field on the polarization state of the reference beam, which is that of the illumination beam. Thus, the minimization of Eq. (8) is performed for the projection of the far field on this polarization state only.

B. Normalization Procedure of the Measurements

To retrieve a quantitative 3D permittivity map of the sample, it is necessary to apply a normalization procedure to the amplitude and the phase of the measured scattered field prior to performing the inversion. The normalization is necessary to correct the laser intensity fluctuations and the optical path variation between the reference and illumination beams that possibly occur when changing the illumination angle. In classical TDM in free-space under Born approximation configuration, the global relative phase and amplitude of the scattered field \mathbf{f}_l under illumination l are set to match the measurements obtained at illumination $l-1$ by comparing the far-field complex amplitudes obtained along the directions \mathbf{k}, \mathbf{k}' , such that $(\mathbf{k}' - \mathbf{k}_{l-1}) = (\mathbf{k} - \mathbf{k}_l)$, i.e., the same spatial frequency in Eq. (2) for two successive incidences. In our specific configuration with a reflecting substrate, there is no more overlapping domains in the Fourier space for comparing the data. The latter are normalized so that the specular reflection on the substrate matches, at each illumination (both in amplitude and phase), the theoretical specular reflection calculated by the forward scattering model. This implies that the specular reflection has to be far stronger than the field scattered in the same direction by the sample, which is verified for small objects.

1. Amplitude Normalization

The nonlinear inversion assumes that the object is illuminated for each angle of incidence by a plane wave with unity amplitude. The measured amplitudes $\|\mathbf{f}_l\|$ have therefore to be normalized according to this hypothesis so that a correct estimation of the permittivity can be retrieved. It is performed for each illumination l by multiplying \mathbf{f}_l by the factor M_l :

$$M_l = \frac{|\gamma_l| r_l S}{2\pi \langle \|\mathbf{E}_l^{\text{in}}\| \rangle_S}, \quad (10)$$

where γ_l is the projection of the incident wave vector on the optical axis of the microscope, r_l the modulus of the substrate Fresnel reflection coefficient for the incident polarization state, S the surface of the field of view that can be imaged on the CCD sensor. $\langle \|\mathbf{E}_l^{\text{in}}\| \rangle_S$ is the mean field modulus averaged over the field of view: as the object is small on the CCD image, it can be considered as the mean field modulus reflected by the substrate. The multiplication by M_l ensures that the maximal value of \mathbf{f}_l in the far field, which corresponds to the specular reflection, is equal to that scattered by a portion of substrate of surface S when illuminated by a plane wave with unity amplitude, as calculated by the forward scattering model.

Note that once the factors M_l have been calculated, the digital holograms \mathbf{E}_l^{in} are multiplied by a filter function to get rid of the field out of the region of interest containing the sample. This further diminishes the speckle noise that is already greatly reduced by the multi-illumination measurement.

2. Phase Normalization

In the forward model and the inverse procedure, the phase origin is placed on the air-substrate interface and in the middle of the transverse dimensions of the investigation domain Ω . Now, the scattered far-field \mathbf{f}_l is obtained by 2D Fourier transforming the image field \mathbf{E}_l^{in} recorded at the image plane. The transverse position of the phase origin (in the image plane) can be chosen visually at the center of the sample while its axial position is that of the image plane. The latter is generally not perfectly conjugated to the air-substrate interface. Calling $\mathbf{d} = d_z \hat{z}$ the position of the plane conjugated with the image plane with respect to the air-substrate interface, the experimental phase $\varphi_s(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l)$ of the scattered far field measured along direction \mathbf{k} for the incident wave vector \mathbf{k}_l is linked to the phase $\varphi_0(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l)$ of the scattered far field obtained when the image plane and the air-substrate interface are perfectly conjugated by

$$\varphi_s(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l) = \varphi_0(\mathbf{k}, \mathbf{k}_l) + (\mathbf{k} - \mathbf{k}_l) \cdot \mathbf{d}. \quad (11)$$

The following section describes two methods enabling to retrieve d_z . Once d_z is determined, the scattered far-field phase is corrected for each observation and illumination directions using Eq. (11). Then, all the scattered phases $\varphi_s(\cdot, \mathbf{k}_l)$ obtained for a given illumination \mathbf{k}_l are shifted by a constant so that the recorded phase in the specular reflected direction matches that of the theoretical Fresnel reflection coefficient (calculated with a phase origin laying on the air-substrate interface). This procedure ensures that the phase origin of the incident and scattered field corresponds to that chosen for the forward model.

C. Determination of the Phase Origin

To retrieve the axial position of the sample plane with respect to the image plane, d_z , one applies a 3D inverse Fourier transform (FT^{-1}) to the dataset \mathbf{f}_l to get a rough estimation of the object. Prior the Fourier transform, the data are normalized as if d_z was equal to 0. The sample plane being usually close to the image plane (the interdistance remaining smaller than one wavelength thanks to the high NA of the objective), the reconstruction, although strongly distorted, is generally accurate enough to pinpoint an approximate sample center. The distance of the latter to the center of the reconstruction domain gives a first estimation of \mathbf{d} . The Fourier transform is then applied to the data normalized with the previously estimated \mathbf{d} . After a few iterations, the reconstruction is improved and d_z is better estimated.

Another technique, inspired by that described in [28], has also been developed. We call \mathbf{f}'_l the dataset for which d_z has been corrected,

$$\mathbf{f}'_l = \mathbf{f}_l \exp(-i[\gamma - \gamma_l]d_z), \quad (12)$$

where γ is the projection of \mathbf{k} on the optical axis. The problem is stated as finding d_z so that the backpropagation [26] of the associated scattered field \mathbf{f}'_l provides the best initial guess for the inversion scheme. This is accomplished by minimizing the cost function \mathcal{G} ,

$$\mathcal{G} = \sum_{l=1}^L \|\mathbf{f}'_l - \beta \underline{\underline{B}} (\underline{\underline{B}}^\dagger \mathbf{f}'_l)\|_r^2, \quad (13)$$

where β is a complex scalar weight and $\underline{\underline{B}}^\dagger$ the complex conjugate transpose of matrix $\underline{\underline{B}}$. This second approach is more precise than the first one to estimate d_z , but it is more time consuming, especially for large investigation domains due to the two matrix vector products with $\underline{\underline{B}}$ in Eq. (13).

4. EXPERIMENTAL RESULTS ON OBJECTS AT THE RAYLEIGH LIMIT

To illustrate the performances of our inversion approach, we have imaged subwavelength resin objects deposited on a silicon substrate. The test sample consists of four identical resin cylinders centered at the corners of a square of side 400 nm, see Fig. 2. Note that 400 nm corresponds exactly to the Rayleigh limit of our microscope ($0.6\lambda/\text{NA} = 400$ nm). The diameter and height of the cylinders are 200 nm and 150 nm, respectively, and the relative permittivity of the resin at 633 nm is about 2. The dataset is obtained by illuminating the sample with 20 incident directions, 10 belonging to the plane of incidence (x, z) and 10 to the plane (y, z),

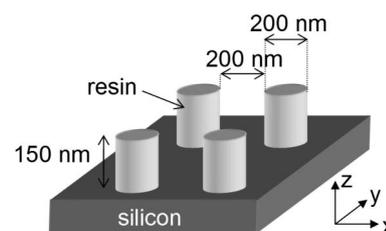


Fig. 2. Test sample: subwavelength resin cylinders deposited on a silicon substrate.

see Fig. 2. For each plane of incidence, the polar angles range from $[-55^\circ$ to $55^\circ]$. The linear polarization of the illumination beam remains in the (x, z) plane for all incident angles.

In this section, different inversion procedures are applied to the normalized set of data. Hereafter, for a fair comparison, we display the cuts of the different 3D reconstructions on the axial (x, z) , (y, z) and transverse (x, y) planes containing the pixel of highest value.

A. Comparison of the Reconstructions Obtained with the Linear Inversion (3D FT⁻¹) and the Nonlinear Iterative Inversion

We first use the classical linear reconstruction procedure that consists of applying a 3D FT⁻¹ to the dataset appropriately placed in the Fourier space, see Fig. 3. The discretization of the reconstruction is 53 nm and only the central part of the reconstruction is shown. We observe that, in the transverse plane, the four cylinders are hardly distinguishable and are surrounded by strong artefacts while, in the longitudinal plane, the axial profile of the cylinders is strongly distorted. This poor reconstruction can be explained by the numerous missing points in the Fourier space (to fill correctly the Fourier space, several hundreds of illumination would be required) and by the presence of the substrate, which is interpreted by the linear inversion as a mirror object, symmetrically placed below the substrate, that mingles with the original one.

We now turn to the “rigorous” iterative reconstruction technique described in Section 2. Prior to launching the inversion, the size of the investigation domain Ω where the unknown object will be reconstructed has to be determined. The transverse dimensions of the domain can be easily inferred from the image of the object on the camera. For its axial dimension, a starting value can be obtained from the distorted reconstruction given by the 3D FT⁻¹ inversion. Alternatively, it can also be evaluated from the defocus of the image when the object is translated along the optical axis (the depth of field of the objective is about 1 μm at $\lambda = 633$ nm). We use the *a priori* information that the sample is deposited on a substrate so that the lowest boundary of Ω coincides with the air–substrate interface. The discretization step of Ω is taken equal to 50 nm.

The first reconstruction is performed with a relatively high and large investigation domain, see Fig. 4, then the size of Ω is decreased, while keeping the same discretization, to increase the data to unknowns ratio and improve the quality of the reconstruction, see Fig. 5. One can see that the four cylinders are perfectly resolved, with a good estimation of their width,

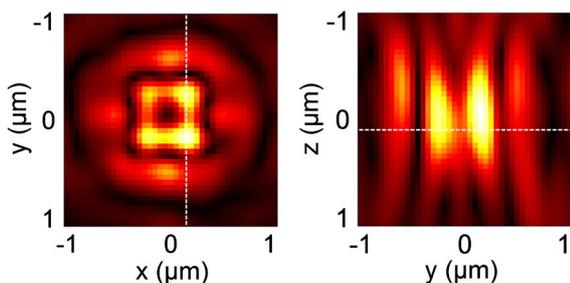


Fig. 3. Transverse cut (left) and longitudinal cut (right) of the modulus of the 3D FT⁻¹ of the dataset. Cuts are along the white dashed lines.

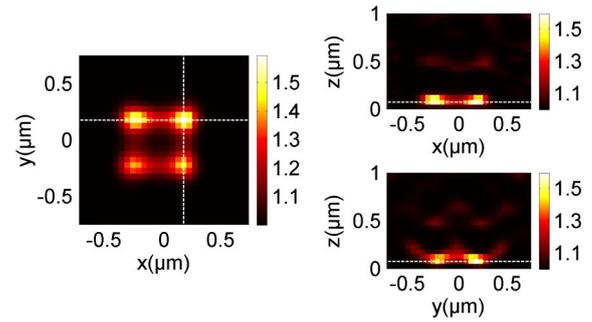


Fig. 4. Transverse cut (left) and longitudinal cuts (top and bottom) of the 3D permittivity map reconstructed with the nonlinear iterative inversion in a quite large domain. Cuts are along the white dashed lines.

height, spacing distance, and relative permittivity. The slight asymmetry of the reconstructions is due to residual speckle noise and experimental uncertainties on the realization and evaluation of the angular scanning. With the iterative inversion method, twenty illuminations are sufficient to get an accurate artefact-free image of the sample. We have checked on several other samples that it provides an isotropic resolution at the Rayleigh limit in the (x, y) plane.

B. Influence of the Substrate in the Nonlinear Iterative Inversion

The significant amelioration brought about by the nonlinear iterative inversion as compared to the classical 3D FT⁻¹ linear approach stems from several reasons. First, it constrains the sample to be included in a given investigation domain which permits to fill the eventual missing points in the Fourier space. Then, it does not assume the Born approximation and performs a rigorous calculation of the scattered field, which accounts for the substrate following Eqs. (4) and (5). The price to pay for this rigorous modeling lays in the computation effort, which is particularly important for calculating the matrix \underline{A} in the presence of the substrate and solve Eq. (5) for each iteration in the inversion procedure. As illustration, the reconstructions of Figs. 4 and 5 were obtained after 10 iterations, respectively in 90 min with 10 GB of RAM memory, and 25 min with 5 GB of RAM memory, on a computer with a standard processor.

It is therefore useful to perform the nonlinear iterative inversion with approximate calculations of the scattered field, both to get more physical insight into the origin of the reconstruction improvement and to accelerate the procedure.

1. Inversion Assuming No Substrate

We start with the most severe approximation: the presence of the substrate is ignored for calculating \mathbf{E}^{ref} , \underline{A} and \underline{B} , as if the

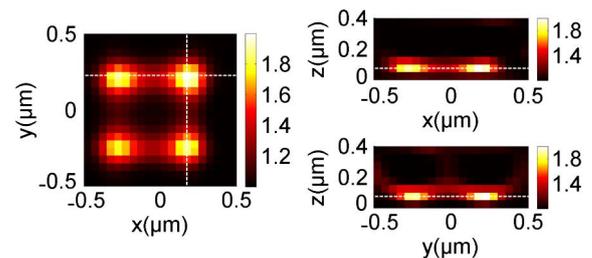


Fig. 5. Same as Fig. 4 with a tightened domain.

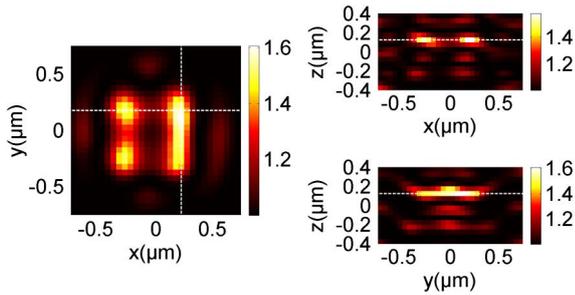


Fig. 6. 3D permittivity map assuming the sample is surrounded by air (no substrate), with an investigation domain symmetrical with respect to the substrate plane ($z = 0$).

sample was surrounded by air, like in the 3D FT^{-1} approach. In this case, the investigation domain Ω is taken symmetrical with respect to the substrate plane (the plane at $z = 0$), to get a configuration similar to the 3D FT^{-1} linear inversion. We observe in Fig. 6 that the reconstruction, while better than that of the FT^{-1} approach, is strongly deteriorated as compared to the rigorous inversion of Figs. 4 and 5. The four cylinders are not resolved and artefacts pollute the image. Mirror images of the cylinders can be seen symmetrically to the substrate plane, but they have a much smaller permittivity as the silicon substrate does not act as a perfect mirror. We have checked that if Ω is taken just above the substrate, the reconstruction is even more degraded.

2. Inversion Taking into Account the Substrate for E^{ref}

A first improvement is to calculate E^{ref} by taking the substrate into account. This means that the object is illuminated by the coherent superposition of the incident plane wave and its specular reflection on the substrate. This straightforward calculation is done without any computational effort in the algorithm. The corresponding object reconstruction is shown in Fig. 7. There are now far fewer artefacts and the four cylinders are almost resolved. This improvement can easily be explained by noting that the field scattered by an object above a mirror illuminated by a plane wave can be approximated by the field scattered by two objects in the air, symmetrically placed with respect to the mirror plane and illuminated by two symmetrical coherent plane waves. Nevertheless, when looking at the reconstruction into more details, the spacing distance between the cylinders is not accurately retrieved on the transverse cut of Fig. 7: it reaches 500 nm instead of 400 nm. Moreover, one can see on the bottom longitudinal cut of Fig. 7 that the two cylinders are not perfectly separated.

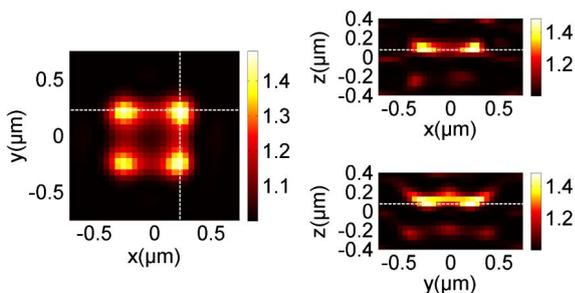


Fig. 7. Same as Fig. 6 when the substrate is taken into account for E^{ref} only.

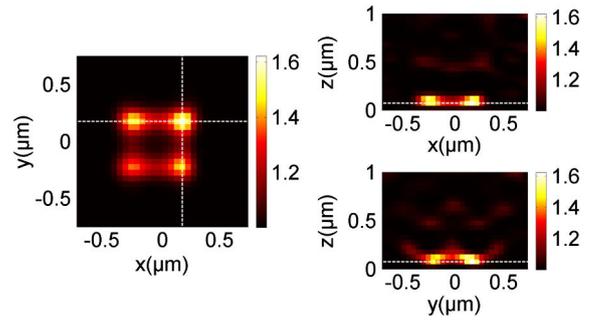


Fig. 8. Same as Fig. 4 when the substrate is taken into account for E^{ref} and \underline{B} only.

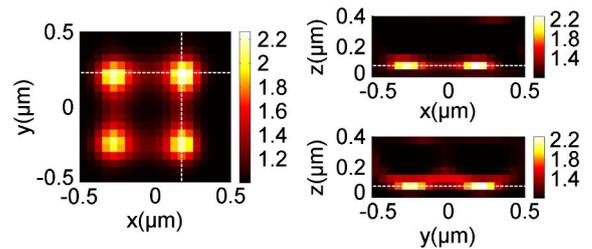


Fig. 9. Same as Fig. 5 when the substrate is taken into account for E^{ref} and \underline{B} only.

We have again checked that taking Ω just above the substrate further deteriorates the reconstruction.

3. Inversion Taking into Account the Substrate for E^{ref} and \underline{B}

A further improvement consists of taking the substrate into account also for calculating the far-field Green tensor \underline{B} . This operation is not time consuming as there exists an analytical expression for the far-field operator [26]. In this case, the only approximation concerns the near-field operator \underline{A} , which is calculated in free-space. Note that the investigation domain is now again placed above the air-substrate interface.

We observe in Figs. 8 and 9 that the reconstruction is very close to that obtained with the rigorous inversion (Figs. 4 and 5). The main difference concerns the relative permittivity value, which is slightly overestimated when \underline{A} does not take into account the interface. Such a behavior has also been observed on synthetic data in previous works [26]. It shows that the influence of the interface in the estimation of the total field inside the sample can be neglected in first approximation. Now, in free-space the susceptibility tensors of matrix \underline{A} are analytical and yield a Toeplitz structure. This property permits to speed up significantly the resolution of Eq. (5).

5. CONCLUSION

In this paper, we have described the implementation of a tomographic diffractive microscope able to get 3D quantitative highly resolved images of samples deposited on an opaque substrate. We have proposed a specific phase and amplitude normalization of the data that ensures that the recorded scattered far field match the simulations. Then, we have studied the performance of a nonlinear iterative inversion method based on various approximations of the forward model (with or without substrate). We have shown that accounting for the substrate is primarily important in the calculation of the

illuminating field and of the far-field Green tensor. Finally, we have demonstrated experimentally that our TDM setup is able to retrieve the 3D quantitative permittivity distribution of sub-wavelength transparent objects deposited on silicon using only 20 different illumination angles. This achievement opens new fields of application for TDM and paves the way toward mirror-assisted isotropic resolution [9].

ACKNOWLEDGMENT

This work has been financed by the ANR SURMITO.

REFERENCES AND NOTES

- V. Lauer, "New approach to optical diffraction tomography yielding a vector equation of diffraction tomography and a novel tomographic microscope," *J. Microsc.* **205**, 165–176 (2002).
- Y. Sung, W. Choi, C. Fang-Yen, K. B. Zadegan, R. R. Dasari, and M. S. Feld, "Optical diffraction tomography for high resolution live cell imaging," *Opt. Express* **17**, 266–277 (2009).
- B. Simon, M. Debailleul, A. Beghin, Y. Tourneur, and O. Haeberlé, "High-resolution tomographic diffractive microscopy of biological samples," *J. Biophotonics* **3**, 462–467 (2010).
- M. Kim, Y. Choi, C. Fang-Yen, Y. Sung, R. R. Dasari, M. S. Feld, and W. Choi, "High-speed synthetic aperture microscopy for live cell imaging," *Opt. Lett.* **36**, 148–150 (2011).
- M. Mir, S. D. Babacan, M. Bednarz, M. N. Do, I. Golding, and G. Popescu, "Visualizing *Escherichia coli* sub-cellular structure using sparse deconvolution spatial light interference tomography," *PLoS ONE* **7**, e39816 (2012).
- Y. Cotte, F. Toy, P. Jourdain, N. Pavillon, D. Boss, P. Magistretti, P. Marquet, and C. Depeursinge, "Marker-free phase nanoscopy," *Nat. Photonics* **7**, 113–117 (2013).
- N. Destouches, C. A. Guérin, M. Lequime, and H. Giovannini, "Determination of the phase of the diffracted field in the optical domain. application to the reconstruction of surface profiles," *Opt. Commun.* **198**, 233–239 (2001).
- O. Haeberlé, K. Belkebir, H. Giovannini, and A. Sentenac, "Tomographic diffractive microscopy: basics, techniques and perspectives," *J. Mod. Opt.* **57**, 686–699 (2010).
- E. Mudry, P. C. Chaumet, K. Belkebir, G. Maire, and A. Sentenac, "Mirror-assisted tomographic diffractive microscopy with isotropic resolution," *Opt. Lett.* **35**, 1857–1859 (2010).
- E. Mudry, E. L. Moal, P. Ferrand, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, "Isotropic diffraction-limited focusing using a single objective lens," *Phys. Rev. Lett.* **105**, 203903 (2010).
- S. W. Hell and E. H. K. Stelzer, "Fundamental improvement of resolution with a 4pi-confocal fluorescence microscope using two-photon excitation," *Opt. Commun.* **93**, 277–282 (1992).
- V. Mico, Z. Zalevsky, P. Garcia-Martinez, and J. Garcia, "Synthetic aperture superresolution with multiple off-axis holograms," *J. Opt. Soc. Am. A* **23**, 3162–3170 (2006).
- S. A. Alexandrov, T. R. Hillman, T. Gutzler, and D. D. Sampson, "Synthetic aperture Fourier holographic optical microscopy," *Phys. Rev. Lett.* **97**, 168102 (2006).
- M. Sarmis, B. Simon, M. Debailleul, B. Colicchio, V. Georges, J.-J. Delaunay, and O. Haeberlé, "High resolution reflection tomographic diffractive microscopy," *J. Mod. Opt.* **57**, 740–745 (2010).
- G. Maire, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, "Experimental demonstration of quantitative imaging beyond Abbe's limit with optical diffraction tomography," *Phys. Rev. Lett.* **102**, 213905 (2009).
- J. Girard, G. Maire, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, "Nanometric resolution using far-field optical tomographic microscopy in the multiple scattering regime," *Phys. Rev. A* **82**, 061801 (2010).
- S. Arhab, G. Soriano, Y. Ruan, G. Maire, A. Talneau, D. Sentenac, P. Chaumet, K. Belkebir, and H. Giovannini, "Nanometric resolution with far-field optical profilometry," *Phys. Rev. Lett.* **111**, 053902 (2013).
- Y. Ruan, P. Bon, E. Mudry, G. Maire, P. C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, B. Wattellier, S. Monneret, and A. Sentenac, "Tomographic diffractive microscopy with a wavefront sensor," *Opt. Lett.* **37**, 1631–1633 (2012).
- M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics* (Pergamon, 1959).
- O. Haeberlé, A. Sentenac, and H. Giovannini, *An Introduction to Diffractive Tomographic Microscopy*, A. M. Vilas and J. D. Alvarez, eds., Modern Research and Educational Topics in Microscopy, Vol. II (Formatex, 2007).
- K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, "Influence of multiple scattering on three-dimensional imaging with optical diffraction tomography," *J. Opt. Soc. Am. A* **23**, 586–595 (2006).
- P. C. Chaumet and K. Belkebir, "Three-dimensional reconstruction from real data using a conjugate gradient-coupled dipole method," *Inverse Probl.* **25**, 024003 (2009).
- P. C. Chaumet, A. Sentenac, and A. Rahmani, "Coupled dipole method for scatterers with large permittivity," *Phys. Rev. E* **70**, 036606 (2004).
- E. Mudry, P. C. Chaumet, K. Belkebir, and A. Sentenac, "Electromagnetic wave imaging of three-dimensional targets using a hybrid iterative inversion method," *Inverse Probl.* **28**, 065007 (2012).
- J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, 2nd ed. (Wiley, 1975).
- K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, "Superresolution in total internal reflection tomography," *J. Opt. Soc. Am. A* **22**, 1889–1897 (2005).
- The experiment was automatized using the free software OpticsBenchUI.
- G. Maire, J. Girard, F. Drsek, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, "Experimental inversion of optical diffraction tomography data with a nonlinear algorithm in the multiple scattering regime," *J. Mod. Opt.* **57**, 746–755 (2010).

Full-polarized Tomographic Diffraction Microscopy Achieves a Resolution about One-Fourth of the Wavelength

T. Zhang,¹ Y. Ruan,¹ G. Maire,¹ D. Sentenac,³ A. Talneau,² K. Belkebir,¹ P. C. Chaumet,^{1,*} and A. Sentenac¹

¹Aix Marseille Université, CNRS, Centrale Marseille, Institut Fresnel, UMR 7249, 13013 Marseille, France

²Laboratoire de Photonique et de Nanostructure, 91460 Marcoussis, France

³European Gravitational Observatory, 56021 Cascina (PI), Italy

(Received 14 March 2013; revised manuscript received 23 July 2013; published 12 December 2013)

We present a marker-free microscope that records the phase, amplitude, and polarization state of the field diffracted by the sample for different illumination directions. The data are processed with an appropriate inversion method to yield the sample permittivity map. We observe that the full-polarized information ameliorates significantly the three-dimensional image of weakly scattering subdiffraction objects. A resolution about one-fourth of the illumination wavelength is experimentally demonstrated on complex samples.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.243904](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.243904)

PACS numbers: 42.30.Wb, 42.25.Fx

Optical microscopy is an old, popular tool for imaging microscopic samples. In the past decades, many different configurations such as confocal, dark-field, phase [1] or the more recent tomographic diffraction [2] microscopies have been developed to improve the resolution, the sensitivity, and/or the contrast of nonfluorescent specimen images. All these techniques rely on the same physical principle: the sample interacts with an incident light beam (coherent or incoherent) and the image is formed analogically or numerically from the scattered far field. In the single scattering regime, a far-field microscope is ideally able to capture the sample information up to frequency $2/\lambda$ where λ is the illumination wavelength [3]. Thus, the resolution, defined as the full width at half maximum of the image of a point object, could, theoretically, reach $\lambda/4$, i.e., half the conventional diffraction limit. In practice, the noise and the image formation process deteriorate the restitution of the sample high spatial frequencies. Therefore, the resolution of the best current microscopes is still about $\lambda/2$ [4].

A promising way for ameliorating the resolution is to take advantage of the vectorial nature of light. Thus, the polarization-dependent behavior of a tightly focused beam [5,6] has been used to improve the resolution of a confocal-like microscope along one specific direction [7]. However, the intrinsic difficulty to combine confocal images obtained under various incident polarization states [7] has hampered the use of this approach to reach a resolution significantly beyond the diffraction limit in all directions of the image plane.

Another interesting approach is tomographic diffraction microscopy (TDM) which numerically reconstructs the sample three-dimensional image from many holograms recorded under different incident angles. Remarkably, a transverse resolution about one-fourth of the wavelength has been observed on elongated objects [8] with TDM. Yet, this achievement has never been evidenced on a three-dimensional specimen. The most likely reason is that

TDM does not account for the light polarization effect in the image formation process [9]. The holograms are obtained for one given polarization state and the reconstruction procedures are based on scalar approximate models [4,10,11].

In this Letter, we sought to exploit the full potential of TDM by taking advantage of the light polarization. We implemented a tomographic diffraction microscope that records and processes the vectorial complex field scattered by a sample for any incident polarization state [12]. The setup, described in Fig. 1, is a modified reflection microscope in which an off-axis holography technique has been introduced to recover the phase and amplitude of the field at the microscope image plane. A collimated laser beam (He-Ne wavelength $\lambda = 633$ nm), controlled by a mirror mounted on step motors (Newport NSA12), illuminates the sample through an air objective satisfying Sine-Abbe condition with numerical aperture $NA = 0.95$ (Zeiss

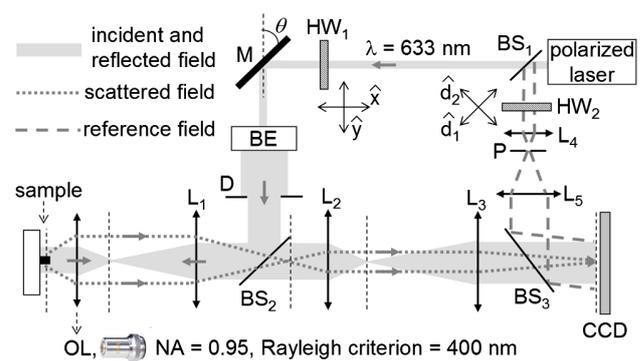


FIG. 1 (color online). Schematic of the full-polarized TDM setup. M the rotative mirror. BE the beam expander. D the diaphragm. BS the beam splitter. OL the objective lens. P the pinhole. L_1 the tube lens. L_2 and L_3 are the relay lenses ($f' = 3.5$ and 20 cm, respectively). HW_1 and HW_2 the half-wave plate on the incident field and reference field, respectively.

Epiplan-Apochromat $\times 50$) under various angles of incidence. At the image plane of the microscope, the field scattered by the sample, \mathbf{E} , reads, overlooking the magnification factor,

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\parallel}) = \int_{k_{\parallel} < k_0 \text{NA}} \frac{1}{\gamma} (e_s \hat{\mathbf{s}} + e_p \hat{\mathbf{p}}) \exp(i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}) d\mathbf{k}_{\parallel}, \quad (1)$$

where $\hat{\mathbf{z}}$ denotes the optical axis of the microscope, $\gamma = \sqrt{(2\pi/\lambda)^2 - k_{\parallel}^2}$, $\hat{\mathbf{s}} = \hat{\mathbf{z}} \times \hat{\mathbf{k}}$, $\hat{\mathbf{p}} = \hat{\mathbf{s}} \times \hat{\mathbf{k}}$ with $\mathbf{k} = \mathbf{k}_{\parallel} + \gamma\hat{\mathbf{z}}$ and (e_s, e_p) are the s and p complex amplitudes of the sample scattered plane wave propagating along \mathbf{k} . For each illumination, one records with a CCD camera (Kappa DX4-1020FW), the interference patterns between \mathbf{E} and an off-axis reference wave which is successively polarized along two different directions $\hat{\mathbf{d}}_1$ and $\hat{\mathbf{d}}_2$ [13]. Processing the holograms yields $\mathbf{E} \cdot \hat{\mathbf{d}}_1$ and $\mathbf{E} \cdot \hat{\mathbf{d}}_2$ from which (e_s, e_p) for all \mathbf{k}_{\parallel} such that $k_{\parallel} < k_0 \text{NA}$ are easily extracted. To obtain the vectorial complex field scattered by the sample for any incident polarization state, one needs to record (e_s, e_p) for two independent incident polarization states. Hence, the full-polarized TDM mode requires four intensity measurements for each incident angle (and possibly only two using [12]).

The different incident and reference polarization states are formed thanks to the half-wave plates that are placed on the illumination and reference wave paths, see Fig. 1. To avoid turning off the specular reflection (which is used for normalizing the data [14]), the incident polarization directions are set to $\hat{\mathbf{x}}$ and $\hat{\mathbf{y}}$, while the reference ones are $\hat{\mathbf{d}}_1 = (\hat{\mathbf{x}} + \hat{\mathbf{y}})/\sqrt{2}$ and $\hat{\mathbf{d}}_2 = (\hat{\mathbf{x}} - \hat{\mathbf{y}})/\sqrt{2}$. For comparison purposes, we also considered the classical implementation of TDM in which the incident and reference polarization directions are the same, either $\hat{\mathbf{x}}$ or $\hat{\mathbf{y}}$. In these configurations (hereafter indicated by $\hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}}$ or $\hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$), the data consist of the scalar projection of the scattered field on the incident polarization state. Thus, there are four times less data in the $\hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}}$ or $\hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$ modes than in the full-polarization mode.

In this Letter, the samples to be imaged are deposited on a silicon substrate and are described by a relative permittivity contrast $\chi(\mathbf{r})$ with respect to the planar geometry [9,15]. The unknown sample permittivity contrast is reconstructed from the TDM data using an iterative inversion method based on a rigorous vectorial electromagnetic model of the scattered far field (e_s, e_p) , which, in particular, accounts for the substrate [16]. The algorithm consists in estimating, iteratively, the relative permittivity contrast χ of a bounded domain W (which is known to contain the sample), such that it minimizes a cost function representing the distance between the measurements and the simulated scattered far field obtained with the permittivity estimation [9,17]. The minimization of the cost function is performed using a conjugate gradient algorithm and, to improve the reconstruction, the unknown relative permittivity in W is assumed to be real and positive. Note that the method is

adapted to any TDM data. In the full-polarization mode, the cost function involves the full vectorial field scattered by the sample, whereas in the $\hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}}$ mode, it involves only the projection of the scattered field.

For investigating the performance of our setup, we consider a sample made of $h = 150$ nm high resin cylinders with diameter $D = 150$ nm and relative permittivity 2 deposited on a planar Si substrate of relative permittivity $15 + i0.15$, and centered at the summits of a square with sides 300 nm along $\hat{\mathbf{x}}$ and $\hat{\mathbf{y}}$ as depicted in Fig. 2(a). The scattered far field is measured in both the full-polarized and scalar ($\hat{\mathbf{x}}\hat{\mathbf{x}}$, $\hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$) modes for 10 incident directions in the (x, z) plane and 10 in the (y, z) plane with azimuthal angles varying from -50° to 50° . With this angular configuration, the diffraction limit of the microscope is about $0.5\lambda/\text{NA} \approx 340$ nm, i.e., above the cylinders center interdistance. It is observed in Fig. 2(b) that, unsurprisingly, the four cylinders cannot be distinguished on a classical wide-field microscope image (which was synthesized by summing the image field intensities for all the illuminations).

We first analyze the achievement of a classical TDM implementation by processing the scalar $\hat{\mathbf{y}}\hat{\mathbf{y}}$ data with the usual inverse Fourier transform algorithm [2]. The latter relies on a scalar, free-space (no substrate), single scattering model which states that the far field scattered in the \mathbf{k} direction by a sample illuminated by a plane wave with wave vector \mathbf{k}_i is proportional to the three-dimensional Fourier transform of $\chi(\mathbf{r})$ taken at $(\mathbf{k} - \mathbf{k}_i)$. Theoretically, in a noise-free configuration, the transverse image resolution should be about $0.25\lambda/\text{NA} \approx 170$ nm with our angle configuration, i.e., below the cylinders center interdistance [3]. Yet, it is seen in Fig. 3(a) that the simple inversion scheme fails in retrieving the sample. Its noise sensitivity (due to the weak number of incidences) and its model errors are prohibitive for imaging such small objects.

Applying the iterative inversion method to the same scalar data provides a much better sample estimate. The cylinders height is now accurately retrieved. However, their shapes are strongly elongated along the $\hat{\mathbf{x}}$ axis, Fig. 3(b). This resolution anisotropy is a direct consequence of the incident and reference polarization choice, as was observed in Ref. [7], and will be explained below. We now turn to the reconstructions obtained either with the

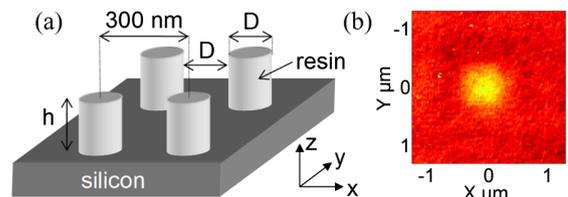


FIG. 2 (color online). (a) Sample geometry. $D = 150$ nm and $h = 150$ nm. (b) Wide-field image of the sample obtained using spatially incoherent illumination: details of the object are not resolved.

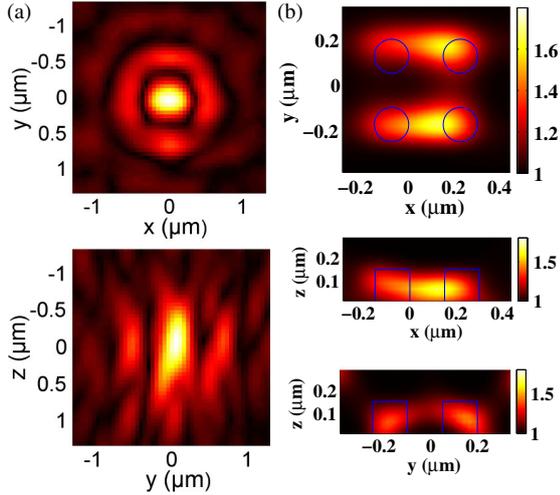


FIG. 3 (color online). Sample reconstructions obtained from the scalar $\hat{y}\hat{y}$ data. (a) Longitudinal and transverse cuts of the three-dimensional image given by a direct inversion method based on a free-space scalar model. (b) Longitudinal and transverse cuts of the relative permittivity estimation ($\varepsilon = \chi + 1$) given by an iterative inversion method based on a rigorous vectorial model of the data accounting for the substrate and for the field projection onto the \hat{y} direction.

combined scalar $\hat{x}\hat{x}$ and $\hat{y}\hat{y}$ data, Figs. 4(a)–4(c), or the full-polarized vectorial mode, Figs. 4(d)–4(f). In both cases, the four cylinders are accurately retrieved with isotropic resolution, the full-polarized vectorial data yielding

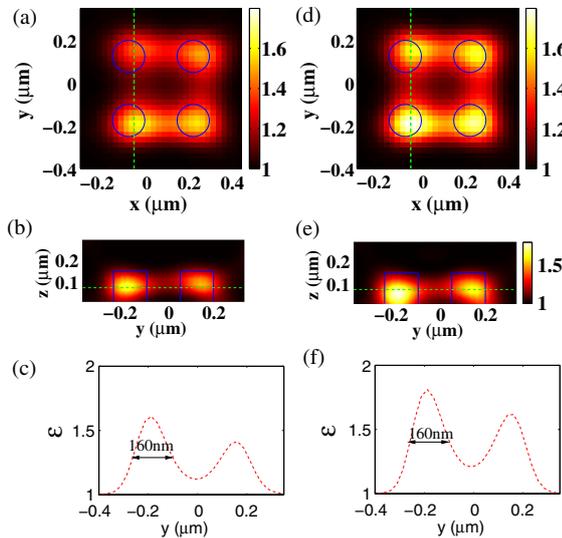


FIG. 4 (color online). Relative permittivity reconstructions, $\varepsilon = \chi + 1$, obtained by the iterative inversion method based on a rigorous vectorial model of the field from the combined $\hat{x}\hat{x}$ and $\hat{y}\hat{y}$ data (a)–(c) and from the full-polarized vectorial data (d)–(f). (a),(d) xy section, (b),(e) yz section taken along the dashed line in (a),(d), (c),(f) reconstructed permittivity along the dashed line in (b),(e). The full width at half maximum of the reconstructed permittivity is about one-fourth of the wavelength.

a better quantitative estimation of the permittivity level. The resolution, defined as the full width at half maximum of the reconstructed permittivity peaks, Figs. 4(c) and 4(f), is about one-fourth of the wavelength.

The role of the incident and reference polarization states on the image resolution requires a careful analysis. Indeed, when single scattering is dominant (which is the case for this sample), the scalar $\hat{x}\hat{x}$ or $\hat{y}\hat{y}$ data give access to the sample permittivity Fourier coefficients within the same Fourier domain as the vectorial full-polarized data [15]. Hence, the resolution of the image depends only on the ability to extract, from noisy data, the permittivity Fourier coefficients at the highest accessible spatial frequencies. The latter are conveyed by the far field scattered at high angles, namely for large $\mathbf{k} - \mathbf{k}_i$. Now, in presence of a substrate, the far-field behavior in these directions significantly differs depending on the incident polarization state. In Fig. 5, we plot the scattered far-field modulus in the \mathbf{k}_{\parallel} plane obtained experimentally and theoretically when the sample is illuminated under 50° in the (x, z) plane with a p -polarized (corresponding to the \hat{x} direction for the incident half-wave plate) and s -polarized (corresponding to the \hat{y} direction) plane waves. We observe that the back scattered field is about twice bigger with the p -polarized incident wave than with the s -polarized incident wave. The better signal to noise ratio at high angles obtained with p -polarized incident waves explains the better resolution along the \hat{y} direction that is observed in Fig. 3(b). To confirm this interpretation, we plot, in Fig. 6, the relative permittivity map reconstructed by the iterative inversion

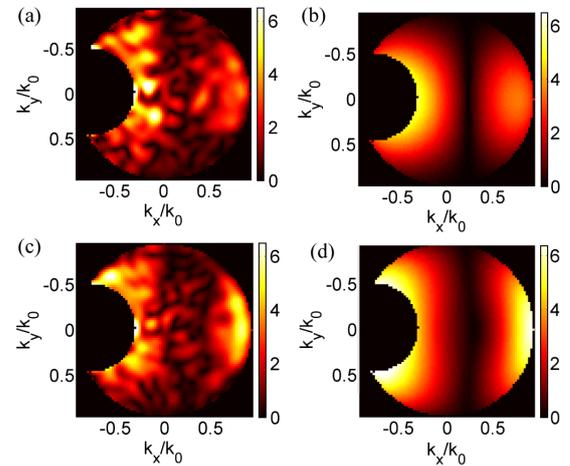


FIG. 5 (color online). Experimental (a),(c) and theoretical (b),(d) modulus of the far field scattered by the sample illuminated in the (x, z) plane under 50° of incidence. The scattered field is normalized by the incident magnitude times 10^8 . The black disk on the left indicates the nonexploitable angular domain about the specular reflection. (a),(b) the incident wave is s polarized. (c),(d) the incident wave is p polarized. One observes on the right of the plots that the back scattered field amplitudes, which convey the highest spatial frequency sample information, are twice as big in p polarization as in s polarization.

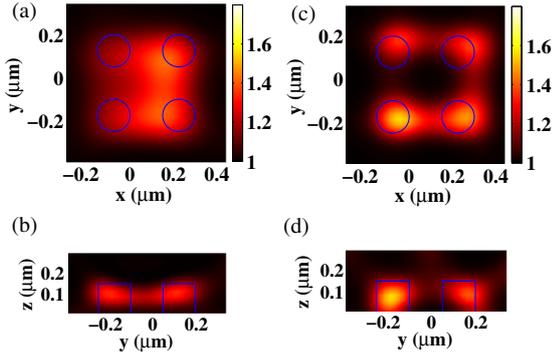


FIG. 6 (color online). xy (a),(c) and yz (b),(d) sections of the reconstructed permittivity given by the iterative “rigorous” inversion method from the measured far field. (a) and (b) with s -polarized incident waves; (c) and (d) with p -polarized incident waves. The superiority of p illumination for imaging the sample is evidenced.

method from the scattered vectorial field obtained using only s -polarized incident waves, Figs. 6(a) and 6(b), or only p -polarized incident waves, Figs. 6(c) and 6(d). As expected, the p -polarized mode yields an accurate sample reconstruction, similar to that of the full-polarized mode, while the s -polarized mode provides a totally blurred image.

To document further the potential of the full-polarized TDM, we image a complex sample made of twelve resin rods of width 100 nm, length 300 nm, and height 140 nm radially placed at the summit of a dodecagon [Fig. 7(a)]. The sample is illuminated by eight directions of incidence, defined by a fixed polar angle $\theta = 60^\circ$ and an azimuthal angle regularly spaced within 2π . The dark-field microscope image, simulated by summing the scattered

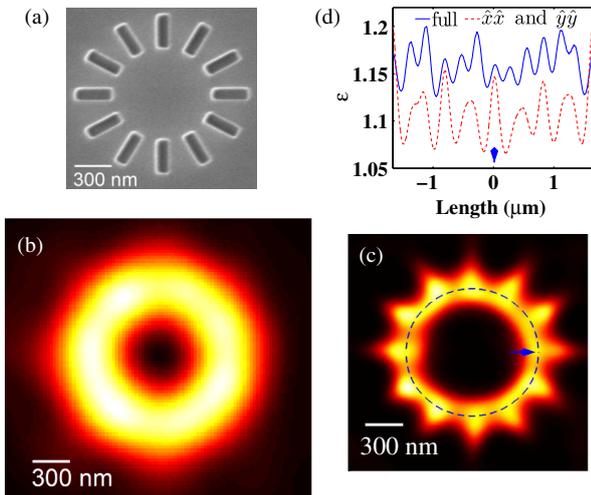


FIG. 7 (color online). (a) Scanning electron microscope image. (b) Dark-field optical microscope image. (c) Reconstructed permittivity averaged over the sample’s height using full-polarized TDM data. (d) Permittivity along the dashed circle in (c). Plain line: full-polarized data; dashed line: the combined $\hat{x}\hat{x}$ and $\hat{y}\hat{y}$ data.

intensities recorded at the image plane for all the illuminations, displays a blurred ring with no indication of individual rods [Fig. 7(b)]. In contrast, the full polarized TDM recovers the twelve rods, Fig. 7(c). The reconstructed permittivity taken along a circle passing through the middle of the rods demonstrates that the technique is able to distinguish the rods whatever their orientation even though their interdistance is about one-fourth of the wavelength. On this complex sample, the full-polarized permittivity reconstruction is significantly better than the $\hat{x}\hat{x}$ and $\hat{y}\hat{y}$ one, Fig. 7(d), especially for the rods on either side of the image diagonals.

In conclusion, we have developed the first optical digital microscope that exploits all the information accessible via the diffraction process (intensity, phase, and polarization state of the scattered field for any possible illumination within the numerical aperture of the objective). In the single scattering regime, this ultimate microscope is able to reconstruct permittivity maps with a resolution about one-fourth of the wavelength. This experimental achievement, which outperforms that of all existing far-field microscopes, points out the importance of accounting for light polarization when tackling super resolution and sets a landmark in optical far-field imaging.

This work has been financed by the ANR SURMITO.

*patrick.chaumet@fresnel.fr

- [1] D. B. Murphy and M. W. Davidson, *Fundamentals of Light Microscopy and Electronic Imaging* (Wiley, New York, 2012).
- [2] V. Lauer, *J. Microsc.* **205**, 165 (2002).
- [3] O. Haeberlé, K. Belkebir, H. Giovannini, and A. Sentenac, *J. Mod. Opt.* **57**, 686 (2010).
- [4] Y. Cotte, F. Toy, P. Jourdain, N. Pavillon, D. Boss, P. Magistretti, P. Marquet, and C. Depeursinge, *Nat. Photonics* **7**, 113 (2013).
- [5] R. Dorn, S. Quabis, and G. Leuchs, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 233901 (2003).
- [6] D. Lara and C. Dainty, *Appl. Opt.* **45**, 1917 (2006).
- [7] K. A. Serrels, E. Ramsay, R. J. Warburton, and D. T. Reid, *Nat. Photonics* **2**, 311 (2008).
- [8] G. Maire, F. Drsek, J. Girard, H. Giovannini, A. Talneau, D. Konan, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 213905 (2009).
- [9] Y. Ruan, P. Bon, E. Mudry, G. Maire, P. C. Chaumet, H. Giovannini, K. Belkebir, A. Talneau, B. Wattellier, S. Monneret *et al.*, *Opt. Lett.* **37**, 1631 (2012).
- [10] Y. Sung, W. Choi, C. Fang-Yen, K. B. Zadegan, R. R. Dasari, and M. S. Feld, *Opt. Express* **17**, 266 (2009).
- [11] W. Choi, C. Fang-Yen, K. Badizadegan, S. Oh, N. Lue, R. R. Dasari, and M. S. Feld, *Nat. Methods* **4**, 717 (2007).
- [12] T. Colomb, F. Dürr, E. Cuche, P. Marquet, H. G. Limberger, R.-P. Salathé, and C. Depeursinge, *Appl. Opt.* **44**, 4461 (2005).
- [13] The experiment was automatized using the free software OPTICSBENCHUI, <http://www.opticsbenchui.com/>.

-
- [14] G. Maire, J. Girard, F. Drsek, H. Giovannini, A. Talneau, K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *J. Mod. Opt.* **57**, 746 (2010).
- [15] E. Mudry, P. C. Chaumet, K. Belkebir, G. Maire, and A. Sentenac, *Opt. Lett.* **35**, 1857 (2010).
- [16] K. Belkebir, P. C. Chaumet, and A. Sentenac, *J. Opt. Soc. Am. A* **22**, 1889 (2005).
- [17] E. Mudry, P. C. Chaumet, K. Belkebir, and A. Sentenac, *Inverse Probl.* **28**, 065007 (2012).

Résumé

Ce manuscrit présente mes travaux de recherche sur la microscopie tomographique diffractive. Cette technique vise à reconstruire la carte 3D d'indice de réfraction de l'objet sondé à partir de son champ diffracté cohérent, mesuré en amplitude et en phase. Elle possède en outre des performances de super-résolution, en permettant d'améliorer la résolution par rapport aux techniques classiques d'imagerie optique comme la microscopie confocale. Son principe est de mesurer le champ diffracté par l'objet sous différents angles d'illumination successifs, et de le reconstruire ensuite en appliquant une procédure d'inversion numérique au jeu de données.

J'ai développé une approche originale de microscopie tomographique diffractive, qui couple un dispositif expérimental que j'ai élaboré à un algorithme d'inversion itératif de l'équipe SEMOX. Celui-ci effectue une modélisation rigoureuse du processus de diffraction, ce qui permet notamment de prendre un compte le phénomène de diffusion multiple, la polarisation des champs incident et diffracté, ainsi qu'un possible environnement spécifique de l'objet (déposé sur substrat réfléchissant, multi-couches...), contrairement à l'approche classique de microscopie tomographique diffractive.

Le cheminement de mes travaux a comporté trois étapes principales. J'ai tout d'abord validé cette approche dans un cadre simplifié scalaire sur des objets 2D, et développé une procédure de normalisation fine des données pour les rendre compatibles avec les hypothèses du modèle impliqué dans la procédure d'inversion. J'ai ensuite amélioré la méthode pour appliquer le microscope tomographique à des objets 3D de petites tailles. Enfin, j'ai fait évoluer la mesure scalaire du champ diffracté vers une mesure résolue en polarisation, pour ainsi exploiter l'intégralité des informations qu'il contient.

Au final, les reconstructions que j'ai obtenues atteignent une résolution transverse isotrope de $\lambda/4$ sur objets 3D (λ étant la longueur d'onde d'illumination), et de $\lambda/8$ sur objets 2D, grâce à l'apport d'un fort régime de diffusion multiple. Ces résultats sont à l'heure actuelle inégalés par toute autre technique d'imagerie optique sans marquage en champ lointain.

Mots clés : imagerie optique à haute résolution, microscopie tomographique, microscopie de phase, inversion numérique.