



HAL
open science

Instrumentation pour la mesure diélectrique locale de films polymériques chargés de nanoparticules

Baptiste Ferrero

► **To cite this version:**

Baptiste Ferrero. Instrumentation pour la mesure diélectrique locale de films polymériques chargés de nanoparticules. Physique Générale [physics.gen-ph]. Ecole normale supérieure de lyon - ENS LYON, 2023. Français. NNT : 2023ENSL0004 . tel-04056084v2

HAL Id: tel-04056084

<https://hal.science/tel-04056084v2>

Submitted on 17 May 2023

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

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



Numéro National de Thèse : 2023ENSL0004

THESE

en vue de l'obtention du grade de Docteur, délivré par
l'ECOLE NORMALE SUPERIEURE DE LYON

Ecole Doctorale N° 52
Physique et Astrophysique (PHAST)

Discipline : Physique

Soutenue publiquement le 25/01/2023, par :

Baptiste Ferrero

Instrumentation pour la mesure diélectrique locale de films polymériques chargés de nanoparticules

Devant le jury composé de :

MARCHI, Florence Rapporteuse	Maître de Conférences-HDR	Institut Néel
GAUTIER, Brice Rapporteur	Professeur des Universités	Institut des Nanotechnologies de Lyon
TROUILLET-FONTI, Lise Examinatrice	Ingénieure	Solvay RICL
SOTTA, Paul Examineur	Directeur de Recherche	INSA Lyon
BELLON, Ludovic Directeur de thèse	Directeur de Recherche	Laboratoire de Physique
CRAUSTE-THIBIERGE, Caroline Examinatrice	Chargée de recherche	Laboratoire de Physique

Instrumentation pour la mesure diélectrique locale de films polymériques chargés de nano-particules

Baptiste Ferrero

Janvier 2023

Résumé

La dispersion d'oxydes métalliques au sein d'une matrice polymère permet de découpler la permittivité diélectrique de cette dernière tout en conservant ses propriétés mécaniques. Une compréhension fine des interactions entre les constituants est néanmoins nécessaire pour maîtriser la formulation et l'optimisation du matériau composite final.

Cette thèse porte sur la création d'un instrument permettant la caractérisation à l'échelle des nanoparticules de la réponse du matériau : un microscope à force atomique (AFM) pour réaliser une spectroscopie diélectrique locale. Cette méthode donnera accès à la dynamique microscopique des chaînes polymères en interaction avec les particules. L'instrument développé se distingue par sa grande précision, liée à une détection interférométrique de la déflexion de la sonde AFM et à un environnement très faible bruit, combinant cage de Faraday, chambre sourde et isolation des vibrations mécaniques. Une chambre à vide et un contrôle de température parachèvent la maîtrise des conditions de mesure.

Pour caractériser la précision et la fiabilité de la mesure interférométrique, une étude poussée des imperfections optiques est réalisée. Une méthode de calibration innovante permettant de passer outre ces imperfections est proposée. Elle améliore notablement la linéarité de la mesure par rapport aux méthodes traditionnelles des interféromètres à quadrature de phase. Pour finir, une preuve de principe de la mesure diélectrique locale est réalisée sur un échantillon de PVdF-HFP chargé de particules de BaTiO₃. Elle démontre le potentiel de la méthode pour la cartographie des propriétés diélectriques à l'échelle de particules de 50 nm de diamètre.

Abstract

The dispersion of metallic oxides within a polymer matrix is used to enhanced its dielectric properties while preserving its interesting mechanical properties. A better understanding of the interactions between the different materials of such a composite is nevertheless required in order to fully optimize the end product.

The aim of this PhD thesis was to create a system able to perform nanoscale characterisation of the dielectric response of a polymer-oxide composite by the mean of Atomic Force Microscopy (AFM). This method give us access to the microscopic dynamic of polymer chains in interactions with the particles. The system is highly precise due to the use of an interferometric monitoring of the deflection of the AFM cantilever and the multiple isolation systems shielding the measure from outside noises, including a Faraday cage, a semi-anechoic chamber. Additionally the measure is performed within a vacuum chamber under temperature control.

To characterize the precision and reliability of the interferometric measure system, the impact of optical imperfections have been extensively studied. An innovative calibration method to compensate these imperfections is offered. It improves the end linearity of the mesure in comparison to the traditionally used methods of correction. Finally, a proof of principle of our ability to perform dielectric measure is demonstrated upon a sample of PVdF-HFP composite mixed with BaTiO₃ nanoparticles. It shows the potential of our method for the cartography of dielectric properties on the scale of these 50 nm diameter particles.

Table des matières

Remerciements	6
Introduction	7
1 État de l'art	9
1.1 Polymères	9
1.1.1 Présentation	9
1.1.1.1 Influence de la température	9
1.1.1.2 Equivalence temps-température	10
1.1.2 Usages	10
1.2 Propriétés diélectriques des polymères	10
1.2.1 Permittivité diélectrique	10
1.2.2 Effet de la fréquence	11
1.3 Propriétés du PVdF-HFP dopé en oxyde métallique	11
1.3.1 Le PVdF-HFP	12
1.3.1.1 Structure	12
1.3.2 L'oxyde BaTiO ₃	13
1.3.3 Propriétés du matériau composite	13
1.3.3.1 Fabrication	14
1.3.3.2 Propriétés diélectriques	15
1.4 La Microscopie à Force Atomique	15
1.4.1 Principe	15
1.4.2 Définitions	16
1.4.2.1 Dimensions du levier	16
1.4.2.2 Déflexion	16
1.4.3 Modèle mécanique	16
1.4.3.1 Facteur de qualité	17
1.4.3.2 Variation de la fréquence de résonance	17
1.4.4 Microscopie de contact	18
1.4.5 Microscopie en "tapping"	18
1.4.5.1 Principe	19
1.4.5.2 Réalisation	20
1.4.6 Microscopie en modulation de fréquence	20
1.4.6.1 Principe	20
1.4.6.2 Réalisation	21
1.4.7 Microscopie à sonde de Kelvin	21
1.4.8 Microscopie de force électrostatique	22
1.5 Conclusion	22

2	Techniques de Mesures	23
2.1	Mesure de la permittivité	23
2.1.1	Principe	23
2.1.2	Localisation de la mesure	24
2.1.2.1	Définitions	24
2.1.2.2	Formulation	25
2.1.2.3	Arcs de champs	25
2.1.3	Dépendance à la permittivité	26
2.1.3.1	Expression	27
2.1.3.2	Cas de l'extrémité de la pointe	27
2.1.3.3	Cas du cône de la pointe	28
2.1.3.4	Cas du levier	28
2.1.3.5	Application Numérique	28
2.1.4	Formulation de la force	29
2.1.4.1	Formulation	29
2.1.4.2	Application Numérique	30
2.1.5	Formulation du gradient de force	31
2.1.5.1	Formulation	32
2.1.5.2	Application numérique	32
2.1.6	Mesure du gradient de force	32
2.1.7	Exploration fréquentielle	33
2.2	Cartographie	34
2.3	Conclusion	35
3	Instrumentation	36
3.1	Cahier des charges	36
3.1.1	Isolation	36
3.1.2	Stabilité de la chimie de surface	36
3.1.3	Positionnement	37
3.1.4	Connectivité électrique	37
3.1.5	Suivi de la déflexion	37
3.2	Généralités	37
3.3	Contrôle de la tension	39
3.3.1	Générateur de fonction	39
3.3.2	Mise à la masse	39
3.4	Systèmes d'isolation	39
3.5	Système de vide	39
3.5.1	Principe	39
3.5.2	Isolation des jonctions	40
3.5.3	Performances	41
3.6	Intérieur de la chambre	41
3.6.1	Support de l'échantillon	42
3.6.1.1	Contrôle de position	42
3.6.2	Contact électrique	44
3.6.3	Contrôle de la température	44
3.6.3.1	Résistance chauffante	44
3.6.3.2	Sonde thermique	44
3.6.4	Isolation thermique	44
3.6.4.1	Risques liés à la température	45
3.6.5	Support du levier	47
3.7	L'interféromètre différentiel à quadrature de phase	47
3.7.1	Principe	48
3.7.2	Détail du parcours	48

3.7.3	Formulation mathématique	51
3.8	Traitement de données	52
3.8.1	Calcul de la déflexion	52
3.8.1.1	Principe	52
3.8.1.2	Réalisation	54
3.8.2	Rétroaction	54
3.8.2.1	Principe	54
3.8.2.2	Réalisation	54
3.8.3	Extraction des paramètres importants	55
3.8.3.1	Principe	55
3.8.3.2	Réalisation	56
3.9	Conclusion	57
4	Des interférences à la déflexion	58
4.1	Rappels et définitions	59
4.2	Imperfections du système optique	59
4.2.1	Paramètres géométriques impactant les interférences	59
4.2.1.1	Focalisation sur le levier	62
4.2.1.2	Effet de l'orientation	64
4.2.1.3	Effet des modes d'oscillation du levier	65
4.2.2	Trajectoire du contraste	65
4.2.2.1	Effet du chip	66
4.2.2.2	Effet de la courbure statique du levier	67
4.2.2.3	Effet du mode considéré	68
4.2.2.4	Effet de diaphragme	68
4.2.2.5	Effet d'un défaut d'alignement	69
4.2.2.6	Effet d'un désaxage de la lame quart d'onde	71
4.3	Méthodes de correction	73
4.3.1	Correction de Heydemann	73
4.3.1.1	Formulation	73
4.3.1.2	Mise en œuvre	74
4.3.2	Calibration harmonique	74
4.3.3	Calibration par minimisation de la distorsion harmonique	75
4.3.4	Vue générale des fonctions de corrections	76
4.4	Techniques de comparaisons des méthodes	77
4.4.1	Fonction de calibration	77
4.4.2	Taux de distorsion harmonique	78
4.4.2.1	Principe	79
4.4.3	Test direct de linéarité de la mesure	79
4.4.3.1	Principe	79
4.4.3.2	Mise en œuvre	80
4.5	Études comparatives des méthodes de linéarisation	81
4.5.1	Comparaison entre la calibration harmonique et la minimisation du THD	81
4.5.1.1	Taux de Distorsion Harmonique	81
4.5.1.2	Test direct de la linéarité	84
4.5.2	Performances de la méthode harmonique par rapport à celle de Heydemann	86
4.6	Conclusion	87
5	Imagerie Diélectrique	88
5.1	Leviers	88
5.1.1	Caractéristiques des leviers utilisés	88
5.2	Échantillons	89
5.2.1	Processus de fabrication	89

5.3	Étude de la dispersion	90
5.3.1	Microscopie Électronique à Balayage	90
5.3.2	Mesure de l'adhésion	92
5.3.3	Potentiel de surface	93
5.4	Mesures diélectriques	94
5.4.1	Cartographies	94
5.4.1.1	Topographie	94
5.4.1.2	Protocoles de mesure diélectrique	95
5.4.2	Résultats des protocoles	96
5.5	Interprétation des résultats	97
5.5.1	Correction par la distance	97
5.5.1.1	Paramètres importants	97
5.5.1.2	Correction de la mesure "AFM-FM"	97
5.5.1.3	Correction de la mesure "Z constant"	100
5.5.2	Mesures Corrigées	101
5.6	Conclusion	103
Conclusion		104
	Conclusion générale	104
	Appareil de mesure	104
	Capacité de Cartographie	104
	Correction des distorsions optiques	104
	Perspectives	104
	Dynamique des polymères	105
	Spectroscopie Diélectrique	105
	Possibilités offertes	105
A Modes de flexion du levier		106
A.1	Mode fréquentiel	106
A.1.1	Paramètre α_i	106
A.2	Forme des modes	106
A.2.0.1	Déformation	106
A.2.0.2	Inclinaison	107
A.3	Formules utiles	107
A.3.1	Application numérique	107
B Calcul des Forces exercées		108
B.1	Géométrie	108
B.2	Formulation de la force	108
B.3	Calculs	109
B.3.1	Arcs de champs	109
B.3.1.1	Extrémité de la pointe	109
B.3.1.2	Cône de la pointe	110
B.3.1.3	Levier	111
B.3.2	Permittivité	111
B.3.2.1	Extrémité de la pointe	112
B.3.2.2	Cône de la pointe	112
B.3.2.3	Levier	113
B.3.2.4	Approximation utilisée	113
B.3.3	Force appliquée	113
B.3.3.1	Extrémité de la pointe	114
B.3.3.2	Cône de la pointe	115
B.3.3.3	Levier	116

B.3.4	Gradient de Force	116
B.3.4.1	Extrémité de la pointe	116
B.3.4.2	Cône de la pointe	117
B.3.4.3	Levier	117
C	Expression du contraste	118
C.1	Principe	118
C.2	Formulation	119
C.2.1	Champs électromagnétique	119
C.2.2	Effet du prisme de Wollaston	119
C.2.3	Plans d'analyse	120
C.2.4	Contraste	120

Remerciements

La thèse constitue par bien des aspects un travail assez personnel, puisque le doctorant doit en être le moteur et sera *in fine* le seul à être évalué sur la qualité du travail produit. Il serait cependant de mauvaise foi d'affirmer que ces trois années et demi de travail ont été faites en solitaire puisque j'ai eu la chance de les passer au sein d'une équipe disponible, compétente et motivée, à laquelle ce document doit beaucoup.

Je tiens en premier lieu à remercier mon directeur de thèse Ludovic Bellon qui a su me guider et m'aider tout en me poussant à m'approprier mon travail et à gagner en autonomie. En parallèle, ses initiatives pour souder notre équipe et notamment ses doctorants et post-doctorants autour de barbecues dans sa très belle maison ou autour d'activités sportives en plein air (ou en pleine terre pour l'escapade spéléologique) m'ont permis de trouver des interactions sociales bienvenues dans ma situation de nouveau résident de Lyon au cours d'une période marquée par les contraintes sanitaires. De même, je tiens à remercier Caroline Crauste-Thibierge, qui m'a notamment prêté son propre dispositif pour que je puisse me faire la main sur un appareil de microscopie de force atomique et qui a été d'une aide inestimable dans tout ce qui concernait le comportement des polymères ainsi qu'une personne de référence pour mes nombreuses questions sur le fonctionnement du laboratoire. J'ai également eu la chance de pouvoir compter sur la grande expertise de Sergio Ciliberto à travers ses conseils et nos discussions tout au long du projet. Je les remercie également tous les trois pour le gros travail de relecture qu'ils ont fourni en se relayant, ce qui m'a permis de travailler en continu sur le manuscrit.

Le fait d'avoir pu compter sur ces trois encadrants, aux compétences complémentaires et travaillant souvent ensemble, a été une chance et un plaisir pour moi, mais ils n'ont pas été les seuls à m'aider durant ces années :

La réalisation du dispositif expérimental n'aurait pas été possible sans le concours de Vincent Dolique, ingénieur de recherche au Laboratoire de Physique qui m'a beaucoup aidé lors de l'installation des différents composants du dispositif, ce qui m'a aidé à me former à la soudure, à l'électronique et aux systèmes de vide. De même, Artyom Petrosyan, l'autre ingénieur de recherche du laboratoire m'a bien souvent dépanné en me prêtant ses instruments et en me partageant sa grande expertise technique. Il faut également ajouter Franck Vittoz de l'atelier du Laboratoire de physique, qui a réalisé de nombreuses pièces de l'appareil notamment pour le support du levier et l'isolation thermique.

Je veux également remercier les doctorants du laboratoire et en tout premier lieu Aubin Archambault, encore stagiaire à mon arrivée mais déjà plus familier de l'équipe et qui m'a aidé à me familiariser avec le système de l'AFM. Je remercie également Thomas Basset et Sebastian Gallon pour s'être occupé de mon pot de thèse et pour les discussions fréquentes que nous avons eu au cours de ces années.

Je tiens aussi à remercier tous les gens qui m'ont soutenus pendant ces années, ma famille et mes amis et tous ceux qui m'ont fait l'honneur de venir assister en présentiel ou par visioconférence à ma soutenance. Et je remercie aussi le lecteur qui viendra ici chercher les informations dont il a besoin, j'espère que mon travail l'aidera à réaliser le sien.

Introduction

L'utilisation des énergies fossiles carbonées a permis une progression technologique considérable au cours des deux derniers siècles mais le coût environnemental de ces énergies rend nécessaire leur remplacement dans les plus brefs délais. À l'inverse, l'énergie électrique peut être produite de nombreuses façons dont plusieurs sont décarbonées voir renouvelables. Son utilisation à la place des combustibles est probablement le défi technologique le plus important auquel notre génération doit faire face.

Cette transition énergétique recouvre un champ d'application immense et son implémentation demande le développement de nouveaux matériaux. Les systèmes de stockage et de restitutions de l'énergie couramment utilisés aujourd'hui ne sont pas en mesure de couvrir l'ensemble des fonctions remplies par les moteurs thermiques. Si les batteries chimiques sont capable d'emmagasiner et de retransmettre de l'énergie de manière efficace, elles ne sont pas en mesure de fournir les pics de puissance nécessaire au démarrage d'un moteur par exemple. À ce titre, il est clair que la transition écologique ne se fera pas sans systèmes capacitifs performants. Le pic de puissance qu'un condensateur peut fournir dépend de sa capacité et celle-ci est régie en partie par la constante diélectrique de l'isolant séparant ses deux électrodes ainsi que par la proximité des ces dernières.

À l'heure actuelle, les condensateurs à haute capacité utilisent des oxydes métalliques comme isolant, ces derniers présentent de hautes constantes diélectriques mais leur conductivité importante (pour des isolants) les rend plus vulnérables aux risques de claquages, d'autant qu'il s'agit de condensateurs dits "polarisé", dont la couche d'oxyde est crée sur l'une des deux électrodes lors de la première utilisation. Ce type de condensateur présente un sens d'utilisation qui, s'il n'est pas respecté, conduit à la destruction du composant, de manière parfois brutale.

À l'inverse les condensateurs à isolant polymériques ne sont pas polarisés. Ils sont robustes d'utilisation tant du point de vue électrique que mécanique du fait de la très faible conductivité des polymères et de leurs propriétés visco-élastiques. Cependant, la faible permittivité de ces matériaux empêche leur usage pour des applications de puissance.

La demande d'apport de puissance par des systèmes capacitifs nécessaire à la multiplication des utilisations de l'énergie électrique demande donc un nouveau type de matériau, combinant haute isolation et haute permittivité.

De tels matériaux peuvent être obtenus en dispersant un oxyde métallique au sein d'une matrice polymère, le matériau composite conservant alors les propriétés d'isolation du polymère ainsi que ses intéressantes propriétés de mise en forme tandis que la dispersion de particules à haute constante diélectrique affecte la permittivité en volume du matériau, permettant à ce dernier d'atteindre des valeurs inaccessibles à un composé purement organique. La dynamique de dispersion de ces particules doit néanmoins être bien contrôlée car la création d'agrégats risque de créer des courts circuits dans le matériau final si ces derniers constituent des chaînes de particules au contact les unes des autres, le caractère isolant du matériau étant crucial pour son utilisation dans un système capacitif.

La dynamique de dispersion des nano-particules au sein d'un polymère est un sujet complexe sur lequel travaillent de nombreuses équipes à travers le monde. L'établissement d'un modèle de comportement des polymères en présence d'un autre composé est difficile puisque celui-ci va dépendre des compatibilités chimiques entre les deux composés, de la méthode de fabrication voir même de l'histoire du matériau. À ce titre, il est intéressant de disposer d'un instrument de mesure capable de caractériser ces composés à l'échelle nanométrique afin de disposer de vérifications expérimentales pour le développement de modèles théoriques.

Mon travail de thèse s’inscrit dans le cadre d’une collaboration entre le Laboratoire de Physique à l’ENS de Lyon et le LPMA de Solvay[®] à Saint Fons sur l’étude de la dynamique des polymères vitreux sous contrainte mesurée par relaxation électrique. Cette collaboration a notamment été incarnée par une série de post-doctorats dont le dernier en date est celui de Jérôme Hem, qui a effectué des mesures de variation de permittivité d’échantillons polymères sous contrainte lors d’une série d’expériences de traction. Mon travail de thèse concerne l’étude de cette dynamique à l’échelle nanométrique, en combinant mesure diélectrique et microscopie de force atomique. L’instrument développé devra à terme capable d’apporter un éclairage expérimental sur les modèles de comportement théoriques des chaînes polymères développés au LPMA.

Durant ces trois années notre but a été de construire un tel appareil. Celui-ci, désormais installé au sein de la plateforme Optolyse au Laboratoire de Physique à l’ENS de Lyon, a déjà prouvé sa capacité à remplir une partie des objectifs de son cahier des charges. Son développement, son fonctionnement et ses principales caractéristiques font l’objet de ce document.

Dans ce manuscrit nous abordons tout d’abord les bases nécessaires à la compréhension du travail réalisé. Le chapitre 1 détaille les informations générales sur le type d’échantillon analysé ainsi qu’un aperçu des possibilités offertes par la mesure par microscopie de force atomique. Le chapitre 2 décrit plus particulièrement les mesures diélectriques locales pour lesquelles notre système a été conçu, afin d’en souligner les défis et d’en proposer une modélisation. Le chapitre 3 décrit l’appareil construit et détaille l’ensemble des systèmes qui le compose, leur utilité et leur performance. Le chapitre 4 étudie, un élément essentiel de la microscopie de force, à savoir le suivi de la déformation du micro-levier. Le système de suivi interférométrique détaillé dans le chapitre 3 est plus profondément exploré ici, en exposant notamment les possibles imperfections pouvant l’affecter et leurs impacts sur le suivi de la déflexion. Dans la seconde partie de ce chapitre sont abordées des méthodes de corrections de ces imperfections ainsi que des preuves de concept de ces méthodes. Enfin le chapitre 5 détaille les premiers résultats expérimentaux obtenus sur des films polymériques chargés de nanoparticules, notamment par l’utilisation de notre instrument. On terminera par quelques perspectives et les conclusions.

Chapitre 1

État de l'art

La chance ne sourit qu'aux esprits bien préparés.
- Louis Pasteur

1.1 Polymères

Les polymères forment aujourd'hui un type de matériau incontournable dans nos sociétés de par leur versatilité. Les défis écologiques qui se posent à nous ne pourront être résolus sans les apports de ces matériaux.

1.1.1 Présentation

Un matériau polymère est un matériau constitué par l'enchevêtrement de macromolécules qui présentent des motifs périodiques. Les motifs élémentaires de la macromolécule sont appelés monomères, ils constituent les briques à partir desquelles le polymère a été synthétisé.

La structure microscopique des polymères influence leurs caractéristiques macroscopiques. La taille des chaînes polymères, leurs formes, leurs compositions ainsi que les groupements qu'elles présentent déterminent le type d'interactions qui les lient les unes aux autres et donc régir la dureté, l'élasticité ou bien encore la résistance à la température du matériau ainsi constitué.

1.1.1.1 Influence de la température

Dans le cas des polymères dont la structure est maintenue par l'enchevêtrement stérique de leurs macromolécules, les propriétés mécaniques varient avec la température. En effet l'agitation thermique régit la vitesse à laquelle les chaînes se réarrangent ce qui fait varier la réponse du matériau aux sollicitations mécaniques^[1]. On distingue en général trois phases : l'état vitreux, l'état caoutchouteux et le régime visqueux.

Dans l'état vitreux l'agitation thermique n'est pas suffisante pour permettre aux chaînes de bouger au sein de l'enchevêtrement, le matériau est alors plus rigide et cassant.

Dans la phase caoutchouteuse, l'agitation thermique permet aux chaînes de se réarranger sous la contrainte ce qui rend le matériau plus flexible. Cependant les chaînes restent à leur place au sein de l'enchevêtrement, ce qui fait que le matériau reste solide.

Enfin la phase visqueuse correspond au cas où la température est suffisamment élevée pour que le matériau soit en mesure de se réarranger lui-même en l'absence de contrainte, ce qui lui fait passer de l'état solide à l'état liquide. On peut distinguer ces différents états en regardant l'évolution des propriétés mécaniques du matériau, ce qui est illustré par la Figure 1.1.

On distingue deux températures importantes pour un polymère : la température de transition vitreuse, à laquelle le polymère quitte l'état vitreux, et la température de fusion, à laquelle le polymère passe de l'état solide à l'état liquide. On note la température de transition vitreuse T_g et la température de fusion T_m .

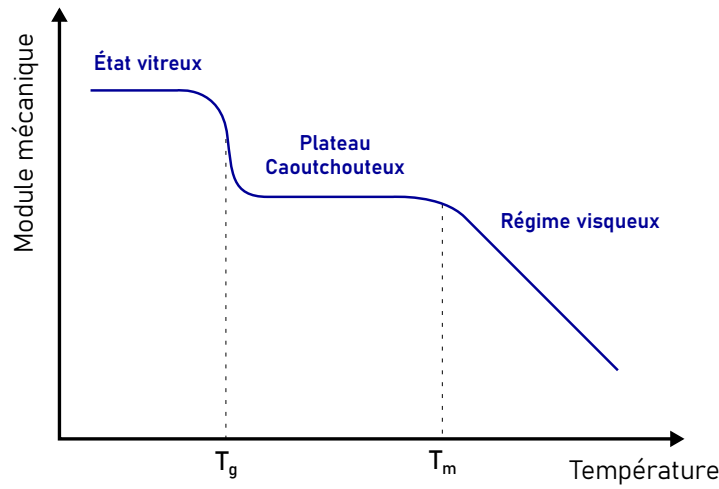


FIGURE 1.1 : Représentation schématique de l'évolution du module mécanique des différentes phases d'un matériau polymère en fonction de la température. On peut voir les positions relatives des différents états ainsi que les grandeurs caractéristiques T_g et T_m .

1.1.1.2 Equivalence temps-température

L'influence de la température sur les polymères se fait par l'impact qu'a cette dernière sur la cinétique des chaînes. De ce fait, augmenter la température revient à observer le matériau sur une plus grande échelle de temps. En soumettant un matériau polymère à des sollicitations mécaniques périodiques on peut retrouver la courbe de la Figure 1.1 avec en abscisse la période de l'oscillation au lieu de la température. C'est ce que l'on appelle l'équivalence temps-température. Cette équivalence est régie par la loi de Williams-Landel-Ferry (dite communément WLF)^[2] :

$$\log a_T = -\frac{c_1(T - T_0)}{(c_2 + T + T_0)} \quad (1.1)$$

où a_T est le ratio entre la valeur à la température T d'un temps de relaxation mécanique et sa valeur à la température de référence T_0 . On peut typiquement prendre $a_T = \frac{\eta(T)}{\eta(T_0)}$ avec $\eta(T)$ la viscosité en écoulement continu du matériau à la température T . Les paramètres c_1 et c_2 dépendent du matériau considéré.

1.1.2 Usages

Les polymères sont un type de matériau dont la grande diversité de propriétés induit un usage très répandu.

Il existe cependant encore aujourd'hui des limites à leur application. L'une des principales limites est le fait que les polymères sont par nature inertes électriquement. En effet, la plupart des matériaux polymères sont organiques, c'est à dire que les chaînes qui les constituent sont principalement constitué de carbone et d'hydrogène. Leur structure chimique ne présentant pas de charge mobile, ce genre de matériaux sont en général de très bons isolants qui, du fait de la faible polarisation des liaisons C-H, présentent une faible permittivité. Ceci fait que dans le domaine de l'électronique les polymères ne sont utilisés en général que dans le cadre de l'isolation des composants^[3].

Ces limites peuvent néanmoins être repoussées par la fabrication de matériaux composites mélangeant des matériaux polymériques à des matériaux non-polymériques de façon à extraire de chacun les propriétés les plus intéressantes.

1.2 Propriétés diélectriques des polymères

1.2.1 Permittivité diélectrique

On s'intéresse ici à la mesure de la permittivité diélectrique d'un composé polymérique constitué de particules d'oxyde métallique BaTiO_3 dispersées dans une matrice de PVdF-HFP.

La permittivité diélectrique ε représente la capacité d'un matériau isolant à s'aligner sur le champ électrique. Elle relie le champ d'induction électrique \vec{D} qui reflète le déplacement des charges et la réorientation des dipôles électriques au champ électrique \vec{E} ^[4].

Dans le cas d'un matériau linéaire, homogène, isotrope et avec une réponse instantanée on peut écrire^[4] :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \vec{E}, \quad (1.2)$$

avec ε_0 la permittivité du vide, $\varepsilon_0 = 8,854187 \cdot 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$. ε est techniquement la permittivité relative (par rapport à celle du vide), par la suite on l'appellera simplement la permittivité. Il s'agit d'une valeur complexe^[4] :

$$\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon'', \quad (1.3)$$

avec ε' et ε'' des réels. On peut également écrire la permittivité sous la forme :

$$\varepsilon = \|\varepsilon\| e^{i\delta}, \quad (1.4)$$

avec δ l'angle de perte tel que $\tan \delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'}$.

Les valeurs ε' et ε'' sont reliées par les relations de Kramers-Kronig^[5] :

$$\varepsilon'(\Omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\varepsilon''(\omega) d\omega}{\Omega - \omega} \quad (1.5)$$

$$\varepsilon''(\Omega) = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\varepsilon'(\omega) d\omega}{\Omega - \omega} \quad (1.6)$$

1.2.2 Effet de la fréquence

On a vu dans la partie 1.1.1 que les échelles de temps influent sur le comportement des polymères. Ceci est également vrai dans le cas des propriétés diélectriques. En effet, c'est la mobilité des charges locales qui détermine la permittivité d'un composé et, dans le cas d'un polymère, ces charges sont fixées sur une chaîne polymère dont la mobilité dépend de l'échelle de temps considérée. On a donc pour un composé polymérique une variation de la permittivité en fonction de la fréquence de l'excitation électrique.

Au vu de la partie précédente, on observe en général une décroissance de la permittivité réelle avec la fréquence d'excitation puisque le coût énergétique du déplacement augmente. La forme de cette décroissance dépend des caractéristiques du polymère, elle n'est pas forcément uniforme.

La mesure de cette évolution est importante pour la caractérisation des échantillons, le dispositif expérimental devra être en capacité de réaliser une étude fréquentielle de la permittivité de l'échantillon.

1.3 Propriétés du PVdF-HFP dopé en oxyde métallique

Le stockage de l'énergie électrique se fait aujourd'hui essentiellement par le truchement de batteries chimiques. L'utilisation de ces dernières pour l'électrification des usages fossiles dans le cadre de la transition énergétique est limité par la faible densité de puissance qu'elles sont capables de générer ce qui rend impossible leur utilisation pour la génération d'un pic de puissance. Celui-ci peut en revanche être fourni par un dispositif capacitif. Les condensateurs ne peuvent stocker beaucoup d'énergie mais ils sont capable de générer de haut pics de puissance, ce qui les rend complémentaires des batteries, les alternatives électriques aux moteurs thermiques les envisagent couplées à un troisième dispositif, le supercondensateur, dont les caractéristiques intermédiaires permettent de faire la liaison entre la batterie et le condensateur.

Les performances d'un condensateur dépendent de sa capacité et donc de la permittivité diélectrique du matériau isolant séparant ses deux électrodes^{[6][7]}. Le choix d'un matériau polymère dans un tel cadre semble assez évident pour son caractère isolant et sa facilité de mise en forme. Cependant les matériaux polymères sont également faiblement diélectriques, ce qui n'aide pas à maximiser les performances du système.

Une manière de contourner cette limitation est de disperser des particules à haute constante diélectrique au sein de la matrice polymère. De cette façon on obtient un matériau composite qui présente les propriétés mécaniques d'un polymère mais dont la permittivité est renforcée par les particules présentes en son sein^[8].

Un matériau de ce type a été conçu au *Laboratoire Polymère et Matériaux Avancés* (LPMA) UMR5268^[9]. Il s'agit d'une suspension de nanoparticules de BaTiO_3 dispersées au sein d'une matrice de PVdF-HFP.

1.3.1 Le PVdF-HFP

Le Poly(vinylidène fluoride-co-hexafluoropropylène), que l'on appelle communément le PVdF-HFP, est un copolymère aléatoire fluoré semi-cristallin présentant une forte polarisabilité du fait de la polarisation importante de ses liaisons C-F^{[10],[11]}. Une représentation de la molécule constitutive de ce polymère se trouve sur la Figure 1.2.

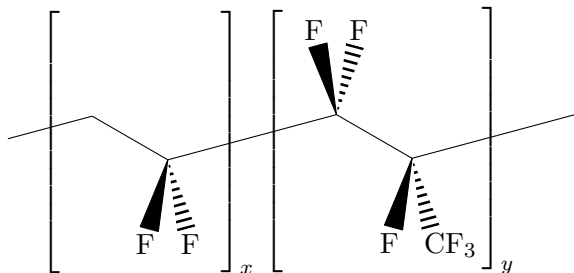


FIGURE 1.2 : Formule topologique d'une molécule de Poly(vinylidène fluoride-co-hexafluoropropylène). Chaque molécule est formée d'un ensemble de monomères de vinylidène fluoride (VdF, à gauche) et d'hexafluoropropylène (HFP, à droite). Les valeurs x et y représentent les proportions respectives de VdF et de HFP au sein de la molécule. Leur répartition sur la longueur de la chaîne est aléatoire.

Le PVdF-HFP présente une constante diélectrique importante pour un polymère (autour de 10), dont l'évolution en fonction de la fréquence peut être vue sur la Figure 1.3.

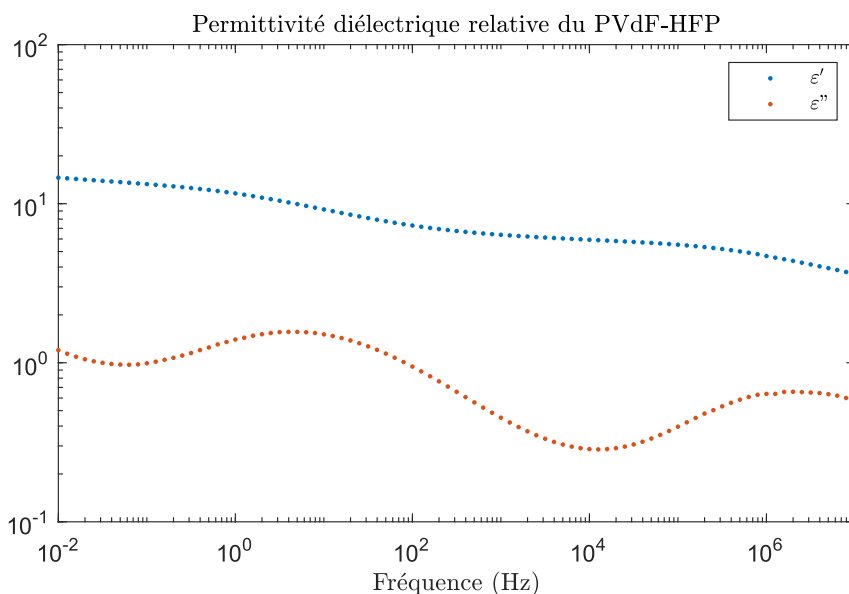


FIGURE 1.3 : Évolution de la permittivité avec la fréquence. Ce spectre nous a été fourni par Nicolas Uguen, doctorant au LPMA^[9].

Les polymères basés sur le Polyvinylidène fluoride (PVdF) peuvent présenter différentes phases cristallines plus ou moins polaires selon l'orientation des molécules. La présence d'hexafluoropropylène (HFP) réduit la cristallinité du matériau, lequel adopte une structure semi-cristalline totalement dépourvue des phases cristallines ferroélectriques qui peuvent exister dans le PVdF pur. Cette absence d'effets ferroélectriques le rend très intéressant pour son utilisation dans le stockage d'énergie^[12]. Ses propriétés sont résumées Table 1.1.

Le PVdF-HFP utilisé dans mon travail de thèse est identique à celui utilisé par Nicolas Uguen dans le cadre de sa thèse^[9]. Il s'agit du composé commercialisé par Solvay sous le nom de PVdF-HFP Solef[®].

1.3.1.1 Structure

Le PVdF possède quatre phases cristallines mentionnées dans la littérature^[13] :

La phase α , ou Phase II, est une phase orthorhombique non polaire du fait d'un alignement en opposition des dipôles créés par la conformation anti-gauche-anti-gauche des chaînes polymères^[9]. Il s'agit de la phase

	Propriété	Valeur	Unité
Chimique	Masse molaire moyenne en nombre	175	kg.mol ⁻¹
	Masse molaire moyenne en masse	310	kg.mol ⁻¹
Physique	Densité à l'ambiante	1,75 à 1,8	g.cm ⁻³
	Absorption d'eau (24 heures à 23°C)	<0,04	wt%
Mécanique	Module de traction	360 à 480	MPa
Thermique	Température de fusion	133	°C

TABLE 1.1 : Propriétés du PVdF-HFP fournies par Solvay et le LPMA^[9]. La masse molaire moyenne en nombre M_n correspond à la masse molaire d'une chaîne de longueur moyenne. La masse molaire moyenne en masse M_w est la moyenne des masses molaires pondérée par la masse des chaînes de chaque longueur. Soit n_i le nombre de chaînes de degré de polymérisation i et M_i leur masse molaire respective, $M_n = \frac{\sum_i n_i \times M_i}{\sum_i n_i}$ tandis que $M_w = \frac{\sum_i n_i \times M_i^2}{\sum_i n_i \times M_i}$.

crystalline la plus courante pour ce polymère. La littérature confirme la présence de cette phase dans le cas d'un co-polymère PVdF-HFP avec une proportion de groupes HFP de 12% en masse^[13].

La phase β , ou Phase I, est une phase orthorhombique^[14] polaire (conformation anti-anti-anti-anti) qui apparaît en général suite à une contrainte mécanique du matériau. C'est la seule phase ferroélectrique de ce matériau. Dans le cas du PVdF-HFP, l'ajout des groupes HFP empêche la formation de cette phase^[9].

La phase γ , ou Phase III, présentent des dipôles peu marqués (conformation anti-anti-anti-gauche) mais leur orientation commune la rend polaire^[9]. Cette phase apparaît sous contrainte mécanique légère^[13]. La littérature confirme la présence de cette phase dans le cas d'un co-polymère PVdF-HFP avec une proportion de groupes HFP de 12% en masse^[13].

La phase δ , ou Phase IV, hautement polaire du fait de l'alignement de ses chaînes en conformation anti-gauche-anti-gauche, n'apparaît que sous des conditions particulières^[13].

Les données de la littérature attestent de la présence de structure lamellaire avec des couches alternatives cristallines et amorphes avec une périodicité d'une dizaine de nanomètres^[13] pour le PVdF-HFP pur. Dans le cadre de nos travaux il est important de noter que cette organisation risque d'être fortement perturbée par la présence de nanoparticules ainsi que par le fait qu'on utilise des couches minces du matériau dont les dimensions sont du même ordre de grandeur que la périodicité des structures semi-cristallines. Ceci a un impact sur la mesure de la permittivité puisqu'une structure cristalline réduit par nature davantage la mobilité des charges qu'un état amorphe.

1.3.2 L'oxyde BaTiO₃

L'oxyde BaTiO₃ est un matériau de structure perovskite à haute constante diélectrique. Les particules utilisées par le LPMA pour fabriquer le composite proviennent du fournisseur Sigma Aldrich, leurs propriétés sont résumées Table 1.2.

Le BaTiO₃ a été choisi pour sa haute permittivité de 150, qui permet de doper celle du PVdF-HFP tout en maintenant une faible quantité d'oxyde afin de ne pas trop impacter les autres caractéristiques du polymère.

Les particules utilisées par le LPMA pour la fabrication des échantillons ont des dimensions autour de 50 nm de diamètre en moyenne.

1.3.3 Propriétés du matériau composite

Le composite est constitué de la dispersion des nanoparticules de BaTiO₃ au sein d'une matrice de PVdF-HFP. Il est préparé au sein du LPMA. Ses propriétés dépendent de la proportion de nanoparticules dispersées au sein de la matrice. Une étude extensive de ces matériaux a été réalisée par Nicolas Uguen dans le cadre de sa thèse au LPMA^[9].

	Propriété	Valeur	Unité
Physique	Densité à l'ambiante	6,08	g.cm^{-3}
	Structure cristalline	Cubique	
	Absorption d'eau (24 heures à 23°C)	0,7	wt%
Structure	Diamètre moyen	50	nm
	Surface BET	20	$\text{m}^2.\text{g}^{-1}$
Électrique	Permittivité relative	150	

TABLE 1.2 : Propriétés des nanoparticules de BaTiO_3 fournies par le LPMA^[9] et Sigma Aldrich.

1.3.3.1 Fabrication

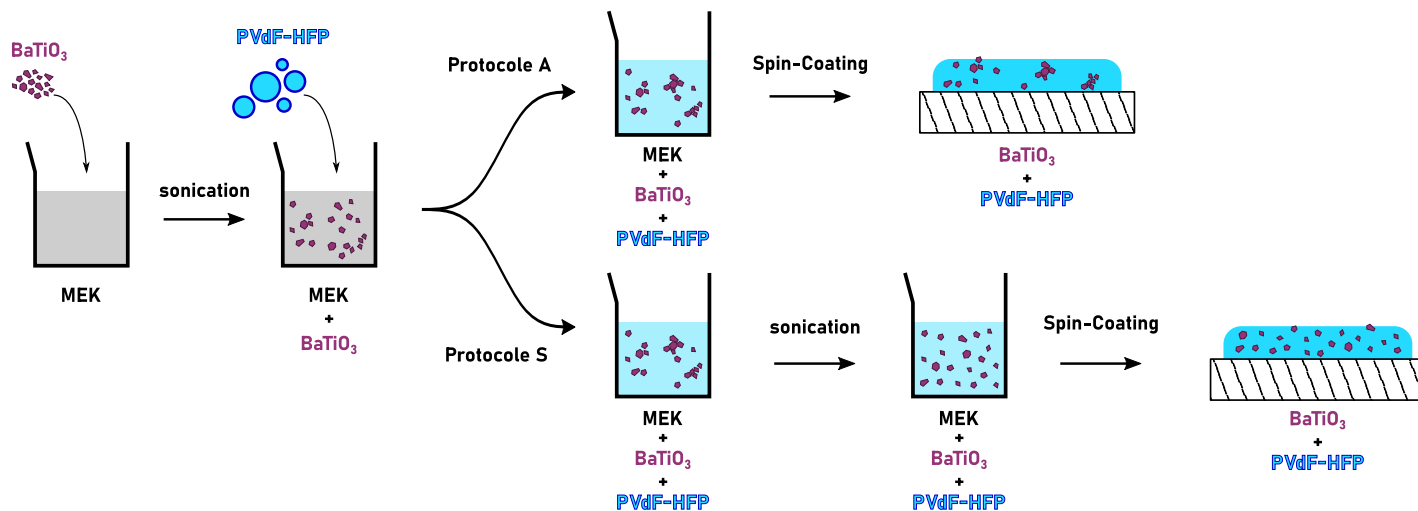


FIGURE 1.4 : Schéma du processus de fabrication mis en place par le LPMA^[9]. La mauvaise dispersion des particules d'oxyde dans le butanone (MEK) a conduit à mettre en place deux protocoles. Il a été constaté par analyse d'image que dans les composés fabriqués selon le protocole A, les particules d'oxyde se trouvaient regroupées au sein d'agrégats faisant entre 400 et 800 nm. Pour les composés fabriqués selon le protocole S, cette taille est réduite à 100 nm en moyenne, ce qui est très proche de la taille des particules élémentaires, et indique que les agrégats en question ne sont constitués que de quelques particules élémentaires.

Le composé est fabriqué en suivant les étapes illustrées sur la Figure 1.4. Les nanoparticules de BaTiO_3 sont tout d'abord dispersées dans le butanone (MEK) par un bain à ultrasons (sonication). Ceci est nécessaire du fait de la mauvaise dispersion naturelle du BaTiO_3 dans le MEK. La molécule de MEK est représentée sur la Figure 1.5.

À la suspension de nanoparticules on ajoute le PVdF-HFP qui se dissout dans le MEK. C'est ici que le choix du MEK comme solvant s'explique. En effet le MEK n'est pas le solvant idéal pour la dissolution du polymère qui présente une compatibilité comparable vis à vis du solvant et des nanoparticules. À cela s'ajoute le fait que la dispersion de BaTiO_3 est très instable dans le MEK. Cependant la compatibilité chimique est meilleure entre le polymère et l'oxyde qu'entre eux et le solvant. Lors de la dissolution du polymère dans la suspension les molécules de PVdF-HFP s'adsorbent à la surface des nanoparticules, améliorant leurs dispersion dans le solvant, et par extension dans le dépôt final.

Une fois le polymère dissous, on dépose le composé sur la surface souhaitée par spin-coating (Protocole A

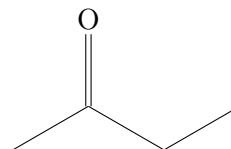


FIGURE 1.5 : Formule topologique du butanone, aussi appelé méthyléthylcétone (MEK).

de la Figure 1.4). Cependant du fait de la mauvaise dispersion des particules dans le solvant, il est préférable d’effectuer un second passage aux ultrasons (Protocole S de la Figure 1.4) si on veut minimiser la quantité et la taille des agglomérats de particules dans le produit final^[9].

La maîtrise de l’état de dispersion des particules d’oxyde est très importante et tout particulièrement dans le cas des couches minces. En effet, les propriétés isolantes du matériaux sont fortement dégradées si il existe une chaîne de particules d’oxyde en contact reliant les deux surfaces, ce qui compromet son utilisation dans un système capacitif.

1.3.3.2 Propriétés diélectriques

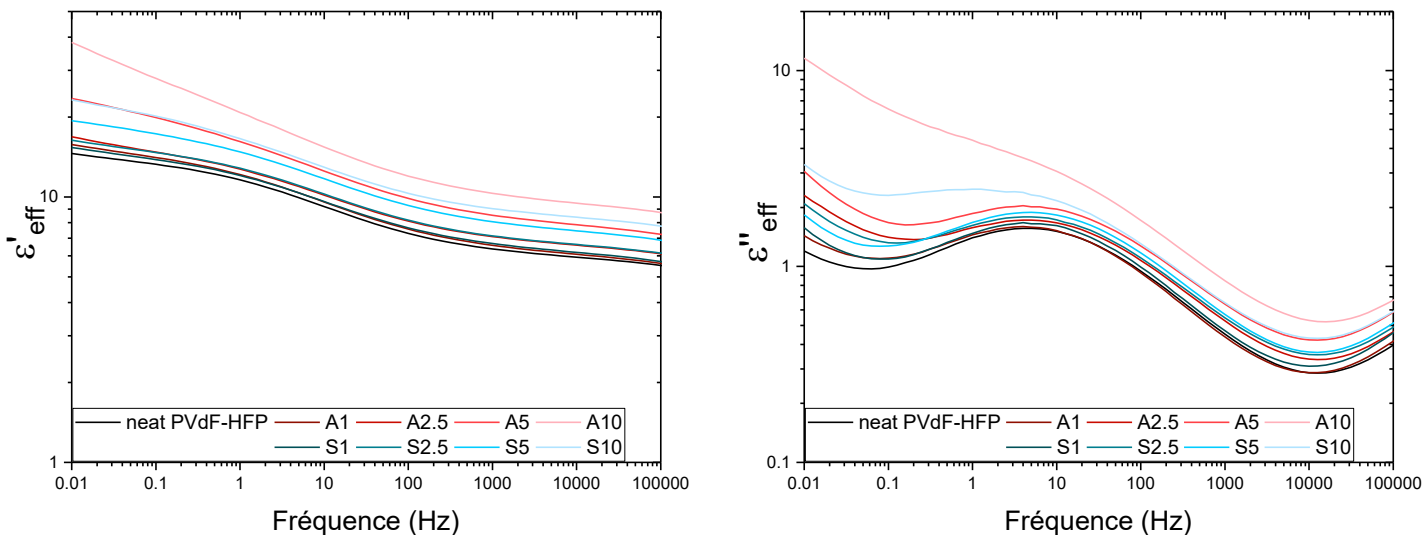


FIGURE 1.6 : Évolution des constantes diélectriques selon la proportion d’oxyde et le protocole suivi telles que mesurées par Nicolas Uguen dans le cadre de sa thèse^[9]. L’échantillon dénommé “neat PVdF-HFP” représente le polymère pur. Les échantillons “A1”, “A2.5”, “A5” et “A10” ont été obtenus en y ajoutant 1, 2,5, 5 ou 10 % volumique de nanoparticules de BaTiO₃ respectivement en suivant le Protocole A mentionné dans la Figure 1.4. De même les échantillons “S1”, “S2.5”, “S5” et “S10” ont été obtenus par le Protocole S explicité dans la Figure 1.4. Les spectres ont été réalisés par spectroscopie diélectrique à large bande. Figures issues de ^[9].

Le travail de Nicolas Uguen a prouvé qu’à l’échelle macroscopique la permittivité complexe du PVdF-HFP était renforcée par la présence de nanoparticules de BaTiO₃ comme on peut le voir sur la Figure 1.6. À cette échelle la quantité d’oxyde accroît les valeurs de ϵ' et ϵ'' sur tout le spectre (voir partie 1.2.1). On constate que l’état de dispersion des particules (protocoles A ou S) influe également sur cette augmentation.

Cette dépendance à l’état de dispersion des particules, en sus de la dépendance de la permittivité à l’état cristallin du PVdF-HFP mentionnée dans la partie 1.3.1, indiquent l’importance de l’influence des dynamiques microscopiques sur les paramètres macroscopiques du composé. Une étude de la dispersion des particules et de la dynamique locale du polymère autour d’elles pourrait aider à comprendre de manière plus approfondie l’impact que ces dernières ont sur le PVdF-HFP.

Pour cela il est nécessaire de recourir à une méthode de mesure locale précise et capable de réagir à la permittivité d’un matériau donné.

1.4 La Microscopie à Force Atomique

La microscopie à force atomique, communément appelée AFM (Atomic Force Microscopy), est aujourd’hui une technique de mesure de résolution nanométrique très répandue et surtout très polyvalente.

1.4.1 Principe

La microscopie à force atomique repose sur le suivi du mouvement d’un microlevier pourvu d’une pointe dont l’extrémité fait quelques nanomètres de rayon de courbure. Le mouvement du levier est influencé par les inter-

actions auxquelles l'ensemble est soumis. En approchant une surface de la pointe, des forces d'interactions entre ces deux éléments s'appliquent sur cette dernière, ce qui induit un mouvement du levier. Du fait de la finesse de la pointe on a alors une mesure extrêmement localisée de l'effet en question.

1.4.2 Définitions

Pour la suite on définit les grandeurs suivantes :

1.4.2.1 Dimensions du levier

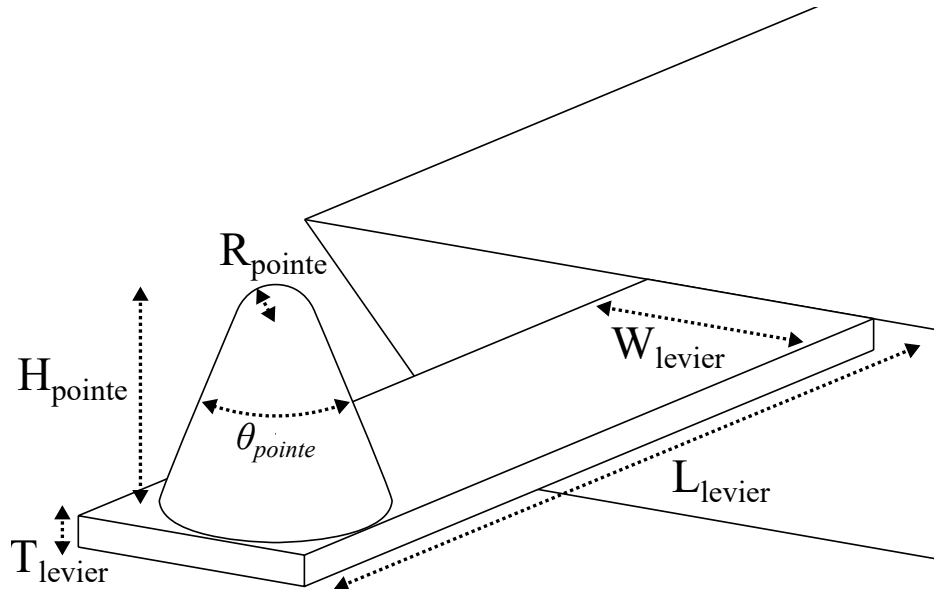


FIGURE 1.7 : Schéma explicitant les différentes dimensions utiles du levier

Les leviers que nous utilisons sont similaires dans leur géométrie à la plupart des leviers de microscopie de force atomique. On peut les modéliser par une poutre sur laquelle se trouve une pointe conique possédant une extrémité sphérique. On note L_{levier} , W_{levier} et T_{levier} les longueur, largeur et épaisseur de la poutre. Pour la pointe on note H_{pointe} sa hauteur, θ_{pointe} son angle et R_{pointe} le rayon de courbure de son extrémité sphérique. Ces dimensions sont explicitées sur la Figure 1.7.

Les valeurs typiques de ces grandeurs peuvent être trouvées dans la partie 5.1.1 qui détaille les caractéristiques des leviers utilisés.

1.4.2.2 Déflexion

Une valeur utile à définir dans le cadre de la microscopie de force atomique est la déflexion d du levier. Celle-ci permet de suivre le mouvement du levier. On prend $d = 0$ pour la position de l'extrémité du levier lorsque celui-ci n'est soumis à aucune force. À l'équilibre, il s'agit souvent de la moyenne de ses positions en l'absence de force appliquée puisque le levier oscille légèrement sous l'action de la température ambiante, c'est ce qu'on appelle le bruit thermique.

On peut voir une illustration schématique de la définition de la déflexion sur la Figure 1.8.

1.4.3 Modèle mécanique

La déflexion est la valeur que l'on mesure dans un AFM et son évolution nous renseigne sur les forces exercées sur la pointe. En général on utilise le modèle de l'oscillateur harmonique^{[15],[16]} pour décrire le comportement de

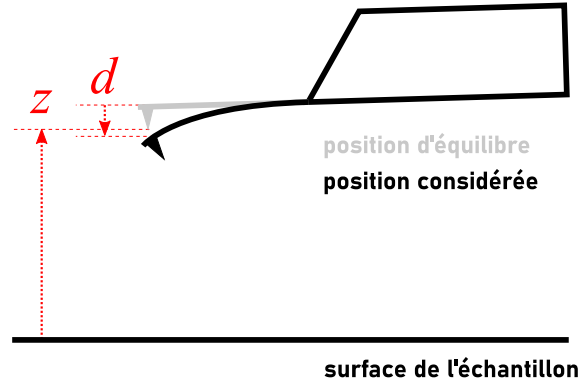


FIGURE 1.8 : Schéma explicatif de la définition de la déflexion d et de la position z du levier au repos. La position de la pointe est considéré $z + d$ puisque dans les faits $d \ll H_{pointe}$.

la déflexion d :

$$m\ddot{d} + \gamma\dot{d} + kd = F(z + d) \quad (1.7)$$

avec m la masse du levier, k sa raideur, γ le coefficient d'amortissement visqueux et F la résultante des forces appliquées.

De ce modèle on peut extraire une définition de la fréquence de résonance du levier :

$$f_{res} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m}} \quad (1.8)$$

1.4.3.1 Facteur de qualité

Le facteur de qualité Q est une grandeur caractéristique des systèmes oscillants amortis comme le levier que nous utilisons. On peut le calculer d'après les termes de l'équation (1.7)^[17] :

$$Q = \frac{\sqrt{mk}}{\gamma}. \quad (1.9)$$

Plus le facteur de qualité est élevé et plus le pic de résonance en fréquence est étroit.

1.4.3.2 Variation de la fréquence de résonance

Un phénomène important à signaler concernant la fréquence de résonance est que celle-ci varie en présence d'un gradient de force^[18]. En effet, si on considère une faible amplitude d'oscillation, un simple développement limité de la force autour de $d = 0$ donne^[19] :

$$m\ddot{d} + \gamma\dot{d} + kd = F(z + d)|_{d=0} + d \times \left. \frac{\partial F(z + d)}{\partial z} \right|_{d=0} \quad (1.10)$$

On voit alors que cette équation définit une raideur effective k_{eff} .

$$k_{eff} = k - \left. \frac{\partial F}{\partial z} \right|_{d=0} \quad (1.11)$$

Ceci nous donne alors une fréquence de résonance effective :

$$f_{res_{eff}} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{k_{eff}}{m}} \quad (1.12)$$

Dans le cas de la microscopie à force atomique la valeur absolue de la force d'interaction augmente à mesure que l'on se rapproche de la surface :

$$\frac{\partial |F|}{\partial z} < 0 \quad (1.13)$$

On voit alors bien qu’une interaction pointe-échantillon attractive induit un décalage de f_{res} vers les basses fréquences tandis qu’une interaction répulsive induit un décalage vers les hautes fréquences. Ceci influence le choix de la fréquence d’excitation. On peut voir sur la Figure 1.9 que dans le cas d’une interaction longue portée attractive le fait de se placer à une fréquence d’excitation légèrement inférieure à la résonance permet d’avoir une variation de l’amplitude en fonction de la proximité monotone, ce qui n’est pas le cas pour une fréquence d’excitation supérieure à la résonance. De plus cette variation est perceptible plus tôt pour une fréquence d’excitation différente de la résonance que pour la fréquence de résonance, ce qui offre une plus grande marge de sécurité pour une approche expérimentale.

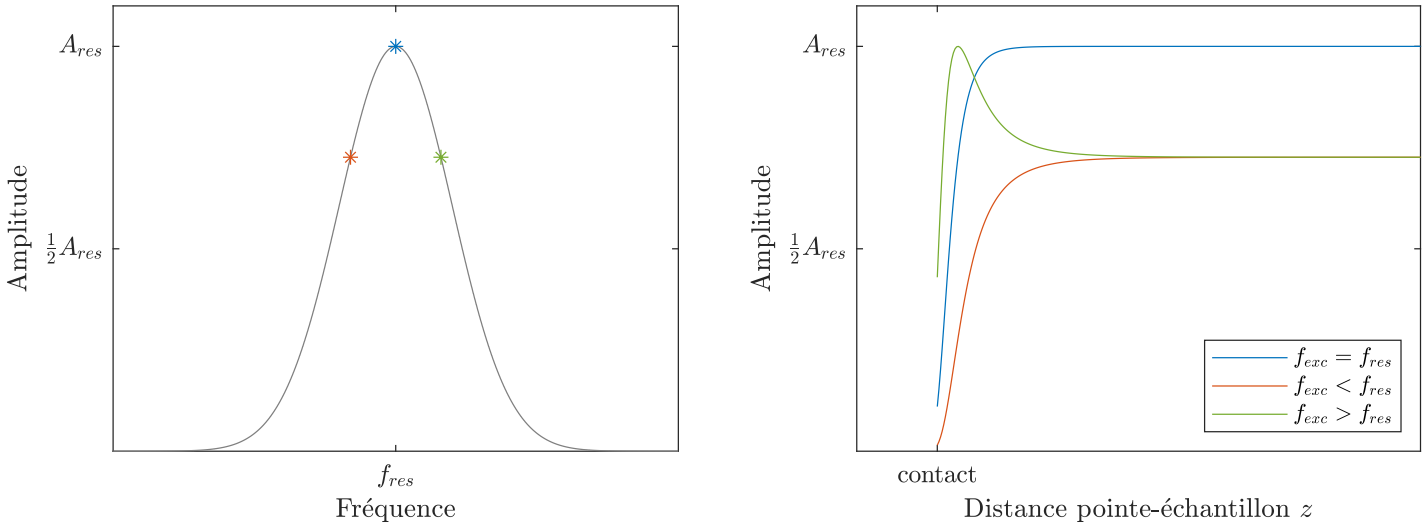


FIGURE 1.9 : Représentation de l’impact du choix de la fréquence d’excitation dans le cadre d’une interaction longue portée attractive. La Figure a) représente la réponse du levier en amplitude autour de la fréquence de résonance f_{res} , sur laquelle on choisit ici trois fréquences d’excitation f_{exc} . Sur la Figure b) on voit l’évolution de l’amplitude lors de l’approche selon la fréquence d’excitation choisie.

1.4.4 Microscopie de contact

La Microscopie de contact est la plus ancienne et son principe est simple. En approchant la pointe à vitesse constante de la surface de l’échantillon, la déflexion statique reste faible jusqu’au contact entre la surface et la pointe. Ce contact répulsif avec la surface déforme le levier, ce qui se mesure par la déflexion. Il est à noter que le levier peut parfois “sauter” au contact de la surface (voir Figure 1.10) de manière anticipée du fait de l’action des forces attractives de Van der Waals.

En fixant une valeur de déflexion limite et en mesurant la position des systèmes utilisés pour effectuer le rapprochement lorsque cette valeur est atteinte on peut avoir une estimation de la position de la surface. On peut donc utiliser cette mesure pour réaliser des courbes topographiques, mais pas seulement.

Lorsqu’on procède à un éloignement pointe-échantillon une fois le contact réalisé on peut souvent observer que la fin du contact n’a pas lieu lorsque l’on retrouve $d = 0$ ni même au niveau où le contact s’est fait à l’aller. Ceci est dû au phénomène d’adhésion et constitue même une mesure de ce dernier. En effet, la déflexion à laquelle le contact est terminé est proportionnelle à la force nécessaire pour surmonter l’adhésion pointe-échantillon ($F = k \times d$ d’après l’équation (1.10)) et donc la force de cette adhésion.

1.4.5 Microscopie en “tapping”

Dans le cas de l’imagerie en mode dit “tapping” on excite le levier de façon à générer de grandes oscillations de la pointe. Le but est ici de réaliser des cartographies topographiques avec un contact intermittent, ce qui permet de se prémunir des contraintes latérales subies par l’échantillon dans le cas de la microscopie de contact ainsi que de diminuer l’endommagement de la pointe^[16].

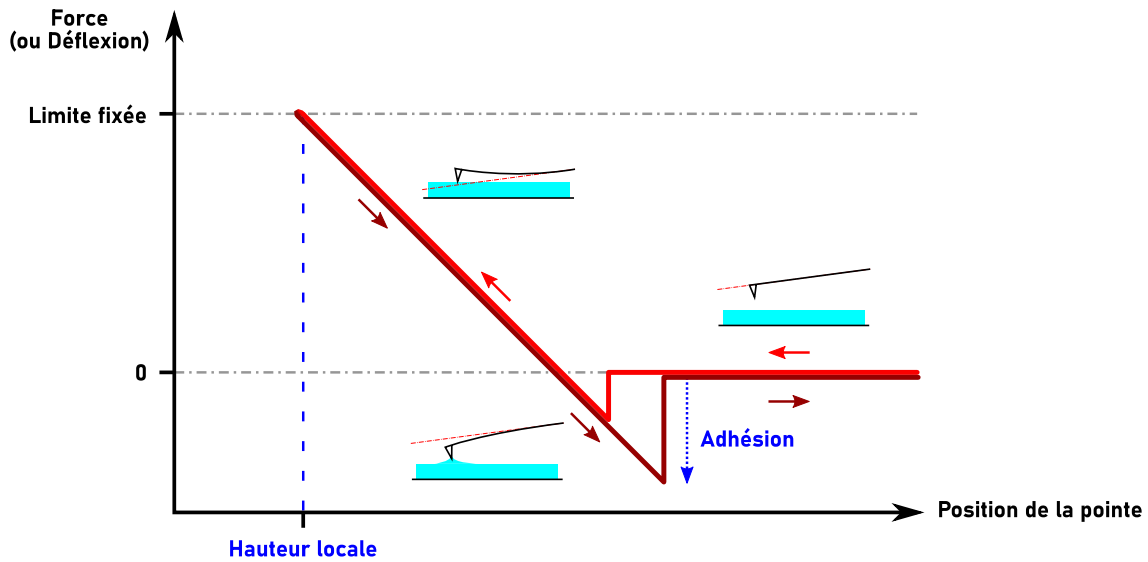


FIGURE 1.10 : Représentation schématique d’une courbe d’approche en microscopie de force de contact. Pour déterminer le contact on fixe une limite en force (c’est à dire en déflexion du levier). La pointe est descendue vers la surface de l’échantillon avec une vitesse constante (courbe rouge). Lorsque la déflexion mesurée atteint la valeur limite la pointe remonte (courbe bordeaux). L’adhésion de la pointe au matériau se traduit par une force nécessaire pour initier le décollage de la pointe (et revenir donc à une déflexion initiale), on mesure donc l’adhésion comme l’écart entre la déflexion loin de la surface (force nulle) et la valeur minimale de cette déflexion lors de la remontée.

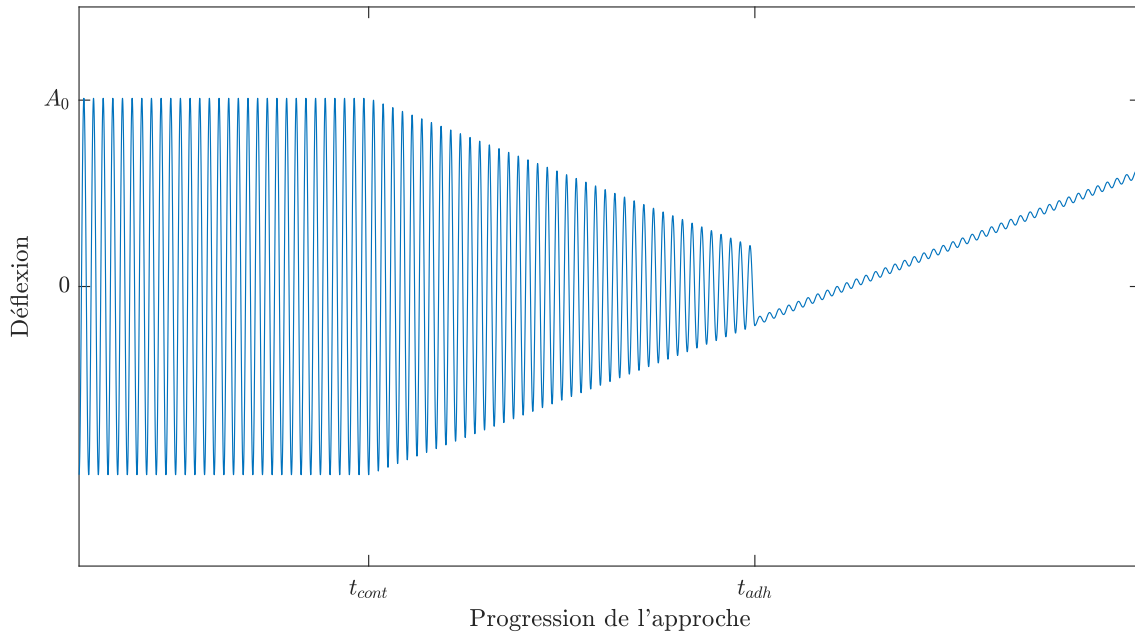


FIGURE 1.11 : Illustration schématique du comportement d’un levier excité à haute amplitude lors d’une approche à vitesse constante tel que décrit dans la littérature^{[20][18]}. On néglige ici les variations de l’amplitude dues aux interactions attractives de Van der Waals. t_{cont} représente le moment où la pointe commence à heurter la surface, c’est à dire le moment où l’extréma minimal de la déflexion se trouve dans la zone des interactions répulsives de l’échantillon. À partir de t_{cont} l’amplitude décroît continuellement du fait de la proximité croissante de la surface de l’échantillon. t_{adh} représente le moment où l’amplitude devient trop faible pour détacher le levier de l’adhésion de la surface (voir partie 1.4.4). Passé ce stade, si on continue de descendre le levier (ou de monter l’échantillon), on obtient une déflexion due à la poussée du levier exactement comme celle représentée sur la Figure 1.10. On peut également observer une oscillation résiduelle due à la forte oscillation mécanique appliquée sur le système.

1.4.5.1 Principe

Comme mentionné précédemment, lorsque l’on approche la pointe de la surface de l’échantillon celle-ci subit une légère force attractive qui devient brutalement répulsive lors du contact. En approchant un levier décrivant

de grandes oscillations, celui-ci réalise des contacts intermittents qui affectent son amplitude d'oscillation. La modélisation exacte de cette interaction intermittente est un sujet complexe^[18] et quelque peu hors sujet dans le présent travail mais il suffit de considérer que l'amplitude suit l'évolution décrite dans la Figure 1.11. On voit qu'entre t_{cont} et t_{adh} la valeur de l'amplitude d'oscillation constitue une mesure de la distance pointe-échantillon.

1.4.5.2 Réalisation

On peut se servir de cet état de fait pour réaliser des images topographiques. On excite le levier à la fréquence donnée f_{tapp} . Cette fréquence est en général choisie légèrement inférieure à f_{res} pour les raisons expliquées dans la partie 1.4.3.2. De cette façon, les mécanismes explicités en partie 1.4.3.2 et 1.4.5.1 se relayent. Dans cette configuration on réalise une courbe d'approche. C'est à dire que l'on mesure l'amplitude d'oscillation de la déflexion tandis que l'on rapproche la pointe de la surface. Si on a bien réglé f_{tapp} on obtient une courbe similaire celle présentée sur la Figure 1.12.

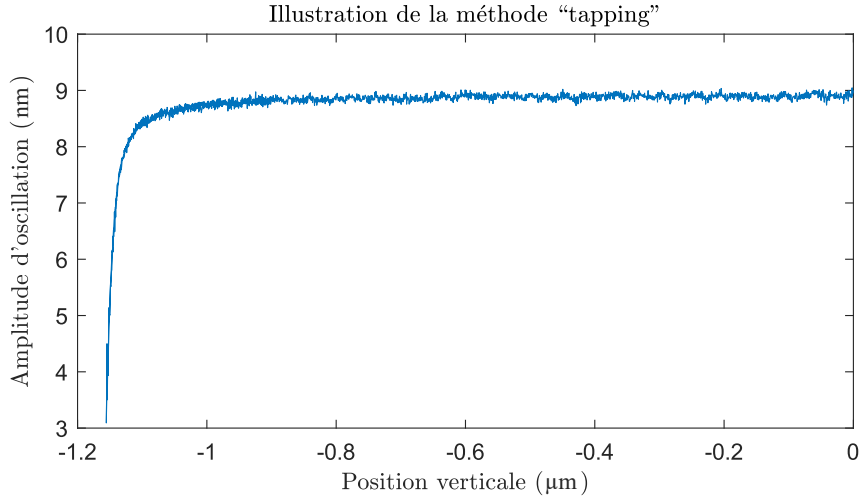


FIGURE 1.12 : Illustration expérimentale de la réduction de l'amplitude d'oscillation à l'approche du contact. L'échelle de la position verticale de l'échantillon est ici arbitraire avec pour origine le point de départ de l'approche. Sur la longueur de la courbe on applique au levier la même excitation. On voit qu'à l'approche de la surface l'amplitude d'oscillation mesurée s'effondre.

On sélectionne sur cette courbe une valeur d'amplitude au sein d'une zone présentant une pente importante (typiquement la zone autour de 6 nm d'amplitude sur la Figure 1.12). On sait que cette valeur d'amplitude correspond à une valeur de z . On lie l'amplitude mesurée et la position de l'échantillon contrôlée par le positionneur selon l'axe Z par une boucle de rétroaction. De cette façon, lors d'un balayage d'une région de l'échantillon la position de l'échantillon s'ajuste en temps réel afin de garder l'amplitude d'oscillation, et donc la distance pointe-échantillon, constante. Ce mouvement du positionneur suit ainsi la topographie de la surface, ce qui nous permet d'en faire une image topographique.

L'avantage principal du mode "tapping" est qu'il ne repose que sur un contact ponctuel entre la surface et la pointe permettant de les préserver tous deux de l'endommagement^[21].

1.4.6 Microscopie en modulation de fréquence

La Microscopie de force atomique en modulation de fréquence, que l'on appellera par la suite "AFM-FM", permet d'effectuer des mesures sans contact avec la surface de l'échantillon ainsi que de remplacer la méthode du tapping pour les cas où le facteur de qualité est trop élevé^{[21][22]}.

1.4.6.1 Principe

Le levier oscille à sa fréquence de résonance f_{res} . Les forces d'interactions pointe-échantillon F_{ts} influent sur la valeur de f_{res} ^[21] :

$$\Delta f_{res}(z_0) = -\frac{f_{res0}}{\pi k A^2} \int_{-A}^{+A} F_{ts}(d+z_0) \frac{d}{\sqrt{A^2-d^2}} dd, \quad (1.14)$$

avec f_{res0} la valeur de la fréquence de résonance en l'absence de force (soit ici infiniment éloignée de l'échantillon), k la raideur du levier, A son amplitude d'oscillation et z_0 la distance entre l'échantillon et la pointe pour une déflexion d nulle.

1.4.6.2 Réalisation

Dans la pratique on excite le levier à une fréquence modulable f que l'on aligne sur la fréquence de résonance grâce à une boucle à verrouillage de phase. On peut ensuite régler la position z du levier de façon à avoir un décalage fréquentiel Δf_{res} constant. Le levier suit ainsi le relief de la surface et nous fournir une image de la topographie de l'échantillon.

1.4.7 Microscopie à sonde de Kelvin

Le but de la microscopie à sonde de Kelvin, que l'on appellera KPFM par la suite, est de déterminer le potentiel de surface d'un échantillon.

En l'absence de potentiel appliqué une tension existe entre la pointe et la surface de l'échantillon en vis-à-vis du fait de la différence de remplissage des niveaux de Fermi entre les matériaux de ces deux éléments. On note cette tension due aux propriétés électriques des matériaux V_{DC} :

$$V_{DC} = \frac{\phi_{pointe} - \phi_{échantillon}}{e}. \quad (1.15)$$

avec ϕ la différence d'énergie entre le vide et le niveau de Fermi du matériau considéré et $e = 1,6.10^{-19}\text{C}$ la charge élémentaire. Cette différence de potentiel induit une interaction de nature capacitive.

En positionnant un levier conducteur au-dessus de l'échantillon on crée dans les faits un système capacitif dont on appelle la capacité C . Si on note V la tension existant entre les deux on a un chargement électrique opposé des deux électrodes d'une charge^[17] :

$$Q = CV. \quad (1.16)$$

On sait que pour un système donné l'énergie électrostatique E_{el} s'écrit^[17] :

$$E_{el} = \frac{1}{2} \iiint \rho(\vec{r})V(\vec{r})d^3\vec{r}, \quad (1.17)$$

avec ρ la distribution spatiale des charges. Si on considère que le potentiel est localement homogène on obtient :

$$E_{el} = \frac{1}{2}V \iiint \rho(\vec{r})d^3\vec{r} = \frac{1}{2}VQ,$$

ce qui d'après (1.16) nous donne :

$$E_{el} = \frac{1}{2}CV^2. \quad (1.18)$$

Cette énergie induit selon l'axe \vec{z} , en valeur absolue, la force électrique F ^[21] :

$$F = \frac{\partial E_{el}}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial C}{\partial z} V^2 \quad (1.19)$$

Si on applique alors au levier la tension :

$$V = V_0 + V_1 \cos(\omega_e t), \quad (1.20)$$

ceci nous donne la force appliquée :

$$F = \frac{1}{2} \frac{\partial C}{\partial z} (V_{DC} + V_0 + V_1 \cos(\omega_e t))^2 = \frac{1}{2} \frac{\partial C}{\partial z} [(V_{DC} + V_0)^2 + \frac{V_1^2}{2} + 2(V_{DC} + V_0)V_1 \cos(\omega_e t) + \frac{V_1^2}{2} \cos(2\omega_e t)] \quad (1.21)$$

La force détermine le comportement de la déflexion. On peut distinguer les différentes composantes fréquentielles de la force à l'aide d'une détection synchrone sur la mesure de la déflexion. En l'occurrence la composante qui nous intéresse ici est celle à ω_e . On note A_{ω_e} l'amplitude de la composante de la déflexion à la fréquence ω_e :

$$A_{\omega_e} \propto |F_{\omega_e}| = \frac{\partial C}{\partial z} (V_{DC} + V_0)V_1. \quad (1.22)$$

Le principe de la KPFM consiste à régler la tension V_0 de façon à obtenir $A_{\omega_e} = 0$ ^[22], ceci signifiant qu'on a alors $V_0 \approx -V_{DC}$. De cette façon, en enregistrant la valeur de V_0 nécessaire à l'annulation de A_{ω_e} on mesure le potentiel de surface de l'échantillon par rapport à la pointe.

Dans le cas où l'on cherche à réaliser des cartographies il faut prendre une précaution supplémentaire : même si l'annulation de l'amplitude ne nécessite pas en théorie un contrôle de la position du levier par rapport à la surface, dans la pratique la dépendance du facteur $\frac{\partial C}{\partial z}$ par rapport à la distance pointe échantillon fait qu'il vaut mieux se placer à une distance fixe afin d'assurer une précision constante sur la mesure.

1.4.8 Microscopie de force électrostatique

Le dispositif de l'AFM peut être utilisé pour mesurer les caractéristiques électriques d'un échantillon. C'est ce que l'on appelle la technique de microscopie de force électrostatique, que l'on appellera EFM. Pour cela on considère un levier et un substrat conducteur.

L'application d'un potentiel V entre ces deux éléments induit une interaction de nature capacitive. On obtient alors la force :

$$F = \frac{1}{2} \frac{\partial C}{\partial z} (V + V_{DC})^2 \quad (1.23)$$

Si on s'intéresse à la seule permittivité locale contenue dans le terme $\frac{\partial C}{\partial z}$, le fait que la valeur de V_{DC} ne soit pas toujours connue et puisse varier selon les zones de l'échantillon compromet la mesure. Pour contourner ce problème il suffit de faire de la tension appliquée V une tension sinusoïdale $V = V_1 \cos(\omega_e t)$. On a alors :

$$F(t) = \frac{1}{2} \frac{\partial C}{\partial z} [V_{DC} + V_1 \cos(\omega_e t)]^2 \quad (1.24)$$

Pour isoler la permittivité on sélectionne la composante de la force associée à la fréquence $2\omega_e$:

$$F_{2\omega_e}(t) = -\frac{1}{4} \frac{\partial C}{\partial z} V_1 \cos(2\omega_e t) \quad (1.25)$$

On a ainsi isolé une valeur proportionnelle à la dérivée de la capacité (et donc à la constante diélectrique), pour laquelle tous les autres paramètres sont connus^[23]. Une autre limitation est que cette force concerne surtout le corps du levier. En revanche, la mesure du gradient de force est dominée par la dynamique autour de la pointe. Le gradient de force affecte la raideur effective du système et peut se retrouver par la mesure de la phase φ du signal ou par celle du décalage de la fréquence de résonance f_{res} ^[24].

$$\Delta\varphi \approx -\frac{Q}{k} \left. \frac{\partial F}{\partial z} \right|_{z_0} \quad (1.26)$$

$$\Delta f_{res} \approx -\frac{f_{res}^\infty}{2k} \left. \frac{\partial F}{\partial z} \right|_{z_0} \quad (1.27)$$

avec Q le facteur de qualité du levier, k sa raideur et f_{res}^∞ sa fréquence de résonance en dehors de toute interaction. En général on effectue un premier passage en tapping, puis on intègre la topographie pour réaliser un second passage à distance fixée de la surface avec une excitation mécanique à f_{res} à laquelle on peut ajouter une tension continue.

Cette méthode permet de réaliser des cartographies diélectriques mais également des spectroscopies de la permittivité locale en jouant sur la valeur ω_e au dessus d'un point fixe^[23].

1.5 Conclusion

La diversité de des méthodes détaillées dans la partie 1.4 illustre bien la grande versatilité permise par un appareil AFM. Les échantillons que l'on souhaite caractériser présentent quant à eux de nombreux paramètres qu'il serait pertinent de quantifier, topographie, hétérogénéité de chimie de surface et, bien sûr, de constante diélectrique.

C'est en partant de ce constat qu'il a été décidé de monter un appareil AFM adapté à la méthode EFM (voir partie 1.4.8) afin de réaliser des cartographies et des spectres diélectriques du polymère chargé de nanoparticules introduit dans la partie 1.3. On espère ainsi cartographier la dispersion des oxydes dans la matrice polymérique, et mesurer localement la réponse diélectrique de l'échantillon.

Chapitre 2

Techniques de Mesures

Quand un homme a faim, mieux vaut lui apprendre à pêcher que de lui donner un poisson.
- Confucius

Le but de ma thèse étant d'effectuer une mesure locale des propriétés diélectriques d'un matériau composite, il convient tout d'abord de se pencher sur quelques modèles théoriques pour identifier les moyens d'y parvenir.

2.1 Mesure de la permittivité

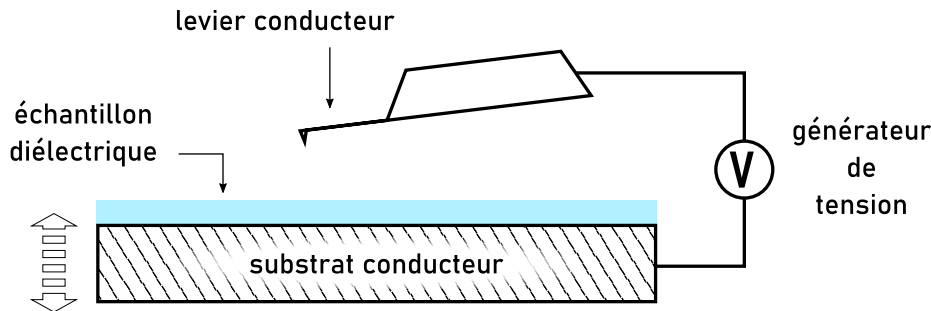


FIGURE 2.1 : Schéma explicitant la position du levier par rapport au substrat conducteur. Ce substrat est positionné sur un support mobile, ce qui permet de contrôler sa distance par rapport à la pointe. L'angle du levier est dû à des considérations d'encombrement du support (voir partie 3.6).

2.1.1 Principe

La Microscopie à Force Atomique permet de mesurer avec précision la force d'interaction entre une pointe effilée et un échantillon. Pour cela la pointe est portée à l'extrémité d'un microlevier qui sert de transducteur de force : sa déflexion d permettant de quantifier la dite force lorsque sa raideur k est connue. Pour voir la manière dont la déflexion est mesurée, on peut se référer à la section 3.7.3 qui détaille le type d'appareils utilisés pour remplir cette fonction. Pour mesurer la permittivité diélectrique de l'échantillon il faut donc se placer dans des conditions où celle-ci participe à une force d'interaction entre la pointe et l'échantillon. Comme introduit en partie 1.4, en utilisant un microlevier et un substrat d'échantillon conducteur, on crée entre ces deux éléments un condensateur. En appliquant une tension V entre les deux bornes distantes de z d'un condensateur de capacité C , chaque électrode est alors soumise à la force attractive résultante $F^{[22]}$:

$$F = \frac{1}{2} \frac{\partial C}{\partial z} V^2. \quad (2.1)$$

Le paramètre important ici est la capacité C puisqu'elle dépend de la permittivité diélectrique du composé ϵ_c . On sait en effet que dans le cas d'un condensateur plan la capacité d'un condensateur peut s'écrire^{[6][7]} :

$$C = \epsilon_0 \epsilon \frac{S}{z}, \quad (2.2)$$

avec S la surface des électrodes, z la distance séparant les deux électrodes, ϵ_0 la permittivité du vide et ϵ la permittivité du milieu intermédiaire. Le milieu intermédiaire en question étant partiellement constitué du matériau à étudier, ϵ dépend de la permittivité de l'échantillon ϵ_c . Pour nous, cela signifie que l'effet capacitif généré par ce dispositif crée une force résultante de laquelle on peut extraire une information sur la permittivité de notre matériau. La force générée par cet effet capacitif influence la déflexion d du levier dont la mesure est le principe même de la microscopie à force atomique. Il reste cependant à modéliser précisément la manière dont on peut extraire la permittivité locale de notre échantillon de cette interaction.

2.1.2 Localisation de la mesure

La mesure de la capacité entre le microlevier et le substrat est la clé de la mesure de la permittivité. Il convient cependant de noter que l'utilisation d'un levier conducteur faisant face à un substrat conducteur sur lequel est déposé l'échantillon crée en réalité un ensemble capacitif que l'on modélise par plusieurs condensateurs associés aux différents éléments géométriques du levier. Il est important de caractériser ces capacités si on veut pouvoir analyser nos résultats de manière pertinente^[22].

2.1.2.1 Définitions

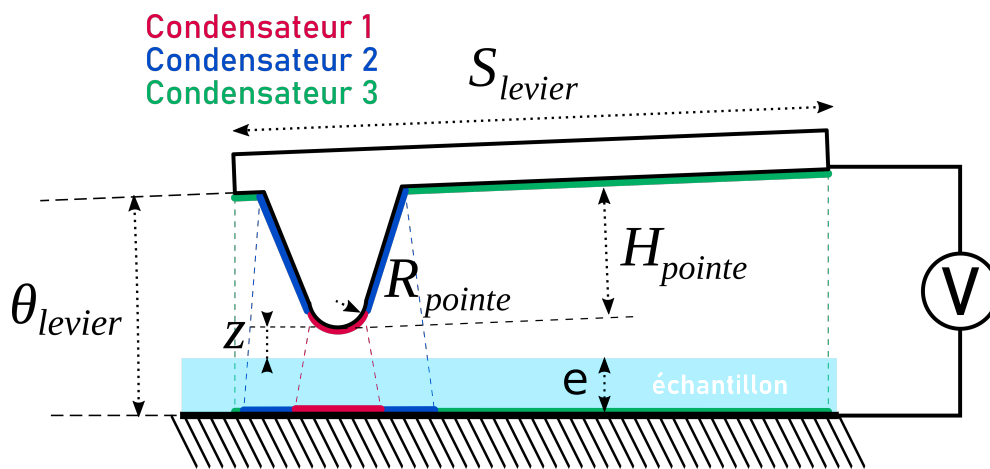


FIGURE 2.2 : Schéma explicatif de la géométrie des éléments capacitifs de l'ensemble levier-substrat. On y voit le rayon de courbure de la pointe R_{pointe} et sa hauteur H_{pointe} ainsi que l'épaisseur e de la couche d'échantillon. La surface S_{levier} est la mesure de la surface parallèle au plan du substrat. Le levier étant considéré en première approximation en position horizontale on a donc S_{levier} égal au produit de la largeur W_{levier} du levier par sa longueur L_{levier} . On voit également la définition de l'angle θ_{levier} formé par l'inclinaison du levier. Comme on peut le voir sur le schéma, θ_{levier} est en général très faible mais non nul.

En première approximation on considère trois équivalents de condensateurs créés par le système substrat-sonde^[25].

Le premier de ces condensateurs est celui qui nous intéresse le plus. Les deux électrodes qui le définissent sont l'extrémité de la pointe du levier et la zone de substrat en vis-à-vis. La capacité C_1 de ce condensateur concerne une zone de dimension définie par le rayon de courbure de la pointe R_{pointe} , soit quelques dizaines de nanomètres pour les leviers utilisés ici. Il s'agit bien ici de la mesure locale qui constitue l'objectif de nos travaux.

Le second condensateur est celui créé par le cône de la pointe. On notera la capacité associée C_2 . Du fait des dimensions de la pointe, il y a de fortes chances que cette capacité soit en partie impactée par des éléments au-delà de la zone que l'on cherche à mesurer. Il est donc dans notre intérêt de minimiser cet effet par rapport au précédent.

Le troisième de ces condensateurs est dû au levier lui-même. En effet, étant conductrice, la surface du levier est une électrode qui induit un élément capacitif avec le substrat conducteur en vis-à-vis. On note C_3 la capacité

due à la surface du microlevier. Cet effet est régi par la permittivité moyenne d'une surface grande ($\approx 1000 \mu\text{m}^2$) par rapport à la résolution attendue d'un AFM (autour de R_{pointe} soit $\approx 100 \text{nm}^2$). On cherche donc également à s'affranchir de cet effet qui pollue notre mesure locale.

Un schéma illustrant les principales caractéristiques de ces trois capacités peut être trouvé sur les Figures 2.2 et 2.3.

2.1.2.2 Formulation

On cherche à estimer théoriquement l'impact relatif de ces trois effets. On utilise pour cela les formules développées par J. Colchero, A. Gil et A. M. Baró^[25].

Pour chaque géométrie la force résultant de l'effet capacitif peut s'écrire :

$$F_i(z) = \int_{S_{\text{substrat}}} \frac{\varepsilon_i}{2} E(x, y, z)^2 dS \approx \frac{V^2}{2} \int_{S_{\text{substrat}}} \frac{\varepsilon_i(x, y, z)}{a_i(x, y, z)^2} dS, \quad (2.3)$$

avec E le champ électrique, ε_i la permittivité relative du milieu séparant les deux électrodes considérée et a_i la longueur de l'arc de cercle reliant le point (x, y) de la surface du substrat à l'électrode.

On doit donc déterminer les formulations de $\varepsilon_i(x, y, z)$ ainsi que de $a_i(x, y, z)$ pour chacune des composantes de la force électrostatique appliquée au levier.

2.1.2.3 Arcs de champs

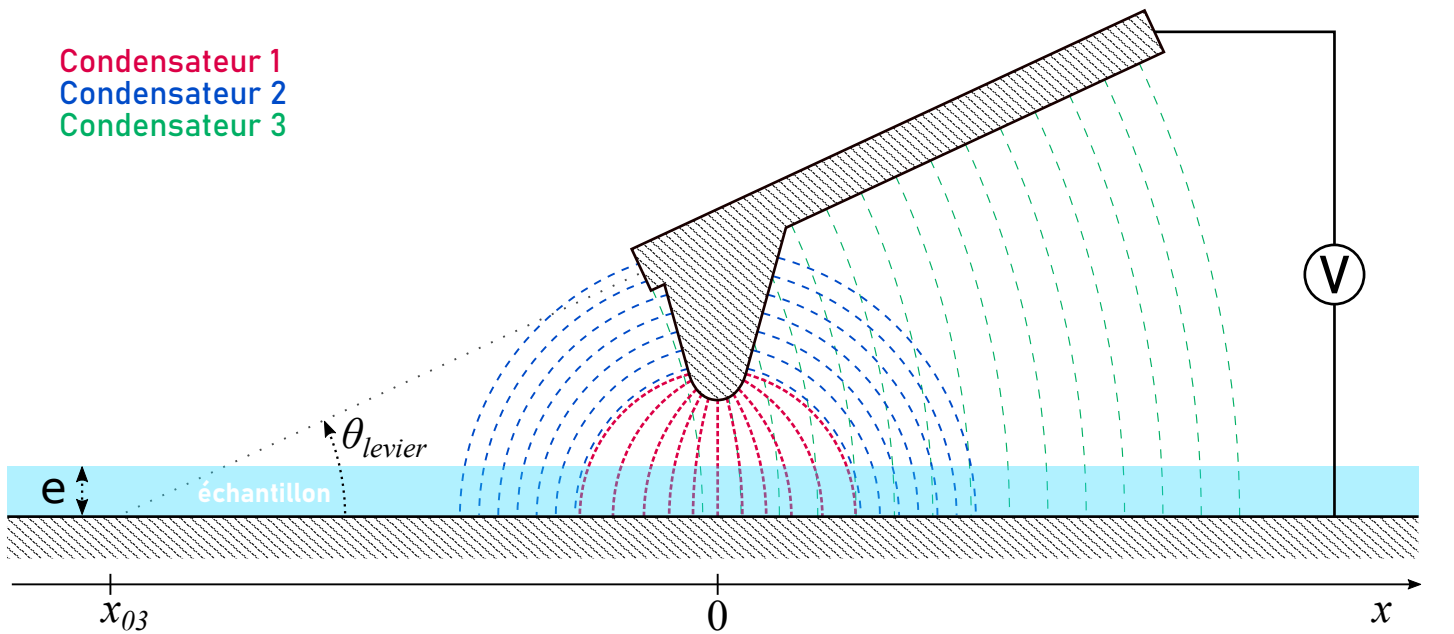


FIGURE 2.3 : Illustration de la forme des lignes de champs connectant le substrat conducteur au levier. Les lignes sont différenciées selon les trois composantes capacitives illustrées sur la Figure 2.2.

La mesure de la force est régie par la forme et la longueur des lignes de champs qui relient les différentes zones du levier au substrat conducteur. Les lignes de champs en question sont ici modélisées par des arcs de cercles reliant le substrat au levier et localement perpendiculaires à la surface conductrice dont ils sont issus^[25]. La Figure 2.3 donne une illustration de la forme de ces lignes de champs.

On obtient les longueurs des arcs de champs pour chacun des trois condensateurs (voir la Figure 2.3) : Condensateur 1 (extrémité de la pointe, considérée de forme parabolique) :

$$a_1(\rho, z) = \frac{\sqrt{\frac{16R_{\text{pointe}}^2}{(2R_{\text{pointe}}+d)^4}\rho^6 + \frac{4R_{\text{pointe}}(4d+R_{\text{pointe}})}{(2R_{\text{pointe}}+d)^2}\rho^4 4(d^2 - dR_{\text{pointe}})\rho^2 + d^2(2R_{\text{pointe}} + d)^2}}{2R_{\text{pointe}} + d} \quad (2.4)$$

Condensateur 2 (cône de la pointe, soit l'ensemble de la pointe à l'exception de l'extrémité couverte par l'équation (2.4)) :

$$a_2(\rho, z) = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right) r_2(\rho) = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \left(\rho + \left(z + e + \frac{\delta}{2}\right) \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right) \quad (2.5)$$

Condensateur 3 (corps du levier) :

$$a_3(x, z) = (x - x_{03})\theta_{levier} \quad (2.6)$$

avec x_{03} la position du point imaginaire où l'axe du levier coupe le plan du substrat,

$$\rho = \sqrt{x^2 + y^2},$$

$$d = z + e.$$

et

$$\delta = \frac{R_{pointe}}{\tan^2\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)}$$

Dans le cadre de notre travail on a choisi de se baser sur les approximations de Colchero^[25] qui pour un levier et un substrat métallique considère les lignes de champs comme des arcs de cercles perpendiculaires aux deux surfaces conductrices. On construit donc ces lignes à la base de ces considérations géométriques, comme détaillé dans l'annexe B.

Ici, ces lignes de champs traversent deux milieux différents, l'air (ou le vide) environnant, et l'échantillon. Si on choisit ici de négliger l'impact de cette inhomogénéité sur la trajectoire des lignes de champs, il faut tout de même prendre en compte la variation de permittivité. On considère ici que l'échantillon est localement homogène et d'épaisseur constante e . Pour la suite on sépare chaque ligne de champs a_i , $i \in [1, 2, 3]$ en deux composantes a_{ic} et a_{iv} . a_{ic} est la partie de l'arc a_i , $i \in [1, 2, 3]$ présente dans l'échantillon tandis que a_{iv} est la partie de l'arc a_i présente dans le milieu environnant. Une représentation graphique de cette définition est donnée par la Figure 2.4.

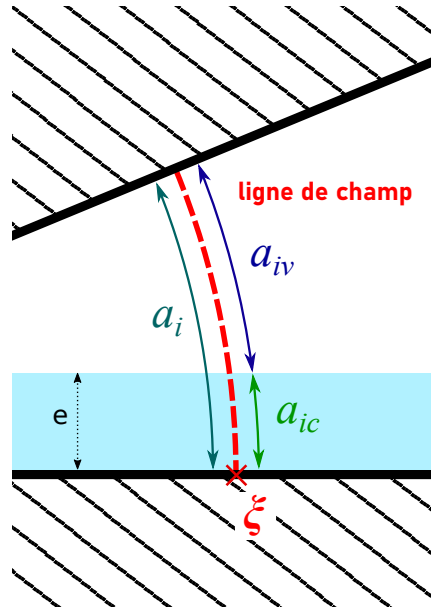


FIGURE 2.4 : Représentation schématique des paramètres a_i , a_{ic} et a_{iv} autour d'une ligne de champ quelconque.

On utilise ces lignes de champs pour décrire l'effet capacitif entre le levier et le substrat conducteurs en le modélisant par l'intégration d'un ensemble d'effets capacitifs locaux existants le long de ces lignes de champs.

2.1.3 Dépendance à la permittivité

On a pu identifier dans la partie précédente les trois principales contributions aux forces d'origine capacitive qui s'appliquent sur le levier. Si on a déjà pu les différencier sur leur précision topographique, il convient également de

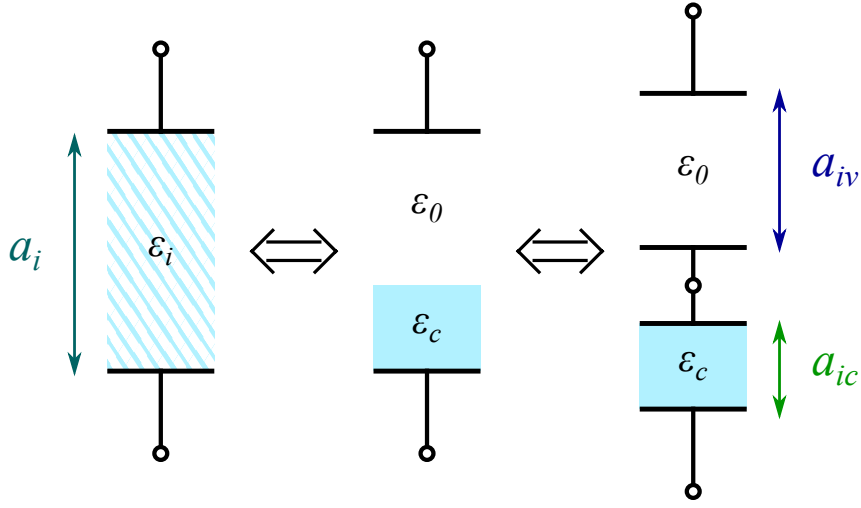


FIGURE 2.5 : Illustration du modèle utilisé pour calculer la permittivité équivalente.

se demander dans quelle mesure leurs paramètres diélectriques respectifs, que l'on nomme ϵ_1 , ϵ_2 et ϵ_3 , dépendent de la permittivité du composé ϵ_c que l'on souhaite mesurer. Pour cela on calcule les valeurs des capacités associées C_1 , C_2 et C_3 . Chacune de ces capacités peut être vue comme la résultante de deux capacités branchées en série, l'une existant entre le substrat et la surface du composé et dont la permittivité dépend de la composition locale de l'échantillon, et l'autre entre la surface du composé et la zone du levier concernée, séparés par du vide. On pose C_{ic} et C_{iv} les deux capacités en questions pour chaque capacité C_i , $i \in [1, 2, 3]$.

$$\frac{1}{C_i} = \frac{1}{C_{ic}} + \frac{1}{C_{iv}}. \quad (2.7)$$

c'est à dire en reprenant l'expression (2.2) et en l'appliquant aux paramètres de la Figure 2.5 :

$$\frac{a_i}{\epsilon_0 \epsilon_i} = \frac{a_{ic}}{\epsilon_0 \epsilon_c} + \frac{a_{iv}}{\epsilon_0} \quad (2.8)$$

2.1.3.1 Expression

Ici on considère l'effet capacitif suivant les lignes de champs reliant le substrat conducteur au levier comme on peut le voir sur les Figures 2.4 et 2.5. D'après l'équation (2.8) en chaque point ξ de l'électrode, on peut écrire la permittivité perçue comme :

$$\epsilon_i(\xi, z) = \frac{\epsilon_c a_i(\xi, z)}{a_{ic}(\xi, z) + \epsilon_c a_{iv}(\xi, z)}, \quad (2.9)$$

avec a_i la longueur de la ligne de champ reliant le point ξ à la surface du substrat, c'est à dire la valeur de l'arc mentionnée en 2.1.2.3, a_{ic} la longueur de la dite ligne de champ située dans l'échantillon et a_{iv} la longueur située dans le vide. On a donc $a_i = a_{ic} + a_{iv}$.

Dans les faits on considère que :

$$a_{ic} \approx e. \quad (2.10)$$

Les étapes de calculs et la justification de cette approximation peuvent se trouver dans l'annexe B.

2.1.3.2 Cas de l'extrémité de la pointe

En utilisant les équations 2.9 et 2.4, on obtient :

$$\epsilon_1(\rho, z) \approx \frac{4R_{pointe}\epsilon_c\sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)}}{(2R_{pointe} + z + e)(1 - \epsilon_c)e + 4R_{pointe}\epsilon_c\sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)}} \quad (2.11)$$

avec

$$\alpha_1(z) = \frac{1}{4R_{pointe}}(4(z+e) + R_{pointe})(2R_{pointe} + z + e)^2 \quad (2.12)$$

$$\beta_1(z) = \frac{1}{4R_{pointe}^2}(z+e)(z+e + R_{pointe})(2R_{pointe} + z + e)^4 \quad (2.13)$$

$$\gamma_1(z) = \frac{1}{16R_{pointe}^2}(z+e)^2(2R_{pointe} + z + e)^6 \quad (2.14)$$

2.1.3.3 Cas du cône de la pointe

En utilisant les équations 2.9 et 2.5, on obtient :

$$\varepsilon_2(\rho, z) \approx \frac{\varepsilon_c \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \left(\rho + (z+e + \frac{\delta}{2}) \tan \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \right)}{e + \varepsilon_c \left(\left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \left(\rho + (z+e + \frac{\delta}{2}) \tan \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \right) - e \right)}. \quad (2.15)$$

2.1.3.4 Cas du levier

Pour nos expériences l'angle du levier par rapport à l'horizontal est très faible. Dans le cadre du calcul de la permittivité on considère donc que la longueur des lignes de champs est uniforme sur la longueur du levier.

$$a_3^*(x_3, y_3, z) = z + H_{pointe} + e \quad (2.16)$$

ce qui nous donne d'après l'équation (2.9) une estimation de la permittivité équivalente :

$$\varepsilon_3 \approx \frac{\varepsilon_c(z + H_{pointe} + e)}{e + \varepsilon_c(z + H_{pointe})}. \quad (2.17)$$

On sait que pour la plupart de nos échantillons on aura $H_{pointe} \gg e$. Ceci implique :

$$\varepsilon_3 \approx 1. \quad (2.18)$$

La capacité créée par le levier n'est donc pas seulement problématique pour son manque de précision mais également car elle ne peut même pas constituer une mesure de la permittivité de l'échantillon puisque celle-ci est masquée par la contribution de l'épaisseur d'air.

2.1.3.5 Application Numérique

La valeur ε_1 est celle qui nous intéresse le plus ici puisque c'est elle qui correspond à la mesure la plus localisée. Si on se place au centre de la pointe, c'est à dire dans le cas où $x_1 = 0$, on a alors :

$$a_1(0, 0, z) = z + e \quad (2.19)$$

D'après l'équation 2.9 on a alors :

$$\varepsilon_1(0, 0, z) = \frac{\varepsilon(z+e)}{e + \varepsilon_c z} \quad (2.20)$$

Pour appréhender la manière dont l'équation (2.20) limite notre mesure on peut se référer à la Figure 2.6 qui représente l'évolution de la permittivité mesurée en fonction de $\frac{z}{e}$. On a fait l'application pour les valeurs 7 et 150 car il s'agit là des valeurs de permittivité relatives respectives du PVdF-HFP et du BaTiO₃ autour de la centaine de Hz.

On voit alors que pour avoir $\varepsilon_1 \approx \varepsilon_c$ on a intérêt à avoir $z \ll e$, c'est à dire z le plus petit possible. D'un point de vue plus pratique la Figure 2.6 présente la permittivité que l'on verrait selon z pour les deux composés que l'on souhaite pouvoir différencier. On voit alors aisément que pour pouvoir différencier l'oxyde du polymère on a besoin de se placer de façon à avoir $z < e$.

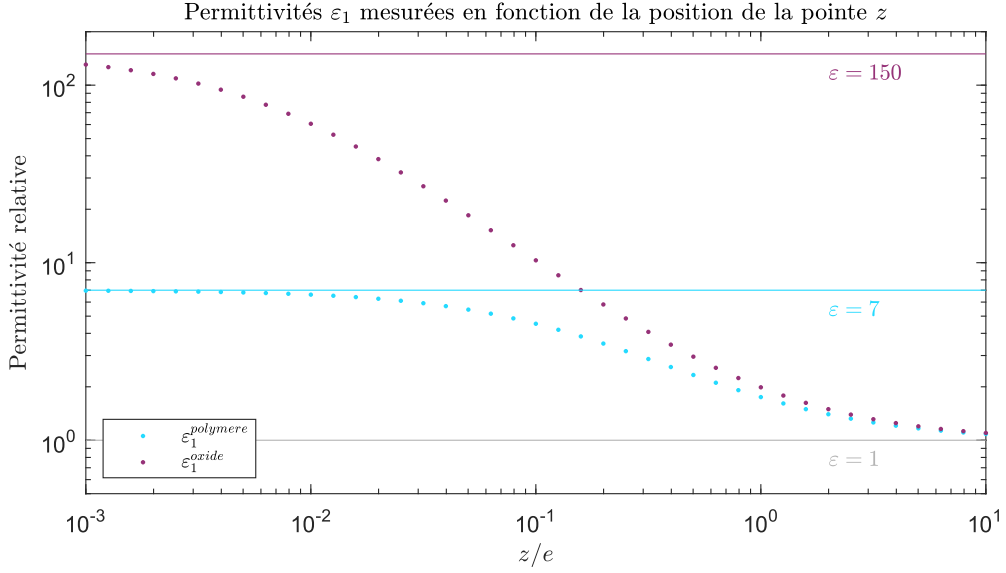


FIGURE 2.6 : Exemple de l'évolution de la permittivité au niveau de la pointe mesurée en fonction de $\frac{z}{e}$ avec z la distance entre la surface de l'échantillon et la pointe et e l'épaisseur de la couche d'échantillon (typiquement autour de 100 nm). On a ici pris les valeurs 7 et 150 pour les permittivité ε_c car ce sont des valeurs proches de celles du polymère et des oxydes considérés.

2.1.4 Formulation de la force

2.1.4.1 Formulation

On cherche à estimer théoriquement l'impact relatif de ces trois effets. On utilise pour cela les formules développées par J. Colchero, A. Gil et A. M. Baró^[25], en reportant les valeurs de a_i et de ε_i calculées précédemment dans l'équation (2.3).

À la suite des calculs explicités en annexe B, on obtient les expressions de force suivantes :

Composante due à l'extrémité de la pointe

$$\begin{aligned}
 F_1(z) &\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \varepsilon_c \frac{(2R_{pointe} + z + e)^3}{4R_{pointe}} \\
 &\times \int_0^{\rho_{max}} \frac{1}{e + \varepsilon_c \left(\frac{4R_{pointe}}{(2R_{pointe} + z + e)^3} \sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)} - e \right)} \\
 &\times \frac{\rho}{\sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)}} d\rho
 \end{aligned} \tag{2.21}$$

avec avec α_1 , β_1 et γ_1 définis par les équations (2.12), (2.13) et (2.14).

et

$$\rho_{max} = \frac{R_{pointe}}{2 \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} - d \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) - \sqrt{\left(\frac{R_{pointe}}{2 \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} + d \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right)^2 + \left(\frac{R_{pointe}}{2 \tan^2\left(\frac{\theta}{2}\right)} + d\right)^2} \tag{2.22}$$

Composante due au cône

$$F_2(z) \approx \varepsilon_0 V^2 \frac{\pi \varepsilon_c}{\alpha_2} \int_{\rho_1(z)}^{\rho_2(z)} \frac{\rho}{\varepsilon_c \alpha_2 \rho^2 + (2\varepsilon_c \alpha_2 \beta_2 (z + e - \frac{\delta}{2}) - e(\varepsilon_c - 1))\rho + \varepsilon_c \alpha_2 \beta_2^2 (z + e - \frac{\delta}{2})^2} d\rho \tag{2.23}$$

avec :

$$\alpha_2 = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \tag{2.24}$$

$$\beta_2 = \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \tag{2.25}$$

et

$$\rho_1(z) = d_c(z) \frac{1 - \sin\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) + \frac{\delta}{d_c(z)}}{\cos\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} \quad (2.26)$$

$$\rho_2(z) = d_c(z) \frac{1 - \sin\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) + \frac{H_{pointe}}{d_c(z)}}{\cos\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} \quad (2.27)$$

Composante due au levier

$$F_3(z) \approx 2W_{levier}\varepsilon_0V^2 \frac{\varepsilon_c}{e + \varepsilon_c(z + H_{pointe})} \frac{1}{\theta_{levier}^2} \frac{L_{levier} \tan^2\left(\frac{\theta_{levier}}{2}\right)}{z + H_{pointe} + e + L_{levier} \tan\left(\frac{\theta_{levier}}{2}\right)} \quad (2.28)$$

2.1.4.2 Application Numérique

On cherche ici à juger l'influence respective des trois effets à partir des ordres de grandeurs du dispositif expérimental.

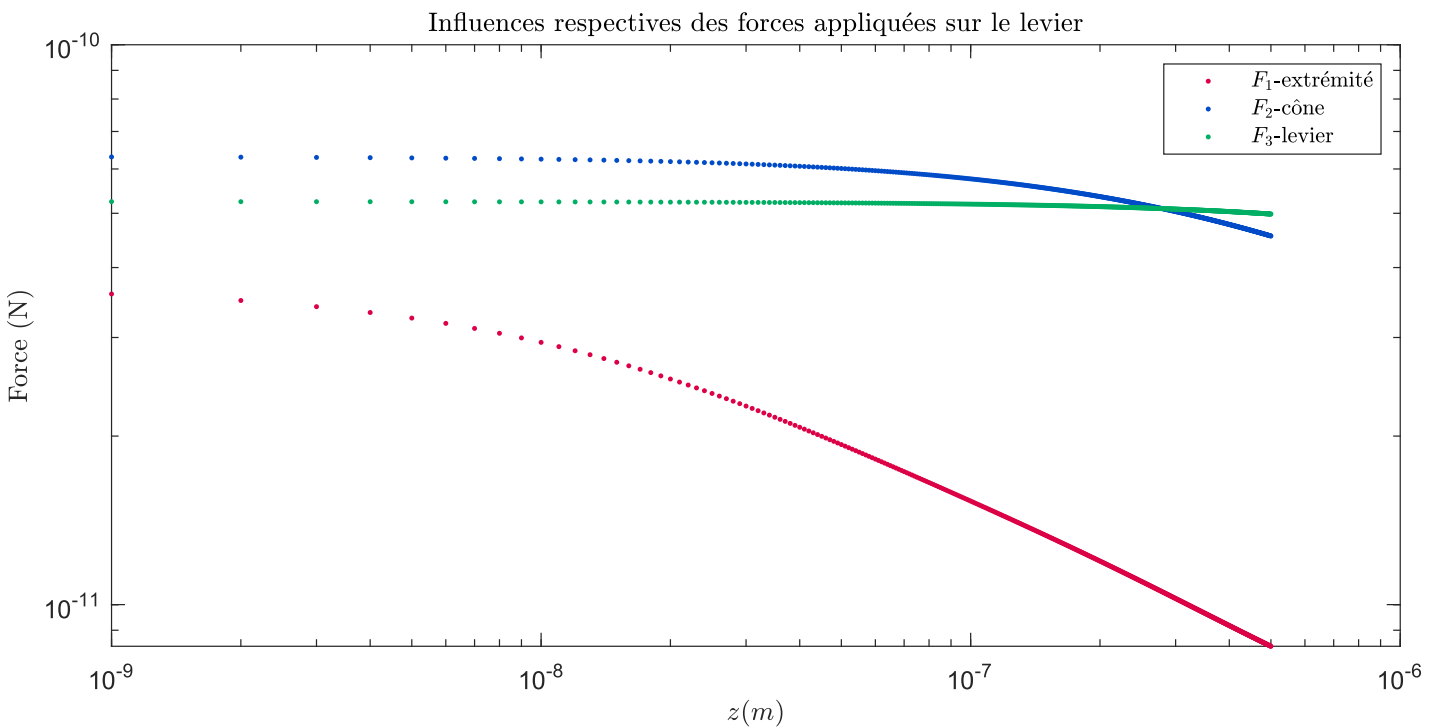


FIGURE 2.7 : Illustration de l'évolution des différentes forces en fonction de la distance z pour $e = 100$ nm et $\varepsilon_c = 7$.

Les leviers que nous utilisons ont une longueur de $150 \mu\text{m}$ pour une largeur de $30 \mu\text{m}$ et une épaisseur de $2,7 \mu\text{m}$ selon le fabricant. La pointe est quant à elle longue de $17 \mu\text{m}$ avec un rayon de courbure de 25 nm à son extrémité (les caractéristiques des leviers utilisés peuvent se trouver dans la partie 5.1.1). Pour les calculs suivants, on estime l'épaisseur de l'échantillon à 100 nm, ce qui est dans l'ordre de grandeur de la plupart des échantillons utilisés au cours de la thèse. On considère donc les valeurs suivantes :

$$R_{pointe} = 25 \text{ nm} \quad (2.29)$$

$$H_{pointe} = 17 \mu\text{m} \quad (2.30)$$

$$\theta_{pointe} = 25^\circ \quad (2.31)$$

Les applications numériques nous confirment qu'en général la force prépondérante ressentie par le levier est celle due à la surface du levier. On voit en effet sur la Figure 2.7 que la force due à l'extrémité de la pointe ne devient significative par rapport aux deux autres que pour une valeur de z autour de 10 nm.

En revanche on peut remarquer que la pente de la courbe est plus importante pour la force F_1 que pour les deux autres composantes.

Au vu de ces résultats on peut donc supposer que le gradient de force est plus important au niveau de la pointe qu'au niveau du levier à partir d'une valeur de z plus grande (c'est à dire plus aisément atteignable). En effet si on reprend les expressions 2.1 et 2.2 on a (en ordre de grandeur) :

$$F_i \approx \varepsilon_i \frac{S_i}{z_i^2} \quad (2.32)$$

d'où :

$$\frac{\partial F_i}{\partial z} \approx \varepsilon_i \frac{S_i}{z_i^3} \quad (2.33)$$

On sait qu'on a

$$\begin{aligned} z_1 &\approx z + e \\ z_2 &\approx z + e + \frac{1}{2}H_{pointe} \\ z_3 &\approx z + e + H_{pointe} \end{aligned} \quad (2.34)$$

Pour z et e suffisamment petits par rapport à H_{pointe} , F_1' est dominant par rapport à F_2' et F_3' .

On voit bien ici qu'il nous faut nous concentrer sur le gradient de la force par rapport à la distance d'approche z . Cela nous permet de remonter à la permittivité ε_1 qui correspond à celle se trouvant à l'extrémité de la pointe. Il nous reste néanmoins à trouver une manière d'extraire ce gradient de force du mouvement du levier.

2.1.5 Formulation du gradient de force

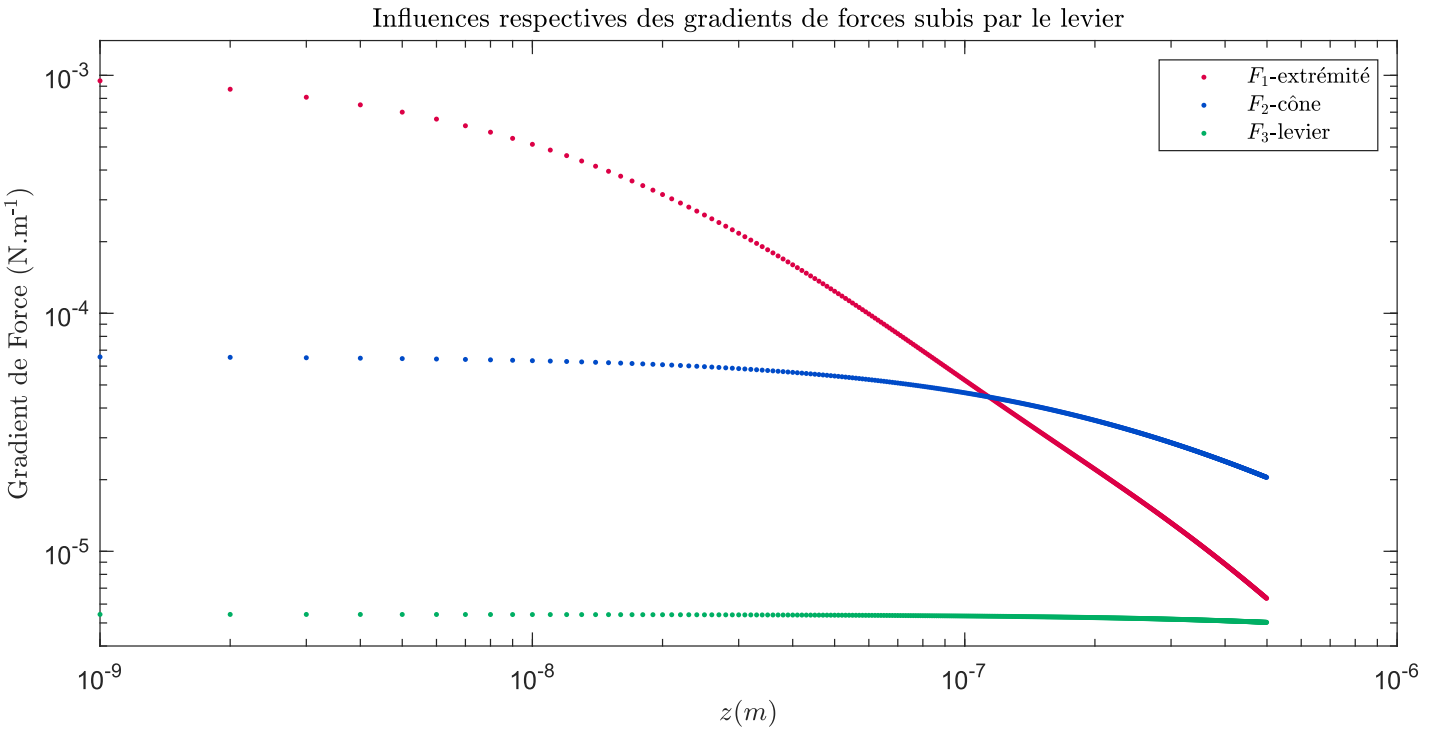


FIGURE 2.8 : Représentation comparative des évolutions des trois composantes du gradient de force selon la distance z entre la surface de l'échantillon et la pointe. Les calculs ont été réalisés avec une épaisseur e de 100 nm. On voit que pour une distance pointe-échantillon de plus de 100 nm, la composante F_1 , qui est celle que l'on cherche à extraire de la mesure, est masquée par la composante F_2 . On remarque également que l'utilisation du gradient de force diminue fortement l'influence de la composante du levier F_3 par rapport à ce que l'on pouvait voir sur la Figure 2.7.

2.1.5.1 Formulation

D'après l'équation 2.3

$$\frac{\partial F_i}{\partial z} \approx \frac{\varepsilon_0 V^2}{2} \int_{S_{\text{substrat}}} \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\varepsilon_i(x, y, z)}{a_i(x, y, z)^2} \right) dS \quad (2.35)$$

Composante due à l'extrémité de la pointe

$$\begin{aligned} \frac{\partial F_1(z)}{\partial z} &\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \varepsilon_{ech1} \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{(2R_{\text{pointe}} + z + e)^3}{4R_{\text{pointe}}} \right. \\ &\times \int_0^{\rho_{\text{max}}} \frac{1}{e + \varepsilon_{ech1} \left(\frac{4R_{\text{pointe}}}{(2R_{\text{pointe}} + z + e)^3} \sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)} - e \right)} \\ &\left. \times \frac{\rho}{\sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)}} d\rho \right) \end{aligned} \quad (2.36)$$

avec α_1 , β_1 et γ_1 définis par les équations (2.12), (2.13) et (2.14).

Composante due au cône

$$\frac{\partial F_2(z)}{\partial z} \approx \varepsilon_0 V^2 \frac{\pi \varepsilon_{ech2}}{\alpha_2} \frac{\partial}{\partial z} \left(\int_{\rho_1(z)}^{\rho_2(z)} \frac{\rho}{\varepsilon_{ech2} \alpha_2 \rho^2 + (2\varepsilon_{ech2} \alpha_2 \beta_2 (z + e - \frac{\delta}{2}) - e(\varepsilon_{ech2} - 1))\rho + \varepsilon_{ech2} \alpha_2 \beta_2^2 (z + e - \frac{\delta}{2})^2} d\rho \right) \quad (2.37)$$

avec α_2 , β_2 , ρ_1 et ρ_2 définis par les équations (2.24), (2.25), (2.26) et (2.27) respectivement.

Composante due au levier

$$\begin{aligned} \frac{\partial F_3}{\partial z} &\approx - \frac{2W_{\text{levier}} \varepsilon_0 V^2 \varepsilon_{ech3} L_{\text{levier}} \tan^2\left(\frac{\theta_{\text{levier}}}{2}\right)}{\theta_{\text{levier}}^2 (e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}}))(z + H_{\text{pointe}} + e + L_{\text{levier}} \tan\left(\frac{\theta_{\text{levier}}}{2}\right))} \\ &\times \left[\frac{\varepsilon_{ech3}}{e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}})} + \frac{1}{z + H_{\text{pointe}} + e + L_{\text{levier}} \tan\left(\frac{\theta_{\text{levier}}}{2}\right)} \right] \end{aligned} \quad (2.38)$$

2.1.5.2 Application numérique

Du fait de l'absence de solution exacte des intégrales de F_1 et F_2 on privilégie le calcul numérique de la dérivée. Ces calculs nous permettent de réaliser la Figure 2.8. On voit sur cette Figure que l'utilisation du gradient de force permet d'avoir une mesure dont la principale composante est issue de l'extrémité de la pointe pour une distance z inférieure à 100 nm. Ce genre de proximité entre la pointe et l'échantillon est accessible par les systèmes AFM, ce qui rend possible notre mesure.

2.1.6 Mesure du gradient de force

Le gradient de force est moins direct à mesurer que la force elle-même. Pour le retrouver on considère à nouveau les oscillations du levier autour de sa position d'équilibre comme celles d'un oscillateur harmonique :

$$m\ddot{d} + \gamma\dot{d} + kd = F(d) \quad (2.39)$$

F est ici la résultante des forces F_1 , F_2 et F_3 . On considère que la déflexion d est une variation infinitésimale de la position du levier si on la compare aux distances z_i (voir équations 2.34) qui régissent les différentes composantes F_i de la force. En fixant la position du levier à une distance connue on peut écrire :

$$z_i(t) = z_{0i} + d(t) \quad (2.40)$$

avec z_{0i} la valeurs de la position z_i à l'équilibre mécanique, c'est à dire pour ce qu'on considère être une déflexion nulle.

On peut alors réaliser le développement limité des forces en présences, et on obtient :

$$m\ddot{d} + \gamma\dot{d} + \left(k - \frac{\partial F_1}{\partial z} \Big|_{d=0} - \frac{\partial F_2}{\partial z} \Big|_{d=0} - \frac{\partial F_3}{\partial z} \Big|_{d=0} \right) \times d = F_1|_{d=0} + F_2|_{d=0} + F_3|_{d=0} \quad (2.41)$$

On voit alors que les forces influencent la déflexion via la raideur effective k_{eff} ^[26] :

$$k_{eff} = k - \frac{\partial F}{\partial z} \Big|_{d=0} = k - \frac{\partial F_1}{\partial z} \Big|_{d=0} - \frac{\partial F_2}{\partial z} \Big|_{d=0} - \frac{\partial F_3}{\partial z} \Big|_{d=0}. \quad (2.42)$$

Or la raideur de l'oscillateur harmonique détermine la valeur de la fréquence de résonance effective $f_{res_{eff}}$ du système :

$$f_{res_{eff}}(F) = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k_{eff}}{m}} = f_{res} \sqrt{1 - \frac{1}{k} \frac{\partial F}{\partial z} \Big|_{d=0}}. \quad (2.43)$$

Dans les cas qui nous concernent, les tensions appliquées ne dépassant pas une dizaine de Volt, on a $f_{res_{eff}}(F) - f_{res} \ll f_{res}$, ce qui implique $\frac{\partial F}{\partial z} \ll k$. On peut donc réaliser le développement limité suivant :

$$f_{res_{eff}}(F) = f_{res} + \frac{1}{2\pi\sqrt{km}} \frac{\partial F}{\partial z} = f_{res_{eff}} + \Delta f_{res_{eff}}(F)$$

On voit qu'on peut alors considérer l'écart $\Delta f_{res_{eff}}$ à la fréquence de résonance en l'absence de force comme proportionnel au gradient de force que l'on souhaite mesurer $\frac{\partial F}{\partial z} \Big|_{d=0}$ et donc de la permittivité de l'échantillon^{[24][26]}.

Le système AFM repose sur une mesure précise de la déflexion d , c'est donc à partir de cette valeur que l'on peut extraire la variation de la fréquence de résonance. En excitant le levier avec un signal sinusoïdal à f_{res} , un décalage de la fréquence de résonance du levier induit une variation du déphasage du signal. C'est donc en mesurant la phase du signal d , par exemple à l'aide d'une détection synchrone, que l'on peut retrouver la variation de fréquence de résonance, et donc la permittivité.

Supposons que la pointe soit soumise à un champ de potentiel électrique V générant une force F . En appliquant au levier une excitation mécanique à la fréquence de résonance en l'absence de force appliquée (loin de la surface) f_{res} on obtient une déflexion de la forme :

$$d(t) = d_0 \sin(2\pi f_{res}t + \phi)$$

Pour mesurer cet écart Δf_{res} on s'intéresse au déphasage entre le signal envoyé et la déflexion.

Dans le cas d'une mesure sous vide, la faible valeur de la dissipation visqueuse γ implique $Q = \frac{\sqrt{mk}}{\gamma} \gg 1$. Dans le cas d'une excitation sinusoïdale de fréquence f , le déphasage ϕ de la déflexion avec l'excitation peut s'écrire :

$$\phi = \arctan \left(\frac{f f_{res}}{Q(f^2 - f_{res}^2)} \right) - \phi_{res} \quad (2.44)$$

avec ϕ_{res} la valeur du déphasage mesuré à la fréquence de résonance.

On peut voir sur la Figure 2.9 que si la fréquence de résonance change on a une chute de l'amplitude ainsi que de la phase. Dans la pratique cependant, étant donné que la force appliquée est très sensible à la position, on préfère généralement garder l'amplitude constante en jouant sur l'excitation. On voit également qu'autour de la fréquence de résonance la phase présente une évolution linéaire par rapport au décalage fréquentiel.

2.1.7 Exploration fréquentielle

Comme mentionné en partie 1.4.8 la microscopie de force électrostatique permet de réaliser des spectroscopies diélectriques locales. Ceci peut s'avérer très intéressant dans le cadre de notre étude.

On a vu dans la partie 1.3 que le polymère de nos échantillons présentait à l'échelle macroscopique une permittivité variable avec la fréquence mais également que ses propriétés pouvaient varier en fonction de son organisation microscopique notamment avec l'existence d'une phase ferroélectrique pour le PVdF prévenue ici

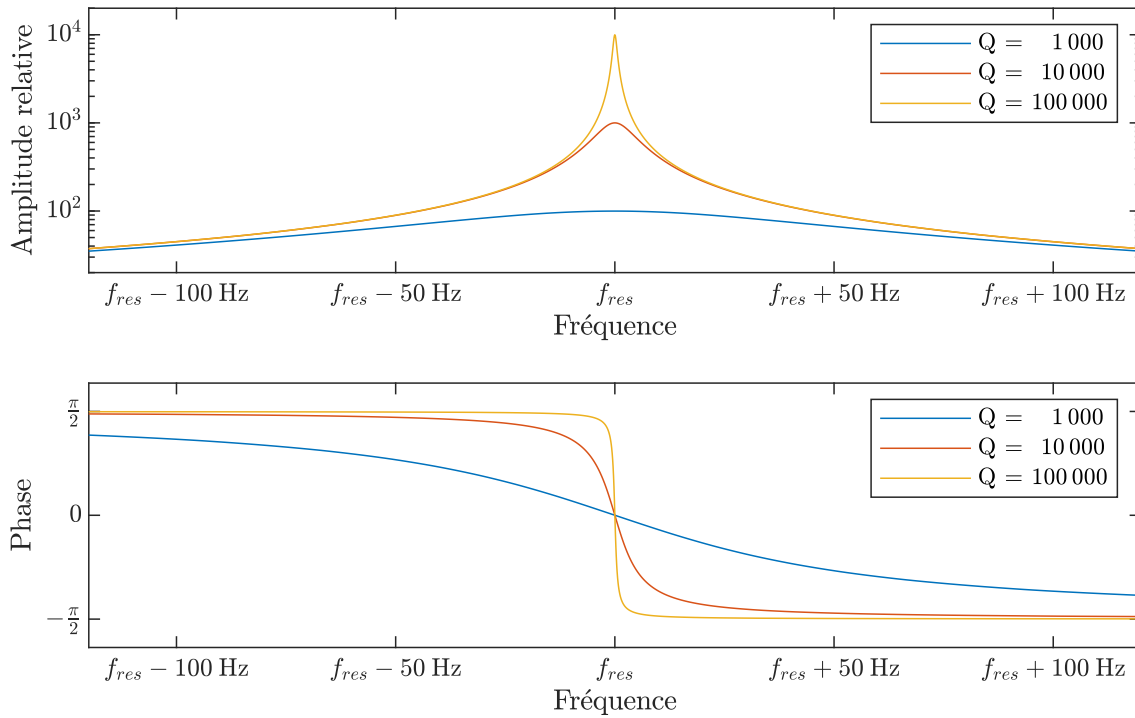


FIGURE 2.9 : Représentation de l'évolution de l'amplitude et de la phase en fonction du facteur de qualité Q . On considère ici l'amplitude relative par rapport à sa valeur à basse fréquence, dans la pratique elle dépend de l'excitation appliquée. On s'est ici positionné à une fréquence de résonance $f_{res} \approx 100 \text{ kHz}$, ce qui est proche des types de leviers que l'on utilise.

par la présence de monomères HFP. On sait également que la structure adoptée par le PVdF-HFP pur est une structure semi-cristalline avec des phases amorphes et des phases cristallines. Au vu des considérations sur la permittivité des polymères détaillées dans la partie 1.2 on peut légitimement assumer que ces deux phases présenteront des constantes diélectriques variables, au moins à certaines fréquences. Ici les composés qui nous intéressent sont dopés en particules d'oxyde métallique. Une comparaison du spectre diélectrique à proximité des particules avec un spectre issu d'une zone localement pure en polymère pourra donc nous renseigner sur les différences morphologiques induites par la proximité des particules.

2.2 Cartographie

Nous cherchons à effectuer une caractérisation microscopique d'un matériau hétérogène, une étude de la répartition des différentes caractéristiques présente donc d'une pertinence incontestable.

L'utilisation de l'AFM pour réaliser des cartographies est une chose courante. De plus, on a vu dans la partie 1.4 que l'AFM permettait d'explorer une grande variété de paramètres. Ceci signifie qu'il est envisageable de réaliser des cartographies extrêmement informatives afin de pouvoir extraire des corrélations entre des données topographiques, diélectriques ou autre.

Dans le cadre de notre travail sur le BaTiO_3 , l'utilisation de la cartographie s'avère très pertinente. En effet, on a vu dans la partie 1.3.3 et sur la Figure 1.6 que la dispersion des particules d'oxyde pouvait avoir d'importantes conséquences sur les propriétés du matériau final. Il est à ce titre intéressant d'effectuer une mesure de cette dispersion en effectuant une cartographie de la permittivité qui nous permettra d'identifier les particules d'oxyde et ainsi de quantifier et de caractériser la manière dont elle se dispersent voir d'étudier les caractéristiques des polymères en relation avec cette dispersion.

La cartographie du matériau présente néanmoins un défi au vu de ce que l'on a mentionné précédemment. En effet, on a vu que la mesure diélectrique dépendait fortement de la distance entre la pointe et l'échantillon conducteur, ce qui peut poser problème si la topographie de l'échantillon est irrégulière. Dans ce cas, deux solutions peuvent être envisagées :

En effectuant une mesure à position verticale fixe on s'assure d'une mesure diélectrique pertinente au risque

cependant que la topographie de la région cartographiée nous force à choisir une position trop éloignée du substrat pour assurer la localisation (voir Figure 2.8).

Il est possible de réaliser une cartographie diélectrique en suivant la topographie afin de se placer toujours au plus près du substrat. Il faudra cependant trouver un moyen de corriger à posteriori les variations de permittivité dues aux variations de la distance pointe-substrat, ceci nécessitera d'avoir une bonne estimation de celle-ci, alors qu'elle n'est pas directement mesurable.

2.3 Conclusion

Les différents calculs et modèles présentés ci-dessus montrent que la mesure que l'on souhaite réaliser est théoriquement possible mais celle-ci pose d'importantes contraintes sur le montage qui en sera capable. En effet on a vu dans la partie 2.1.5 que la mesure du gradient de force demande une grande proximité entre la pointe et l'échantillon. De plus, la mesure du gradient de force n'est pas directe (voir partie 2.1.6) et demande donc d'implémenter des systèmes de traitement de données en temps réel.

Chapitre 3

Instrumentation

La technique, il est bon de la fréquenter pour [...] attirer ses bonnes grâces, après quoi elle doit vous ficher royalement la paix.
- Robert Doisneau

Dans ce chapitre sont discutés les aspects pratiques de la réalisation de la mesure, c'est à dire l'ensemble des systèmes qui rendent cette mesure possible. La construction du dispositif présenté ici a en effet constitué la majeure partie de mon travail de thèse.

3.1 Cahier des charges

On souhaite réaliser des cartographies diélectriques d'échantillons hétérogènes en couche minces incorporant des particules de quelques dizaines de nanomètres à l'aide d'un montage AFM.

On a vu dans la partie 1.4 que la mesure AFM reposait sur un microlevier positionné en vis-à-vis de la surface d'un échantillon déposé sur un substrat, conducteur si on veut pouvoir réaliser des mesures EFM (voir partie 1.4.8). Dans la pratique l'instrument nécessite de nombreux systèmes auxiliaires qui permettent de rendre cette mesure possible.

3.1.1 Isolation

Notre mesure doit avoir une précision nanométrique. La résolution d'un appareil AFM est souvent limitée par le niveau de bruit ambiant. Il faut donc que le montage soit entouré par des systèmes d'isolation qui empêcheront la mesure d'être affectée par les vibrations mécaniques ambiante, la pollution sonore ainsi que les perturbations électromagnétiques.

Les systèmes utilisés pour l'isolation de notre mesure sont décrits dans la partie 3.4.

3.1.2 Stabilité de la chimie de surface

L'absorption d'eau ou le dépôt de pollution diverse peuvent impacter la chimie de surface des composés que l'on souhaite caractériser. De plus, la proximité de la pointe avec l'échantillon peut causer des phénomènes de condensation si on a une présence d'eau dans l'atmosphère environnante. Pour particulier que soit un tel événement, ses conséquences lors d'une mesure diélectrique, où un potentiel élevé est appliqué entre la pointe et le substrat conducteur, pourraient être dramatique pour le levier.

La méthode la plus sûre pour s'affranchir de toutes ces difficultés est de se placer sous vide.

Pour déterminer le niveau de vide nécessaire on peut calculer à titre indicatif la pression de vapeur saturante de l'eau à une température T en utilisant la formule de Clausius-Clapeyron :

$$P_{sat}(T) = P_0 \times \exp \left[\frac{\Delta_{vap}H \times M_{H_2O}}{R} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right]$$

avec P_0 et T_0 les pression et température d'un point d'ébullition connu (on prend ici 100°C à pression atmosphérique), $\Delta_{vap}H$ l'enthalpie de vaporisation, R la constante des gaz parfaits et M_{H_2O} la masse molaire de l'eau.

On a les valeurs suivantes :

$$P_0 = 1,013 \text{ bar}$$

$$T_0 = 373,15 \text{ K}$$

$$\Delta_{vap}H = 2,365.10^6 \text{ J.kg}^{-1}$$

$$R = 8,314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

$$M_{\text{H}_2\text{O}} = 18,01.10^{-3} \text{ kg.mol}^{-1}$$

Pour une température T de 25°C, on a alors :

$$P_{sat} \approx 32,20 \text{ mbar}$$

ce qui nous donne une indication de la valeur de pression en dessous de laquelle on veut se placer.

Les systèmes permettant d'atteindre et de maintenir un niveau de vide suffisant sont détaillés dans la partie [3.5](#).

3.1.3 Positionnement

Tout montage AFM doit incorporer des systèmes permettant de régler la position relative du levier et de l'échantillon. Celui-ci doit être capable de déplacements suffisamment importants pour parcourir les échantillons mais suffisamment précis pour nous permettre de réaliser des cartographies de résolution nanométrique.

Les systèmes utilisés pour contrôler la position de la pointe par rapport à l'échantillon sont détaillés dans la partie [3.6.1.1](#).

3.1.4 Connectivité électrique

Comme expliqué en partie [1.4.8](#), on a besoin d'établir une différence de potentiel entre le substrat et la pointe. Ceci nécessite donc d'établir des contacts électriques avec le levier et avec le substrat intégrés à leurs supports respectifs. Ces deux contacts sont abordés en partie [3.6.5](#) pour le levier et en partie [3.6.2](#) pour le substrat de l'échantillon.

3.1.5 Suivi de la déflexion

La déflexion d du levier que l'on a introduite dans la partie [1.4.2](#) est au cœur du principe de l'AFM et sa mesure doit être d'une précision optimale.

De par le fonctionnement de la mesure EFM détaillé dans la partie [1.4.8](#) on a besoin de suivre des oscillations du levier suffisamment faibles pour rester linéaires et dans des fréquences de l'ordre de la fréquence de résonance mécanique.

Le système de suivi de la déflexion est détaillé dans la partie [3.7](#).

3.2 Généralités

Comme pour tous les systèmes de Microscopie à Force Atomique, le dispositif est construit autour d'un microlevier et d'un support d'échantillon. Ces deux éléments sont placés dans une enceinte sous vide afin de protéger l'échantillon des pollutions, notamment aqueuses. Cette enceinte est elle-même protégée du monde extérieur par une succession de dispositifs d'isolation mécanique et électrique. On peut voir une illustration des principales composantes du montage sur la Figure [3.1](#). Un système de suivi de la déflexion du levier est évidemment obligatoire pour réaliser la mesure

Le fonctionnement de ces différents éléments ainsi que leurs caractéristiques sont détaillés dans les différentes parties de ce chapitre.

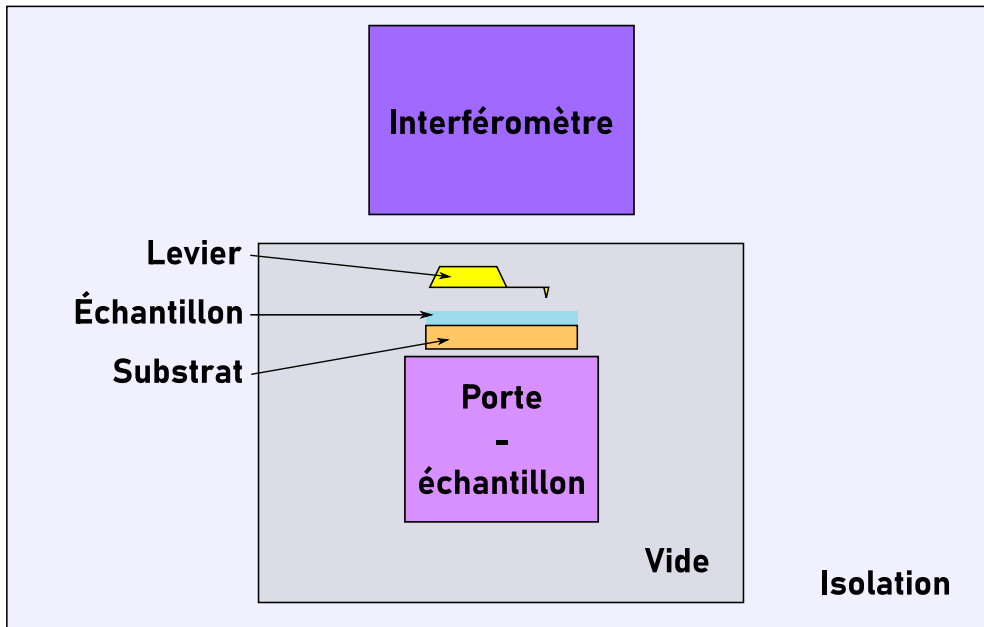


FIGURE 3.1 : Représentation des différents blocs fonctionnels du montage. On peut voir au coeur du dispositif le levier surplombant le substrat conducteur sur lequel est déposé l'échantillon. Le substrat est déposé sur une plateforme porte-échantillon incorporant des fonctions motrices permettant de régler la position de l'échantillon. Le suivi de la déflexion du levier est assuré par un système interférométrique.

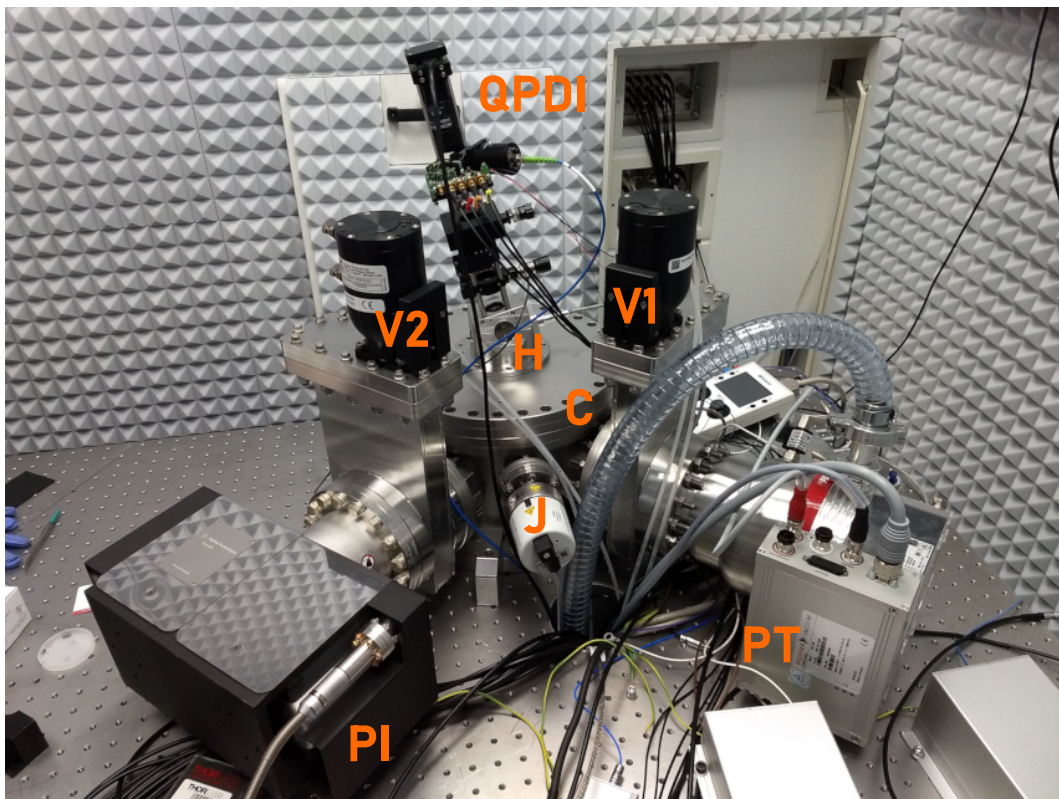


FIGURE 3.2 : Vue des principaux composants du montage. Le levier et l'échantillon se trouvent dans la chambre centrale, au niveau du hublot noté H situé au sommet de la chambre principale C, cylindrique et en acier. On voit également sur l'image l'interféromètre QPDI, la pompe turbo PT et la pompe ionique PI séparée de la chambre C par les vannes V1 et V2, que l'on retrouve sur la Figure 3.3. On distingue également la jauge de pression J qui est connectée à la chambre C. On peut voir dans le fond le revêtement anéchoïque qui tapisse la pièce.

3.3 Contrôle de la tension

Étant donné que l'on cherche à réaliser des mesures EFM on a besoin de contrôler la tension appliquée entre le levier et le substrat de l'échantillon.

3.3.1 Générateur de fonction

Pour appliquer la tension voulue entre la pointe et le substrat on utilise un générateur de fonction Waveform Generator 33500B de Keysight Technologies®. Il possède deux sorties indépendantes capable de délivrer un signal d'amplitude de 2 mV à 20V pic à pic. On a également une sortie SYNC qui peut fournir un signal de synchronisation TTL aligné sur la fréquence de l'une des deux sorties.

3.3.2 Mise à la masse

Par défaut la table optique sur laquelle repose l'appareil ainsi que le métal de la chambre à vide sont mis à la masse afin de ne pas perturber le champ électrique entre la pointe et le substrat.

3.4 Systèmes d'isolation

La précision d'un montage AFM dépend beaucoup du bruit auquel est soumis le levier durant les mesures, ce qui nécessite de bien penser son isolation mécanique puisque les vibrations du sol ou les sons environnants suffisent à le perturber. On se prémunit des premiers en plaçant le dispositif sur une table à suspensions pneumatiques et des seconds par le fait que le dispositif est placé dans une pièce spécifique isolée de l'extérieur par un revêtement semi-anéchoïque.

Le but de notre montage est de réaliser des cartographies diélectriques. Les parties 1.4 et 2.1 mentionnent que la mesure de la permittivité locale dépendait de la création d'un champ électrique entre la pointe et le substrat. Il faut donc également s'affranchir de la pollution des ondes électromagnétiques qui dans notre monde moderne sont assez présentes, particulièrement au sein d'un laboratoire de physique au cœur d'une grande ville. Ces dernières risquent d'introduire des pics parasites dans le spectre du champ. Au vu de l'importance d'une caractérisation fréquentielle de la permittivité mentionnée en partie 2.1.7 on ne peut se permettre de voir notre mesure affectée par des signaux d'ondes extérieures.

Pour protéger le dispositif, la pièce mentionnée précédemment a été construite comme une cage de Faraday. Elle constitue ici une pièce de 3 m 60 par 3 m pour une surface intérieure de 3 m 10 par 2 m 50 au centre de laquelle se trouve la table optique sur laquelle est placé le dispositif.

3.5 Système de vide

Afin de se prémunir de toute pollution de la surface, en particulier de celles dues à l'humidité, on place le levier et le substrat dans une chambre hermétiquement fermée et placée sous vide.

À température ambiante la pression de vapeur saturante de l'eau se situe autour de 30 mbar. Il faudra donc se placer en à une pression inférieure à celle-ci, de préférence avec une marge de sécurité.

3.5.1 Principe

Si la pression nécessaire pour prévenir la condensation n'a pas besoin d'être très basse (voir partie 3.1.2) il faut toutefois également veiller à ne pas perturber la mesure AFM. Ceci interdit de maintenir la pression en fonctionnement par le biais de pompes mécaniques puisque les vibrations générées viendraient perturber la dynamique du microlevier.

On utilise donc une pompe ionique pour maintenir la pression dans la chambre principale. Cette pompe ionise les molécules de gaz qui y entrent et les précipite sur ses électrodes sous haute tension. Ces électrodes s'endommagent à l'usage en fonction du nombre de particules piégées, il est donc nécessaire d'assurer un certain niveau de vide avant de la mettre en marche.

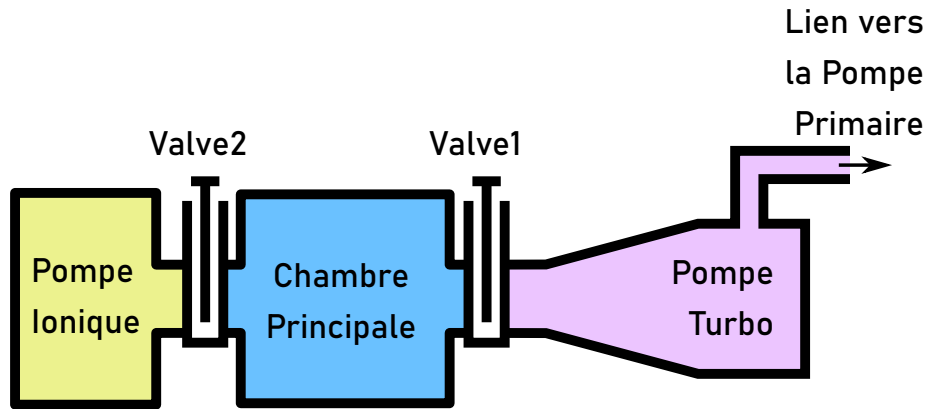


FIGURE 3.3 : Représentation schématique du système de vide que l'on peut voir en photo sur la Figure 3.2

Pour atteindre ce premier niveau de vide on adjoint à la chambre principale un système de pompes mécaniques. Cet ensemble comprend une pompe dite primaire située dans une pièce annexe et connectée au système par un tuyau, elle est utilisée pour réduire la pression du système jusqu'à une valeur de moins de 1mbar. À cette pression la seconde pompe mécanique, une pompe turbo moléculaire, peut fonctionner afin d'amener le vide à un niveau acceptable pour la pompe ionique, autour de 10^{-6} mbar.

Une fois un tel vide atteint on connecte la pompe ionique au circuit (par l'ouverture de la valve 2 sur la Figure 3.3). Ensuite, on isole (fermeture de la valve 1) et éteint les pompes mécaniques. À partir de là, la pompe ionique assure seule le maintien du vide. L'étanchéité de l'enceinte sous vide est assurée par des joints cuivres à la jonction entre la plupart de ses éléments constitutifs.

3.5.2 Isolation des jonctions

Comme on peut le voir sur la Figure 3.4, l'isolation de la chambre est assurée par des joints cuivres au niveau de son couvercle et de son fond. En revanche la jonction entre le hublot et la chambre ainsi que celle entre le support du levier et le hublot sont, elles, rendues hermétiques par des joints de caoutchouc (joints toriques en Viton[®]). Si ces derniers fournissent une moins bonne isolation par rapport à l'extérieur que les joints cuivres, ils présentent sur les premiers l'avantage d'être réutilisables.

En effet l'isolation des joints en caoutchouc se fait par la compression du matériau tandis que le joint cuivre est "mordu" par des aspérités tranchantes taillées dans la masse des éléments, ce qui empêche son réemploi après ouverture.

On réserve par conséquent l'utilisation du joint cuivre aux jonctions censées demeurer jointes sauf dysfonctionnements importants. Ce qui n'est pas le cas pour les deux jonctions présentant des joints caoutchouc sur la Figure 3.4. La jonction entre le support du levier et le hublot sera ouverte pour extraire le support du levier, notamment pour pouvoir changer de levier si les caractéristiques de celui présent ne correspondent plus aux expérimentations que l'on souhaite réaliser ou qu'il a subi des dommages. La jonction entre le hublot et le couvercle de la chambre quant à elle, doit être ouverte à chaque fois que l'on veut changer d'échantillon. Du fait de la fonction de ces deux jonction on a préféré l'utilisation moins coûteuse de joints caoutchoucs.

Le hublot H présente des ouvertures sur toutes ses faces. Si l'une est occupée par le support du levier, les autres sont toutes occupées par des lentilles focalisées sur la pointe du levier. Ces lentilles sont bordées de joint caoutchouc afin d'assurer l'isolation au niveau de leur jonction avec le hublot. La lentille de la face supérieure sert dans le cadre de l'interféromètre à quadrature de phase comme on peut le voir sur la Figure 3.13 où elle est mentionné sous l'appellation L_{levier} puisque c'est elle qui focalise les rayons lasers sur le levier.

3.5.3 Performances

L'isolation de l'enceinte nous permet de maintenir un vide d'environ 3.10^{-6} mbar dans la chambre à l'aide de la seule pompe ionique, ce qui est très largement suffisant pour la protection de la chimie de surface de nos échantillons.

3.6 Intérieur de la chambre

Le cœur de notre dispositif est la chambre principale au sein de laquelle s'effectue l'interaction pointe-échantillon. L'organisation de cette chambre est décrite sur la Figure 3.4.

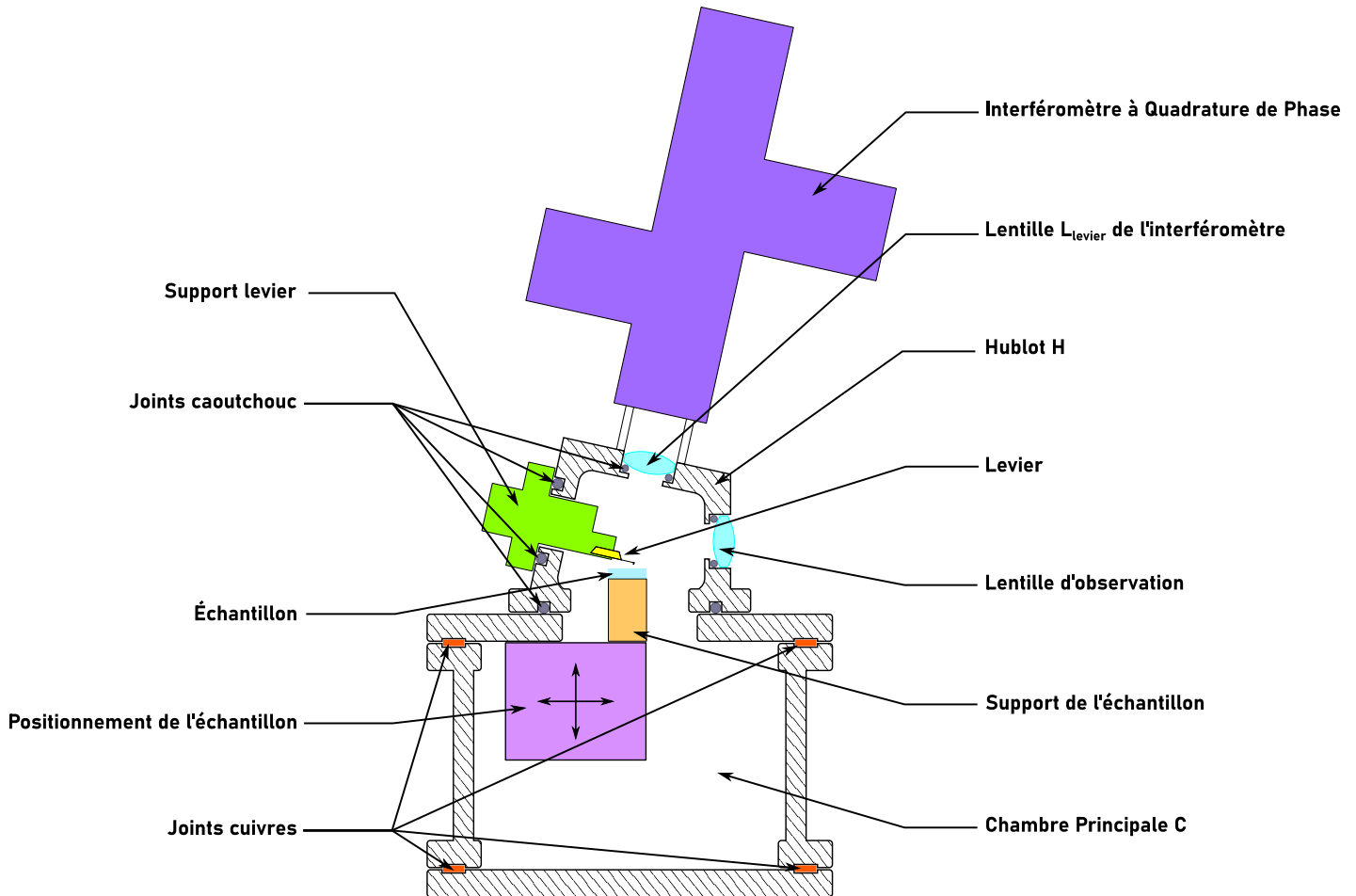


FIGURE 3.4 : Schéma de la chambre principale du montage. On y distingue les différentes composantes essentielles de l'instrument. Au centre on trouve bien sûr le levier (en jaune) au dessus de l'échantillon et situé au sein de l'élément d'acier que l'on appelle le hublot H. Le levier est intégré au sein d'un élément de support (en vert) intégrant un contact électrique avec celui-ci ainsi qu'un élément piézoélectrique permettant de piloter l'oscillation de la sonde. Sa déflexion est suivie par un interféromètre (en bleu) à quadrature de phase situé au-dessus du hublot et dont l'accès au levier se fait via la lentille L_{levier} située sur la face supérieure du hublot H. L'échantillon est posé sur un support (en orange) qui assure le contact électrique avec l'extérieur et incorpore des systèmes permettant de modifier et de mesurer la température. Ce support est lui même posé sur un ensemble de positionneurs (en violet) qui assurent le contrôle de la position relative de la pointe, ici statique, par le déplacement de l'échantillon.

Ici le micro-levier est fixé à la paroi d'un hublot d'acier. Ce hublot comporte plusieurs ouvertures équipées de lentilles focalisées sur l'extrémité du levier, ce qui permet un contrôle visuel l'état du levier. Ce hublot ferme l'ouverture supérieure du couvercle de la chambre principale C. La déflexion du levier est mesurée en temps réel par un interféromètre à quadrature de phase connecté à une carte FPGA. L'interféromètre est situé sur la surface supérieure du hublot. La géométrie du hublot induit une inclinaison du levier par rapport à la surface de l'échantillon, nécessaire pour empêcher le support du levier (en vert sur Figure 3.4) de heurter l'échantillon

ou son support lorsque l'on explore la surface^[19].

Le support de l'échantillon est fixé sur la face inférieure du couvercle de la chambre C. Sa géométrie amène l'échantillon au niveau du levier sous le hublot. Il incorpore une série de moteurs et d'actionneurs piézoélectriques qui permettent un réglage respectivement grossier et fin de la position. L'échantillon est en effet la seule partie mobile tandis que le levier est fixe. On a donc besoin d'un contrôle précis de sa position pour l'acquisition d'images.

La chambre principale est connectée à une série de pompes pour faire le vide en son sein. La pression est contrôlée par une jauge couvrant la gamme 10^{-8} à 10^3 mbar.

3.6.1 Support de l'échantillon

Par commodité, les échantillons étudiés sont montés sur un support d'échantillon en aluminium pour Microscope Électronique à Balayage (MEB) que l'on appelle de son nom anglais "stub" par la suite.

Le support de l'échantillon est conçu pour intégrer des fonctions variées : on a vu en partie 3.1.3 qu'il est nécessaire d'y incorporer des dispositifs de positionnement afin de pouvoir modifier la position relative du levier par rapport à la surface de l'échantillon tant au niveau de la distance pointe-échantillon, afin de pouvoir changer l'un ou l'autre en toute sécurité et réaliser des courbes d'approches, qu'au niveau de la position du levier au-dessus de la surface sondée, afin de pouvoir sonder différentes zones d'intérêt et réaliser des cartographies. On a également besoin ici d'assurer un contact électrique avec le substrat de l'échantillon.

Même si cela ne figure pas à proprement parler dans le travail présenté ici, nous avons aussi voulu prévoir des études sur l'influence de la température, paramètre important pour l'étude des polymères (voir à ce sujet la partie 1.1.1), nous avons donc incorporé au système un moyen de régler et contrôler la température de l'échantillon.

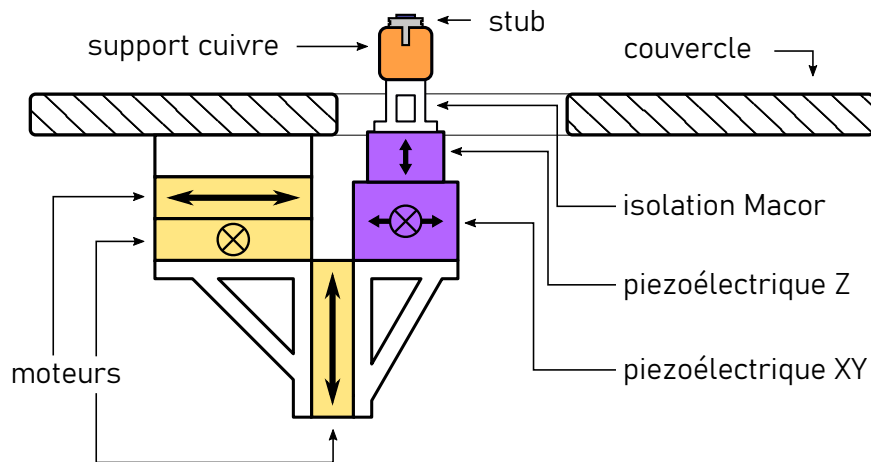


FIGURE 3.5 : Vue schématique du support motorisé. On peut voir les positions des différents systèmes et la manière dont ils sont fixés au couvercle de la chambre principale.

3.6.1.1 Contrôle de position

Dans notre montage, la pointe est fixe et les systèmes de positionnements règlent la position de l'échantillon par rapport à cette dernière (voir Figure 3.4).

Pour protéger la pointe, celle-ci est en général laissée au-dessus de l'échantillon et on démarre la mesure par une phase d'approche qui consiste à remonter l'échantillon jusqu'à trouver le contact. Ceci implique un système de positionnement vertical assez fin, stable au moins au micromètre près afin de ne pas endommager le levier (ce dernier fait en général entre quelques dizaines et quelques centaines de microns). À l'inverse, ce même système de positionnement doit permettre d'éloigner suffisamment la pointe de l'échantillon lorsque l'un de ces deux éléments doit être changé, ce qui s'effectuera à la main en retirant le support du levier ou le hublot. Le positionneur vertical doit donc pouvoir nous permettre d'atteindre des distances pointe-échantillon de l'ordre du centimètre avec une précision micrométrique.

De plus, on cherche ici à effectuer des cartographies d'échantillons hétérogène présentant des éléments de l'échelle de la dizaine de nanomètres. Pour pouvoir imager ces éléments on a besoin d'une résolution nanométrique

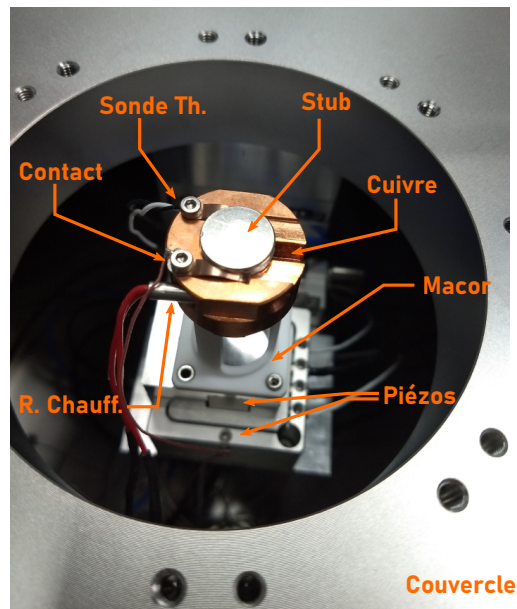


FIGURE 3.6 : Vue des systèmes incorporé sur le support de l'échantillon. On voit en partant du bas les deux positionneurs piézoélectriques ("Piézos") ainsi que la pièce d'isolation Macor[®] ("Macor"). Sur la pièce d'isolation est vissé une pièce de cuivre ("Cuivre") sur laquelle on peut attacher le type de support ("Stub") que l'on utilise pour les échantillons. Cette pièce de cuivre dispose également de cavités qui permettent d'y attacher une résistance chauffante ("R. Chauff.") ainsi qu'une sonde thermique ("Sonde Th."). Le contact électrique se fait par une rondelle ("Contact") touchant l'une des lames de maintien du stub. À titre d'indication la surface supérieure du stub fait 12,5 mm de diamètre.

du parcours relatif de la pointe dans les trois dimensions.

Enfin, nos échantillons sont préparés en laboratoire et présentent des surfaces de dimensions millimétriques qu'il sera intéressant d'explorer sans briser les différents niveaux d'isolation pour effectuer un déplacement manuel. On a donc également besoin d'un système de positionnement latéral capable de déplacements millimétriques.

Ceci nous conduit donc à envisager deux systèmes de positionnement, l'un dédié aux réglages macroscopiques (1 μm à 10 mm) utilisé pour amener l'échantillon à proximité tandis que le second assure les réglages microscopiques (100 pm à 10 μm). On peut voir la manière dont ces systèmes sont agencés sur la Figure 3.5.

Le réglage macroscopique est assuré par trois moteurs mécaniques Smaract : deux positionneurs SLS-5252-S-HV[®] qui assurent les déplacements selon les axes X et Y et un positionneur SLS-5252-D-S-HV[®] qui présente une meilleure tenue mécanique nécessaire au maintien de la position sur l'axe Z malgré le poids du montage. Ces trois moteurs peuvent se déplacer sur 30 mm, ce qui est largement suffisant pour notre système, avec une précision théorique autour du nanomètre.

Les trois moteurs sont contrôlé par un système MCS2[®]. Ce système permet de suivre la position des moteurs avec une fréquence d'acquisition de 8 kHz et peut être branché à un contrôleur manuel ou bien être connecté à un ordinateur et fonctionner via des blocs logiques sur LabVIEW[®].

Du fait du risque de vibration, on préfère couper les moteurs mécaniques lors des mesures. On a donc également installé une série de positionneurs piézoélectriques pour effectuer des déplacements fins sans risque de polluer la mesure avec le bruit mécanique des moteurs.

Pour cela on utilise des positionneurs de Piezosystem Jena, à savoir un PXY38SGV et un PZ38CAP-V respectivement contrôlés par deux 12V40SG et un 30V300nanoX CL. Ces actionneurs piézoélectriques sont utilisés en boucle fermée : chaque axe possède un capteur de déplacement, et la tension d'alimentation des actionneurs est ajustée pour atteindre une consigne. Cette dernière est fixée par une tension analogique entre 0 et 10 V qui permet de parcourir la plage de déplacement de l'élément piézoélectrique. Le constructeur nous fournit les caractéristiques suivantes :

PXY38SGV	Axe X	Gamme de déplacement	32 μm
		Précision	3 nm
	Axe Y	Gamme de déplacement	32 μm

Précision	4 nm
PZ38CAP- V Axe Z Gamme de déplacement	32 μm
Précision	1,4 nm

Dans la pratique on ajuste le ratio voltage-distance sur les positionneurs des axes X et Y à l'aide d'une imagerie en tapping (voir partie 1.4.5) d'une surface calibrée HS-20MG de Budget Sensors. Cette surface présente des motifs de dimensions connues que l'on utilise comme référence pour paramétrer les coefficients de conversion de l'outil de balayage qui nous permet de réaliser des cartographies.

Pour l'axe Z on utilise tout simplement le contact avec la surface et la mesure calibrée de la déflexion.

3.6.2 Contact électrique

Au vu du type de mesures que l'on souhaite réaliser il est nécessaire d'assurer un contact électrique avec l'échantillon. Le stub sur lequel est monté l'échantillon peut venir s'encaster dans une pièce de cuivre spécialement conçue comme on peut le voir sur la Figure 3.6. Une rondelle métallique est vissée sur l'une des lamelles de maintien du stub. Le fil qui part de cette rondelle rejoint le passage de paroi de la chambre principale et nous permet de mettre l'ensemble métallique au potentiel souhaité.

3.6.3 Contrôle de la température

Étant donné que l'on travaille avec des polymères, il peut s'avérer important de pouvoir réaliser des explorations de des propriétés de l'échantillon selon la température.

La pièce de cuivre qui porte le stub présente des cavités dans lesquelles on peut insérer une résistance chauffante HT15W - 15W Miniature Cartridge Heating Element ainsi qu'une sonde thermique HEL-700 Series de Honeywell. Ceci nous permet d'explorer différentes températures pour le polymère.

3.6.3.1 Résistance chauffante

La résistance chauffante est une HT15W fournie par ThorlabsTM[27]. Dans des conditions optimales, c'est à dire installée dans une ouverture métallique ajustée comme cela est fait sur le montage, elle permet d'atteindre une température de 315 °C. Son pouvoir chauffant dépend de la tension appliquée : il est de 0.9W pour une tension de 6V, 3.8W pour 12V et 15W pour 24V. D'après le constructeur, la résistance ohmique du composé est de 38.4 Ω .

3.6.3.2 Sonde thermique

La sonde thermique est une sonde platine HEL-705 Series Platinums RTD (Resistance Temperature Detectors). Cette sonde est capable de mesurer les températures entre -70°C et 260°C avec un temps de réponse de 0,15 secondes[28].

Cette sonde possède deux câbles de sorties au bout desquels on connecte deux câbles afin de réaliser une mesure de résistance à 4 fils dont le principe est détaillé sur la Figure 3.7. Ce montage est nécessaire dans notre cas puisqu'il permet de s'affranchir de la résistance des fils, qui sont très long ici puisqu'ils traversent la cage de Faraday.

3.6.4 Isolation thermique

Le fait de vouloir explorer ces températures pose toutefois un défi. Comme on peut le voir sur les Figures 3.5 et 3.6, le support en cuivre, que l'on veut pouvoir chauffer sur une large plage de température, est proche d'éléments piézoélectriques qui risquent l'endommagement à haute température.

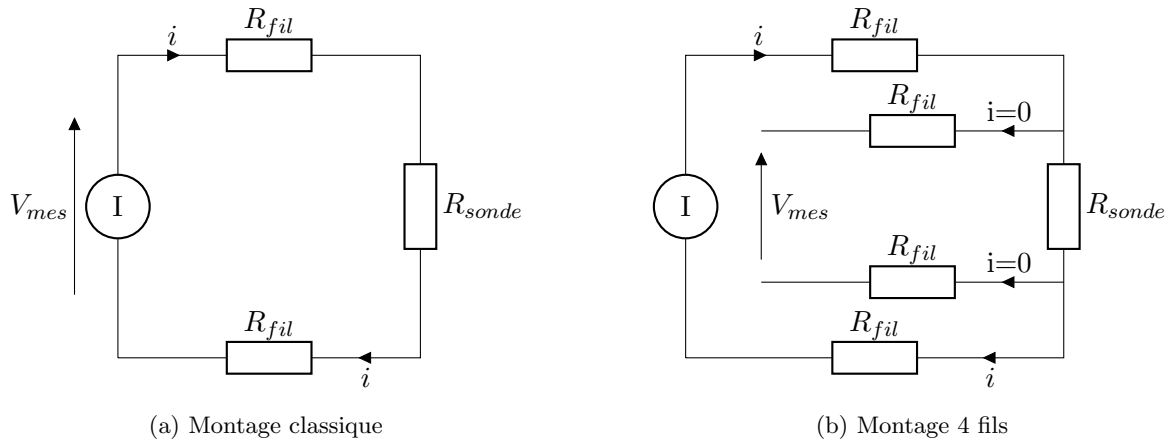


FIGURE 3.7 : Représentation d'un montage de mesure de résistance classique et d'un montage de mesure à 4 fils. Un générateur de courant I délivre un courant i qui parcourt la résistance R_{sonde} . On mesure la tension V_{mes} à ses bornes. La mesure de la température est proportionnelle à la résistance mesurée $R_{mes} = \frac{V_{mes}}{i}$. Or seule la résistance R_{sonde} est proportionnelle à la température. On voit que dans le cas du montage classique on a $R_{mes} = R_{sonde} + 2R_{fil}$. Si les fils sont particulièrement longs, comme dans le cas de notre montage, on a une mesure de la température très décorrélée de la température réelle au niveau de R_{sonde} . À l'inverse sur le montage 4 fils on a $R_{mes} = \frac{V_{mes}}{i} = \frac{V_{R_{fil}} + V_{R_{sonde}} + V_{R_{fil}}}{i} = \frac{R_{fil} \times 0 + R_{sonde} \times i + R_{fil} \times 0}{i} = R_{sonde}$.

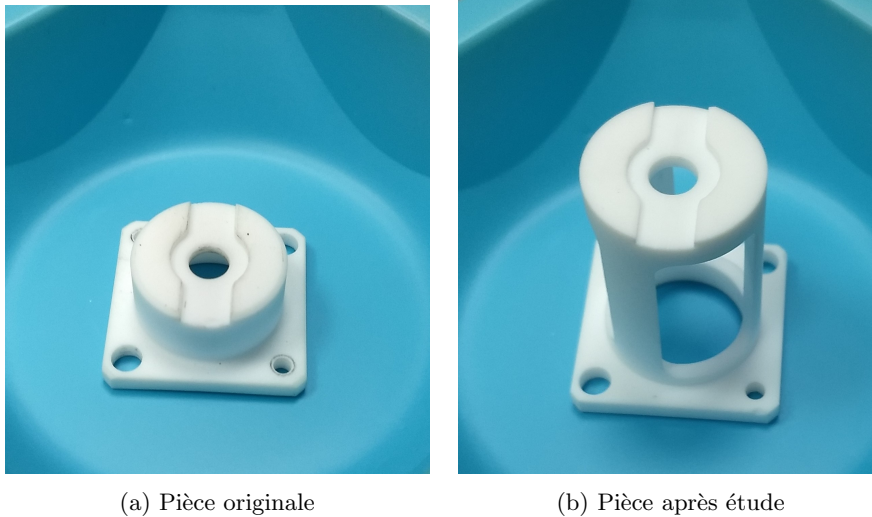


FIGURE 3.8 : Photographie des pièces d'isolation Macor. Les deux pièces ont une base carrée de $26 \text{ mm} \times 26 \text{ mm}$ conçue pour pouvoir se visser au sommet de l'empilement de composants piézoélectriques. La pièce originale est posséder une structure cylindrique évidée. Sa hauteur totale est de 13 mm . La structure de la pièce après étude repose est similaire mais sa hauteur totale a été portée à 32 mm et les paroi du tube on été réduites à trois sections de tubes afin de réduire la surface d'échange thermiques. On peut voir sur les deux photographies les effets de ces changements dus à la réévaluation des flux thermiques.

3.6.4.1 Risques liés à la température

Les éléments piézoélectriques que nous utilisons ne sont pas fait pour opérer à haute température. D'après la notice d'utilisation, à partir d'une température d'environ 150°C il existe un risque de désolidarisation entre la céramique piézoélectrique et les éléments structurels l'encadrant^[29]. On doit donc isoler les éléments piézoélectriques du support cuivre que l'on veut chauffer. C'est la raison pour laquelle on a intégré une pièce d'isolation en céramique Macor[®] que l'on peut voir sur les Figures 3.5 et 3.6.

Initialement la pièce d'isolation en Macor[®] était beaucoup plus courte et épaisse, comme on peut le voir sur la Figure 3.8a. C'est avec cette pièce d'isolation qu'on a réalisé une série de mesures destinées à estimer la façon dont elle protégeait les piézoélectriques. Pour cela on a placé une deuxième sonde thermique au contact d'une des vis métalliques qui fixent la pièce de Macor[®] au positionneur piézoélectrique le plus haut placé. Les

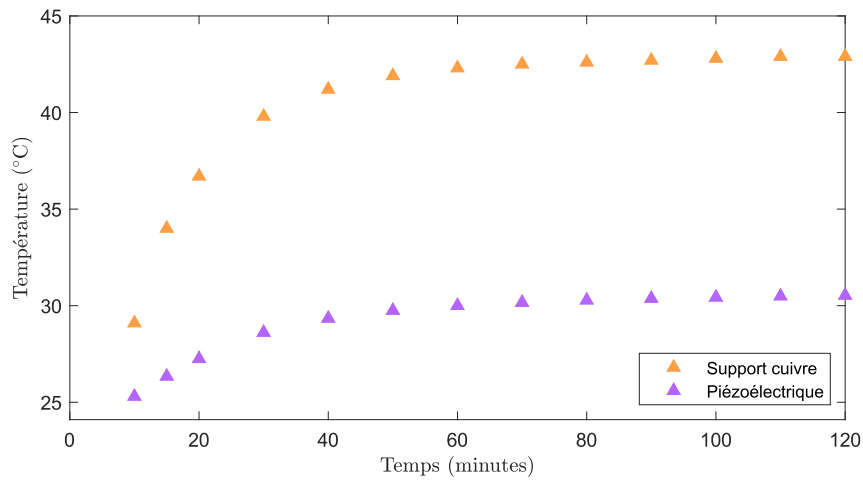


FIGURE 3.9 : Résultats des mesures de température effectuées à puissance de chauffage constante pour la pièce d'isolation initiale (celle de la photographie 3.8a). On voit en orange la température du support de cuivre, en contact avec la résistance chauffante et en violet celle du piézoélectrique, de l'autre côté de la pièce d'isolation. La température initiale des deux éléments était de 24.1°C.

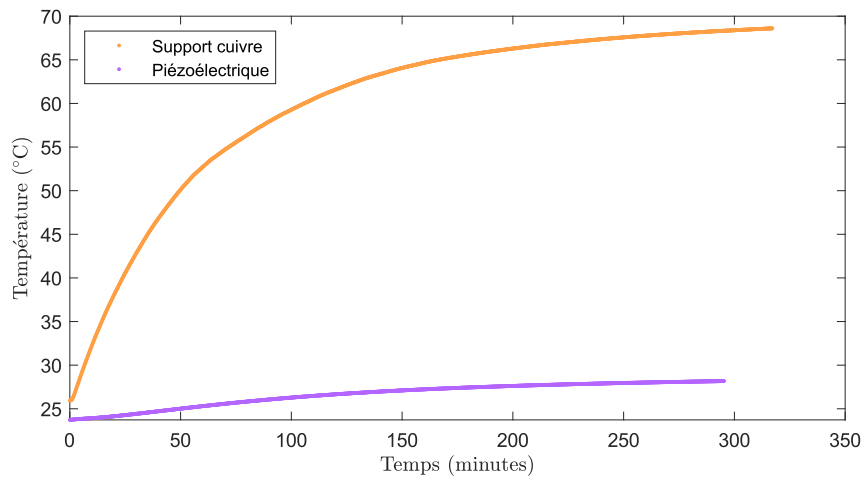


FIGURE 3.10 : Résultats des mesures de température effectuées pour la pièce d'isolation améliorée (celle de la photographie 3.8b). On voit en orange la température du support de cuivre, en contact avec la résistance chauffante et en violet celle du piézoélectrique, de l'autre côté de la pièce d'isolation. La puissance de chauffage était ici de 0,4 W.

résultats de cette série de mesures se trouvent sur la Figure 3.9.

Lorsque le système a atteint l'équilibre on voit que pour une augmentation de 18,8°C par rapport à la température initiale au niveau du support en cuivre on a une augmentation de 6,43°C au niveau de l'élément piézoélectrique ce qui représente 34.2% du gain du support. On prend ici comme température limite 80°C, ce qui nous donne une bonne marge de sécurité par rapport à la température de 150°C autour de laquelle l'endommagement commence^[29]. Une telle marge de sécurité est notamment nécessaire du fait qu'en fonctionnement on peut également avoir un réchauffement de la céramique piézoélectrique du fait de son fonctionnement périodique. Étant donné que l'on veut pouvoir explorer des température jusqu'à 250°C l'isolant initial ne peut être conservé. Avec l'atelier du laboratoire nous avons donc réalisé une nouvelle pièce d'isolation en Macor[®] que l'on peut voir sur la Figure 3.8b. Nous avons également ajouté des tresses métalliques reliant la face supérieure de l'actionneur piézoélectrique à l'enceinte pour évacuer plus efficacement la chaleur.

Ces modifications permettent une meilleure protection des éléments piézoélectriques, comme on peut le voir sur la Figure 3.10. En effet, à la fin de la mesure, l'augmentation de température du piézoélectrique atteint 13% de l'augmentation de température du support.

Si on reprend la valeur limite de 80°C pour les éléments piézoélectriques, pour une température ambiante de

25°C cela signifie qu'avec la seconde pièce l'échantillon peut être potentiellement chauffé jusqu'à 450°C, contre 185°C pour l'ancienne pièce. On voit donc que cette nouvelle pièce étend grandement la plage de température pouvant être exploré en sécurité. La limitation actuelle est de 260°C, la température maximale supportée par la sonde de température.

3.6.5 Support du levier

Les leviers que nous utilisons sont fixés à un élément de dimensions millimétrique qui permet leur manipulation. Par la suite on fera référence à cet élément par le terme "chip" (voir la Figure 5.1 pour plus de détail).

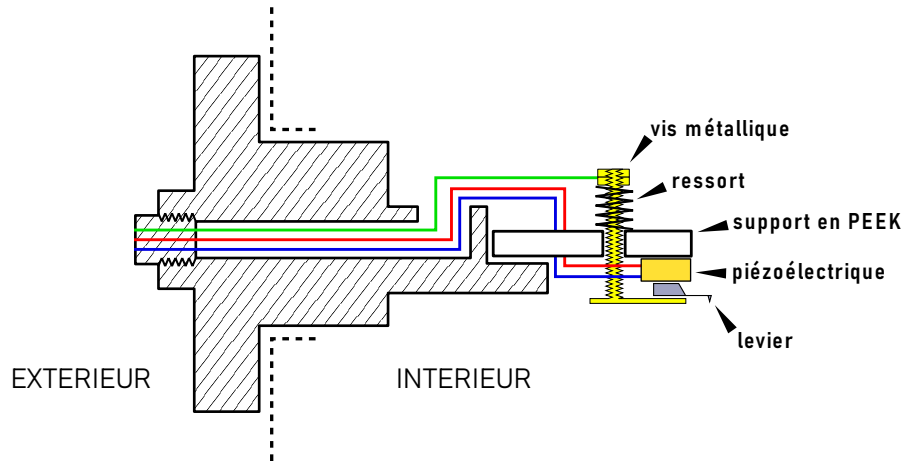


FIGURE 3.11 : Vue schématique du support du levier. On peut voir la position de l'élément piézoélectrique ainsi que la vis métallique fixée à une lame et maintenue par un ressort. Le levier est ainsi maintenu en force entre la lame et le piézoélectrique grâce au ressort. Les trois lignes de couleur représentent le câblage électrique. Le câble vert est celui qui permet de contrôler le potentiel électrique du levier. Les câbles bleu et rouge permettent de contrôler la tension aux bords du piézoélectrique et donc de contrôler son mouvement. Si le corps de la pièce est en acier inoxydable, sa partie finale est en PEEK, un polymère haute performance thermiques et mécaniques, assurant l'isolation électrique

Le levier est monté sur un support d'acier conçu pour venir fermer l'une des fenêtres du hublot comme on peut le voir sur la Figure 3.4. Au vu de nos besoins, ce support de levier doit incorporer un élément piézoélectrique au contact du levier pour pouvoir le faire osciller à une fréquence contrôlée. Un ressort et une vis métallique fixée à une lame assurent quant à eux la tenue mécanique du levier ainsi que le contact électrique. En effet l'action du ressort pousse la lame à écraser le chip contre le piézoélectrique, ce qui met également cette dite lame métallique en contact avec le levier conducteur. On coince ensuite un fil électrique entre deux écrous au sommet de la vis et on connecte ce fil ainsi que les deux fils contrôlant la tension aux bornes du piézoélectrique à une prise DBE 102 A052-130[®] de Fischer Connectors.

On peut noter ici qu'un seul câble suffit pour le potentiel du levier car celui-ci est déterminé par rapport à la masse à laquelle se trouve les pièces métalliques constituant la chambre ainsi que le hublot.

3.7 L'interféromètre différentiel à quadrature de phase

On utilise en général des leviers d'une longueur d'environ une centaine de microns et présentant des fréquences de résonance de quelques centaines de kHz. Comme précisé dans la partie 2.1.6 la mesure du gradient de force implique que l'on ait une variation de la déflexion très faible devant la distance pointe-échantillon. Or, on a également vu dans cette même partie qu'une mesure pertinente nécessitait une grande proximité entre la pointe et la surface de l'échantillon. Ceci implique des amplitudes d'oscillations du levier très faibles lors des mesures diélectriques, inférieur à la dizaine de nanomètre à l'extrémité du levier.

Le système de suivi de la déflexion doit donc posséder une résolution spatiale bien inférieure au nanomètre et une résolution temporelle de l'ordre de la microseconde. Nous avons choisi d'utiliser un interféromètre différentiel à quadrature de phase, instrument maîtrisé au laboratoire depuis de nombreuses années^{[15],[30]}.

3.7.1 Principe

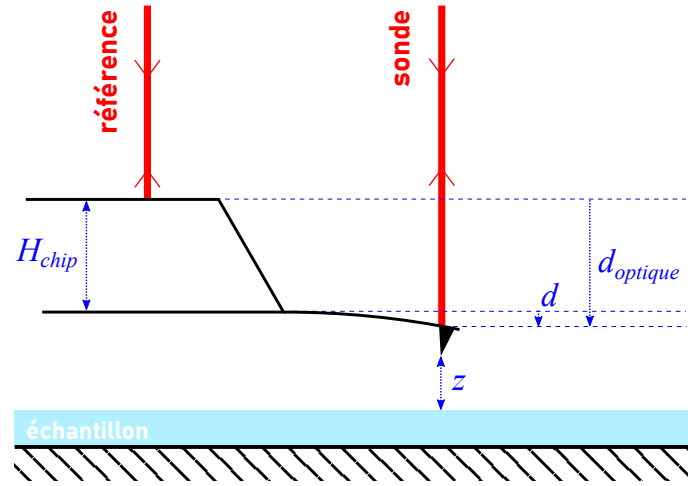


FIGURE 3.12 : Schéma explicatif de la réflexion des rayons lasers référence et sonde sur le chip et sur le levier respectivement. L'interférence de ces deux faisceaux permet de mesurer la distance $d_{optique}$. En notant H_{chip} l'épaisseur du chip, on peut simplement retrouver la déflexion avec $d_{optique} = d + H_{chip}$. On voit également que si le chip du levier est fixe par rapport à l'échantillon et dans l'approximation de petites déformations, les variations de la déflexion d sont égales aux variations de la distance pointe-échantillon z .

L'idée est ici de séparer un rayon laser en deux à l'aide d'un prisme biréfringent. Le faisceau de référence se réfléchit sur le chip (voir partie 5.1.1 pour une description des leviers utilisés) auquel est attaché le levier, il est considéré comme statique. Le faisceau sonde se réfléchit quant à lui à l'extrémité du levier dont la position varie selon les forces qu'il subit. Ceci est illustré sur la Figure 3.12. Ainsi la mesure n'est pas trop affectée par les vibrations de l'interféromètre puisque celles-ci affectent à l'identique les deux faisceaux^[31]. L'utilisation du phénomène d'interférence pour la mesure de la position permet une très grande précision, pouvant théoriquement aller jusqu'à 10^{-5} nm^[32].

Le décalage $d_{optique}$ entre la position de l'extrémité du levier et la surface supérieure du chip selon l'axe du laser (voir Figure 3.12) induit un déphasage φ entre les deux rayons après réflexion^[33] :

$$\varphi = 4\pi \frac{n d_{optique}}{\lambda} \quad (3.1)$$

avec n l'indice de réfraction du milieu environnant et λ la longueur d'onde du laser, ce qui donne lieu au phénomène d'interférence entre les faisceaux. Cette interférence est mesurée à l'aide des quatre photodiodes du montage optique complet présenté sur la Figure 3.13. Étant donné que l'on sera toujours dans un vide poussé ou dans l'air on pose ici $n = 1$ et on s'abstient de prendre en compte l'indice optique du milieu dans les calculs suivants.

La valeur d'intérêt est ici la déflexion d . D'après la formule (3.1) et ce qu'on voit sur la Figure 3.12 on a :

$$\varphi = 4\pi \frac{d + H_{chip}}{\lambda} = \frac{4\pi}{\lambda} d + \frac{4\pi}{\lambda} H_{chip} = \frac{4\pi}{\lambda} d + \varphi_0 \quad (3.2)$$

Le déphasage est donc proportionnel à la déflexion d à une constante près et avec un facteur connu. Une simple mesure de calibration du levier au repos pour mesurer φ_0 nous permettra de mesurer la déflexion d .

3.7.2 Détail du parcours

On détaille ici le parcours du faisceau laser représenté sur la Figure 3.13.

Étape ①

Le faisceau laser sort de la fibre optique qui l'a conduit au niveau du montage pour rencontrer une lame demi-onde (noté $\lambda/2$ sur le schéma). Celle-ci permet de régler l'orientation de polarisation du faisceau, chose qui aura son importance au niveau du prisme de Wollaston.

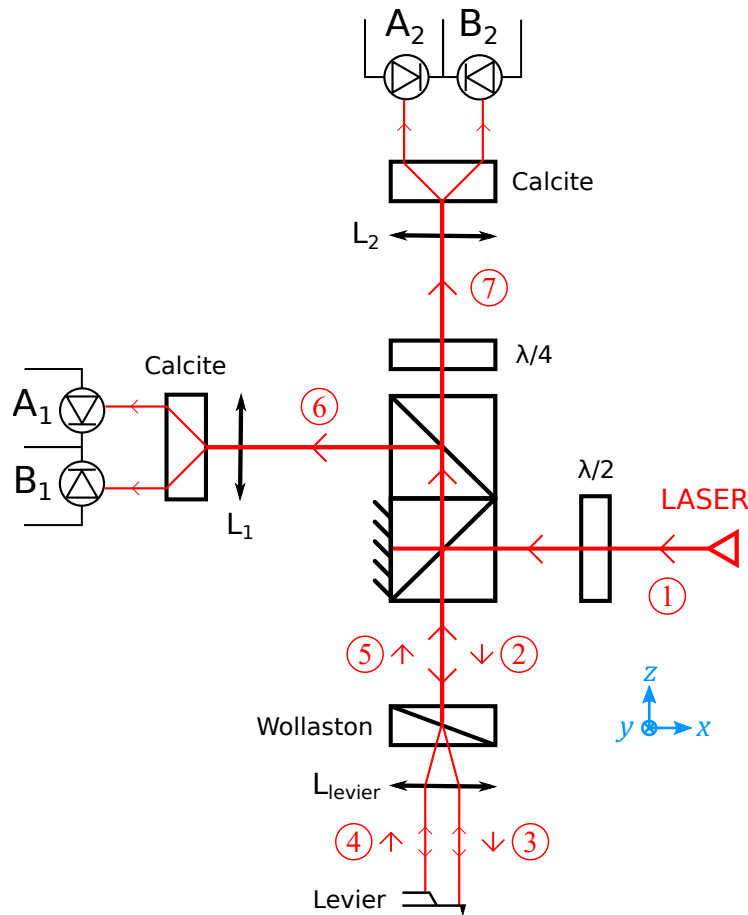


FIGURE 3.13 : Principe de l'interféromètre différentiel à quadrature de phase : Schéma du dispositif optique.

Étape ②

Le rayon est réfléchi sur l'un des cubes séparateurs.

Ces cubes séparateurs sont constitués de deux prismes à angle droit joints par la surface de l'hypothénuse. Au niveau de cette jonction se trouve un revêtement diélectrique qui réfléchit et transmet la lumière en égales proportions sans affecter la polarisation.

Ici le rayon transmis est bloqué par une paroi opaque tandis que le rayon réfléchi est envoyé sur le prisme de Wollaston.

Étape ③

Le rayon est séparé en deux par un prisme de Wollaston. Il s'agit des faisceaux sonde et référence dont l'interférence constitue le cœur de la mesure.

Un prisme de Wollaston est constitué de deux prismes triangulaires de calcite ou de quartz accolés dont les axes optiques sont orthogonaux entre eux. Lors du passage d'un rayon lumineux celui-ci est scindé en deux rayons de polarisations orthogonales et séparés par une divergence angulaire fixée par l'angle au sommet des deux prismes et la longueur d'onde du faisceau lumineux.

Les deux rayons passent ensuite par une lentille L_{levier} qui les réoriente sur le levier.

Si le prisme de Wollaston est positionné de façon à ce que le point d'intersection des deux rayons sortants soit situé au niveau du plan focal de la lentille L_{levier} ils arrivent parallèles sur le levier, sinon l'angle entre les rayons sonde et référence dépend de la position du prisme de Wollaston par rapport au plan focal comme on peut le voir sur la Figure 3.15.

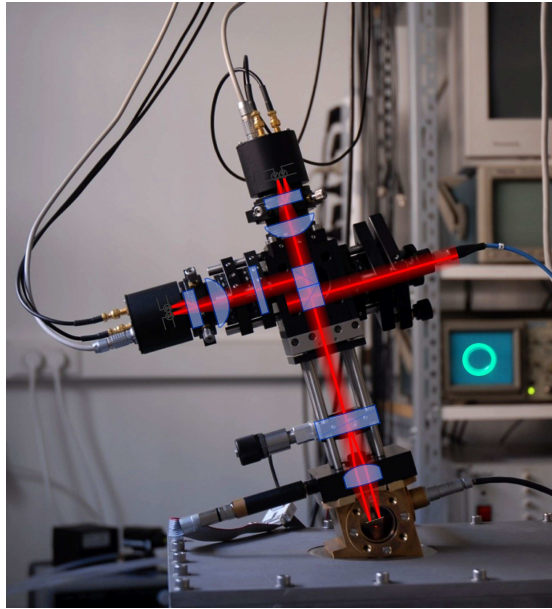


FIGURE 3.14 : Photographie d'un montage d'interféromètre différentiel à quadrature de phase^[31]. Son fonctionnement est explicité dans le schéma de la Figure 3.13.

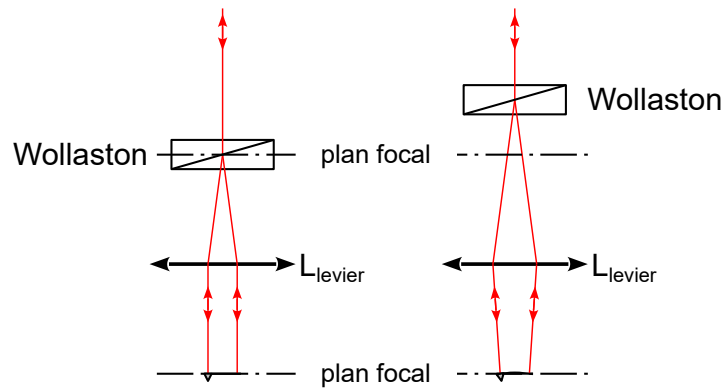


FIGURE 3.15 : Illustration de l'effet de la position du prisme de Wollaston sur l'orientation des faisceaux^[15]. Le déplacement du prisme permet notamment de s'adapter à la courbure du levier.

Étape ④

Lors de la réflexion des deux rayons sur le levier, une différence de chemin optique s'instaure entre les deux faisceaux qui jusque là étaient parfaitement en phase puisqu'issus d'un seul et même rayon. Cette étape est celle où les rayons lasers se font les vecteurs de l'information recherchée, à savoir la déflexion du levier d .

Étape ⑤

En repassant en sens inverse à travers la lentille et le prisme de Wollaston les deux faisceaux sont recombinaisonnés en un. Cependant du fait de l'action du prisme de Wollaston les faisceaux sonde et référence existent sur des polarisations orthogonales, leur recombinaison ne donne donc pas ici naissance à un phénomène d'interférence.

Étape ⑥

À la sortie des deux cubes séparateurs le rayon réfléchi sur le second cube a changé de direction et est dirigé sur un photodétecteur détaillé dans l'étape mesure ci-dessous.

Étape ⑦

Le rayon transmis par le second cube traverse lui une lame quart-d'onde. Celle-ci crée un retard d'un quart de longueur d'onde, c'est à dire un déphasage de $\frac{\pi}{2}$, de l'une des deux polarisations. Il est dirigé vers un photodétecteur jumeau de l'étape ⑥.

Mesure

L'élément de mesure du système est constitué d'une lentille, d'une lame de calcite et de deux photodiodes, dans l'ordre vu par le rayon laser incident.

La lentille permet de focaliser le rayon sur les photodétecteurs.

Le prisme de calcite est un matériau biréfringent qui sépare le rayon incident selon l'orientation de ses axes. Ici on positionne la lame de façon à ce que ses axes optiques forment un angle de 45° par rapport à ceux du prisme de Wollaston (modulo la réflexion de l'étape ⑥). En effet on a vu qu'après la recombinaison au niveau du prisme de Wollaston le rayon laser est en fait constitué de deux faisceaux, la sonde et la référence, de polarisations orthogonales. En orientant la lame de calcite à 45° des axes de polarisation de ces deux faisceaux, les faisceaux sonde et référence sont chacun projetés en égales proportions sur ces deux directions ce qui donne enfin lieu au phénomène d'interférence.

Les deux faisceaux créés par le prisme de calcite sont orientés sur deux photodétecteurs, un pour chaque polarisation. On nomme ces deux photodiodes A_x et B_x avec $x \in [1, 2]$ selon le "bras" de l'interféromètre considéré.

3.7.3 Formulation mathématique

Pour traiter de la polarisation du laser au cours de son cheminement à travers l'interféromètre on pose une base orthonormée $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$. Cette base est représentée sur le schéma de la Figure 3.13. La numérotation des champs correspond à celle également indiquée sur cette figure. Dans cette base on peut écrire le champ électromagnétique \vec{E}_1 du laser à son entrée dans le système :

$$\vec{E}_1 = E_0(\omega, t) \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \vec{x} + \frac{\sqrt{2}}{2} \vec{z} \right). \quad (3.3)$$

Après réflexion sur le premier cube séparateur, le rayon entre dans le prisme de Wollaston avec le champ suivant :

$$\vec{E}_2 = \frac{E_0(\omega, t)}{2} (\vec{x} + \vec{y}). \quad (3.4)$$

Comme mentionné précédemment le biréfringent sépare le rayon en deux afin d'avoir deux champs à la sortie de ce dernier et de la lentille L_{levier} :

$$\vec{E}_{3.1} = \frac{E_0(\omega, t)}{2} \vec{x}, \quad \vec{E}_{3.2} = \frac{E_0(\omega, t)}{2} \vec{y}. \quad (3.5)$$

La réflexion sur le levier et le chip introduit un déphasage φ entre les deux rayons comme indiqué en section 3.7.1 :

$$\vec{E}_{4.1} = \frac{E_0(\omega, t)}{2} \vec{x}, \quad \vec{E}_{4.2} = \frac{E_0(\omega, t)}{2} e^{i\varphi} \vec{y}. \quad (3.6)$$

La traversée du biréfringent au retour recombine les deux faisceaux en

$$\vec{E}_5 = \frac{E_0(\omega, t)}{2} (\vec{x} + e^{i\varphi} \vec{y}). \quad (3.7)$$

Ce faisceau traverse ensuite deux séparateurs, l'une des sorties est dirigée directement vers le premier couple de photodiodes :

$$\vec{E}_6 = \frac{E_0(\omega, t)}{4} (\vec{x} - e^{i\varphi} \vec{z}). \quad (3.8)$$

La seconde sortie quant à elle passe d'abord par une lame quart-d'onde, produisant :

$$\vec{E}_7 = \frac{E_0(\omega, t)}{4} \left(\vec{x} + e^{i(\varphi + \frac{\pi}{2})} \vec{y} \right). \quad (3.9)$$

Les deux rayons (⑥ et ⑦ sur la Figure 3.13) sont ensuite tous deux séparés par un prisme biréfringent (lame de calcite) et les deux rayons résultants sont chacun envoyé sur une diode (A_x ou B_x). Les axes de biréfringence des prismes sont orientés à 45° par rapport aux axes du prisme de Wollaston, afin d'obtenir des interférences dépendantes de φ . On obtient ainsi les champs \vec{E}_{A_1} et \vec{E}_{B_1} depuis \vec{E}_6 , et \vec{E}_{A_2} et \vec{E}_{B_2} depuis \vec{E}_7 , avec :

$$\begin{cases} \vec{E}_{A_1} = \frac{E_0(\omega, t)}{4\sqrt{2}} (1 + e^{i\varphi}) \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \vec{x} - \frac{\sqrt{2}}{2} \vec{z} \right), \\ \vec{E}_{B_1} = \frac{E_0(\omega, t)}{4\sqrt{2}} (1 - e^{i\varphi}) \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \vec{x} + \frac{\sqrt{2}}{2} \vec{z} \right), \end{cases} \quad (3.10)$$

$$\begin{cases} \vec{E}_{A_2} = \frac{E_0(\omega, t)}{4\sqrt{2}} (1 - e^{i(\varphi + \frac{\pi}{2})}) \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \vec{x} - \frac{\sqrt{2}}{2} \vec{y} \right), \\ \vec{E}_{B_2} = \frac{E_0(\omega, t)}{4\sqrt{2}} (1 + e^{i(\varphi + \frac{\pi}{2})}) \left(\frac{\sqrt{2}}{2} \vec{x} + \frac{\sqrt{2}}{2} \vec{y} \right). \end{cases} \quad (3.11)$$

En posant $I_0 = \frac{1}{16} \langle E_0(\omega, t)^2 \rangle_t$, on peut alors calculer l'intensité lumineuse théorique mesurée par chaque photodiode :

$$I_{A_1} = I_0 (1 + \cos \varphi), \quad (3.12)$$

$$I_{B_1} = I_0 (1 - \cos \varphi), \quad (3.13)$$

$$I_{A_2} = I_0 (1 - \cos(\varphi + \frac{\pi}{2})) = I_0 (1 + \sin \varphi), \quad (3.14)$$

$$I_{B_2} = I_0 (1 + \cos(\varphi + \frac{\pi}{2})) = I_0 (1 - \sin \varphi). \quad (3.15)$$

Ces valeurs dépendent toutes de la phase φ qui nous permet de remonter à la déflexion d .

3.8 Traitement de données

On a vu la manière dont le système optique réagissait à la déflexion et le type de données que l'on obtenait à la sortie de l'interféromètre. Il reste maintenant à définir la façon dont on doit traiter la sortie des photodiodes de manière à avoir une mesure en temps réel de la déflexion.

3.8.1 Calcul de la déflexion

3.8.1.1 Principe

Les sorties des photodiode nous donnent quatre signaux explicités par les équations (3.12), (3.13), (3.14) et (3.15).

À partir de ces équations on voit que la mesure des quatre photodiodes nous permet d'accéder aisément au déphasage φ :

$$C_1 = \frac{I_{A_1} - I_{B_1}}{I_{A_1} + I_{B_1}} = \cos \varphi, \quad (3.16)$$

$$C_2 = \frac{I_{A_2} - I_{B_2}}{I_{A_2} + I_{B_2}} = \sin \varphi. \quad (3.17)$$

On pose alors le contraste complexe $C^{[30]}$:

$$C = C_1 + iC_2 = \cos \varphi + i \sin \varphi = e^{i\varphi}. \quad (3.18)$$

Ce contraste nous permet d'extraire φ . En effet, sur le plan (C_1, C_2) le contraste sera positionné sur le cercle unité avec un angle égal à φ .

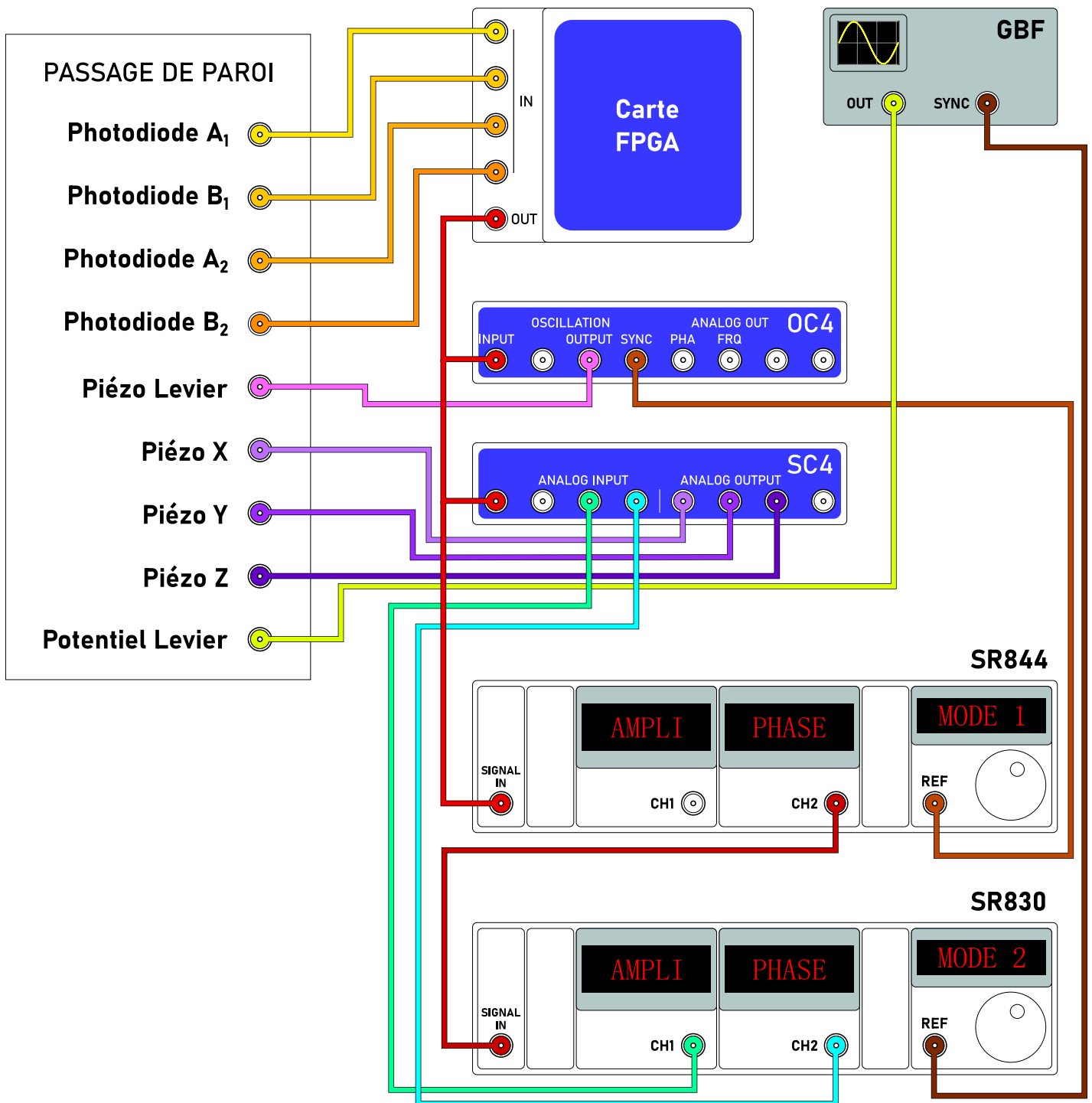


FIGURE 3.16 : Schéma de branchement des appareils dédiés au traitement de données dans le cas de l'utilisation de deux détections synchrones décrite en partie 3.8.3. Les éléments représentés ici sont situés à l'extérieur de la cage de Faraday. L'encadré "Passage de paroi" représente les connecteurs qui traversent la cage de Faraday pour relier différents éléments du montage. Les connecteurs dénommés "Photodiodes A₁", "Photodiodes B₁", "Photodiodes A₂" et "Photodiodes B₂" sont les sorties des photodiodes du même nom que l'on peut voir sur la Figure 3.13. Le connecteur "Piézo Levier" permet de contrôler la tension aux bornes de l'élément piézoélectrique placé contre le levier que l'on voit sur la Figure 3.11. Les connecteurs "Piézo X", "Piézo Y" et "Piézo Z" jouent un rôle similaire pour les positionneurs piézoélectriques situés dans le support de l'échantillon et que l'on peut voir sur la Figure 3.5. Le connecteur "Potentiel Levier" est quant à lui relié au fil de connection électrique du levier que l'on peut voir sur la Figure 3.11. Il est à noter que l'ensemble des connecteurs des différentes cartes n'est pas représenté mais seulement ceux qui nous intéressent dans le cadre de notre travail.

Pour retrouver la déflexion d à partir du déphasage φ on peut se référer aux équations (3.1) et (3.2) définissant ce déphasage. Ce déphasage est régi par la valeur du décalage $d_{optique}$ entre la pointe du levier et la surface du chip. Or ce décalage $d_{optique}$ n'est autre que la déflexion d plus une constante liée au décalage entre la position au repos ($d = 0$) et la surface du chip. La seule calibration nécessaire est donc de fixer l'origine de la déflexion. Pour cela il suffit de mesurer φ pour le levier libre en l'absence de force ou d'excitation, ce qui permet de définir expérimentalement la valeur φ_0 de l'équation (3.2). On a alors :

$$d = \frac{\lambda(\varphi - \varphi_0)}{4\pi} = \frac{\lambda}{4\pi} \left(\arctan \left(\frac{C_2}{C_1} \right) - \varphi_0 \right). \quad (3.19)$$

Ceci nous permet une mesure directe de la déflexion tant que celle-ci reste en dessous de $\frac{\lambda}{2}$.

Dans le cas où celle-ci dépasse cette limite, le suivi temporel est souvent suffisant pour suivre avec précision l'évolution de la déflexion.

3.8.1.2 Réalisation

Dans la pratique on utilise une carte FPGA (*Field-Programmable Gate Array*) pour réaliser ces opérations en temps réel. Comme son nom l'indique, une carte FPGA peut être reconfigurée par l'utilisateur. Ceci est rendu possible par son architecture de blocs logiques programmables et de connections reconfigurables à la différence d'un circuit classique constituée de fonctions logique fixes. La carte FPGA doit donc être préalablement compilée par l'utilisateur pour y configurer le circuit logique souhaité.

La carte FPGA utilisé ici est une carte NI-5783[®] de National Instrument. On l'utilise montée sur un châssis PXIe-1088[®]. Sa bande passante à 3 dB est de 39.4 MHz.

Ici on utilise la carte FPGA pour réaliser les opérations d'extraction de la déflexion à partir des signaux des quatre photodiodes en réalisant les opérations (3.16), (3.17), et (3.19). Les performances supérieures de cette carte nous permettent d'acquérir ces données en temps réel, ce qui est particulièrement utile ici pour intégrer la déflexion à des mécanismes de rétroaction.

La carte FPGA retourne un signal proportionnel à la déflexion mesurée. Ce signal est utilisé par la suite pour régler les rétroactions sur sa sortie comme on peut le voir sur la Figure 3.16 où cette sortie est représentée par un fil rouge.

3.8.2 Rétroaction

3.8.2.1 Principe

Comme le montrent les équations (2.43) et (2.42), les forces capacitives appliquées au levier causent des variations de la fréquence de résonance du levier. Pour pouvoir mesurer cette variation on excite mécaniquement le levier à sa fréquence de résonance. On le fait en envoyant un signal électrique sinusoïdal sur le piézoélectrique situé contre le chip. On met ensuite en place une boucle de rétroaction de l'amplitude d'excitation de manière à maintenir l'amplitude de la déflexion constante. Partant de là on a deux manières de mesurer le décalage de la fréquence de résonance : la première consiste à mesurer le déphasage entre le signal envoyé et la déflexion mesurée. On appellera cette méthode la méthode directe. On peut également compenser en temps réel ce déphasage en modifiant la fréquence d'excitation afin qu'elle corresponde à la nouvelle fréquence de résonance : c'est la technique de verrouillage de phase.

3.8.2.2 Réalisation

En pratique ceci est réalisé par une série d'appareils Nanonis : Le Nanonis RC4 Real-Time Controller^[34] est le processeur central de l'architecture, il apporte sa puissance de calcul à jusqu'à quatre appareils fonctionnels branchés. Du fait que son interaction avec le montage ne se fait qu'au travers d'autres instruments il n'est pas représenté sur la Figure 3.16.

Le Nanonis SC4 Signal Conversion^[35] sert d'entrée et de sortie pour les signaux traités ou générés par le processeur central. C'est notamment par lui que s'effectue le contrôle des éléments piézoélectriques qui permettent de scanner la surface et de contrôler la distance pointe-échantillon. On voit sur la Figure 3.16 qu'il reçoit, en plus de la déflexion (fil rouge) les amplitudes et phases calculées par l'une des détections synchrones. D'une

manière générale ses entrées servent à fournir au logiciel de Nanonis les paramètres additionnels que l'on souhaite enregistrer lors d'une mesure. De l'autre côté, trois des sorties du SC4 (en violet sur la Figure) servent à contrôler les positionneurs piézoélectriques du support de l'échantillon.

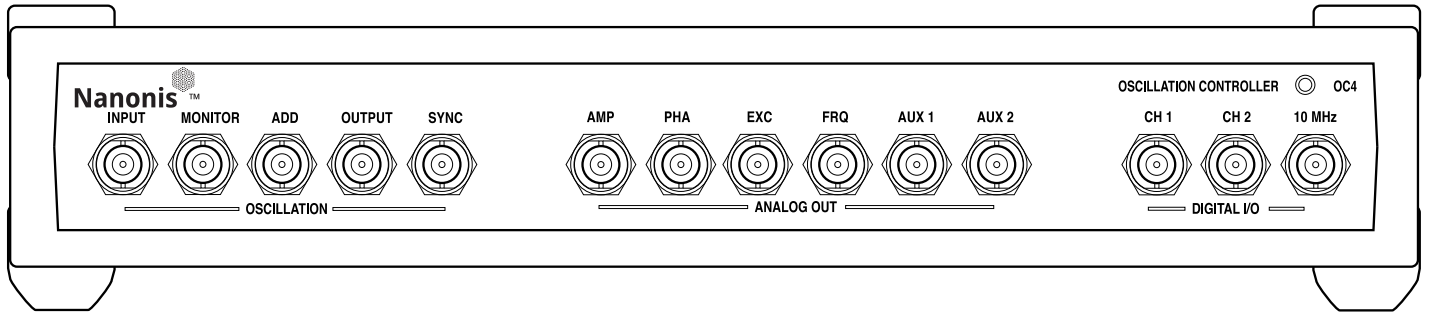


FIGURE 3.17 : Représentation du panneau avant du Nanonis OC4 Oscillation controller. On peut y voir l'ensemble des entrées et sorties de l'appareil dont certaines sont représentées sur la Figure 3.16. L'entrée INPUT est celle par laquelle on fait rentrer la mesure de la déflexion, elle peut recevoir des signaux allant jusqu'à 10 V avec une bande passante s'étendant de 100 Hz à 5 MHz. La sortie OUTPUT peut être utilisée pour mettre en place des rétroactions, le signal qu'elle transmet dépend des programmes de contrôle. Elle peut délivrer une tension jusqu'à 10 V à une fréquence jusqu'à 5 MHz. La sortie SYNC fournit un signal sinusoïdal d'amplitude 1 V de même fréquence que la sortie OUTPUT. Les sorties AMP et PHA sont des mesures de l'amplitude et de la phase du signal reçu sur INPUT tandis que EXC et FRQ retournent l'amplitude et la fréquence du signal d'excitation fourni par la sortie OUTPUT. Il retourne un signal s'étalant de -10 à 10 V et proportionnels aux valeurs de ces différents paramètres où les bornes de tensions représentent les extremas indiqués sur l'interface utilisateur. À cela s'ajoute les sorties AUX1 et AUX2, que l'on peut programmer. Figure issue de [36]

Le Nanonis OC4 Oscillation controller^[36] utilise une boucle à verrouillage de phase. C'est lui qui permet de contrôler le mouvement du levier puisque sa sortie (en rose sur la Figure 3.16) est envoyée sur l'élément piézoélectrique en contact avec le levier (voir la Figure 3.11). On peut voir sur la Figure 3.17 qu'il présente également des sorties pour le déphasage et le décalage en fréquence (PHA et FRQ), ce qui nous permet de mesurer ces paramètres pertinents. La boucle à verrouillage de phase permet, si elle est activée, de compenser le déphasage en modifiant la fréquence, c'est alors le décalage fréquentiel (FRQ) qu'il nous faut regarder.

3.8.3 Extraction des paramètres importants

Pour rappel on cherche ici à mesurer le gradient de la force. D'après les considérations de la partie 2.1.6 on sait qu'on accède à ce gradient de force par son influence sur la fréquence de résonance du levier. On peut donc soit mesurer le déphasage résultant de ce décalage en fréquence, soit compenser ce déphasage à l'aide d'une boucle à verrouillage de phase et suivre l'évolution de la fréquence de résonance elle-même.

3.8.3.1 Principe

Les paramètres importants ici sont, selon l'activation ou non de la boucle à verrouillage de phase, le décalage fréquentiel par rapport à la fréquence de résonance non-contrainte du levier ou le déphasage entre la tension sinusoïdale envoyée au piézoélectrique du levier et la déflexion mesurée. Comme expliqué dans la section 2.1.7, on isole une seule composante fréquentielle du paramètre observé, à savoir la réponse à $2\omega_e$, ω_e étant la pulsation du voltage appliqué entre le levier et le substrat. Pour cela on réalise une détection synchrone à $2\omega_e$.

Principe de la détection synchrone Supposons un signal d'entrée quelconque :

$$V_{in} = V_{in0} \sin(\omega_{in} t + \phi_{in}). \quad (3.20)$$

L'idée est ici de multiplier le signal reçu par un signal de référence que l'on choisit :

$$V_{ref} = V_{ref0} \sin(\omega_{ref} t + \phi_{ref}). \quad (3.21)$$

On obtient alors :

$$V_{in} * V_{ref} = V_{in0} V_{ref0} \sin(\omega_{in} t + \phi_{in}) * \sin(\omega_{ref} t + \phi_{ref}) \quad (3.22)$$

$$= \frac{1}{2} V_{in0} V_{ref0} \cos((\omega_{in} - \omega_{ref})t + \phi_{in} - \phi_{ref}) - \frac{1}{2} V_{in0} V_{ref0} \cos((\omega_{in} + \omega_{ref})t + \phi_{in} + \phi_{ref}) \quad (3.23)$$

que l'on fait passer dans un filtre passe-bas. Dans la plupart des cas les signaux sinusoïdaux disparaissent alors sauf si on se trouve dans le cas où $\omega_{in} = \omega_{ref}$. On a alors :

$$V_{final} = \frac{1}{2} V_{in0} V_{ref0} \cos(\phi_{in} - \phi_{ref}). \quad (3.24)$$

Si on réalise en parallèle la même opération avec le signal de référence :

$$V_{ref2} = V_{ref0} \sin(\omega_{ref} t + \phi_{ref} + \frac{\pi}{2}), \quad (3.25)$$

on obtient

$$V_{final2} = \frac{1}{2} V_{in0} V_{ref0} \cos(\phi_{in} - \phi_{ref} + \frac{\pi}{2}) = \frac{1}{2} V_{in0} V_{ref0} \sin(\phi_{in} - \phi_{ref}). \quad (3.26)$$

On retrouve ainsi l'amplitude et la phase de notre signal par rapport à la référence :

$$V_{in0} = \frac{\sqrt{V_{final}^2 + V_{final2}^2}}{V_{ref0}} \quad (3.27)$$

$$\phi_{in} = \arctan\left(\frac{V_{final2}}{V_{final}}\right) + \phi_{ref}, \quad (3.28)$$

En alignant le signal de référence sur le signal de l'excitation électrique on obtient l'amplitude et le déphasage du signal de sortie.

On a supposé ici un signal sinusoïdal mais chaque signal périodique peut s'écrire comme une somme de signaux sinusoïdaux :

$$V_{in}(t) = \sum_k V_{k0} \sin(\omega_k t + \phi_k)$$

Dans ce cas seule la composante du signal pour laquelle $\omega_k = \omega_{ref}$ est conservée après le filtrage. La détection synchrone donne donc uniquement l'amplitude et la phase de la composante du signal d'entrée qui correspond à la fréquence de référence.

3.8.3.2 Réalisation

Si on se reporte à la Figure 3.16 on a des détections synchrones à plusieurs niveaux sur notre montage. Il y en a tout d'abord une intégrée au sein de l'appareil OC4 de Nanonis décrit dans la partie 3.8.2.2 qui lui permet notamment de calculer la sortie PHA. Ici le signal d'entrée est pris sur l'entrée INPUT qui reçoit le signal de la déflexion calculée par la FPGA tandis que le signal de référence est celui envoyé sur la sortie OUTPUT qui commande l'élément piézoélectrique accolé au levier (voir Figure 3.11). Viennent ensuite les deux appareils de détection synchrone à proprement parler, à savoir un SR830 DSP Lock-In Amplifier de Stanford Research Systems et un SR844 RF Lock-In Amplifier du même constructeur. Ces deux appareils utilisent le signal d'entrée SIGNAL IN et le signal de référence reçu sur REF pour calculer l'amplitude et la phase du signal sur une harmonique choisie du signal REF. On peut sortir sur les ports CH1 et CH2 des signaux proportionnels à l'amplitude et à la phase mesurée.

En pratique on utilise le SR830 comme détection synchrone^[37] pour le calcul de l'amplitude et de la phase du décalage fréquentiel ou phasique de l'oscillation du levier à la fréquence double de l'excitation électrique. Pour cela on branche le signal de synchronisation fourni par le générateur de fonction (comme mentionné dans la partie 3.3.1) sur l'entrée REF IN de la détection synchrone (voir Figure 3.16).

La SR830 permet, une fois la fréquence de référence fournie, de sélectionner l'harmonique de cette fréquence qui nous intéresse. Ici, on sélectionne donc le second mode, ce qui signifie que la détection synchrone se fera avec comme pulsation de référence le double de la pulsation fournie par le générateur de fonction.

À partir de là, on a deux façons de récupérer le décalage fréquentiel ou phasique de la déflexion.

Première méthode La première méthode consiste à utiliser les sorties dédiées du boîtier Nanonis OC4 (voir 3.8.2), à savoir la sortie PHA pour le déphasage ou la sortie FRQ si on verrouille la phase. L'inconvénient de reposer sur les sorties analogiques de la carte Nanonis est la faible bande passante de ces dernières qui ne peuvent suivre les signaux au-delà de quelques kHz.

Seconde méthode La seconde méthode, et celle représentée sur la Figure 3.16, consiste à utiliser une seconde détection synchrone pour calculer le déphasage. Dans notre cas précis il s'agit du SR844^[38]. Pour cela on lui fournit le signal de la déflexion calculé par la carte FPGA avec pour référence la sortie SYNC de la carte OC4 de Nanonis, synchronisé sur le signal envoyé en OUTPUT de cette même carte, c'est à dire sur l'excitation du piézoélectrique accolé au levier (voir Figure 3.11). On sélectionnera ici le mode 1 puisque l'excitation mécanique est considérée linéaire dans le cadre des petites déformations.

Cette méthode nous affranchi des limitations et de l'influence des processus numériques des composantes Nanonis mais nous empêche également de jouer sur le shift fréquentiel pour rester à la résonance.

3.9 Conclusion

L'instrument décrit dans ce chapitre, un appareil de microscopie à force atomique maison avec détection interférométrique installé dans une chambre faible bruit, est la travail central de ma thèse. Il se distingue par une mesure précise et calibrée (interférométrique) de la sonde de force, un contrôle de l'environnement de l'échantillon (vide jusqu'à 10^{-6} mbar, température de l'ambiante à 260°C), des connections électriques pour l'échantillon et la pointe, une isolation mécanique, acoustique et électromagnétique. Partant d'une table optique vide, j'ai suivi et monté cet instrument du début à la fin, avec le concours de Vincent Dolique (Ingénieur de Recherche au CNRS) et mes encadrants. La complexité de travailler dans une cage de Faraday, sans accès direct à l'instrument pendant la mesure, ni la possibilité d'avoir des appareils de mesure alimentés sur le secteur à proximité, est une contrainte non négligeable qui ne transparait pas forcément dans la description qui précède. La gestion des commandes entre confinements, désorganisation des flux logistiques et pénurie de composants électroniques, ont également retardé la création et mise au point de l'expérience. Le chapitre qui suit, sur la calibration de l'interféromètre, correspond à un travail mené dans ces périodes contraintes, même s'il ne s'appliquera qu'à plus long terme aux mesures planifiées initialement.

Chapitre 4

Des interférences à la déflexion

No le tengas miedo a la perfección; nunca la vas a alcanzar.
- Salvador Dalí

On a considéré dans la partie 3.7 le système optique de manière idéale. Dans la réalité la taille finie des ouvertures et la précision limitée des réglages créent des imperfections qui ont un impact sur la mesure. Nous discutons ici des méthodes pour extraire une information pertinente d'un interféromètre à quadrature de phase même dans le cas où celui-ci présente des distorsions optiques importantes comme celles présentées sur la Figure 4.1.

Dans ce chapitre on détaille dans un premier temps les différentes imperfections optiques pouvant affecter le système et la façon dont elles impactent la mesure du contraste. On présente ensuite deux méthodes développées pour compenser ces imperfections dans la mesure et les comparer à la méthode de Heydemann, traditionnellement utilisée dans ce cas. La description de ces méthodes et de leurs performances a fait l'objet d'un article publié dans la revue *Applied Physics Letters*^[39].

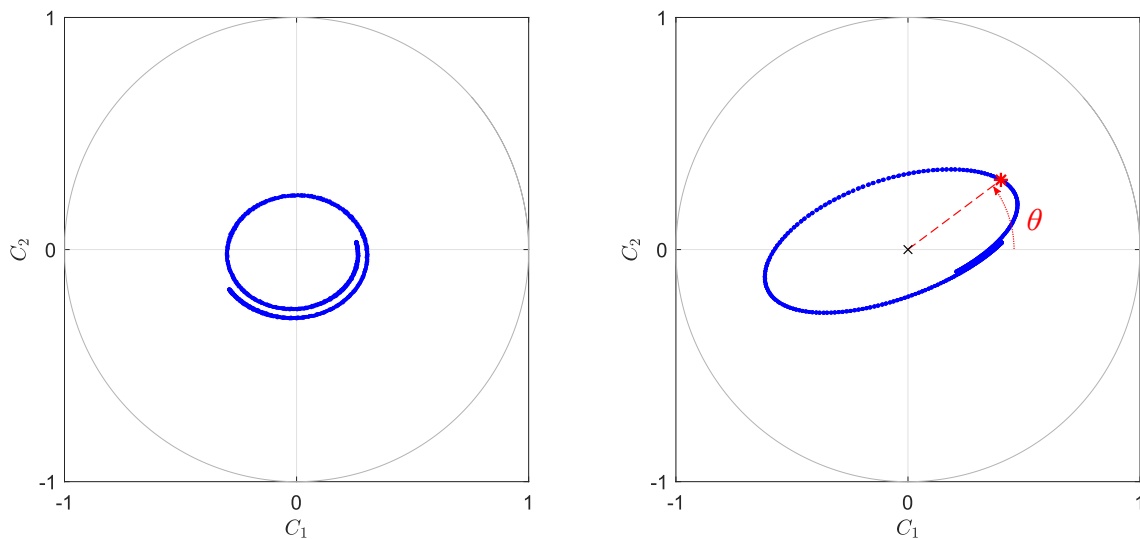


FIGURE 4.1 : Deux exemples extrêmes de trajectoires de contraste expérimentales réalisées sur le montage. Ces courbes paramétrées dans le temps reportent dans le plan (C_1, C_2) la mesure d'une oscillation d'amplitude supérieure à $\frac{\lambda}{2}$. On note que la trajectoire du contraste peut s'éloigner significativement du cercle unité théorique en gris et cela de différentes façons. θ est défini comme l'angle polaire dans le plan (C_1, C_2) du point de mesure considéré (en rouge sur la figure de droite).

4.1 Rappels et définitions

La sortie de l'interféromètre est composée de quatre signaux : $I_{A_1}, I_{B_1}, I_{A_2}$ et I_{B_2} qui correspondent aux intensités des quatre photodiodes du même nom (Figure 3.13). On pose :

$$C_1 = \frac{I_{A_1} - I_{B_1}}{I_{A_1} + I_{B_1}}, \quad (4.1)$$

$$C_2 = \frac{I_{A_2} - I_{B_2}}{I_{A_2} + I_{B_2}}, \quad (4.2)$$

Notons θ l'angle polaire de $C = C_1 + iC_2$ dans le plan complexe, θ se calcule par :

$$\theta = \arctan\left(\frac{C_2}{C_1}\right). \quad (4.3)$$

Dans un interféromètre idéal (voir partie 3.7.1), $C = e^{i\varphi}$, donc $\theta = \varphi$, ce qui permet d'obtenir la déflexion mesurée :

$$d_{mes} = \frac{\lambda}{4\pi}\theta = \frac{\lambda}{4\pi}\arctan\left(\frac{C_2}{C_1}\right) \quad (4.4)$$

Une illustration géométrique de la valeur θ est reportée sur la Figure 4.1 pour une réalisation expérimentale. L'écart à l'idéalité (cercle unité) est important pour les deux trajectoires présentées, et l'hypothèse $\theta = \varphi$ est donc infondée. Nous explorons ici les raisons qui éloignent θ de la valeur idéale φ dans la pratique, et comment retrouver la valeur de d dans ces situations.

4.2 Imperfections du système optique

Les résultats expérimentaux présentés dans la Figure 4.1 montrent que la trajectoire du contraste peut adopter des formes assez diverses, de l'ellipse à la spirale. On cherche dans cette partie à remonter aux raisons optiques de ces écarts à la forme théorique du cercle unité.

Il est important de noter que l'on ne considère ici que les imperfections de mesures qui affectent la partie proprement optique du montage, on néglige le bruit des photodiodes ainsi que toute perturbation d'origine électronique de la mesure. On néglige également toute lumière parasite.

4.2.1 Paramètres géométriques impactant les interférences

Nous étudions ici les liens entre paramètres géométriques du montage interférométrique et du levier et forme de la trajectoire de contraste.

On voit sur la Figure 4.2 que les déformations du levier modifient la réflexion du faisceau et la Figure 4.3 nous montre le résultat que l'on obtient au niveau des surfaces des photodiodes : on peut avoir une réduction de la surface d'interférence. Deux éléments sont à la source de cette différence : le décentrage de la tache faisceau sonde et l'écart entre les rayons R_{ref} et R_{sonde} des deux taches. Si on regarde la Figure 4.2 on voit que le décentrage Δ_{centre} du rayon sonde peut se retrouver facilement :

$$\Delta_{centre} = (f_0 + h_{sonde} + d) \tan \Theta_{sonde} \approx f_0 \tan \Theta_{sonde} \quad (4.5)$$

De même, sans rentrer dans les détails de l'expression du champ électromagnétique du laser, on peut comprendre en regardant la Figure 4.2 que les paramètres h_{ref} et h_{sonde} , ainsi que la déflexion d , sont à l'origine des différences entre R_{ref} et R_{sonde} puisque le décalage de la surface de réflexion change l'étalement de la tâche lumineuse.

Pour comprendre la perte de visibilité des interférences (c'est à dire $|C| < 1$, faisons l'hypothèse simpliste d'un champ lumineux uniforme dans le disque correspondant à chaque faisceau. Les trois paramètres R_{ref} , R_{sonde} et Δ_{centre} déterminent la surface d'interférence S_{int} , que l'on calcule géométriquement comme l'intersection des deux disques :

$$S_{int} = R_{ref}^2 \arccos\left(\frac{d_{ref}}{R_{ref}}\right) - d_{ref} \sqrt{R_{ref}^2 - d_{ref}^2} + R_{sonde}^2 \arccos\left(\frac{\Delta_{centre} - d_{ref}}{R_{sonde}}\right) - (\Delta_{centre} - d_{ref}) \sqrt{R_{sonde}^2 - (\Delta_{centre} - d_{ref})^2} \quad (4.6)$$

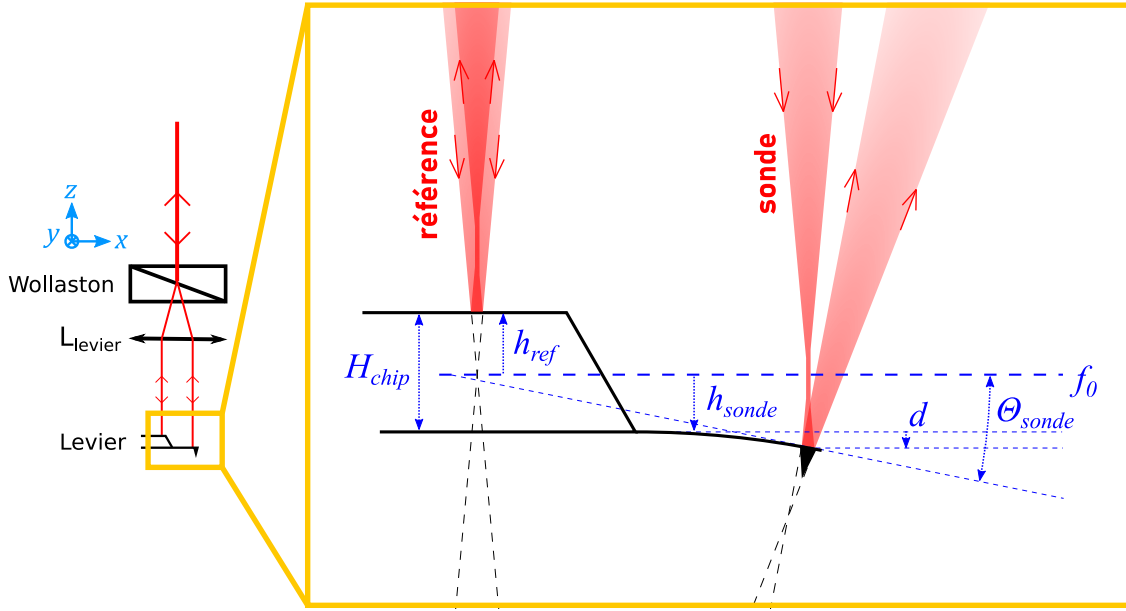


FIGURE 4.2 : À gauche est reportée la zone de mesure de l'interféromètre de la Figure 3.13 : le prisme biréfringent de Wollaston sépare le faisceau en deux rayons, focalisés par la lentille L_{levier} sur le chip et le levier. À droite est reportée une représentation schématique de la géométrie du levier et de son influence sur la réflexion des faisceaux laser. On matérialise le plan focal f_0 de L_{levier} . L'épaisseur du chip empêche d'avoir une réflexion au point focal à la fois du faisceau sonde et de celui de référence. Toutes les distances sont ici mesurées en suivant la direction du rayon incident, selon l'axe \vec{z} . On note h_{ref} la distance entre le plan focal et la surface de réflexion du rayon référence, soit la face supérieure du chip. On note h_{sonde} la distance entre le plan focal et la surface du levier au repos ($d = 0$). L'épaisseur du chip H_{chip} peut se retrouver avec $H_{chip} = h_{ref} - h_{sonde}$. L'angle Θ_{sonde} représente l'orientation de la surface sondée dans le plan (\vec{x}, \vec{z}) avec \vec{x} l'axe du levier au repos.

avec $d_{ref} = \frac{1}{\Delta_{centre}^2} (R_{ref}^2 + \Delta_{centre}^2 - R_{sonde}^2)$.

Un exemple de l'évolution de la valeur de S_{int} en fonction du paramètre Δ_{centre} peut être vu sur la Figure 4.4.

Si on s'intéresse maintenant au lien entre le contraste et la surface d'interférence S_{int} on peut expliquer la perte de visibilité observée. On sait d'après les rappels de la partie 4.1 que :

$$C = \frac{I_{A_1} - I_{B_1}}{I_{A_1} + I_{B_1}} + i \times \frac{I_{A_2} - I_{B_2}}{I_{A_2} + I_{B_2}}.$$

Au vu de ce que l'on a dit au niveau de la partie 4.2.1, on peut considérer que chaque intensité I_Γ (avec $\Gamma \in [A_1, B_1, A_2, B_2]$) peut être décomposé en deux parties :

$$I_\Gamma = I_{interf}(\Gamma) + I_{reste} \quad (4.7)$$

avec I_{interf} l'intensité lumineuse sur la zone d'interférence S_{int} et I_{reste} l'intensité lumineuse sur le reste de la surface d'analyse. En l'absence de lumière parasite il s'agira de l'intensité reçue par la surface S_{reste} définie dans la Figure 4.4, I_{reste} peut être considérée comme proportionnelle à S_{reste} dans un tel cas de figure, donc $S_{reste} = 0 \Leftrightarrow I_{reste} = 0$. Seule I_{interf} est affectée par le phénomène d'interférence et est donc la seule composante à varier en fonction de la photodiode Γ . Ceci a une influence sur la mesure du contraste :

$$C_1 = \frac{I_{A_1} - I_{B_1}}{I_{A_1} + I_{B_1}} = \frac{I_{interf}(A_1) - I_{interf}(B_1)}{I_{interf}(A_1) + I_{interf}(B_1) + 2I_{reste}}, \quad (4.8)$$

$$C_2 = \frac{I_{A_2} - I_{B_2}}{I_{A_2} + I_{B_2}} = \frac{I_{interf}(A_2) - I_{interf}(B_2)}{I_{interf}(A_2) + I_{interf}(B_2) + 2I_{reste}}. \quad (4.9)$$

On voit alors que si $I_{reste} > 0$ (c'est à dire $S_{reste} > 0$) on a toujours $|C_i| < 1$ avec $i \in [1, 2]$.

Pour explorer l'impact de ces différents paramètres dans un modèle plus réaliste, nous avons développé un code permettant de calculer l'intensité reçue par chaque photodiodes. Pour cela on a utilisé la formule d'un

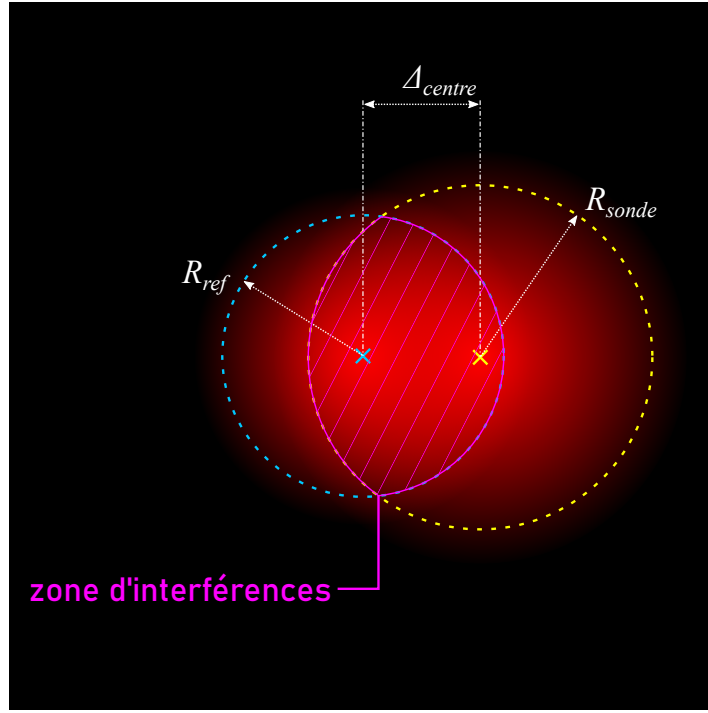


FIGURE 4.3 : Représentation schématique des effets géométriques sur les faisceaux collectés par les photodiodes : en fixant h_{ref} le faisceau de référence, ici délimité par des pointillés cyan, est statique et de rayon R_{ref} constant. Une variation de h_{sonde} et d (voir Figure 4.2) se traduit par une variation du rayon R_{sonde} du faisceau sonde délimité par des pointillés jaunes. Une variation de Θ_{sonde} est elle à l'origine de la translation latérale du faisceau sonde qui crée le décalage Δ_{centre} entre les centres des deux faisceaux. La superposition partielle des faisceaux réduit la visibilité des interférences de leurs champs lumineux.

champ gaussien pour le champ du laser^[40] $\vec{E}(x, y, z, w_0)$. Ce champ dépend, en plus des paramètres spatiaux, de sa demi-largeur au point focal w_0 . La valeur de w_0 dépend en pratique de la largeur R et de la longueur d'onde λ du faisceau incident à la lentille ainsi que de la focale f_0 de cette dernière (voir Figure 4.5). La largeur R est définie par l'équation du champ \vec{E} au niveau de la lentille, de la forme :

$$\|\vec{E}\| \propto e^{-\frac{x^2+y^2}{R^2}}. \quad (4.10)$$

Cette équation signifie donc qu'à une distance R du centre du faisceau, l'intensité est de $\frac{1}{e^2}$ fois celle que l'on trouve au centre du faisceau. Dans l'approximation de Gauss on a^[41] :

$$w_0 = \frac{\lambda f_0}{\pi R} \quad (4.11)$$

Dans notre cas on a une longueur d'onde λ du laser de 633 nm et une distance focale de la lentille $f_0 = 29$ mm. Si on considère ici un rayon du faisceau en entrée de la lentille de 1 mm, on obtient :

$$w_0 = 5,84 \mu\text{m}.$$

Ce champ $\vec{E}(x, y, z, w_0)$ est celui d'un faisceau laser focalisé au point $(0, 0, 0)$ et orienté selon l'axe \vec{z} ce qui correspond à la géométrie des faisceaux incidents. On peut voir sur la Figure 4.2 que la réflexion des faisceaux équivaut à donner à ces derniers une origine et une direction différente en fonction de la position et de l'orientation de la surface sur laquelle la réflexion a lieu. C'est sur cette base que repose notre simulation, en définissant une surface d'analyse de coordonnées fixées et en y calculant en chaque point la valeur du champ des faisceaux incidents et sonde en fonction de leur origine et direction. En additionnant ces champs on réalise l'interférence et du champ total on extrait l'intensité locale sur chaque photodiode comme on peut le voir sur la Figure 4.6.

En intégrant l'intensité sur chacune des photodiodes et en appliquant les équations (4.1) et (4.2) on peut calculer le contraste correspondant. On voit notamment si on regarde la Figure 4.6 que le contraste dans le cas idéal est bien $[C_1 = 1, C_2 = 0]$ puisque $I_{B_1} = 0$ et $I_{A_2} = I_{B_2}$.

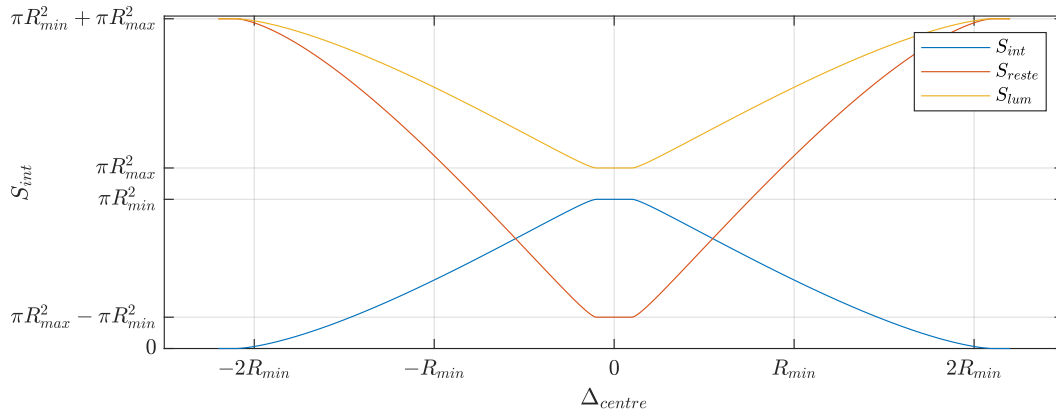


FIGURE 4.4 : Illustration de l'évolution des différentes surfaces significatives en fonction du paramètre Δ_{centre} de la Figure 4.3. S_{int} est la surface de la zone où a lieu l'interférence explicitée dans l'équation (4.6), S_{lum} est la surface totale éclairée par les faisceaux sonde et référence et $S_{reste} = S_{lum} - S_{int}$ est la surface éclairée par seulement l'un des deux faisceaux. On a ici pris un ratio 1,1 entre les deux rayons pour avoir une figure claire, dans la pratique la différence de rayon sera souvent beaucoup plus faible. R_{min} et R_{max} correspondent respectivement à la valeur minimale et maximale entre R_{ref} et R_{sonde} .

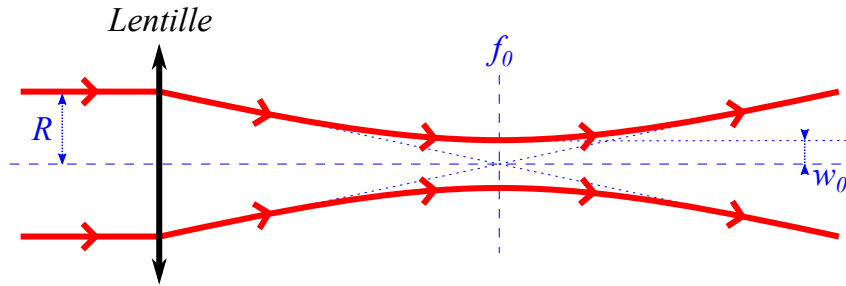


FIGURE 4.5 : Schéma illustrant la signification de la largeur au col w_0 .

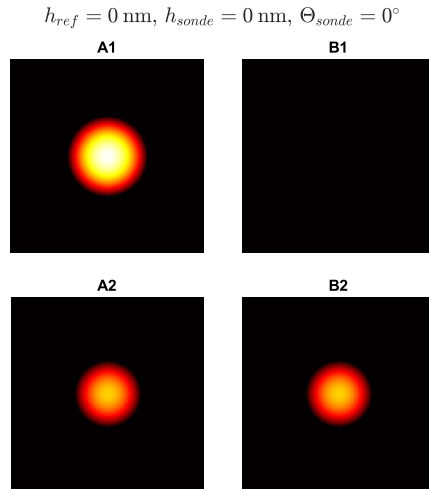


FIGURE 4.6 : Illustration du résultat de notre simulation des figures d'interférences dans le cas idéal où les deux faisceaux sont réfléchis au points focal sur des surfaces horizontales. Les intensités sont représentées sur une échelle logarithmique de couleur identique pour les quatre photodiodes. Les photodiodes ont des dimensions fixées à $5R$.

4.2.1.1 Focalisation sur le levier

On voit sur la Figure 4.2 que les deux faisceaux laser (référence et sonde) sont focalisés par une unique lentille L_{levier} . Toutefois la surface supérieure du levier est située plus loin que celle du chip d'une distance H_{chip} d'environ $300 \mu\text{m}$. En l'occurrence on prend ici $H_{chip} = 300,042 \mu\text{m}$, une valeur proportionnelle à la longueur d'onde λ du laser utilisé, en l'occurrence ici 633 nm . La différence de focalisation du rayon lors de la réflexion induit une réduction du contraste par rapport au cas idéal de deux surfaces de réflexion dans le plan focal f_0 .

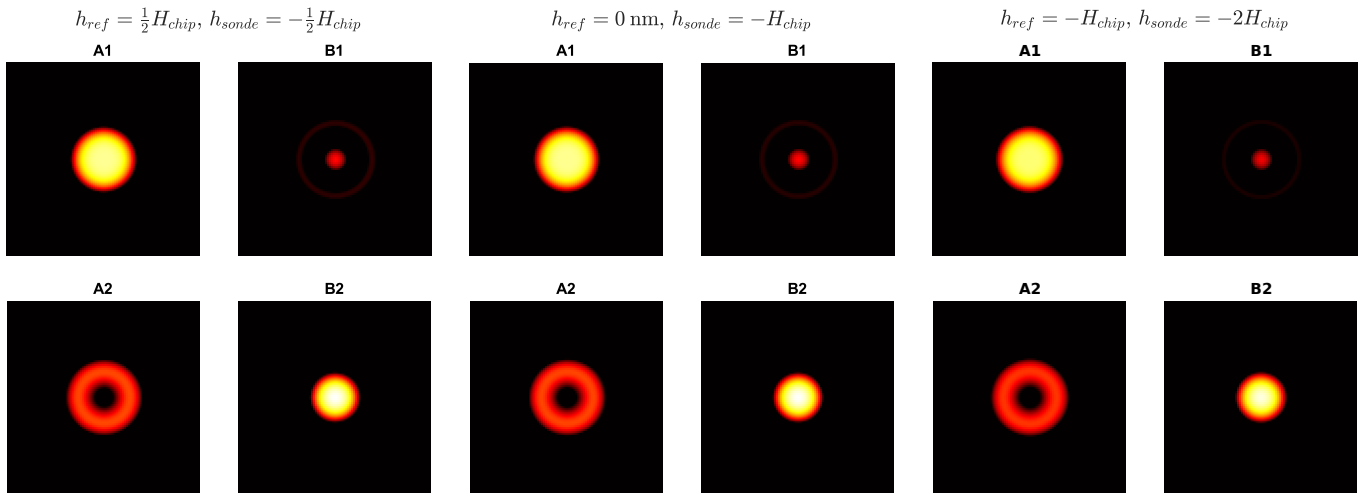


FIGURE 4.7 : Illustration de l'effet des paramètres géométriques h_{ref} et h_{sonde} sur la figure d'interférence captée par les quatre photodiodes. Tout comme pour la Figure 4.6, les intensités sont représentées en échelle logarithmique. Il est à noter qu'ici les valeurs de la déflexion d et de l'inclinaison Θ_{sonde} ont été ajustées afin de montrer la figure correspondant au point le plus proche de ($C_1 > 0, C_2 = 0$) accessible pour les valeurs de h_{ref} et h_{sonde} indiquées. Contrairement à la Figure 4.6, on a ici une intensité non nulle sur la diode B_1 , ce qui nous indique que la valeur maximale de C_1 sera inférieure à la valeur théorique de 1. On constate également sur les deux figures que la position du plan f_0 a peu d'influence sur les figures d'interférences.

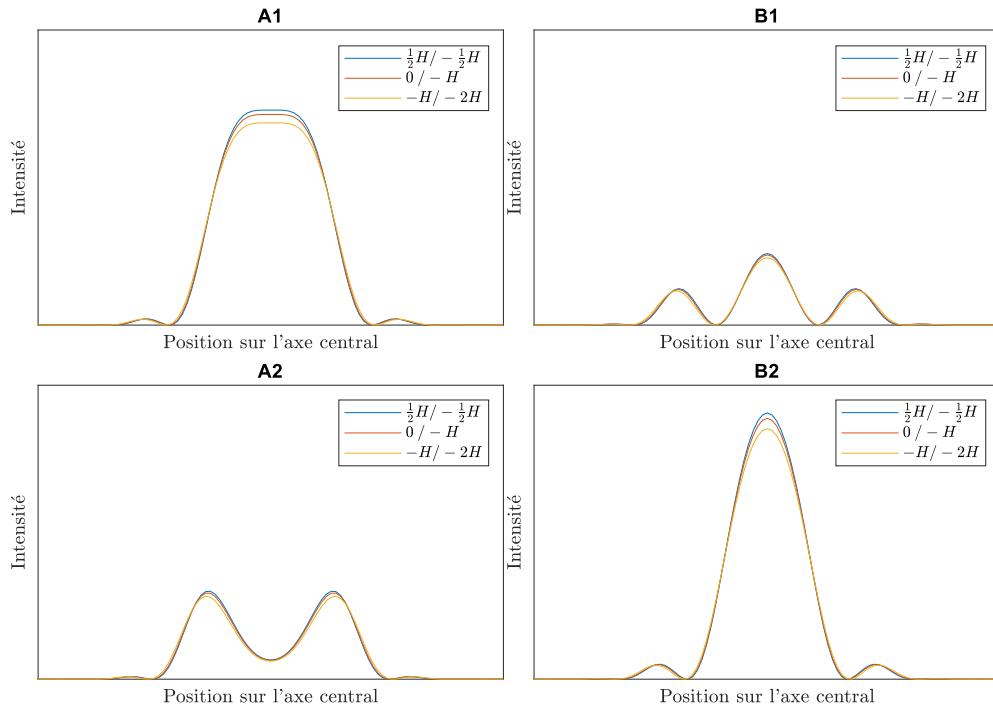


FIGURE 4.8 : Une représentation des profils d'intensité à symétrie circulaire pour les paramètres présentés sur la Figure 4.7. Concernant les légendes, " $\frac{1}{2}H/\frac{1}{2}H$ " correspond au cas " $h_{ref} = \frac{1}{2}H_{chip}, h_{sonde} = -\frac{1}{2}H_{chip}$ " de la Figure 4.7, " $0/-H$ " correspond au cas " $h_{ref} = 0 \text{ nm}, h_{sonde} = -H_{chip}$ " et " $-H/-2H$ " correspond au cas " $h_{ref} = -H_{chip}, h_{sonde} = -2H_{chip}$ ".

En effet, les faisceaux qui interfèrent au final proviennent virtuellement de plans distincts, on se retrouve donc avec des ondes sphériques plutôt que des ondes planes, et une figure d'interférence non uniforme spatialement. L'intégration du champ lumineux par les photodiodes interdit d'avoir une intensité strictement nulle, le contraste maximum est ainsi dégradé.

En jouant sur les valeurs de h_{ref} et h_{sonde} on obtient les répartitions d'intensité présentées sur les Figures 4.7 et 4.8.

En posant E_0 la valeur du champ électromagnétique au point focal, on calcule pour tous les couples

h_{ref} , h_{sonde} tels que $h_{sonde} - h_{ref} = H_{chip}$:

$$\text{Intensité sur } A_1 = 0,0320 \times E_0^2$$

$$\text{Intensité sur } B_1 = 0,0109 \times E_0^2$$

$$\text{Intensité sur } A_2 = 0,0215 \times E_0^2$$

$$\text{Intensité sur } B_2 = 0,0214 \times E_0^2$$

soit $|C| = 0,48$. On confirme ainsi que le fait de changer les valeurs individuelles de h_{ref} et de h_{sonde} n'a pas d'impact significatif si la valeur de $h_{sonde} - h_{ref}$ reste constante mais que celle-ci rend le module du contraste inférieur à l'unité.

On peut néanmoins remarquer sur la Figure 4.8 qu'avec l'augmentation de $h_{ref} + h_{sonde}$ les profils ont tendance à réduire en intensité et à s'étaler du fait de l'éloignement du levier du point focal. Cet effet n'aura cependant de conséquences pratiques que pour un très mauvais réglage du point focal, chose qu'il est en général facile de corriger sur le montage expérimental.

4.2.1.2 Effet de l'orientation

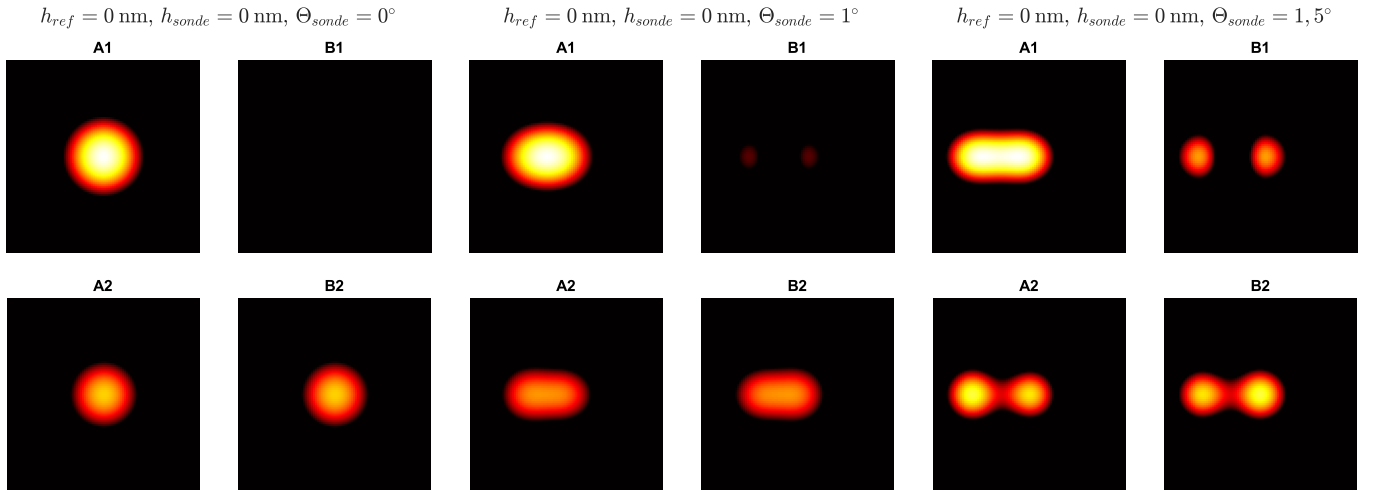


FIGURE 4.9 : Illustration de l'effet des paramètres Θ_{sonde} sur la figure d'interférence captée par les quatre photodiodes. L'angle décale le faisceau sonde dans le plan d'analyse, ce qui réduit la zone de recouvrement entre les deux faisceaux et par conséquent réduit également la valeur du contraste maximum.

Dans la partie précédente, on a considéré que les surfaces réfléchissant les faisceaux sonde et référence étaient toutes deux localement parfaitement horizontales. Dans la pratique si la surface de référence peut être raisonnablement assimilée à un plan horizontal fixe, la surface sonde, c'est à dire l'extrémité du levier, adopte de par la flexibilité de ce dernier toutes sortes d'inclinaisons. On appelle Θ_{sonde} l'angle par rapport à l'horizontale que décrit la tangente à la surface au niveau de la réflexion du faisceau sonde dans le plan (O, \vec{x}, \vec{z}) . On peut en voir une illustration sur la Figure 4.2.

Comme on peut le voir sur cette même figure, une inclinaison de la surface réfléchissant le rayon sonde conduit à un changement de direction de ce dernier. Une fois passé la lentille ce changement de direction se traduit par un décalage spatial ce qui fait qu'à l'arrivée sur les photodiodes les deux rayons ne sont pas centrés au même point ce qui diminue leur recouvrement et par extension leur interférence. On voit ce phénomène particulièrement bien sur la Figure 4.9 où on constate que plus l'inclinaison est importante plus les rayons sont séparés et leur interférence réduite. Il apparaît notamment que pour le cas $\Theta_{sonde} = 1,5^\circ$ les valeurs de C_1 et de C_2 sont très faibles.

Du fait qu'on s'intéresse essentiellement aux modes de flexion du levier on considère que l'inclinaison dans le plan (O, \vec{y}, \vec{z}) de l'extrémité du levier (soit le paramètre ψ_s de l'Annexe C) est négligeable. Dans la pratique cette inclinaison correspond aux modes de torsion du levier qui du fait de la géométrie de ce dernier, sont peu

observés et à des amplitudes très faibles comparés à celles des modes de flexion. À l'inverse, l'inclinaison Θ_{sonde} selon l'axe \vec{x} est elle importante puisqu'elle correspond à la flexion du levier.

À cette inclinaison peut parfois s'ajouter une déformation statique du levier, par exemple dans les cas où le levier est constitué de différents matériaux présentant des coefficients d'expansion thermiques différents. Cette inclinaison statique peut cependant être corrigée à l'aide du prisme de Wollaston comme expliqué sur la Figure 3.15 de la partie 3.7.2 .

4.2.1.3 Effet des modes d'oscillation du levier

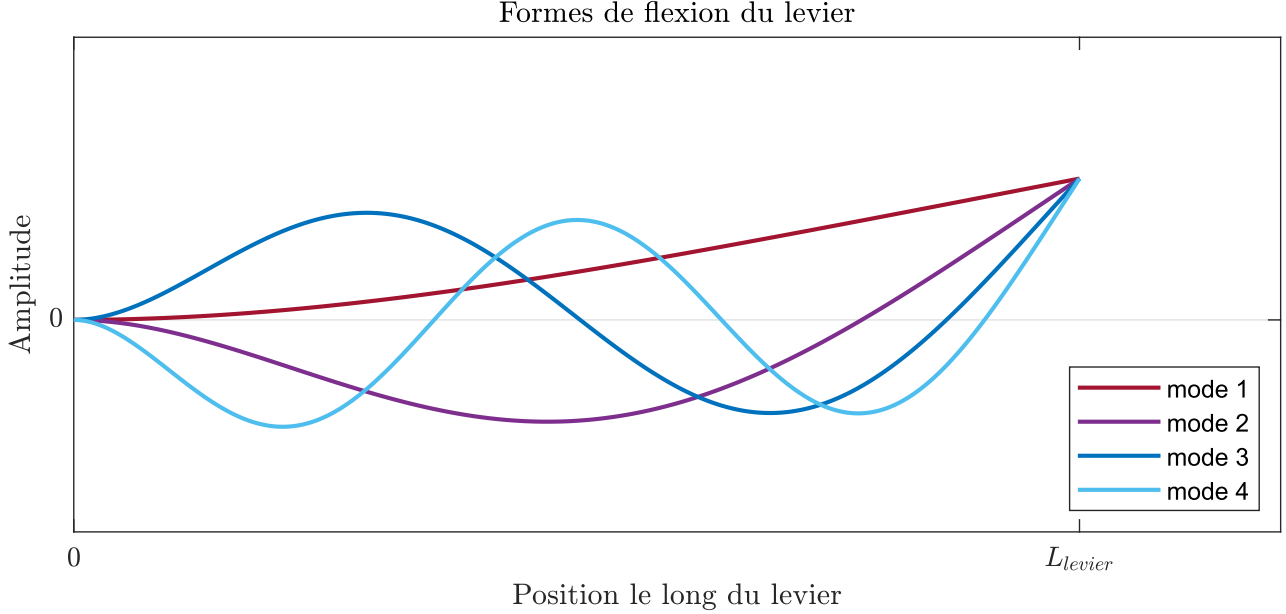


FIGURE 4.10 : Illustration des formes adoptées par le levier selon le mode excité pour une même déflexion d à l'extrémité du levier. On voit notamment que l'inclinaison à l'extrémité augmente avec la valeur du mode considéré, ce qui implique que Θ_{sonde} sera, à déflexion fixée, plus important pour les modes élevés.

Au-delà des imperfections statiques qui impactent H_{chip} et Θ_{sonde} on doit aussi considérer l'oscillation du levier. Celle-ci est toujours présente dans la pratique, du fait d'une excitation imposée ou du seul bruit thermique. Cette oscillation impose une variation fluctuante de la position et de l'inclinaison de la surface de réflexion, la variation de la position est égale à la déflexion d déjà mentionnée dans la partie 1.4.2 et l'on nomme la variation de l'inclinaison due à l'oscillation Θ_{lev} . La déflexion d et l'inclinaison Θ_{lev}^n sont reliés par le mode d'oscillation n du levier considéré comme on peut le voir sur la Figure 4.10. En effet, si on note $\eta_n(x)$ la forme spatiale du mode normal n , on a alors $d = D\eta_n(L_{levier})$ et $\Theta_{lev}^n = D\eta_n'(L_{levier})$ avec $D \in \mathbb{R}$. On a alors :

$$\Theta_{lev}^n = \frac{\eta_n'(L_{levier})}{\eta_n(L_{levier})}d. \quad (4.12)$$

Pour décrire les trajectoires du contraste lors d'une excitation du levier on considère donc la valeur Θ_{lev}^n comme une fonction de la déflexion et du mode de flexion de poutre considéré. Les modes normaux ainsi que le détail de la relation entre d et Θ_{lev}^n sont explicités dans l'Annexe A. Cette relation entre inclinaison et déflexion nous aide à expliquer plusieurs phénomènes par la suite.

4.2.2 Trajectoire du contraste

Pour tracer le contraste on sélectionne une plage de valeur de d plus large que $\frac{\lambda}{2}$ afin de parcourir l'ensemble de l'ellipse. Pour chaque valeur de d on calcule le contraste en suivant les étapes détaillées dans l'annexe C avec $\Theta_{sonde} = \Theta_{lev}^n(d)$ et $\psi_s = 0$. Sauf mention contraire, la relation $\Theta_{sonde}(d)$ utilisée sera celle correspondant au premier mode de flexion, soit le "mode 1" détaillé dans l'Annexe A.

4.2.2.1 Effet du chip

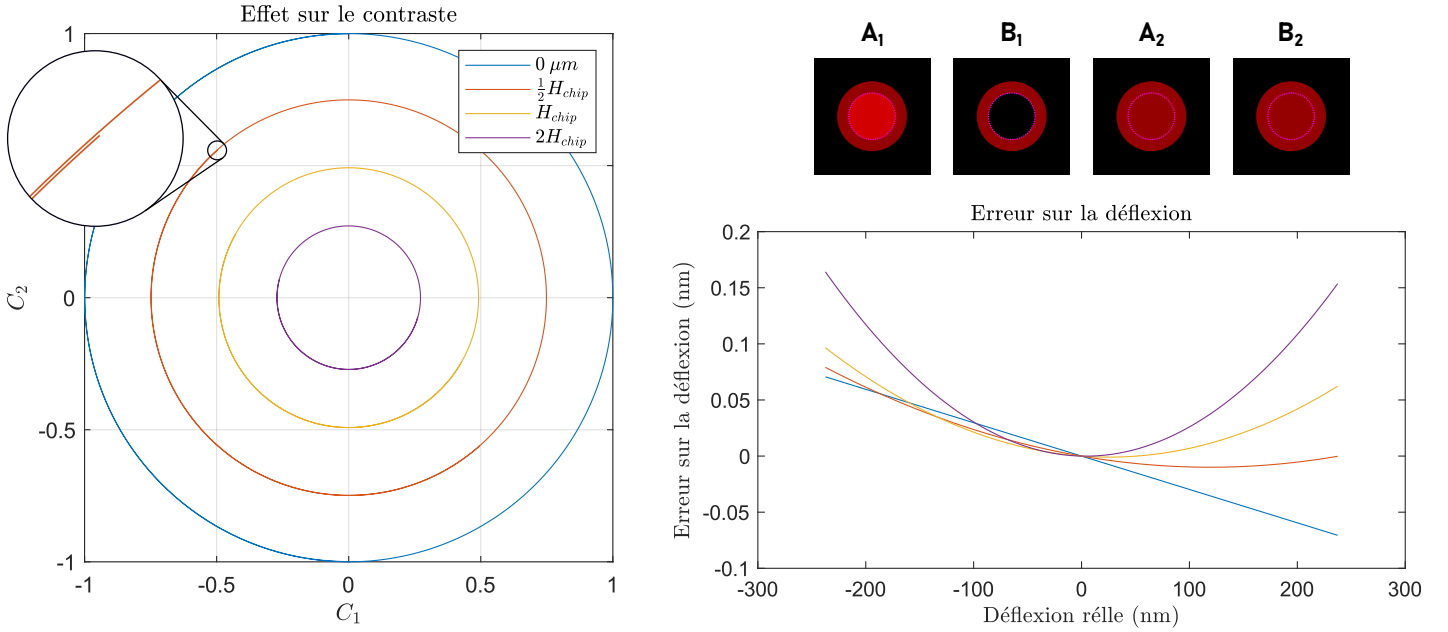


FIGURE 4.11 : Illustration de l'effet du décalage entre h_{ref} et h_{sonde} (ici appelée “marche”). La valeur $H_{chip} = 300\mu m$ est celle introduite en partie 4.2.1. L'erreur sur la déflexion est calculée en utilisant la formule (4.4) pour calculer la déflexion mesurée en sortie du dispositif et en la soustrayant à la déflexion réelle d du point considéré. On peut ainsi voir l'impact de ce paramètre sur la mesure, en l'occurrence une réduction de la norme du contraste. On peut aussi noter un léger caractère de spirale sur les trajectoire, que l'on voit sur l'agrandissement local du graphique de gauche. Les figures d'interférences en haut à droite correspondent à la vision simpliste de disques d'intensité uniforme, représentées pour $\theta = 0$.

On voit sur la Figure 4.11 que la taille du chip ($300,042 \mu m$) induit une diminution du contraste due à la différence de focalisation des deux faisceaux. Cependant l'impact sur la mesure de la déflexion reste très limité comme on le voit sur l'erreur sur la déflexion qui reste très faible par rapport à la valeur de la déflexion. Il est à noter que cette différence de focalisation, qui induit une différence de largeur de rayon incident, induit une perturbation du phénomène d'interférence.

En effet, si on reprend les considérations de la partie 4.2.1 et notamment si on regarde la Figure 4.3 on voit que si $R_{sonde} \neq R_{ref}$ on a l'intensité hors interférence $I_{reste} > 0$, ce qui d'après les équations (4.8) et (4.9) diminue d'autant la valeur absolue du contraste.

En considérant $\Theta_{sonde} = 0$ sur la Figure 4.2 on voit qu'on peut écrire :

$$R_{ref} = (f_0 - 2h_{ref}) \times \frac{R}{f_0} \quad (4.13)$$

$$R_{sonde} = (f_0 - 2h_{sonde}) \times \frac{R}{f_0}, \quad (4.14)$$

avec R le rayon du faisceau incident au niveau de la lentille. On a alors :

$$S_{reste} = |\pi R_{ref}^2 - \pi R_{sonde}^2| = \frac{R^2}{f_0^2} |h_{ref} - h_{sonde}| \times |h_{ref} + h_{sonde} - 4f_0| \quad (4.15)$$

Ici, $|h_{ref} - h_{sonde}|$ correspond aux valeurs explorées dans la Figure 4.11. Avec $H_{chip} \approx 300\mu m$ et $f_0 = 29mm$ on voit qu'on a toujours $f_0 \gg h_{ref} + h_{sonde}$. On a donc :

$$S_{reste} = 4 \frac{R^2}{f_0} |h_{ref} - h_{sonde}| \quad (4.16)$$

Au vu des liens entre S_{reste} et la norme du contraste $|C|$ expliqués dans la partie 4.2.1, on voit bien que l'augmentation de $|h_{ref} - h_{sonde}|$ conduit à une diminution du rayon de la trajectoire de contraste.

La courbe de l'erreur sur la mesure de la déflexion en fonction de la déflexion réelle que l'on peut voir à droite de la Figure 4.11 montre qu'il existe une erreur pour une marche nulle. Celle-ci est due à notre modèle de mouvement du levier qui intègre une variation de l'inclinaison Θ_{sonde} proportionnelle à la déflexion d (voir formule (4.12)). On a vu sur la Figure 4.9 que l'angle Θ_{sonde} avait un impact sur le contraste et on constate également que l'erreur est nulle en $d = 0$ où l'on a également $\Theta_{sonde} = 0$ d'après la formule (4.12) reliant Θ_{sonde} à la déflexion d . On voit d'ailleurs bien que cette erreur semble être proportionnelle à la déflexion.

Dans la suite on prendra toujours $h_{ref} = 0 \mu\text{m}$ et $h_{sonde} = -H_{chip}$.

4.2.2.2 Effet de la courbure statique du levier

Dans le cas de la présence d'une courbure statique Θ_0 sur le levier, l'inclinaison totale peut s'écrire :

$$\Theta_{sonde} = \Theta_{lev}^1(d) + \Theta_0,$$

avec Θ_{lev}^1 tel que défini par l'équation 4.12. Les simulations réalisées à partir de cette formule sont présentées sur la Figure 4.12.

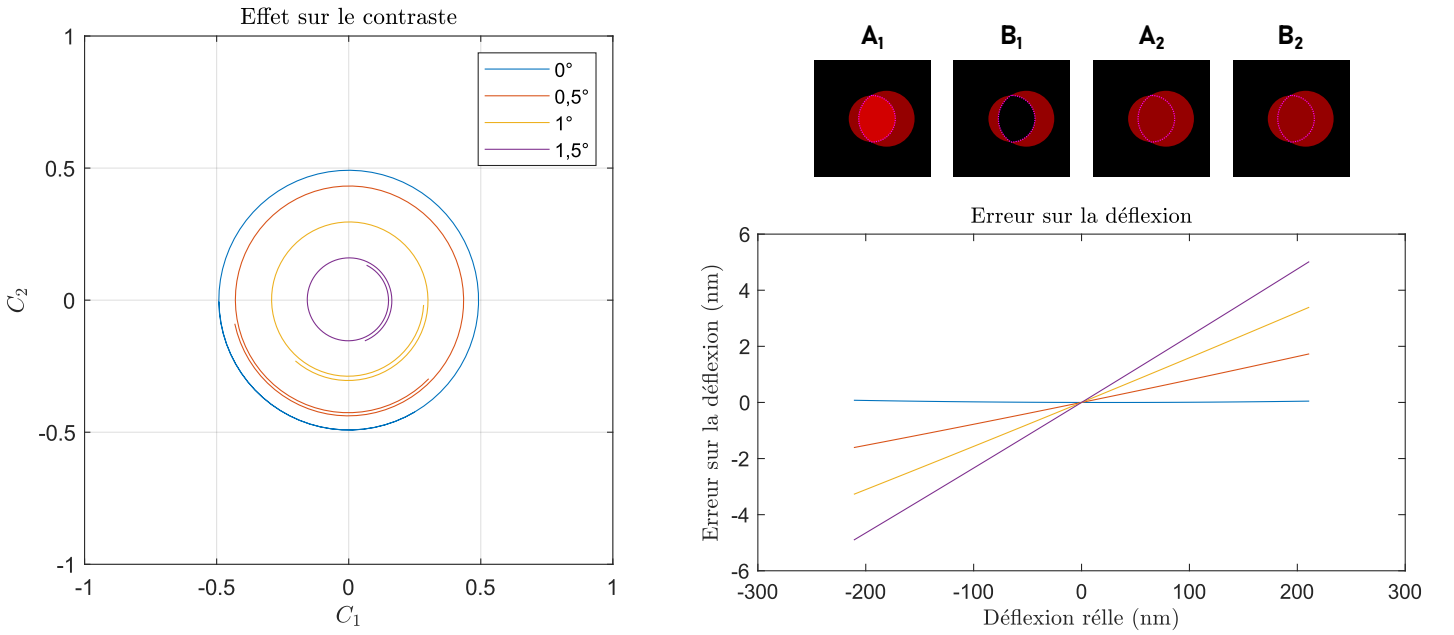


FIGURE 4.12 : Illustration de l'effet d'une courbure structurelle Θ_0 sur le contraste et sur l'erreur induite dans la mesure de la déflexion. On pose ici $\Theta_{sonde} = \Theta_{lev}^1(d) + \Theta_0$ et on fait varier la valeur de Θ_0 entre 0° et $1,5^\circ$. On voit que le cas $\Theta_0 = 0$ n'atteint pas le cercle unité car on a intégré le décalage H_{chip} .

On remarque en premier lieu la chute du contraste avec l'augmentation de Θ_0 . Ceci correspond aux observations intermédiaires sur les diodes présentées sur la Figure 4.9. L'effet de spirale peut également s'expliquer par le fait que lors de l'oscillation, la composante Θ_{lev}^i peut soit compenser soit aggraver l'inclinaison supplémentaire imposée Θ_0 selon le signe de d .

En effet le module du contraste dépend de la surface sur laquelle a lieu l'interférence (zone mauve de la Figure 4.3). D'après l'équation (4.6) et la Figure 4.4 le paramètre Δ_{centre} , influence très fortement la valeur de la surface de l'aire d'interférence illustrée dans la Figure 4.3. On sait de plus d'après la formule (4.5) que $\Delta_{centre} \propto \Theta_{sonde}$.

Ici, on simule une déflexion sinusoïdale d'environ 200 nm d'amplitude. En reprenant l'équation (4.12) on calcule pour un levier de 450 μm de long :

$$\Theta_{lev}^1 = (3,065 \cdot 10^3 \text{ rad/m}) \times d$$

On a donc une variation de Θ_{levier}^1 d'une amplitude autour de $6 \cdot 10^{-4}$ radians soit 0,04 degrés. Ceci signifie qu'on a $\Theta_{lev}^1 \ll \Theta_0$. De plus on a $f_0 \times \Theta_0 \approx 0,76 R_{ref}$. Si on se réfère à la Figure 4.4 on voit qu'on se trouve alors dans une zone où l'on peut considérer que :

$$S_{reste} \propto \Delta_{centre} \propto \Theta_0 + \Theta_{lev}^1(d). \quad (4.17)$$

Les variations légères de S_{reste} induisent des variations similaires de I_{reste} qui induisent elle-même, d'après les équations (4.8) et (4.9), une variation du module du contraste. Ces variations sont bijectives par rapport à la déflexion d , d'où l'observation de cet effet spiralé puisque la valeur $|C| = \sqrt{C_1^2 + C_2^2}$ varie de manière bijective avec d , c'est à dire avec φ . La distance au centre de C varie donc avec l'angle. Le fait qu'on n'observe pas, ou très peu, cet effet dans le cas où $\Theta_0 = 0$ est tout simplement dû à la différence entre R_{ref} et R_{sonde} induite par le chip qui fait que pour des variations de Δ_{centre} trop faible, on n'observe pas de variation de la surface d'interférence (voir le plateau central visible sur la Figure 4.4).

4.2.2.3 Effet du mode considéré

On a vu dans la partie 4.2.1 que la valeur de Θ_{sonde} dépend de la déflexion d mais aussi du mode auquel on excite le levier.

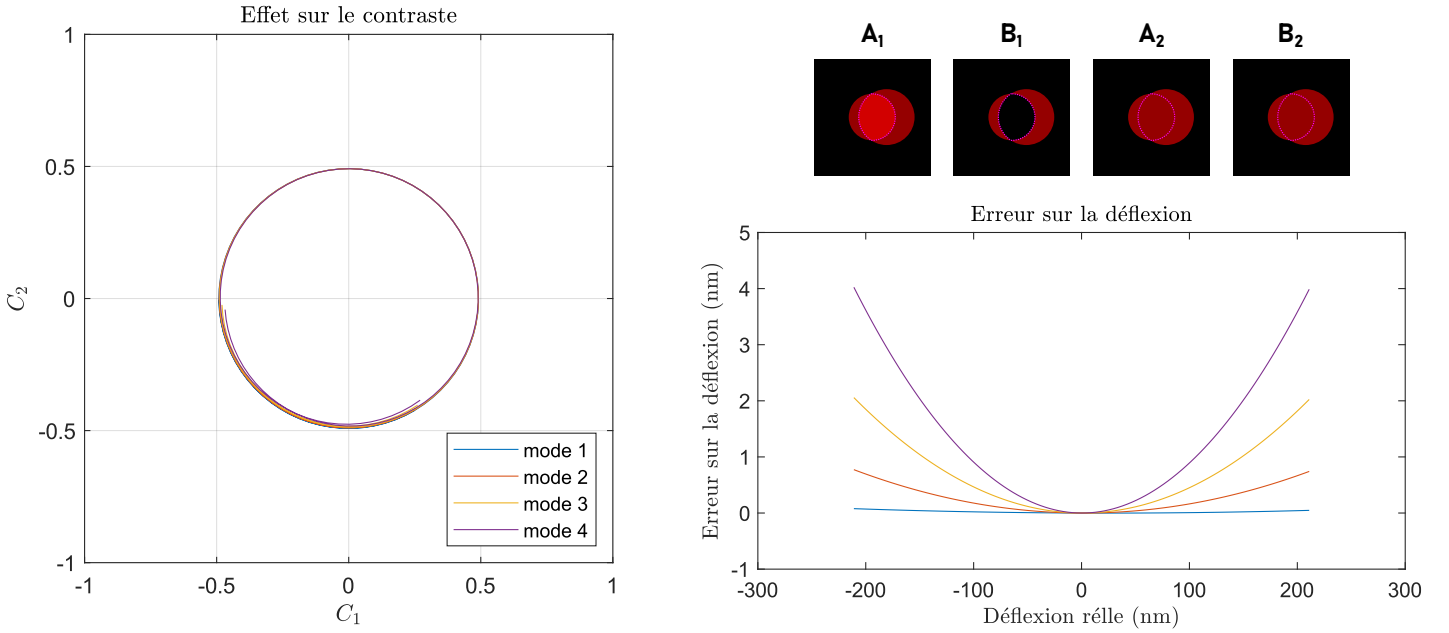


FIGURE 4.13 : Illustration de l'effet des différents modes d'oscillation du levier.

La Figure 4.10 illustre le fait que pour d fixé, on a :

$$|\Theta_{lev}^1(d)| < |\Theta_{lev}^2(d)| < |\Theta_{lev}^3(d)| < |\Theta_{lev}^4(d)|. \quad (4.18)$$

Ici on a directement $\Theta_{sonde} = \Theta_{lev}^i$ avec $i \in [1, 2, 3, 4]$, or d'après ce qui a été expliqué en partie 4.2.1, l'orientation à l'extrémité a tendance à réduire l'interférence entre les rayons sonde et référence, ce qui fait diminuer le contraste C . Comme $|\Theta_{lev}^i(d)|$ augmente avec la valeur de $|d|$ on s'attend à ce que le cercle du contraste ai tendance à se rétracter vers le centre pour les valeurs de d proches des extrêmes, ce qui est confirmé par les résultats des simulations présentés sur la Figure 4.13. On voit également sur cette figure que cet effet est d'autant plus important que le mode considéré est élevé, ce qui s'explique avec la relation (4.18).

4.2.2.4 Effet de diaphragme

Tous les défauts du contraste ne sont pas dûs à la géométrie du levier. Certains sont le résultat des imperfections du système optique. On a par exemple des distorsions de la trajectoire du contraste si les faisceaux sont diaphragmés par des ouvertures optiques insuffisantes ou des faisceaux mal centrés sur l'axe pour corriger d'autres problèmes d'alignement. On modélise ces imperfections en supposant que les diodes présentent des surfaces différentes pour la réception des faisceaux.

La Figure 4.14 illustre qu'une diminution de la surface de la diode 2 (soit une réduction de A_2 et B_2) induit un caractère elliptique de la trajectoire.

Du fait qu'on modifie uniquement la photodiode 2 seul le paramètre $C_2(d)$ change. On voit que la diminution de la surface conduit à une augmentation de C_2 pour $C_1 \approx -1$ et une diminution au niveau de $C_1 \approx 1$. Ceci

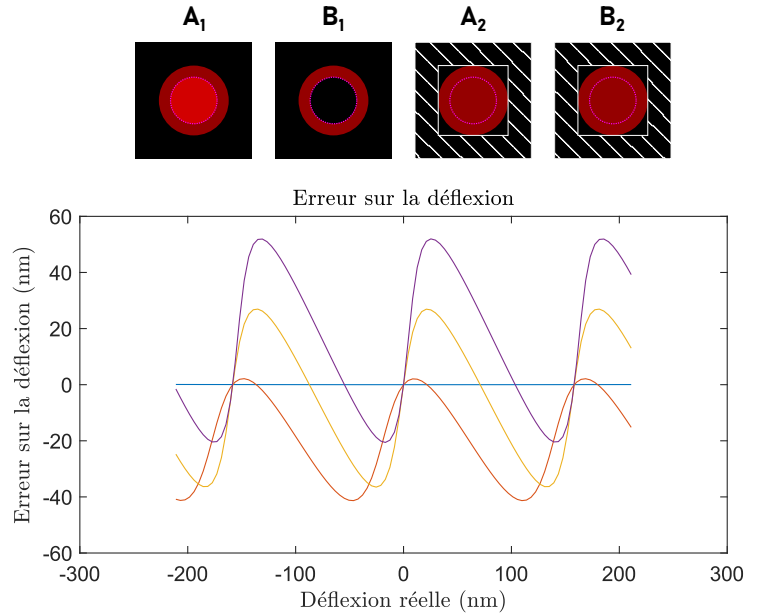
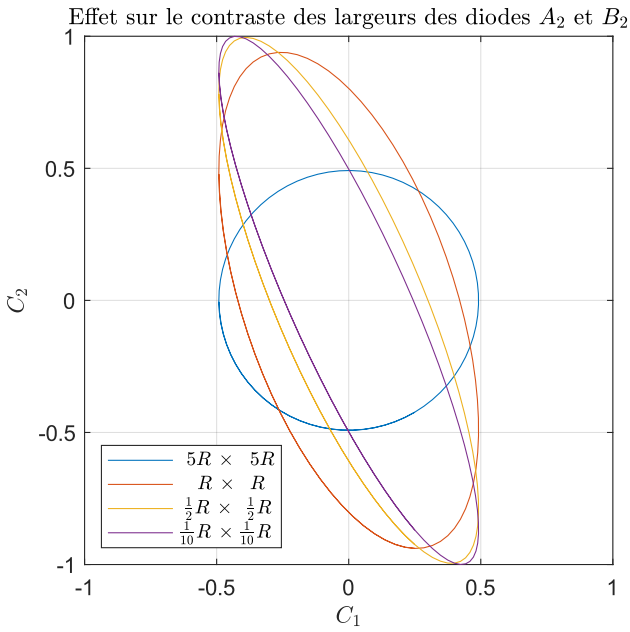


FIGURE 4.14 : Illustration de l'effet de l'occultation partielle d'un faisceau (diaphragme). On modélise ici les faisceaux centrés sur les photodiodes dont les dimensions sont ici exprimés en fonction du rayon R du faisceau incident au niveau de la lentille (voir Figure 4.5). Les dimensions des photodiodes A_1 et B_1 sont ici de $5R \times 5R$. Les dimensions des photodiodes A_2 et B_2 sont indiquées sur la légende.

peut se comprendre si on regarde les motifs d'interférences montrés sur la Figure 4.7. On voit sur ces figures que du fait de la différence de focalisation des rayons induites par la hauteur du chip, au niveau du point $C_1 \approx 1$ les motifs présents sur les diodes A_2 et B_2 sont de dimensions différentes malgré une intensité totale identique (on est au point $C_2 \approx 0$). De ce fait, on voit bien que lors de la réduction de la surface, l'intensité totale de l'une des deux décroît avant l'autre et la valeur de C_2 s'éloigne donc de sa valeur idéale nulle. On voit sur la Figure 4.7 que dans l'entourage de la région $C_1 \approx 1$ c'est la diode A_2 qui présente le motif le plus étalé et donc lors de la réduction de surface, la valeur de C_2 décroît ce qui est bien ce que l'on observe sur la Figure 4.14. De l'autre côté ($C_1 \approx -1$) la situation sera symétrique et cette fois la valeur de C_2 augmente avec la réduction de la surface.

Le fait que C_2 soit en mesure d'atteindre des valeurs plus importante que C_1 peut s'expliquer à l'aide des considération sur la relation entre le contraste et la valeur de la surface I_{reste} définie par l'équation (4.9) de la partie 4.2.1. En effet I_{reste} provient de la lumière des deux faisceaux qui rejoint la surface de la photodiode sans interférer. Si on se reporte à la Figure 4.3, on voit que I_{reste} provient de zones plus périphériques que la composante de l'intensité affectée par le phénomène d'interférence I_{interf} , d'autant plus qu'on a vu précédemment qu'avec une inclinaison $\Theta_{sonde} = \Theta_{lev}^1(d)$ le décalage Δ_{centre} reste très faible. De ce fait la réduction de la surface d'analyse fait s'effondrer la valeur de I_{reste} par rapport à celle de I_{interf} (puisque l'on a une bonne interférence au centre), ce qui rapproche la valeur de C_2 de son idéal ($I_{reste} = 0$).

Ceci a notamment été confirmé avec une simulation de la réduction de surface pour $H_{chip} = 0$ nm où la réduction de surface ne fait pas diverger la trajectoire de contraste du cercle unité.

4.2.2.5 Effet d'un défaut d'alignement

Un faisceau décentré par rapport à l'axe optique induit des changements de la trajectoire du contraste. L'effet de cette excentricité dépend de la direction considéré. On note \vec{x} l'axe selon lequel bouge le faisceau sonde suite à une déflexion du levier et \vec{y} l'axe perpendiculaire. L'axe \vec{x} correspond à l'axe du levier.

La Figure 4.15 présente les résultats de la simulation pour un faisceau décentré sur A_2 et B_2 selon l'axe \vec{y} d'une valeur variable (pour plus de clarté on l'a modélisé par un décalage de la surface des diodes en questions). On voit tout d'abord que l'effet du décalage de la diode 2 se rapproche de celui d'une réduction de la surface de cette même diode (voir Figure 4.14). En effet le décalage selon l'axe \vec{y} occulte une partie du faisceau gaussien, tout comme le fait la réduction de la surface.

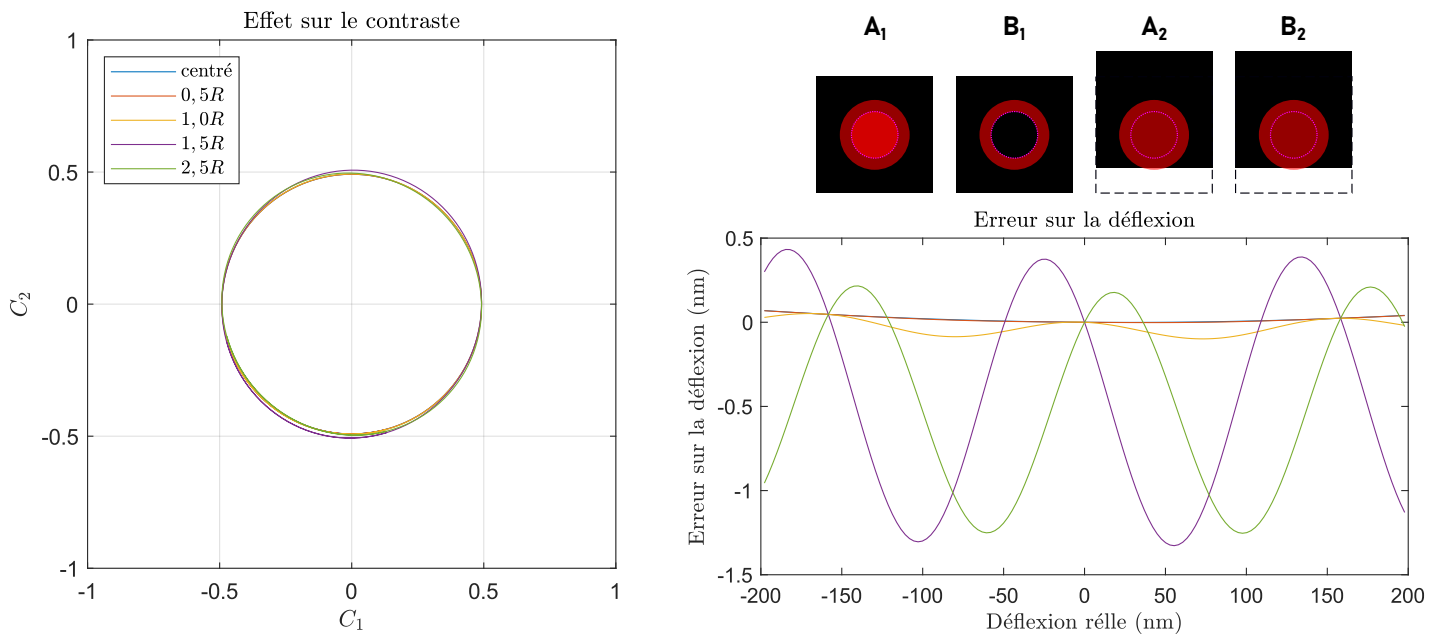


FIGURE 4.15 : Effet d'un décalage du centre de la diode 2 par rapport au centre du faisceau selon l'axe \vec{y} . On voit qu'ici l'effet est très analogue à ce que l'on peut voir pour une réduction de la surface d'analyse, l'erreur sur la déflexion présentant une structure analogue.

Cependant ici on n'a pas d'amélioration du module du contraste puisque le décalage diminue aussi bien l'intensité I_{interf} que I_{reste} contrairement au diaphragme qui diminuait plus sélectivement l'intensité parasite I_{reste} .

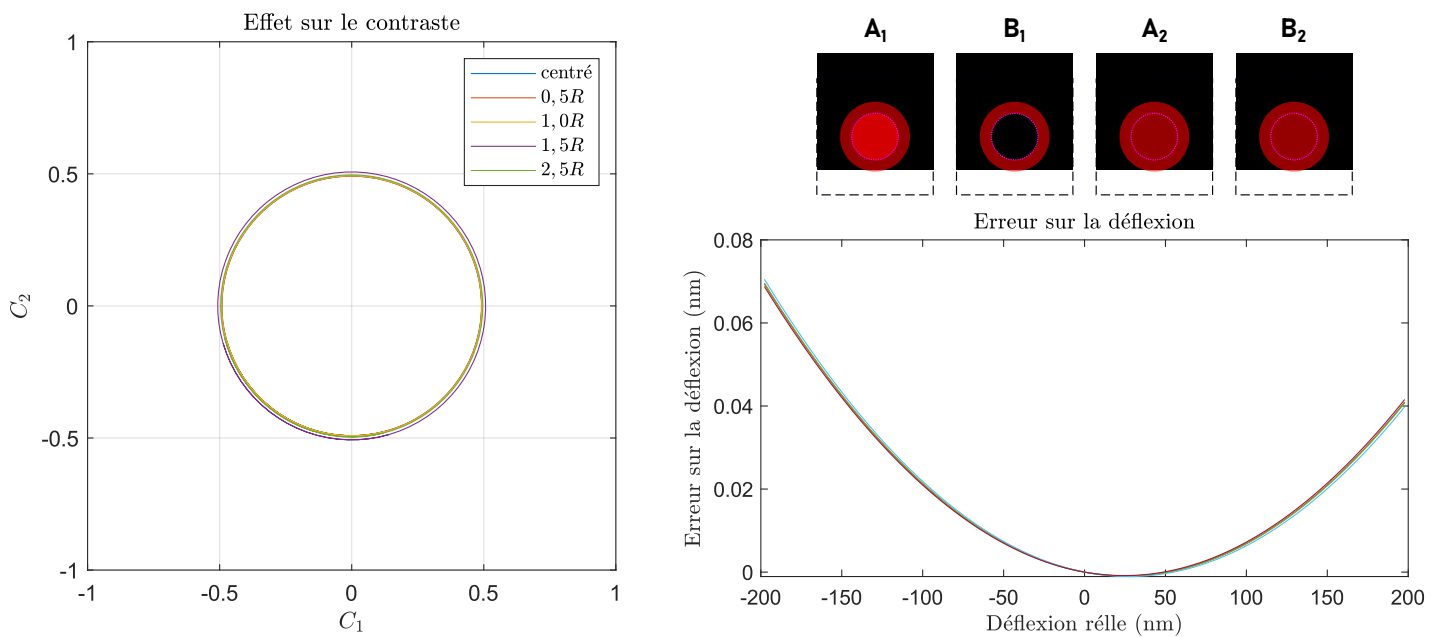


FIGURE 4.16 : Effet d'un décalage du centre des deux diodes par rapport au centre du faisceau selon l'axe \vec{y} .

Si on implémente ce même décalage sur les deux diodes on obtient des trajectoires de contraste circulaires qui réduisent en rayon à mesure que l'excentricité augmente. Ces effets sont néanmoins extrêmement réduits même pour un décalage de $2,5R$ qui correspond de fait à un centre du faisceau en bordure de diode.

Un décalage selon l'axe \vec{x} , comme dans les Figures 4.17 et 4.18, a en revanche des conséquences différentes. En effet cette fois le décalage de la surface des photodiodes par rapport au centre du rayon référence se fait dans le même axe que le décalage Δ_{centre} de la Figure 4.3. Comme précédemment, les effets sont assez faibles mais en regardant plus attentivement les trajectoires de contraste on peut y repérer un effet spirale absent des

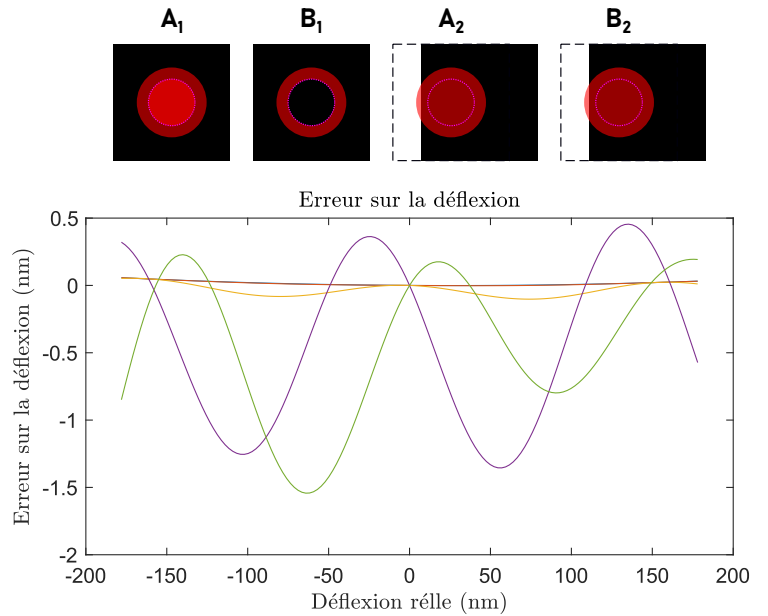
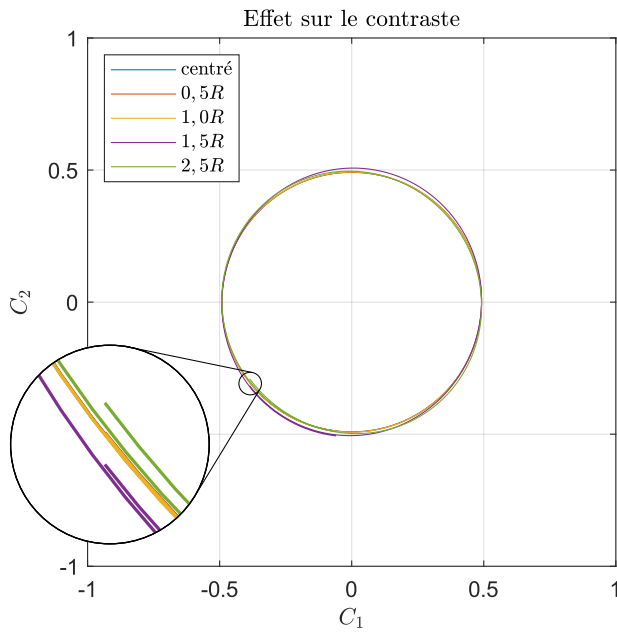


FIGURE 4.17 : Effet d'un décalage du centre de la diode 2 par rapport au centre du faisceau selon l'axe \vec{x} .

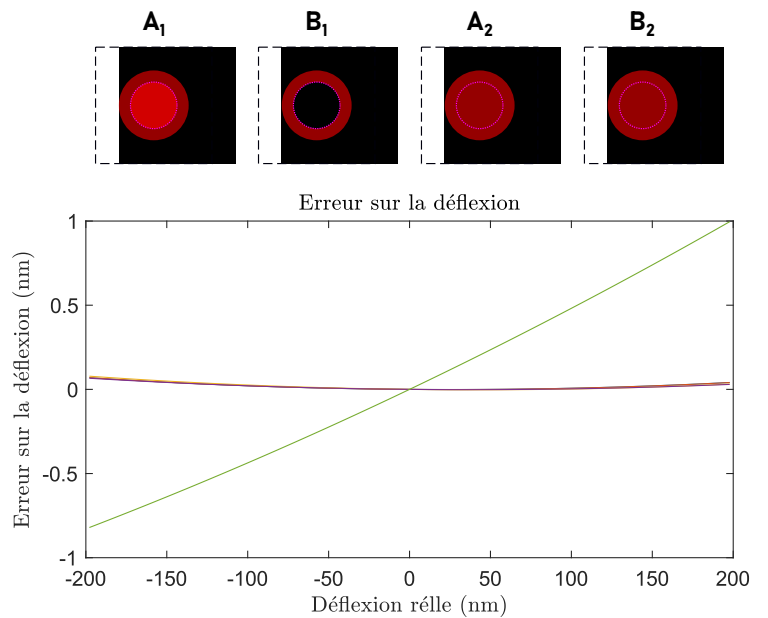
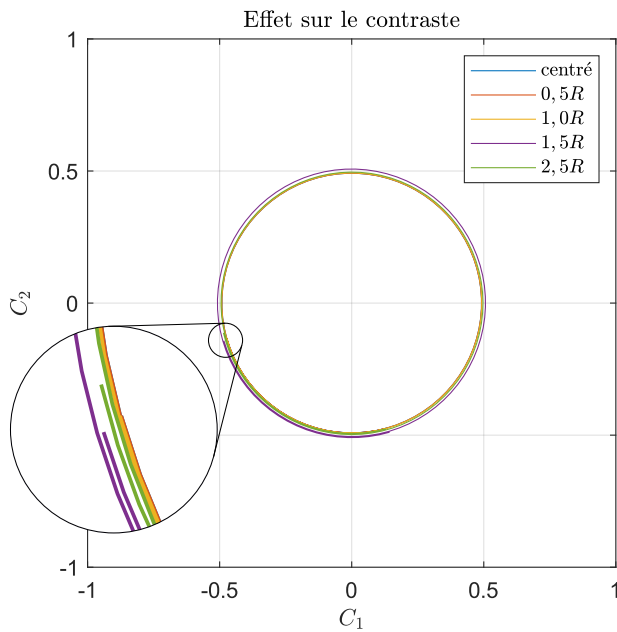


FIGURE 4.18 : Effet d'un décalage du centre des deux diodes par rapport au centre du faisceau selon l'axe \vec{x} .

Figures 4.15 et 4.16. L'effet spirale que l'on constate est dû au fait que contrairement au cas du décalage selon \vec{y} , ici le décalage induit une asymétrie dans l'évolution de la composante de l'intensité I_{reste} par rapport à Δ_{centre} selon que le faisceau sonde est décalé vers la surface de la photodiode ou au contraire en dehors de celle-ci. Cette asymétrie dans l'évolution de I_{reste} entraîne fatalement une asymétrie du contraste, et donc un effet spirale.

4.2.2.6 Effet d'un désaxage de la lame quart d'onde

L'ensemble des défauts de positionnement se traduit par les imperfections que nous venons d'étudier (décentrage des faisceaux, mauvaise focalisation, etc.), à l'exception d'un défaut, celui de l'orientation de la lame quart d'onde (voir le schéma de la Figure 3.13)

Si on reprend les formules explicitées dans la partie 3.7.3 on a avant passage par la lame quart d'onde un faisceau de la forme :

$$\vec{E}_7 = \frac{1}{2}E_{ref}\vec{x} + \frac{1}{2}E_{sonde}\vec{y}. \quad (4.19)$$

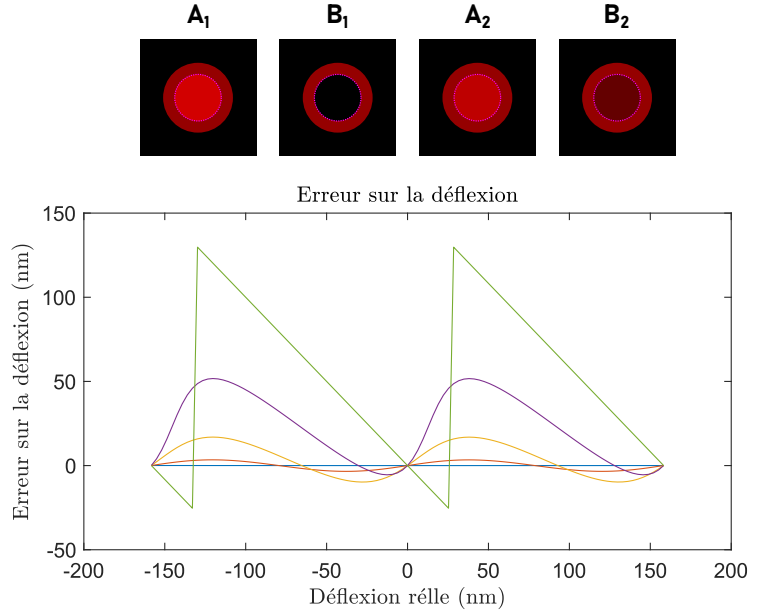
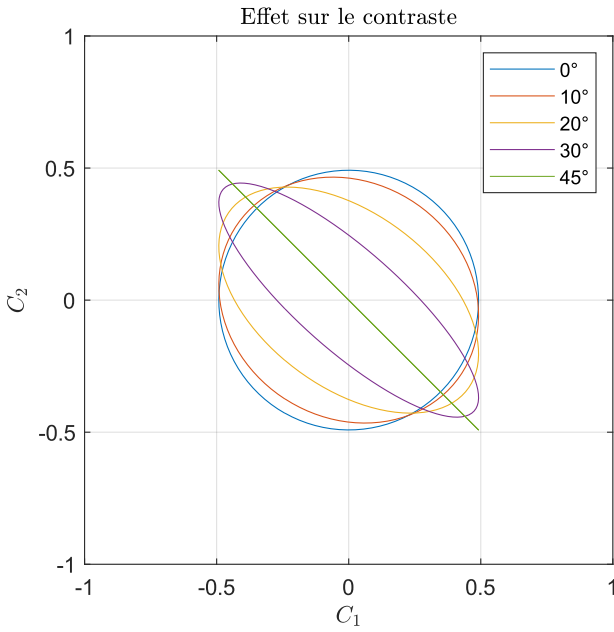


FIGURE 4.19 : Effet d'une inclinaison de la lame quart d'onde par rapport à l'inclinaison optimale. On voit que plus l'angle s'approche de 45° , plus la trajectoire de contraste se rapproche d'un segment dans l'axe $[C_x = -C_y]$.

Dans la partie 3.7.3 on a considéré que les axes de la lame quart d'onde étaient parfaitement alignés sur \vec{x} et \vec{y} . Ici on considère qu'il existe un décalage angulaire γ entre les deux ensembles d'axes. On note \vec{x}_λ et \vec{y}_λ les axes de la lame quart d'onde :

$$\vec{x}_\lambda = \cos \gamma \vec{x} - \sin \gamma \vec{y} \quad \vec{y}_\lambda = \sin \gamma \vec{x} + \cos \gamma \vec{y} \quad (4.20)$$

On a alors en sortie de la lame :

$$\vec{E}_7 = \frac{1}{2} E_{ref} \cos \gamma \vec{x}_\lambda + \frac{1}{2} E_{ref} \sin \gamma e^{i\frac{\pi}{2}} \vec{y}_\lambda - \frac{1}{2} E_{sonde} \sin \gamma \vec{x}_\lambda + \frac{1}{2} E_{sonde} \cos \gamma e^{i\frac{\pi}{2}} \vec{y}_\lambda \quad (4.21)$$

Si on l'écrit selon les axes \vec{x} et \vec{y} :

$$\begin{aligned} \vec{E}_7 = & \frac{1}{2} (E_{ref} \cos^2 \gamma + E_{ref} \sin^2 \gamma e^{i\frac{\pi}{2}} - E_{sonde} \sin \gamma \cos \gamma + E_{sonde} \cos \gamma \sin \gamma e^{i\frac{\pi}{2}}) \vec{x} \\ & + \frac{1}{2} (-E_{ref} \cos \gamma \sin \gamma + E_{ref} \sin \gamma \cos \gamma e^{i\frac{\pi}{2}} + E_{sonde} \sin^2 \gamma + E_{sonde} \cos^2 \gamma e^{i\frac{\pi}{2}}) \vec{y}. \end{aligned} \quad (4.22)$$

Or, d'après le fonctionnement des lames de calcites décrit dans la partie 3.7.2 :

$$\|\vec{E}_{A_2}\| = \frac{1}{\sqrt{2}} |\vec{E}_7 \cdot \vec{x} - \vec{E}_7 \cdot \vec{y}| \quad (4.23)$$

$$\|\vec{E}_{B_2}\| = \frac{1}{\sqrt{2}} |\vec{E}_7 \cdot \vec{x} + \vec{E}_7 \cdot \vec{y}|. \quad (4.24)$$

On voit que pour $\gamma = 0$ on retrouve alors les formules (3.10) et (3.11). Pour $\gamma = 90$ on a une inversion de C_2 et donc de la déflexion mesurée. Pour $\gamma = 45^\circ$ on a :

$$\vec{E}_7 = \frac{1}{4} (E_{ref} + E_{ref} e^{i\frac{\pi}{2}} - E_{sonde} + E_{sonde} e^{i\frac{\pi}{2}}) \vec{x} + \frac{1}{4} (-E_{ref} + E_{ref} e^{i\frac{\pi}{2}} + E_{sonde} + E_{sonde} e^{i\frac{\pi}{2}}) \vec{y}$$

C'est à dire :

$$\begin{aligned} \|\vec{E}_{A_2}\| &= \frac{1}{2\sqrt{2}} |E_{ref} - E_{sonde}| = \|\vec{E}_{B_1}\| \\ \|\vec{E}_{B_2}\| &= \frac{1}{2\sqrt{2}} |E_{ref} e^{i\frac{\pi}{2}} + E_{sonde} e^{i\frac{\pi}{2}}| = \frac{1}{2\sqrt{2}} |E_{ref} + E_{sonde}| = \|\vec{E}_{A_1}\|. \end{aligned}$$

On a donc $C_2 = -C_1$, ce que l'on peut voir sur la Figure 4.19. On voit sur cette figure qu'à mesure que l'angle augmente la trajectoire de contraste se rapproche de celle obtenue pour $\gamma = 45^\circ$ avec des ellipse de plus en plus étirées et dont le grand axe se rapproche de l'axe $(C_1 = -C_2)$.

4.3 Méthodes de correction

Nous montrons dans la partie précédente que les imperfections optiques peuvent impacter fortement la mesure, néanmoins ces imperfections dépendent uniquement du système optique et ne font donc que transformer le déphasage idéal φ en un décalage perçu θ par une fonction bijective. La connaissance de cette fonction de distorsion $\theta(\varphi)$ nous permettra alors de retrouver le déphasage exact, permettant une correction a posteriori de la mesure.

4.3.1 Correction de Heydemann

La méthode généralement utilisée pour corriger la valeur de θ est due à Heydemann^[42]. Elle consiste à exciter le levier de manière à parcourir une plage de valeur pour θ proche de 2π . Une ellipse est ajustée à cette trajectoire pour en extraire les paramètres géométriques qui sont utilisés pour obtenir $\theta(\varphi)$

4.3.1.1 Formulation

Dans le cas idéal, on est censé avoir un cercle unitaire :

$$C_1 = \cos \varphi \quad (4.25)$$

$$C_2 = \sin \varphi \quad (4.26)$$

Lorsque la trajectoire de contraste a une forme elliptique, on postule la forme paramétrique suivante pour décrire l'ellipse :

$$C_1 = \mathcal{C}_1 \cos \varphi + c_1^0 \quad (4.27)$$

$$C_2 = \mathcal{C}_2 \sin(\varphi + \Phi_0) + c_2^0 \quad (4.28)$$

avec \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 les paramètres réduisant la plage du contraste C_1 et C_2 respectivement, c_1^0 et c_2^0 les coordonnées du centre de l'ellipse. Le paramètre Φ_0 décrit le caractère elliptique de la trajectoire.

On a vu dans la partie 4.2.1 que \mathcal{C}_1 et \mathcal{C}_2 allaient être déterminés, en plus de la composante stable de la marche du chip, par la largeur des différentes surfaces d'analyses, ainsi que par leur excentricité par rapport aux rayons incidents. Φ_0 découle notamment de la position angulaire de la lame quart d'onde, d'un décentrage différent entre les deux diodes ou d'une différence de largeur de surface d'analyse. Les paramètres c_1^0 et c_2^0 représentent quant à eux des biais sur la valeur du contraste pouvant être dûs à de la lumière parasite inégalement présente sur les différentes surfaces d'analyse.

Ces relations s'inversent en :

$$\cos \varphi = \frac{C_1 - c_1^0}{\mathcal{C}_1} \quad (4.29)$$

$$\sin \varphi = \frac{1}{\cos \Phi_0} \left(\frac{C_2 - c_2^0}{\mathcal{C}_2} - \frac{C_1 - c_1^0}{\mathcal{C}_1} \sin \Phi_0 \right) \quad (4.30)$$

On retrouve alors la phase avec :

$$\varphi_{Heydemann} = \arctan \left(\frac{\frac{1}{\cos \Phi_0} \left(\frac{C_2 - c_2^0}{\mathcal{C}_2} - \frac{C_1 - c_1^0}{\mathcal{C}_1} \sin \Phi_0 \right)}{\frac{C_1 - c_1^0}{\mathcal{C}_1}} \right). \quad (4.31)$$

Pour retrouver la déflexion on a alors simplement :

$$d_{Heydemann} = \frac{\lambda}{4\pi} \varphi_{Heydemann} \quad (4.32)$$

Il suffit donc de connaître les cinq paramètres \mathcal{C}_1 , \mathcal{C}_2 , c_1^0 , c_2^0 et Φ_0 pour retrouver la déflexion réelle.

4.3.1.2 Mise en œuvre

En pratique on réalise une mesure initiale à grande amplitude C_0 afin d'avoir une trajectoire qui couvre suffisamment l'ellipse pour déterminer les cinq paramètres géométriques mentionnés plus haut.

Pour ajuster les paramètres $[\mathcal{C}_1, \mathcal{C}_2, c_1^0, c_2^0, \Phi_0]$ on part de :

$$\cos^2 \varphi + \sin^2 \varphi = 1 \quad (4.33)$$

ce qui d'après les expressions (4.27) et (4.28) nous permet d'écrire :

$$\frac{(C_1^n - c_1^0)^2}{\mathcal{C}_1^2} + \frac{1}{\cos^2 \Phi_0} \left(\frac{C_2^n - c_2^0}{\mathcal{C}_2} - \frac{C_1^n - c_1^0}{\mathcal{C}_1} \sin \Phi_0 \right)^2 = 1. \quad (4.34)$$

où C_1^n et C_2^n sont N points de mesures ($n \in [1, \dots, N]$) issus de la trajectoire de contraste sur une mesure initiale. L'ajustement des cinq paramètres se fait alors en minimisant la fonction f :

$$f : f(\mathcal{C}_1, \mathcal{C}_2, c_1^0, c_2^0, \Phi) = \sum_{n=1}^N \left| \left(\frac{C_1^n - c_1^0}{\mathcal{C}_1} \right)^2 + \frac{1}{\cos^2 \Phi_0} \left(\frac{C_2^n - c_2^0}{\mathcal{C}_2} - \frac{C_1^n - c_1^0}{\mathcal{C}_1} \sin \Phi_0 \right)^2 - 1 \right| \quad (4.35)$$

Une fois les paramètres trouvés, on peut retrouver la déflexion corrigée à partir des équations (4.31) et (4.32).

4.3.2 Calibration harmonique

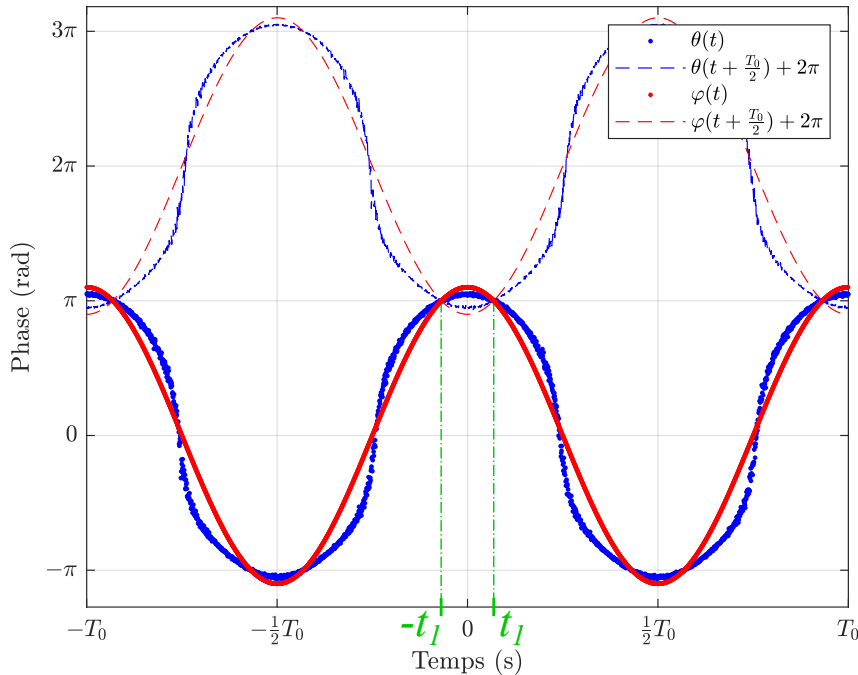


FIGURE 4.20 : Illustration de la méthode de calibration harmonique.

La correction de Heydemann peut être extrêmement efficace mais uniquement dans les cas où la trajectoire du contraste ($C_1(d), C_2(d)$) décrit une forme elliptique. Dans le cas plus général où cette trajectoire décrit une forme quelconque fermée, nous proposons une nouvelle méthode : la calibration harmonique. Elle repose sur la périodicité du contraste par rapport à d .

Pour cette méthode on applique au levier une excitation sinusoïdale de fréquence connue via le piézoélectrique qui y est accolé (cf Figure 3.11). On considère que la réponse du levier à l'excitation mécanique est linéaire. La déflexion d résultante est donc de la forme :

$$d = d_0 \cos(\omega_0 t), \quad (4.36)$$

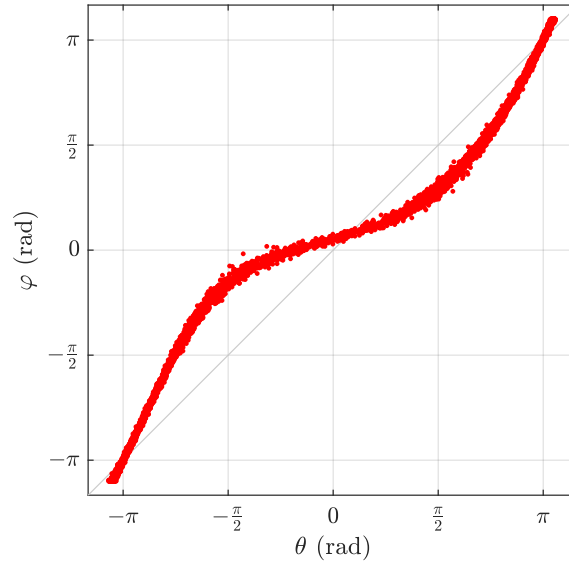


FIGURE 4.21 : Tracé de φ en fonction de θ , les eux étant paramétrés par le temps. Les points sont issus de la même mesure que ceux de la Figure 4.20.

ce qui nous donne une phase optique φ :

$$\varphi_{harm}(t) = \frac{2\pi}{\lambda} d_0 \cos(\omega_0 t) = A_0 \cos(\omega_0 t). \quad (4.37)$$

On note T_0 la période associée à la pulsation ω_0 . On excite le levier de façon à avoir $A_0 > \pi$, ce qui correspond à une trajectoire de contraste fermée. La mesure nous donne alors l'angle polaire $\theta(t)$ d'après l'équation (4.3).

On sait que θ et φ sont tous deux définis modulo 2π et liés par une fonction bijective. Par conséquent $\theta(\varphi = \pi) = \theta(\varphi = -\pi) + 2\pi$. Si on pose t_1 l'instant pour lequel $\varphi(t_1) = \pi$ on a :

$$\theta(t_1) = \theta(t_1 + \frac{T_0}{2}) + 2\pi. \quad (4.38)$$

Donc t_1 est l'intersection de $\theta(t)$ et de $\theta(t + \frac{T_0}{2}) + 2\pi$. La Figure 4.20 en donne une illustration. On peut par conséquent en déduire la valeur de l'amplitude A_0 :

$$A_0 = \frac{\pi}{\cos(\omega_0 t_1)}, \quad (4.39)$$

et donc :

$$\varphi_{harm}(t) = \frac{\pi}{\cos(\omega_0 t_1)} \cos(\omega_0 t). \quad (4.40)$$

On a donc une mesure de $\theta(t)$ et la connaissance de $\varphi(t)$ sur une plage plus large que $[-\pi; \pi]$. Le tracé de φ en fonction de θ (voir Figure 4.21), les deux étant paramétrés par le temps, nous permet d'estimer la bijection Φ_{harm} :

$$\Phi_{harm} : \theta(t) \longmapsto A \cos(\omega_0 t) \quad (4.41)$$

que l'on peut appliquer aux futures mesures $\theta(t)$ pour retrouver $\varphi(t)$ et donc la déflexion :

$$d_{harmonique} = \frac{\lambda}{4\pi} \times \Phi_{harm} \left(\arctan \left(\frac{C_1}{C_2} \right) \right) \quad (4.42)$$

4.3.3 Calibration par minimisation de la distorsion harmonique

La calibration par minimisation de la distorsion harmonique numérique est une variante de la calibration harmonique qui évite la recherche de l'intersection de 2 courbes. Tout comme pour la méthode dont elle est issue, on part d'une excitation mécanique sinusoïdale du levier qui induit une réponse que l'on considère comme linéaire.

On cherche donc à déterminer la seule inconnue de l'expression du déphasage $\varphi(t) = A \cos(\omega_0 t)$, son amplitude A : Une estimation préliminaire de A est donnée par :

$$A_i = \frac{\max(\theta) - \min(\theta)}{2}. \quad (4.43)$$

Pour toute valeur de A , nous pouvons comme précédemment estimer la fonction bijective Φ_A qui fait correspondre sur la plage $[-\pi, \pi]$ le signal mesuré $\theta(t)$ au signal théorique $\varphi(t) = A \cos(\omega_0 t)$. Si A est mal choisi, Φ_A présentera des discontinuités en $\theta = \pm\pi$ comme on peut le voir sur la Figure 4.22. Le signal reconstruit $\Phi_A(\theta(t))$ présentera de même des discontinuités temporelles périodiques, qui se traduiront par la création d'harmoniques de la pulsation ω_0 imposée. La minimisation de l'amplitude de ces harmoniques permet de déterminer la valeur réelle A_0 . On utilise pour cela le Taux de Distorsion Harmonique (THD) défini par :

$$\text{THD}(S) = \frac{\sum_{k=2}^{\infty} \bar{S}(k f_0)}{\bar{S}(f_0)} \quad (4.44)$$

avec \bar{S} la densité spectrale de puissance du signal S .

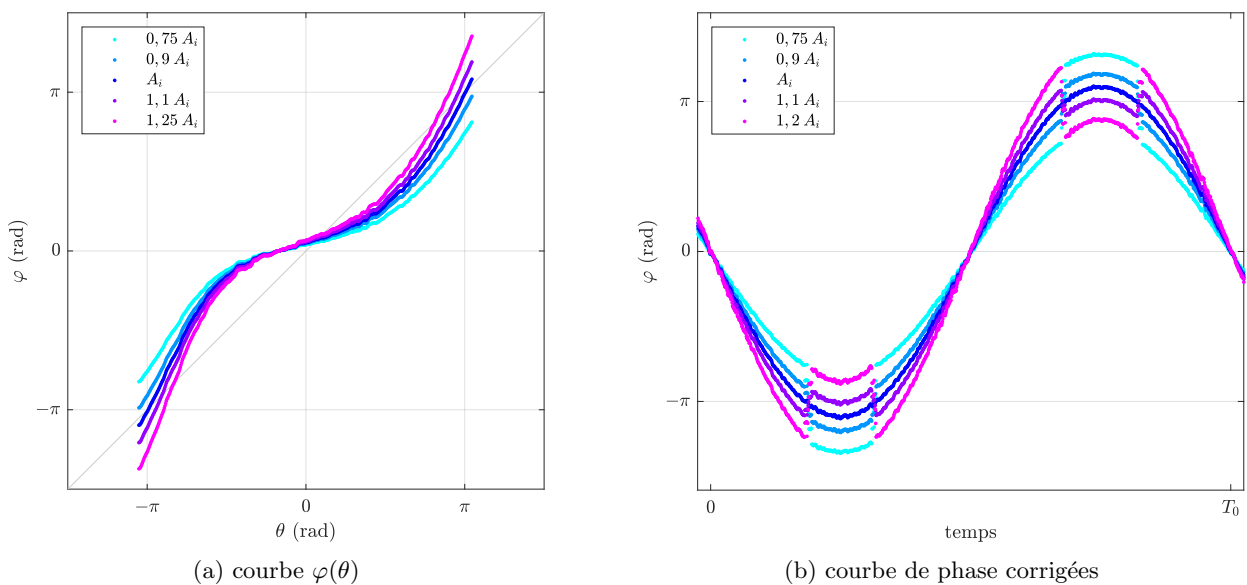


FIGURE 4.22 : Illustration de l'effet de l'amplitude A choisie avec quelques valeurs autour de $A_i = \frac{\max(\theta) - \min(\theta)}{2}$. Sur le tracé de φ en fonction de θ à gauche on peut voir que pour des amplitudes mal ajustées la courbe $\varphi(\theta)$ ne passe pas par les points (π, π) et $(-\pi, -\pi)$. Ceci crée des discontinuités périodiques sur la courbe corrigée, comme on peut le voir sur la figure de droite.

La valeur de $A_{min\ dist}$ que l'on gardera pour définir $\varphi_{min\ dist}(t)$ est celle qui correspond au minimum du THD. En traçant $\varphi_{min\ dist}(t)$ selon $\theta(t)$, on peut alors définir la fonction :

$$\Phi_{min\ dist} : \theta(t) \longmapsto \varphi_{min\ dist}(t) = A_{min\ dist} \cos(\omega_0 t) \quad (4.45)$$

qui permet de reconstruire la déflexion en partant de la mesure via :

$$d_{min\ dist} = \frac{\lambda}{4\pi} \times \Phi_{min\ dist} \left(\arctan \left(\frac{C_1}{C_2} \right) \right) \quad (4.46)$$

4.3.4 Vue générale des fonctions de corrections

On a donc ici trois fonctions de correction différentes.

La correction de Heydemann est la plus directe mais part du principe que les imperfections optiques donnent à la trajectoire de contraste une forme elliptique. Expérimentalement, on a pu fréquemment observer des formes

beaucoup plus diverses (voir à ce sujet la Figure 4.1). Cette méthode risque donc de s'avérer insuffisante dans les cas les plus extrêmes.

La calibration harmonique, à l'inverse, pose des conditions moindres en terme de forme de la trajectoire mais nécessite néanmoins de pouvoir exciter le levier suffisamment pour pouvoir dépasser l'amplitude de $\frac{\lambda}{2}$ nécessaire pour obtenir une trajectoire fermée pour la calibration. Le fait d'avoir cette trajectoire fermée demande également de ne pas avoir de distorsions donnant un caractère spirale trop prononcé.

La calibration par minimisation de la distorsion demande encore moins que la calibration harmonique en terme de conditions. La trajectoire de contraste peut-être fortement distordue et même spiralee. Il faut toujours avoir une courbe de contraste balayant $[-\pi, \pi]$ pour θ .

Les avantages de ces deux dernières méthodes restent cependant à tempérer par leurs performances effectives en situation réelle.

4.4 Techniques de comparaisons des méthodes

Nous avons présenté dans la partie précédente différentes méthodes de correction des imperfections optiques. Il convient désormais de déterminer leurs performances relatives.

Nous utilisons pour cela trois techniques : la visualisation des fonctions de calibration, la comparaison des THD, et enfin un test direct de la linéarité.

La procédure est commune à toutes les méthodes de calibration : dans une première étape (la calibration à proprement parler), nous excitons le levier avec une grande amplitude pour produire une trajectoire de contraste fermée. Ce jeu de données est utilisé pour créer la fonction $\Phi(\theta)$ qui permet de reconstruire φ . Dans un second temps, on utilise cette fonction Φ sur de nouvelles mesures, à des amplitudes ou des fréquences de sollicitation différentes. La fidélité du signal reconstruit à celui imposé caractérise la performance de la méthode de calibration.

Pour réaliser ces mesures on a utilisé des leviers long, comme les leviers A des chips ElectriAll-In-One[®] de Budget Sensors décrits en partie 5.1.1 ou d'autres leviers de caractéristiques similaires. Ils présentent en général une longueur entre 400 et 500 μm pour des fréquences de résonances entre 10 et 15 kHz. L'utilisation de leviers longs permet des déflexions plus importantes et donc l'obtention plus facile d'ellipses fermées. De plus, un levier à faible fréquence de résonance (ce qui est corrélé à sa longueur) nous permettra une meilleure exploration des différentes harmoniques.

4.4.1 Fonction de calibration

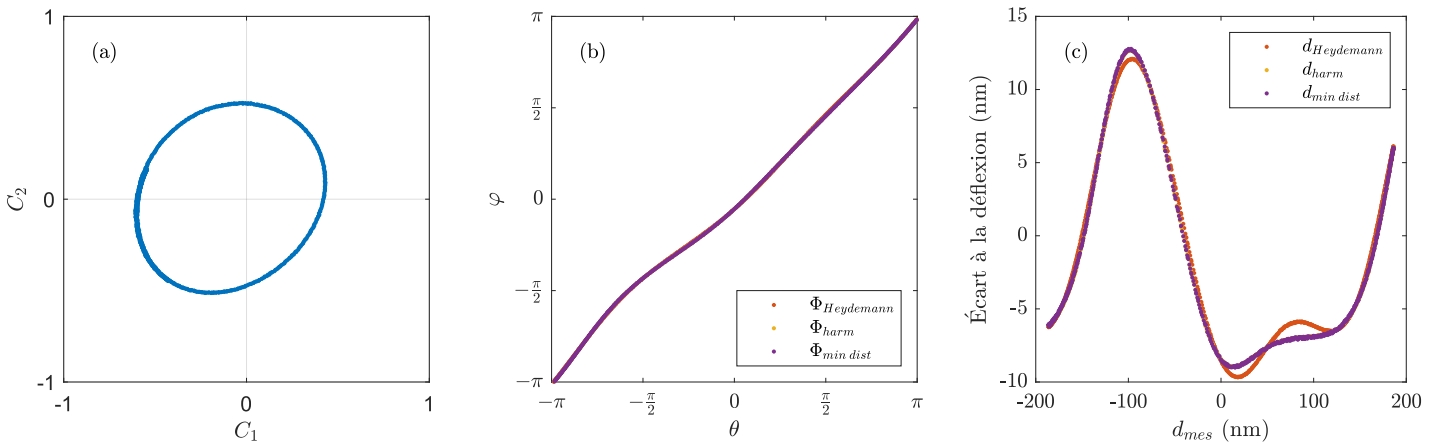


FIGURE 4.23 : Exemple de courbes $\varphi(\theta)$. (a) Trajectoire de contraste qui s'éloigne d'une simple ellipse. (b) Illustration des différentes fonctions $\Phi : \theta \mapsto \varphi$. (c) Écart de la déflexion corrigée à la mesure brute d_θ . Les méthodes harmoniques et de minimisation de la distorsion sont très proches mais différent légèrement de la méthode de Heydemann.

Dans un premier temps nous présentons les effets des algorithmes de correction sur la mesure de la déflexion. Les Figures 4.23 et 4.24 sont organisées de la façon suivante : (a) Trajectoire du contraste illustre la série de valeurs prises par C lors de la mesure, (b) Relation entre φ et θ avec en abscisse la mesure θ définie par

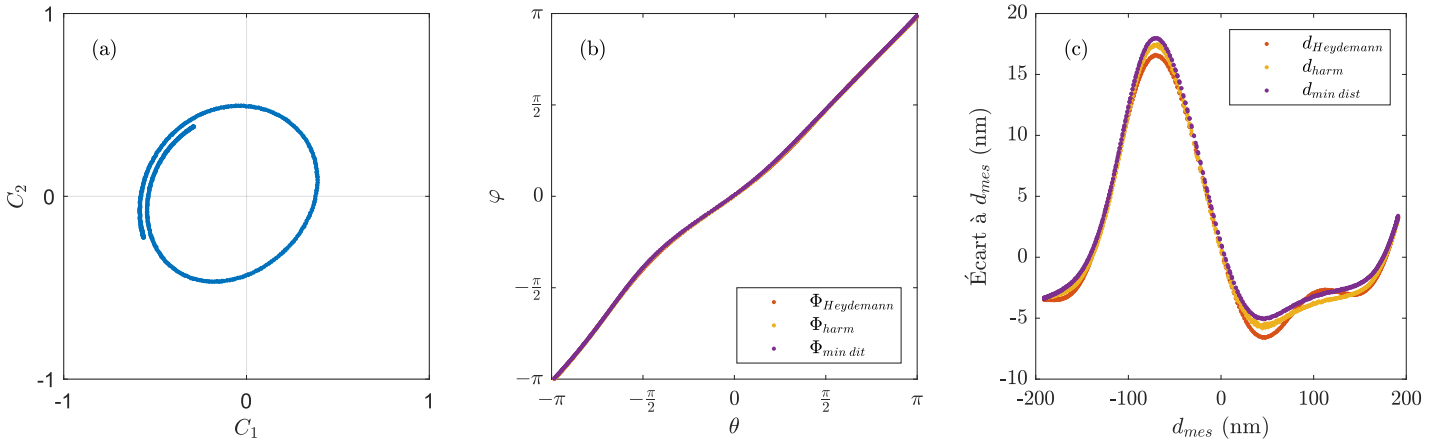


FIGURE 4.24 : Exemple de courbes $\varphi(\theta)$. (a) Trajectoire de contraste. (b) Illustration des différentes fonctions $\Phi(\theta)$. (c) Écart de la déflexion corrigée à la mesure brute d_θ . Pour cette série de mesure on a volontairement dégradé les réglages du prisme de Wollaston afin d’avoir une trajectoire de contraste en forme de spirale. On voit qu’alors la réponse de la correction par minimisation de la distorsion est différente de celle de la correction harmonique simple. Cette série de mesure a été prise le même jour que celle présentée sur la Figure 4.23, ce qui explique la proximité des courbes présentées puisqu’en dehors du prisme de Wollaston que l’on a intentionnellement dérégulé, le reste des paramètres optiques est resté inchangé.

l’expression (4.3) et en ordonnée les valeurs $\varphi_{Heydemann}$, φ_{harm} et $\varphi_{min\ dist}$ telles que définies par les expressions (4.31), (4.41) et (4.45) respectivement, (c) Écart de la déflexion corrigée à la déflexion ”brute” d_{mes} . Les trois courbes représentées sont donc $(d_{Heydemann} - d_{mes})$, $(d_{harm} - d_{mes})$ et $(d_{min\ dist} - d_{mes})$.

Les Figures 4.23 et 4.24 nous montrent des éléments différenciant les différentes méthodes de correction. On voit notamment que pour les trajectoires fermées les méthodes de correction harmoniques et harmoniques numériques sont indistinguables.

4.4.2 Taux de distorsion harmonique

L’étude des courbes $\varphi(\theta)$ est intéressante à titre qualitative mais elle ne nous renseigne pas sur l’efficacité relative des différentes méthodes comme on peut le voir sur la Figure 4.25. Pour cela on a besoin de créer une mesure du caractère sinusoïdal de la déflexion calculée.

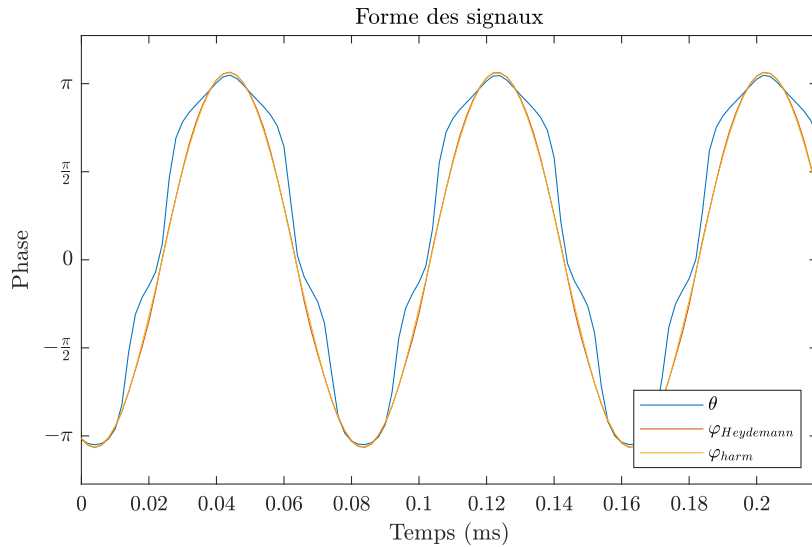


FIGURE 4.25 : Signal utilisé pour illustrer le fonctionnement du THD. Ce signal a été obtenu par l’excitation du levier à sa fréquence de résonance fondamentale à 12 588 Hz. Si on voit bien ici que les méthodes de correction de Heydemann et harmonique nous rapprochent de la sinusoïdale théorique, les deux méthodes sont difficiles à distinguer.

4.4.2.1 Principe

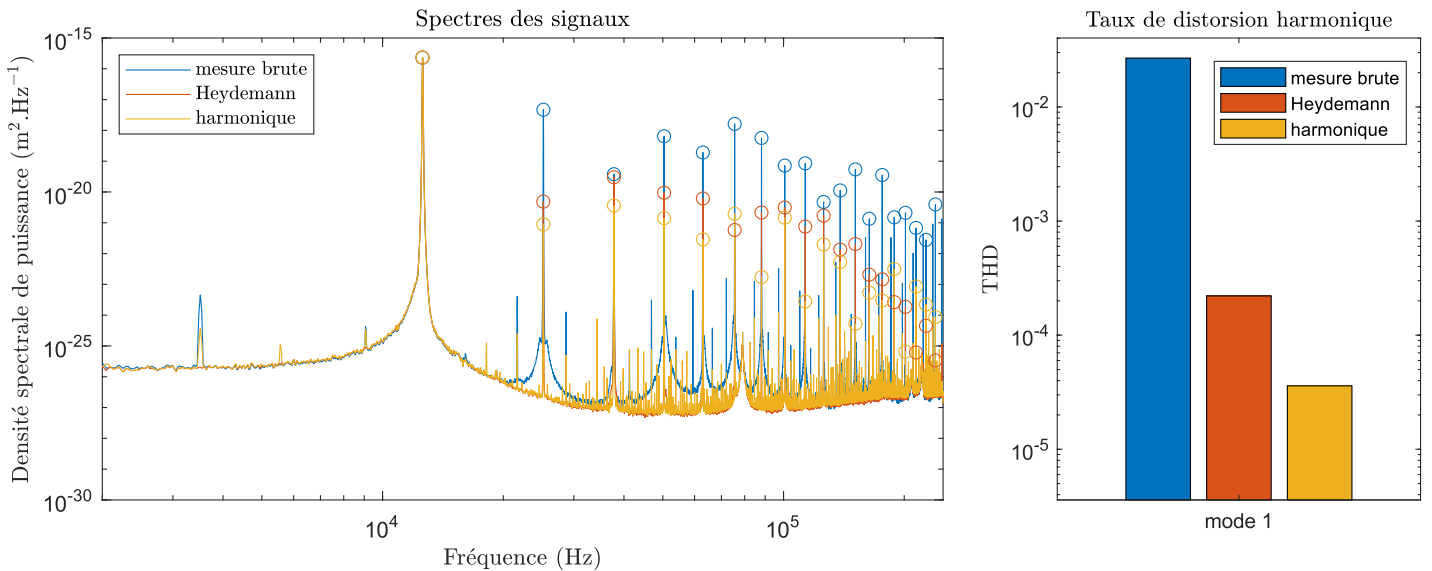


FIGURE 4.26 : Illustration du principe de calcul du taux de distorsion harmonique (THD). Les données utilisées ici sont les mêmes que pour la Figure 4.25. Sur la figure du spectre les pics harmoniques sont marqués d'un \circ de la couleur correspondante. Ces pics marquent la valeur du signal aux fréquences kf_0 utilisées dans l'expression du THD (4.44). Le taux de distorsion harmonique ainsi calculé démontre bien que la méthode harmonique s'approche d'avantage de la sinusoïde que la méthode de Heydemann, chose qu'il est difficile d'appréhender par une simple observation qualitative du signal temporel.

Pour déterminer l'écart au caractère sinusoïdal d'un signal $S(t)$ donné on utilise le taux de distorsion harmonique (THD) défini par l'équation (4.44) de la partie 4.3.3. On pose f_0 la fréquence du signal d'excitation ayant généré S . Dans les cas considéré f_0 sera de fait la composante fréquentielle principale de S . Toute non-linéarité lors de la création du signal S crée des composantes harmoniques de fréquence kf_0 , $k \in \mathbb{N}$ et $k \geq 2$. Plus le signal sera proche d'une sinusoïde, plus ces composantes (et donc le THD) seront faibles. Comme indiqué dans l'équation (4.44), le THD dépend de la densité spectrale de puissance \bar{S} . En pratique, celle-ci est calculée par la méthode de Welch, implémentée par Matlab[®]. La valeur du spectre en chaque fréquence kf_0 est obtenue via une intégration sur un petit intervalle autour du pic afin de s'affranchir des imprécisions dues à la discrétisation en fréquence.

Le calcul du THD des valeurs de φ calculées selon différentes méthodes de correction nous permet de les comparer.

4.4.3 Test direct de linéarité de la mesure

Une dernière méthode pour estimer les distorsions de la mesure et l'efficacité des algorithmes de correction consiste à imposer une oscillation de faible amplitude, constante, et à vérifier que l'amplitude mesurée est bien indépendante du point de travail.

4.4.3.1 Principe

Cette méthode consiste, une fois la calibration réalisée, à soumettre le levier à une excitation à deux fréquences. On superpose une oscillation de grande amplitude à basse fréquence f_b et une oscillation de faible amplitude à plus haute fréquence f_m . Il s'agit ici de faire parcourir au déphasage θ l'intégralité des valeurs possibles, en l'occurrence $[-\pi; \pi]$, tout en ayant une oscillation mécanique assez faible pour tester la linéarité. L'idée est ici de regarder l'évolution de l'amplitude de l'oscillation haute fréquence en fonction de la déflexion basse fréquence. Les non-linéarités du montage optique font varier la valeur de cette amplitude comme on peut le voir illustré sur la Figure 4.28.

En fixant l'amplitude haute fréquence par une excitation mécanique contrôlée, la mesure des variations de l'amplitude du signal d_{mes} à cette fréquence nous informe de l'existence d'imperfections et la réduction de ces

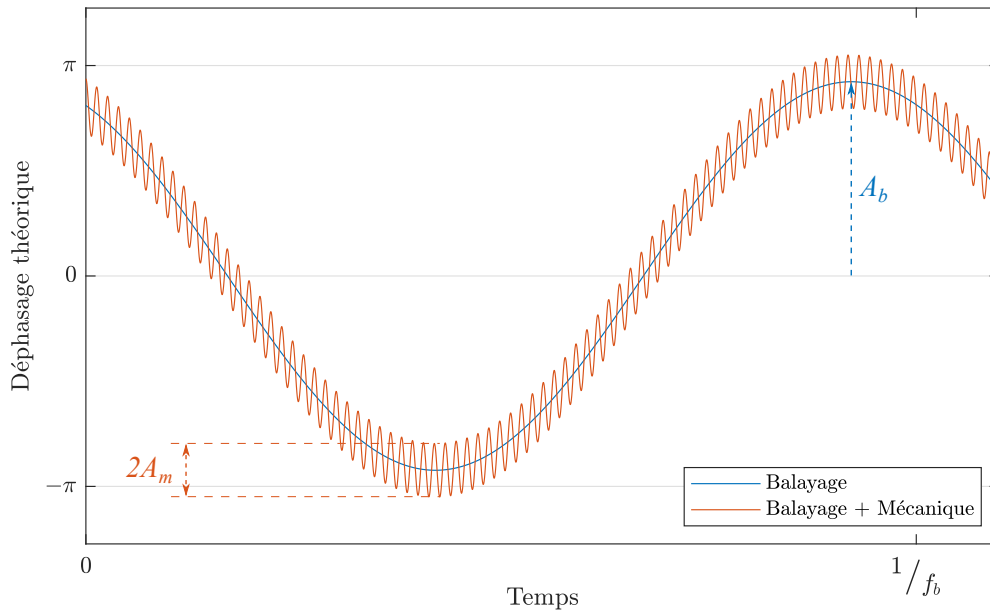


FIGURE 4.27 : Illustration du principe de la double excitation. L'excitation de balayage (en bleu) permet de parcourir la majorité de la plage de valeurs du déphasage. On y ajoute l'excitation mécanique haute fréquence pour obtenir le signal rouge. À noter qu'il s'agit ici d'une simple illustration pour la compréhension, dans la pratique l'écart entre les deux fréquences sera beaucoup plus important. On note A_b l'amplitude et f_b la fréquence du balayage (en bleu) et A_m l'amplitude et f_m la fréquence de l'oscillation mécanique (en rouge).

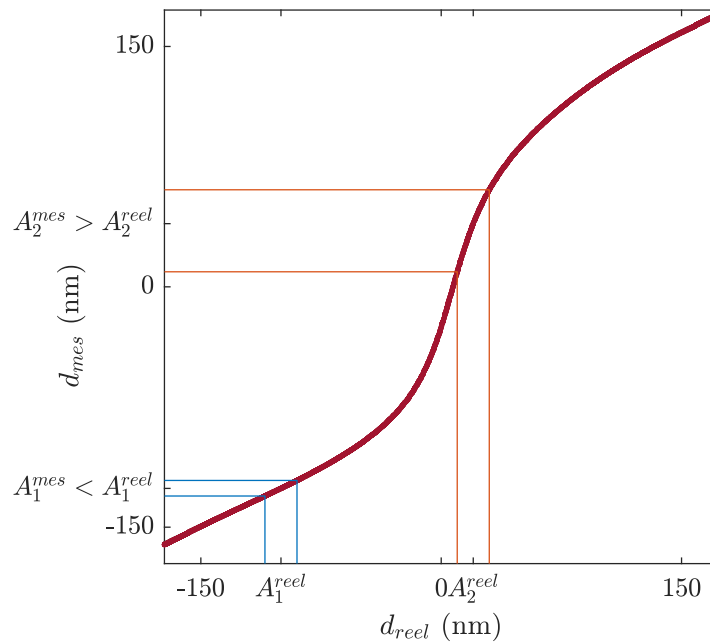


FIGURE 4.28 : Illustration de la distorsion d'amplitude pour une calibration non linéaire. On représente deux amplitudes d'oscillation A_1 et A_2 centrés sur deux déflexions moyennes différentes. On impose $A_1 = A_2$ sur le signal réel mais la non-linéarité de la calibration déforme les signaux et la mesure estime $A_2^{mes} > A_1^{mes}$. Ces deux amplitudes correspondent à l'amplitude locale du signal haute fréquence en deux points différents de l'oscillation de balayage sur la Figure 4.27.

variations nous permet de comparer les différentes méthodes de correction.

4.4.3.2 Mise en œuvre

L'excitation haute fréquence de faible amplitude est réalisée par excitation du piézoélectrique du levier (voir Figure 3.11). Pour le balayage plusieurs méthodes ont été testées notamment une force électrostatique. Dans la pratique on a privilégié une modification de la position du prisme de Wollaston (voir la partie 3.7.2) car il

s'agit de la méthode la moins intrusive vis-à-vis du levier dont l'oscillation est uniquement due à l'excitation mécanique. De la déflexion mesurée d_{mes} on isole la composante de l'amplitude A_m par détection synchrone à la fréquence de pilotage f_m .

Dans la pratique on choisit $f_b \ll f_m$ afin de bien filtrer le signal basse fréquence par détection synchrone. On peut voir une illustration de cette mesure sur la Figure 4.29.

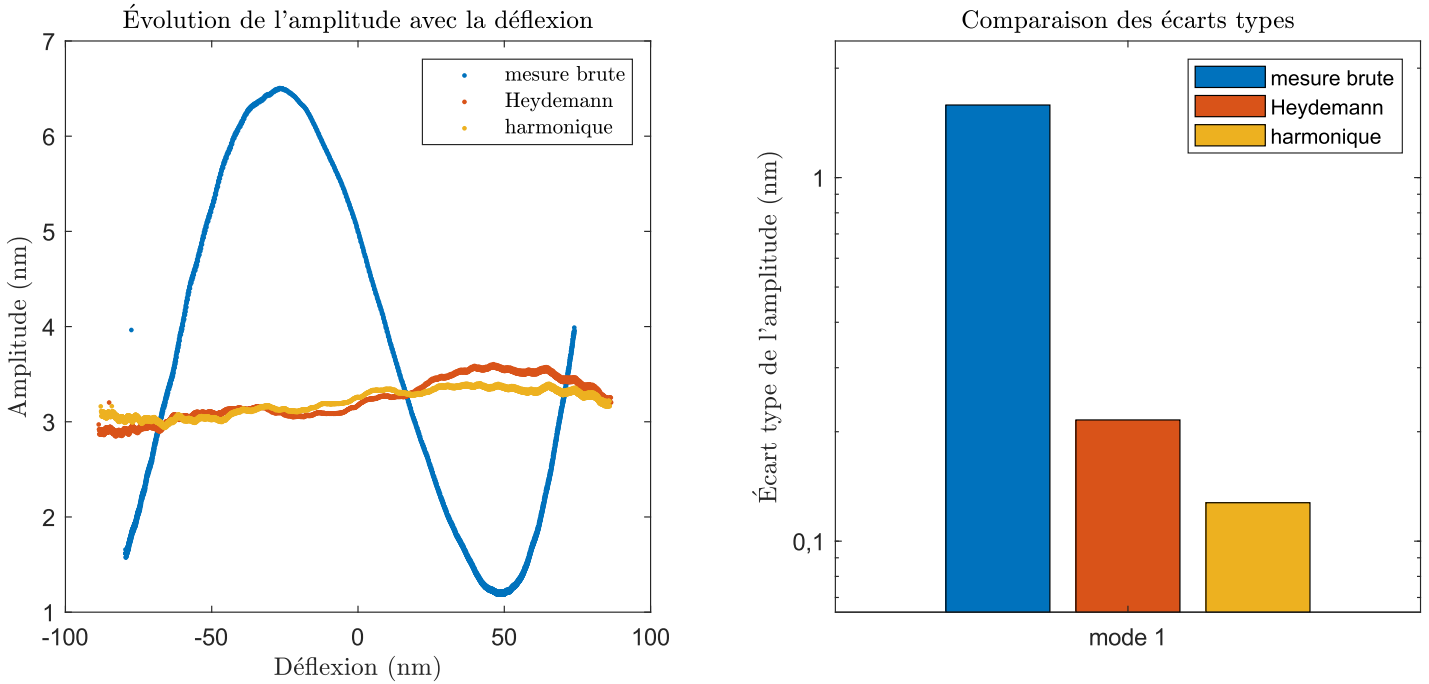


FIGURE 4.29 : Exemple de courbes d'évolution de l'amplitude en fonction de la déflexion avec les écarts types correspondants.

Pour notre étude on fixe l'amplitude A_b de façon à parcourir l'ensemble de la gamme de déphasage et on fait varier la fréquence f_m pour explorer les variations d'efficacité de la correction autour des modes de résonance.

La linéarité de la calibration est jugée par l'écart type de A_m sur toute la plage de déflexion basse fréquence : plus cet écart type est faible, meilleure est la linéarité.

4.5 Études comparatives des méthodes de linéarisation

On utilise ici les méthodes décrites en parties 4.4.2 et 4.4.3 pour comparer les performances des différentes méthodes de corrections appliquées à des données expérimentales issues de notre montage AFM.

4.5.1 Comparaison entre la calibration harmonique et la minimisation du THD

Avant de nous confronter à la méthode de Heydemann on compare d'abord les deux méthodes développées par notre équipe, à savoir la méthode par calibration harmonique décrite dans la partie 4.3.2 et la méthode par minimisation du THD décrite dans la partie 4.3.3.

4.5.1.1 Taux de Distorsion Harmonique

Par construction, le critère portant sur le THD est meilleur pour la méthode basée sur la minimisation de la distorsion (voir partie 4.3.3) lorsqu'il sert à corriger le jeu de données utilisé pour la calibration comme on le voit sur les Figures 4.30 et 4.31. La calibration initiale dans les deux cas est donnée par une déflexion d'amplitude 300 nm du mode fondamental du levier. La mesure présentée est à la même fréquence, mais concerne une oscillation d'amplitude moindre : 200 nm. Sur le critère du THD, la correction par minimisation de la distorsion présente un léger avantage sur la méthode harmonique simple puisqu'elle est plus robuste vis-à-vis du biais imposé. Cet avantage reste cependant très conjecturel.

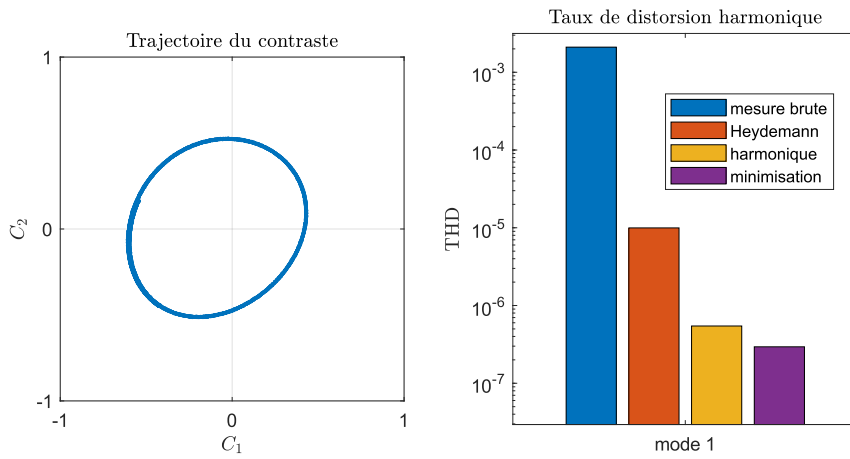


FIGURE 4.30 : Taux de distorsion harmonique obtenus pour les données présentées sur la Figure 4.23. On voit bien l'amélioration qu'apporte la correction harmonique. Les trois fonctions de correction ont été déterminées sur la base d'une mesure de la déflexion pour un levier excité mécaniquement sur son premier mode de flexion à $f_1 = 13,3\text{kHz}$ à une amplitude mesurée de plus de 300 nm. Les données utilisées pour tracer le contraste et calculer les THDs sont elles issues de l'excitation de ce même mode pour atteindre une amplitude d'environ 200 nm.

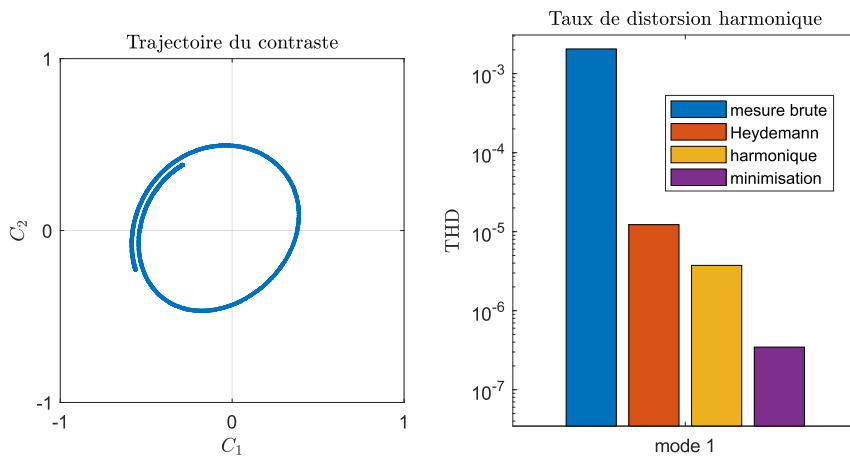


FIGURE 4.31 : Taux de distorsion harmonique obtenus pour les données présentées sur la Figure 4.24. On a ici artificiellement aggravé l'effet de spirale en jouant sur le réglage du prisme de Wollaston afin d'étudier la pertinence de la fonction due à la méthode par minimisation de la distorsion (en violet). Tout comme pour la Figure 4.30, une fois le (dé)réglage optique effectué on réalise une première excitation du levier à la fréquence f_1 à une amplitude supérieure à 300 nm qui sert de base au calcul des fonctions de correction. Les données utilisées pour tracer le contraste et calculer les THDs sont quant à elles issues d'une excitation de la même fréquence à une amplitude de 200 nm.

Il est toutefois important de tester comment se comportent les différentes méthodes lorsque la fonction de correction Φ qu'elles ont construite est appliquée sur d'autres jeux de données, en changeant notamment la fréquence du signal de déflexion.

Comme précisé dans la partie 2.1.7, il est intéressant dans le cas d'une étude de permittivité de réaliser des spectres fréquentiels. Il est donc important dans ce cadre de vérifier que les fonctions de correction calculées pour des données issues d'une oscillation à une certaine fréquence sont capables de corriger des données prises lors de l'excitation à une autre fréquence.

Les Figures 4.32 et 4.33 nous montrent l'efficacité des différentes méthodes de corrections pour une fonction de correction réalisée sur une excitation du mode fondamental du levier et appliquée sur des données de différentes fréquences. Les deux méthodes harmoniques présentent alors des performances similaires, même dans le cas où la trajectoire de contraste de référence spirale (Figure 4.33). Elles se démarquent toutes deux de la méthode de Heydemann par un gain qui peut atteindre un facteur 2 selon l'amplitude de la déflexion. Cependant, on commence également à voir une limite de la méthode par minimisation de la distorsion. En effet, si cette méthode présente de bonnes performances par rapport aux autres pour la fréquence fondamentale utilisée pour la calibration, ses performances sont assez comparables à celles-ci lorsque la fréquence des données s'éloigne de

cette dernière.

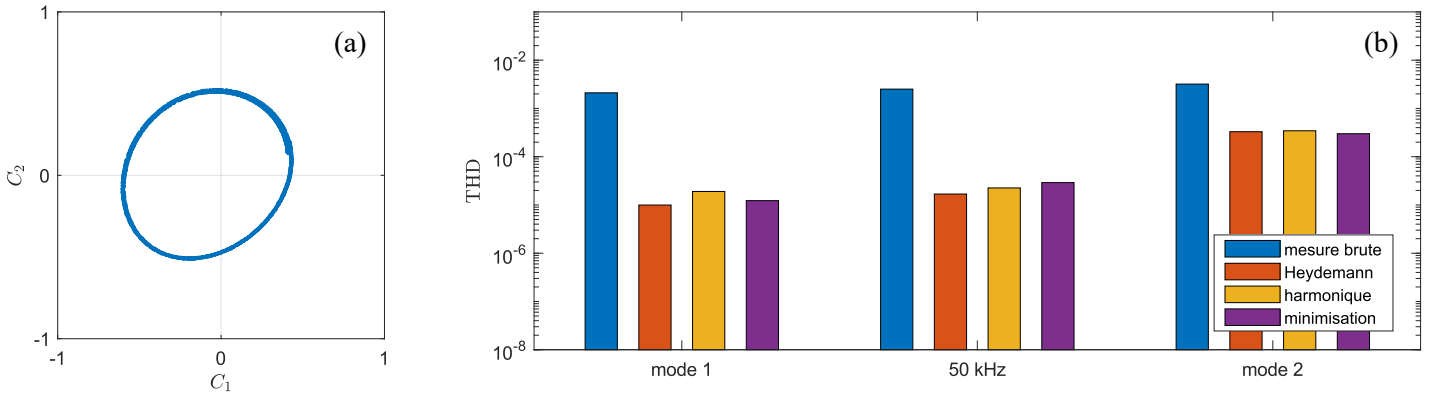


FIGURE 4.32 : Illustration des résultats obtenus en variant la fréquence de l'excitation mécanique pour les réglages optiques de la Figure 4.23 et 4.30. (a) Représentation des données utilisées pour les fonctions de correction, en l'occurrence dues à une excitation du premier mode de flexion de façon à obtenir une amplitude d'environ 315 nm. (b) THD des données brutes et corrigées pour une série de mesures réalisées en excitant le levier à différentes fréquences sur de grandes amplitudes (150 à 200 nm).

Ceci est toujours vrai dans le cas exposé sur la Figure 4.33 où l'on dérègle le wollaston pour forcer un caractère spirale alors même que la correction par minimisation est censé y être plus performante que la méthode harmonique. Ceci peut s'expliquer si on s'intéresse à la Figure 4.34. Celle-ci représente la forme des différentes

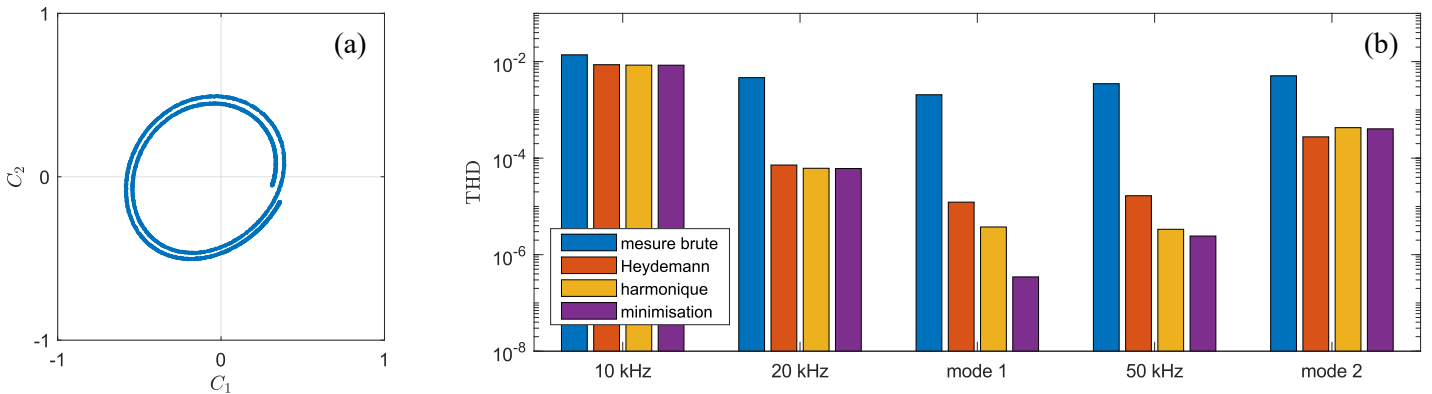


FIGURE 4.33 : Illustration des résultats obtenus en variant la fréquence de l'excitation mécanique pour les réglages optiques des Figures 4.24 et 4.31 destinés à obtenir une trajectoire spiralée. (a) Représentation des données utilisées pour les fonctions de correction, en l'occurrence dues à une excitation du premier mode de flexion de façon à obtenir une amplitude d'environ 315 nm. (b) THD des données brutes et corrigées pour une série de mesures réalisées en excitant le levier à différentes fréquences sur de grandes amplitudes (150 à 200 nm).

trajectoires de contrastes pour les séries de données présentées dans la Figure 4.33.

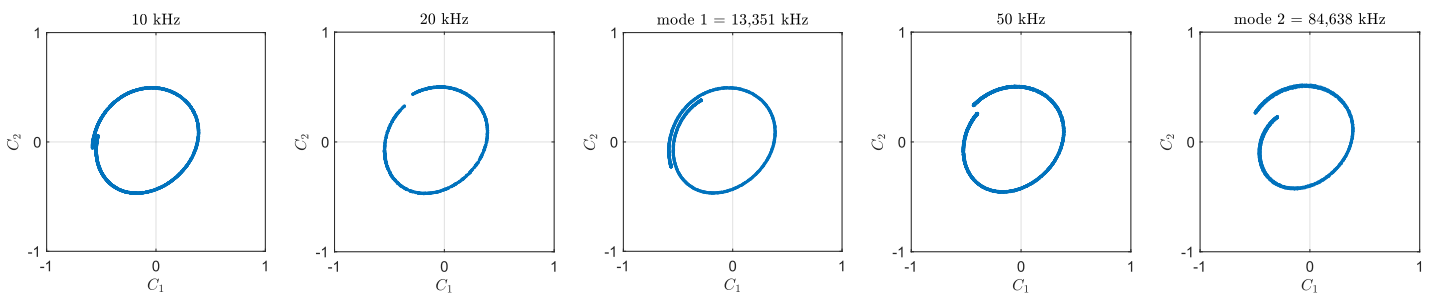


FIGURE 4.34 : Illustration des changements de la trajectoire avec la fréquence d'excitation dans le cas du dérèglement optique pour obtenir une forme spiralée.

La Figure 4.34 nous montre que la fréquence d'excitation influence la forme des trajectoires de contraste spiralées. Ceci s'accorde à ce qu'on a pu voir lors des simulations et notamment l'effet discuté autour de la Figure 4.12. On voit que l'ajout d'une inclinaison de la surface sonde, ce qui peut se rapprocher de l'effet du dérèglement du prisme de Wollaston qui règle l'angle entre les deux faisceaux (comme expliqué en partie 3.7.2 et sur la Figure 3.15), a tendance à aggraver l'effet de la spirauté dû à la relation entre déflexion et inclinaison. Or d'après l'équation 4.18 et les formules de l'Annexe A cette relation entre déflexion et inclinaison dépend également du mode considéré et donc de la fréquence. On voit d'ailleurs sur la Figure 4.34 que l'effet spirale est d'autant plus important que la fréquence d'excitation est importante ce qui correspond bien à ce qui est prédit par la formule (A.8).

Il est important de noter cependant que ce que l'on observe pour le mode 2 est probablement en partie dû aux limites de bande passante du système de mesure puisque la fréquence d'échantillonnage est ici de l'ordre de 10^6 Hz, ce qui pour la fréquence du second mode ne permet de mesurer les harmoniques que sur moins de deux décades.

Malgré cela la chute de la performance pour les fréquences 10 et 20 kHz, trop faibles pour subir ces effets de bande passante, nous montrent bien que le caractère spiralé est influencé par la fréquence observée d'une façon que ne peut compenser une calibration sur une fréquence unique.

4.5.1.2 Test direct de la linéarité

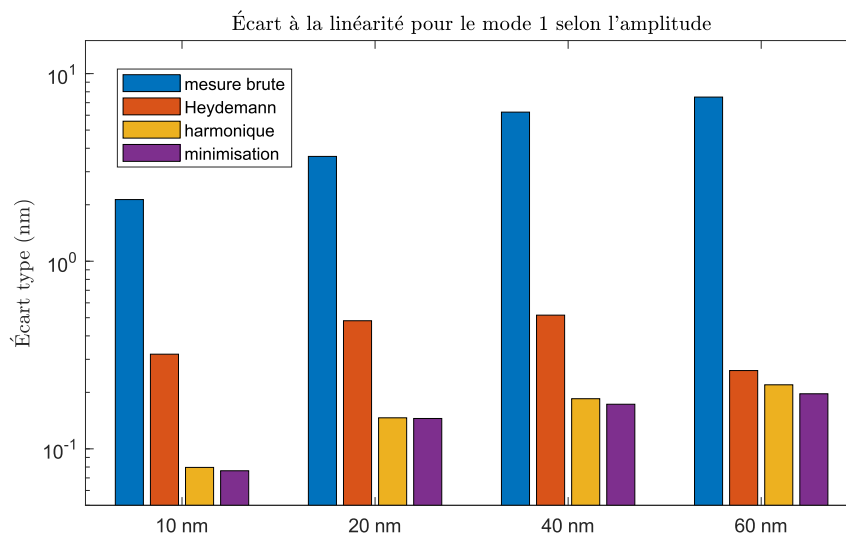


FIGURE 4.35 : Écart type de l'amplitude pour les réglages optiques de la Figure 4.30. L'écart type est calculé selon la méthode détaillée en partie 4.4.3. Chaque série de données a ici été réalisée avec une oscillation basse fréquence de 1 Hz à 150 nm d'amplitude mesurée sur la déflexion. La fréquence de l'excitation est celle du premier mode de flexion à 13,351 kHz.

On peut maintenant regarder ce qu'on obtient avec le test de linéarité présenté en partie 4.4.3. Comme précédemment l'idée est ici de réaliser dans un premier temps une série de données où l'on excite le mode fondamental afin de construire les fonctions de correction Φ selon les différentes méthodes. On applique ensuite ces fonctions à différentes séries de données construites selon les principes exposés dans la partie 4.4.3 et la Figure 4.27.

On a ici deux paramètres pertinents à faire varier : l'amplitude A_m et la fréquence f_m .

L'influence de A_m est explorée dans les Figures 4.35 et 4.36. On peut tout d'abord constater que pour une amplitude $A_m = 10$ nm l'efficacité des différentes correction selon cette mesure correspond parfaitement à celle estimée par la méthode du THD sur les Figures 4.30 et 4.31. À mesure que l'amplitude A_m augmente, on remarque une diminution de l'efficacité des méthodes de correction harmonique et par minimisation. Au vu de ces effets on utilise par la suite des amplitudes A_m ne dépassant pas 10 nm.

Pour une trajectoire correctement fermée (prisme de Wollaston bien réglé comme pour la Figure 4.30) on obtient les résultats présentés sur la Figure 4.37. Si une diminution de l'efficacité des différentes méthodes est

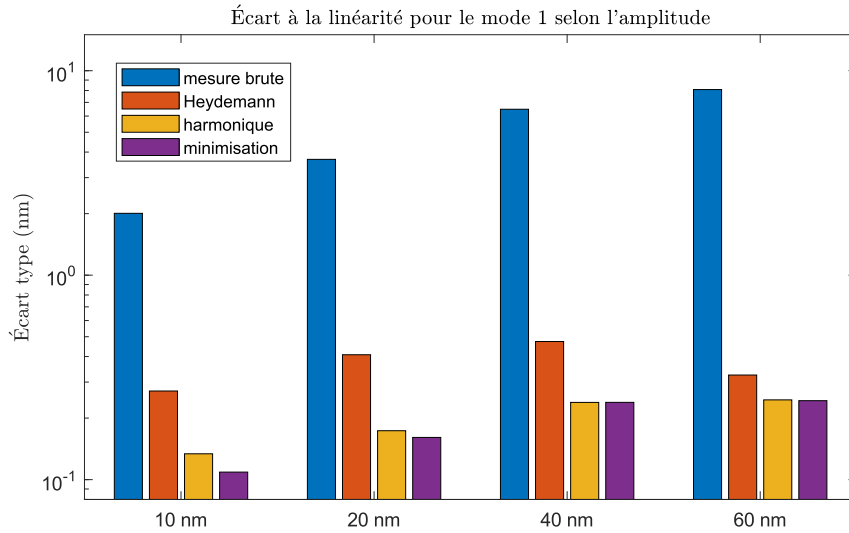


FIGURE 4.36 : Écart-type de l'amplitude pour les réglages optiques de la Figure 4.31 on l'on a forcé le caractère de spirale. L'écart type est calculé selon la méthode détaillée en partie 4.4.3. Chaque série de données a ici été réalisé avec une oscillation basse fréquence de 1 Hz à 150 nm d'amplitude mesurée sur la déflexion. La fréquence de l'excitation est celle du premier mode de flexion à 13,351 kHz.

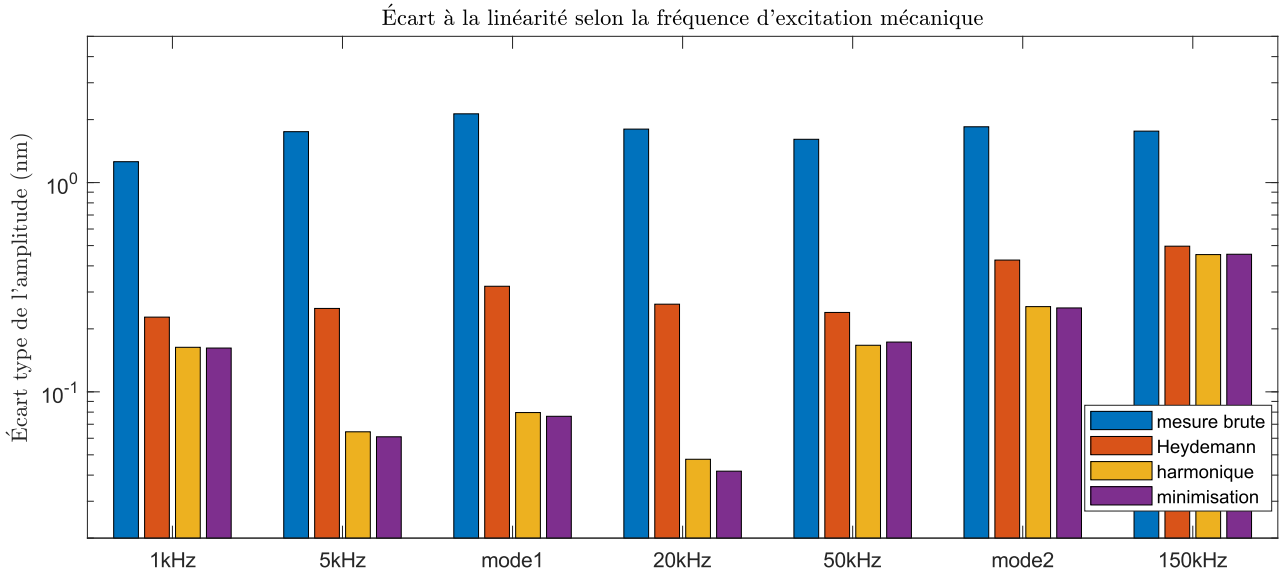


FIGURE 4.37 : Écart-type de l'amplitude pour les réglages optiques de la Figure 4.30. L'écart type est calculé selon la méthode détaillée en partie 4.4.3. L'amplitude A_m de l'oscillation est de 10 nm.

toujours observable, celles-ci constituent toutefois une réelle amélioration par rapport aux données brutes, y compris pour les plus extrêmes fréquences traitées.

En conclusion la méthode de correction par minimisation de la distorsion constitue un alourdissement en terme de consommation de ressources par rapport à la méthode harmonique simple tout en peinant à faire significativement mieux qu'elle dans la plupart des cas. De plus les cas où sa contribution est en mesure de se distinguer de cette dernière sont d'une part expérimentalement relativement aisés à corriger et de plus, induisent une dépendance de la trajectoire du contraste à la fréquence d'excitation qui diminue l'efficacité de la méthode de la correction puisque celle-ci devra être appliquée pour chaque fréquence utilisée. Par ailleurs sa complexité numérique, notamment au niveau de la recherche du minimum du THD peut conduire à des instabilités numériques

Par conséquent, on cesse à partir d'ici de présenter les résultats de la méthode de correction par minimisation de la distorsion et l'on s'intéressera exclusivement aux performances de la méthode de correction harmonique.

4.5.2 Performances de la méthode harmonique par rapport à celle de Heydemann

Sur les Figures 4.30, 4.35 et 4.37, la méthode de correction harmonique semble présenter des performances supérieures à celles de la méthode de Heydemann.

On observe sur la Figure 4.39 que les fonctions corrections issues des données obtenues par l'excitation du premier mode flexion semblent présenter une performance inversement proportionnelle à l'éloignement du mode d'excitation appliqué par rapport à celui qui a servi à leur construction. Ceci peut s'expliquer par la forme des trajectoires de contrastes associées à ces modes sur la Figure 4.38 qui nous montrent que le réglage optique présente un caractère spiralé qui comme expliqué au niveau de la Figure 4.34.

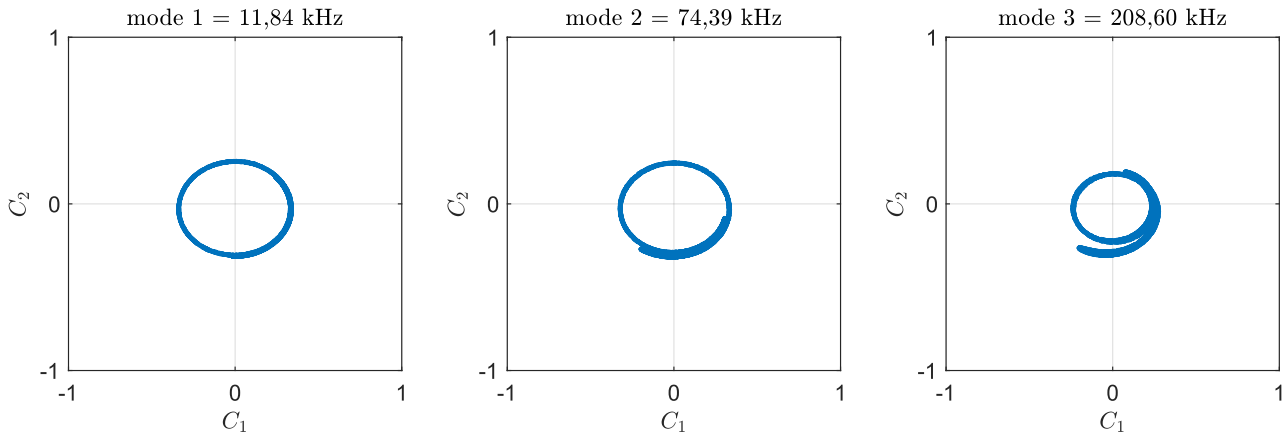


FIGURE 4.38 : Trajectoire du contraste pour les trois modes présentés dans la Figure 4.39

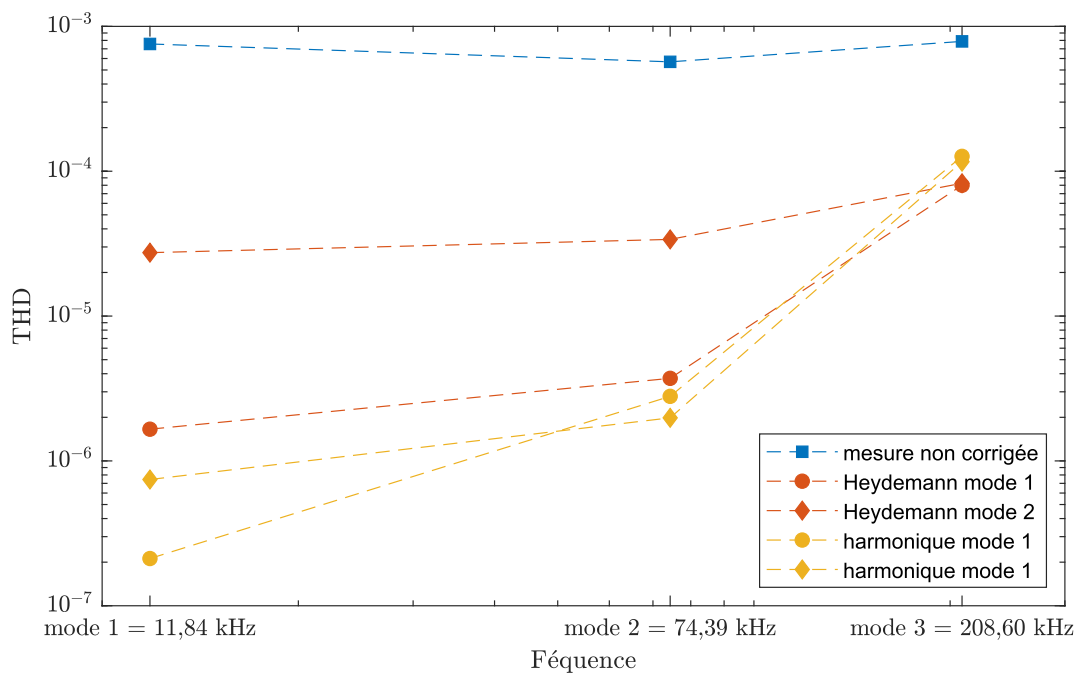


FIGURE 4.39 : Valeurs du THD pour les excitations des différents modes et une correction issue des deux premiers d'entre eux.

Si on regarde sur la même figure les données corrigées cette fois en se basant sur le deuxième mode de flexion (appelées “Heydemann mode 2” et “harmonique mode 2”), on voit que pour la correction harmonique les performances de la méthode s'améliorent sur le mode 2 et se dégradent sur le mode 1.

Ceci illustre bien la nécessité de s'affranchir par les réglages optiques d'un effet de spiral aussi ténu soit-il car celui-ci empire lorsque l'on augmentera la fréquence.

Malgré ces limitations, la Figure 4.39 atteste tout de même de l'efficacité de la méthode de correction harmonique qui présente sur le mode utilisé un avantage d'un ordre de grandeur sur la méthode de Heydemann.

Si on étend la gamme de fréquence observée on peut voir avec plus de précision cet effet.

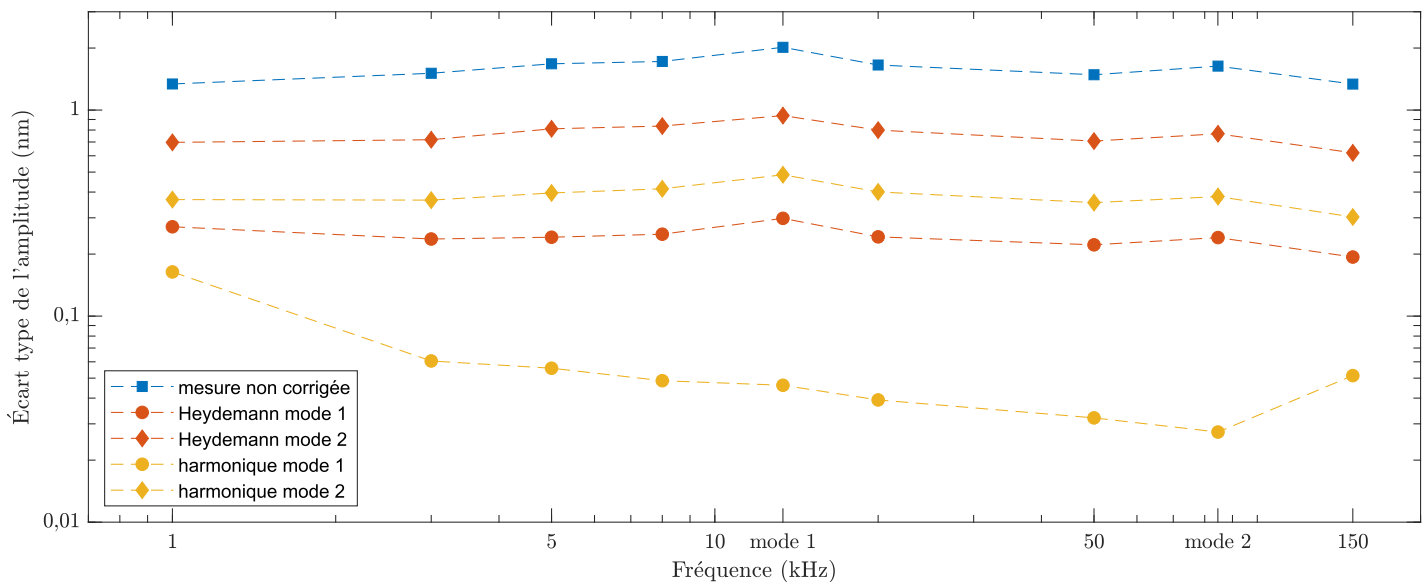


FIGURE 4.40 : Illustration de l'effet de la correction sur une large gamme de fréquence. Ici on a construit les fonctions de correction sur des données produites par une excitation du levier à grande amplitude (autour de 310 nm). Les données corrigées ont été réalisées selon le protocole à double excitation décrit en partie 4.5.1.2 avec une amplitude A_m de 10 nm et une fréquence f_m que l'on fait varier. On y voit, comme sur la Figure 4.39 que les corrections obtenues à partir du second mode présentent des performances inférieures à celles construites à partir du mode 1, probablement du fait des limitations imposées par la bande passante.

On voit sur la Figure 4.40 que la méthode de calibration harmonique est d'avantage sensible à la fréquence que la méthode de Heydemann, constatation qui se retrouve sur les Figures 4.32, 4.37 et 4.39. La calibration obtenue par la méthode harmonique présente tout de même toujours des performances significativement meilleures que celles de la méthode de Heydemann si l'on excepte le cas du troisième mode représenté sur la Figure 4.39 que l'on peut attribuer aux problèmes de bande passante mentionnés précédemment. On constate bien sur la Figure 4.40 que si on regarde l'écart à la linéarité pour une calibration sur le mode 1 la méthode harmonique présente un avantage de presque un ordre de grandeur par rapport à celle de Heydemann sur une large gamme de fréquence (de 5 kHz à 100 kHz environ).

Cette méthode de correction constitue donc une amélioration significative par rapport à la méthode de Heydemann d'autant que son implémentation est aisée une fois le calcul de la fonction de calibration effectué^[39].

4.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons exploré les imperfections du système interférométrique utilisé pour mesurer la déflexion du levier. Ces écarts à l'idéalité, dûs à la géométrie du levier et de son support, la forme des modes d'oscillation, l'alignement optique, se traduisent par un contraste des interférences en quadrature imparfaite. Nous proposons deux méthodes de correction de ces imperfections, basées sur le caractère harmonique de l'oscillation du levier excité à une fréquence unique. Sur deux critères de fidélité, nous montrons que cette approche améliore d'une décade la linéarité de la mesure. La mise en œuvre en temps réel de notre approche, parfaitement envisageable sur une carte de type FPGA, reste à réaliser. On pourra alors bénéficier du gain en linéarité pour les mesures diélectriques introduites dans le prochain chapitre.

Chapitre 5

Imagerie Diélectrique

Les lois claires en théorie sont souvent un chaos à l'application.
- Napoléon Bonaparte

Nous allons ici présenter les résultats de l'étude des échantillons fournis par le LPMA et notamment à l'aide de notre AFM décrit dans le Chapitre 3. Nous détaillerons dans un premier temps le type de levier utilisé au cours de ces études et la forme et les caractéristiques pratiques des échantillons fournis. Dans un second temps nous aborderons les études préalables menées sur ces échantillons à l'aide de divers systèmes de mesure avant de finalement montrer les résultats obtenus sur notre instrument.

5.1 Leviers

Le levier est au cœur du dispositif de microscopie à force atomique. Il est donc important de connaître ses caractéristiques.

5.1.1 Caractéristiques des leviers utilisés

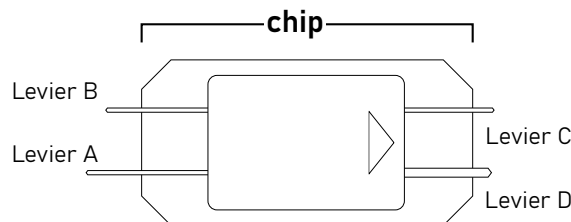


FIGURE 5.1 : Vue schématique de la structure du levier.

Dans le cadre de notre étude on a utilisé des leviers *ElectriAll-In-One*[®] de Budget Sensors. Chaque pièce incorpore quatre leviers de propriétés différentes attachés à un même support de manipulation macroscopique auquel on fait référence dans ce document par le terme "chip". Les leviers sont taillés dans un monocristal de silicium et sont recouverts d'une couche de chrome de 5 nm d'épaisseur ainsi que d'une couche de platine de 25 nm afin d'assurer leur conductivité, notamment électrique.

Hauteur (μm)	17 (15 - 19)
Angle du cône ($^\circ$)	25 (20-30)
Rayon de courbure (nm)	25

TABLE 5.1 : Caractéristiques de la pointe des leviers

	Levier A	Levier B	Levier C	Levier D
Fréquence de résonance (kHz)	15 (10 - 20)	80 (50 - 110)	150 (70 - 230)	350 (200 - 500)
Raideur (N/m)	0,2 (0,04 - 0,7)	2,7 (0,4 - 10)	7,4 (1 - 29)	40 (7 - 160)
Longueur (μm)	500 (490 - 510)	210 (200 - 220)	150 (140 - 160)	100 (90 - 110)
Largeur (μm)	30 (25 - 35)			50 (45 - 55)
Épaisseur (μm)	2,7 (1,7 - 3,7)			

TABLE 5.2 : Caractéristiques du corps des leviers utilisés

Les leviers attachés au chip sont au nombre de quatre, appelés **A**, **B**, **C** et **D** par le fabricant. Leur disposition est présentée sur la Figure 5.1. Leurs caractéristiques selon le constructeur sont présentées sur la Table 5.2.

Pour la mesure diélectrique on favorise les leviers à haute fréquence de résonance. En effet cela permet d'explorer une plus large gamme de fréquences d'excitation électrique (qui doit rester petite devant la fréquence d'excitation mécanique). Cependant une fréquence de résonance trop haute risque de produire un signal moins précis du fait de la bande passante des systèmes de détections (voir à ce sujet la partie 3.8) et de leur raideur plus élevée. Pour ces raisons on utilise principalement le **levier C**. Comme on peut le voir sur la Table 5.2, la fréquence de résonance de ces leviers peut varier grandement.

5.2 Échantillons

Les échantillons ont été réalisés au *Laboratoire Polymères et Matériaux Avancés* suivant une formulation développée au sein de cette structure. Ils sont constitués de nanoparticules d'oxydes métalliques BaTiO_3 dispersés au sein d'une matrice polymère de PVdF-HFP^[9]. Les propriétés de ces composés ont été abordées dans la partie 1.3.

5.2.1 Processus de fabrication

Les échantillons ont été réalisés par Nicolas Uguen au sein du LPMA en suivant le protocole détaillé dans la partie 1.3 et la Figure 1.4. Les échantillons sont réalisés en déposant 500 μL de solution sur un substrat de silicium de dimensions 2 cm \times 2 cm découpé en 16 éléments détachables de 5 mm \times 5 mm. Le solvant est évaporé par un spin-coating de 30 secondes à 4000 tour/min avec une rampe de 200 tour/min/sec. La concentration de PVdF-HFP dans le solvant est utilisée pour contrôler l'épaisseur de la couche finale. Pour rappel le protocole S comprend deux sonications du composé pour maximiser la dispersion des particules d'oxyde tandis que le protocole A n'en comprend qu'une seule. Le LPMA nous a fourni cinq types d'échantillons différents :

P₅₀ couche d'environ 50 nm d'épaisseur de PVdF-HFP pur

P₁₀₀ couche d'environ 100 nm d'épaisseur de PVdF-HFP pur

S₅₀ couche d'environ 50 nm d'épaisseur de PVdF-HFP auquel on ajoute 1% volumique de particules de BaTiO_3 selon le protocole S (voir Figure 1.4).

S₁₀₀ couche d'environ 100 nm d'épaisseur de PVdF-HFP auquel on ajoute 1% volumique de particules de BaTiO_3 selon le protocole S (voir Figure 1.4).

A₁₀₀₀ couche d'environ 1 μm d'épaisseur de PVdF-HFP auquel on ajoute 1% volumique de particules de BaTiO_3 selon le protocole A (voir Figure 1.4).

5.3 Étude de la dispersion

L'un des objectifs de ma thèse consistait à réaliser des cartographies capables de différencier la matrice polymère des particules d'oxyde afin d'en étudier la dispersion comme expliqué dans la partie 2.2.

5.3.1 Microscopie Électronique à Balayage

Dans un premier temps on a réalisé des cartographies de la surface des échantillons à l'aide d'un Microscopie Électronique à Balayage (MEB)

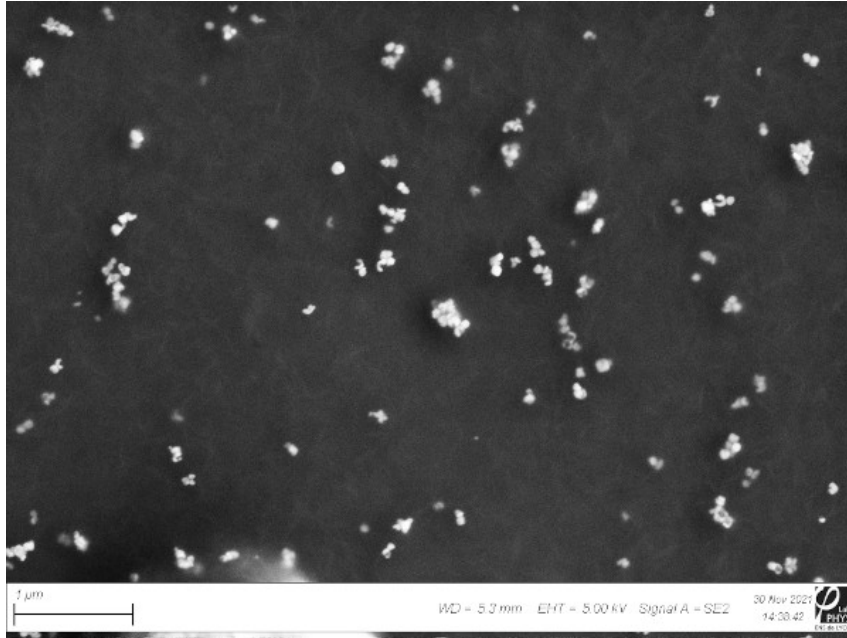


FIGURE 5.2 : Cartographie réalisée au MEB sur l'échantillon S₁₀₀. On voit que malgré les deux sonications les particules de BaTiO₃ (visibles en blanc) semblent en majorité exister au sein de petits agrégats.



FIGURE 5.3 : Cartographie annotée réalisée au MEB sur l'échantillon S₁₀₀. On y voit plus précisément les petits agrégats constitués par les particules d'oxyde métallique. Ceux-ci semblent contenir entre une et une dizaine de particules pour atteindre des tailles proches de 200 nm.

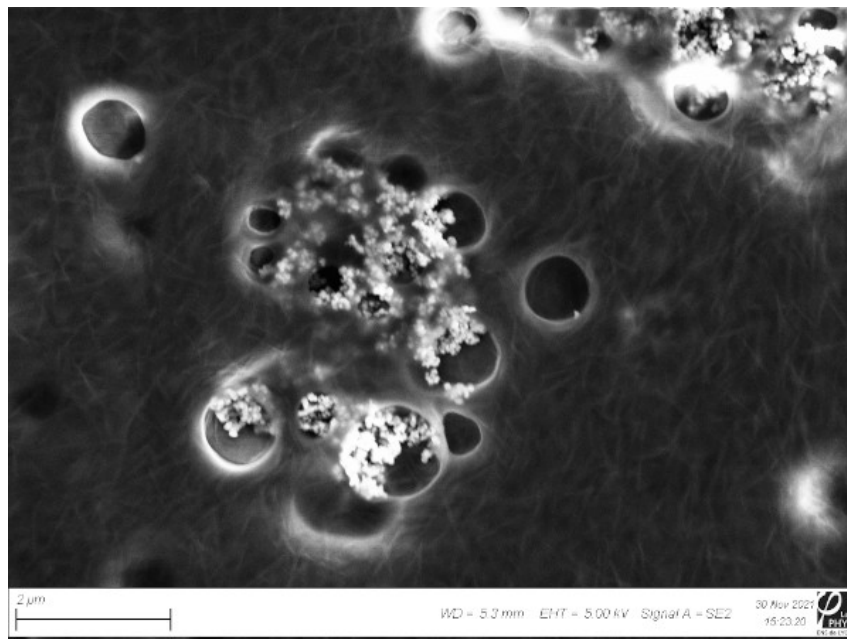


FIGURE 5.4 : Cartographie réalisée au MEB sur l'échantillon A₁₀₀₀. On voit très bien ici l'utilité de la seconde sonication puisqu'en son absence les particules de BaTiO₃ constituent de gigantesques agrégats de dimensions micrométriques. On constate aussi que pour une couche d' 1 μm, l'évaporation du solvant crée des cavités dans le polymère, en particulier autour des particules d'oxyde.

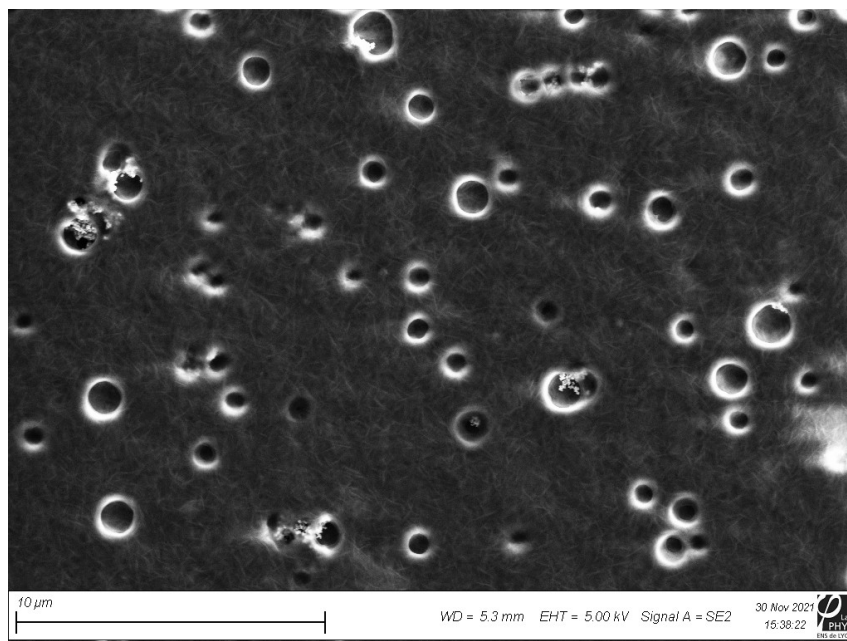


FIGURE 5.5 : Cartographie réalisée au MEB sur l'échantillon A₁₀₀₀. On peut voir que la surface de cet échantillon est parsemée de dépressions.

Les Figures 5.2 et 5.3 permettent de jauger l'état de dispersion du composé S₁₀₀. On voit que malgré les deux sonications, les particules de BaTiO₃ sont pour la plupart comprises dans de petits agrégats de quelques particules dont les dimensions sont comprises entre la taille d'une particule élémentaires (environ 50 nm) et quelques centaines de nanomètres.

Si on regarde l'échantillon A₁₀₀₀ sur la Figure 5.4 on comprend bien l'intérêt de la seconde sonication du protocole S. Les particules d'oxydes suite au protocole A sont ici agglomérés dans des ensembles massifs de plusieurs microns. On remarque également sur les Figures 5.4 et 5.5 que la surface de cet échantillon présente de nombreux cratères, y compris dans des zones apparemment dénuées de particules d'oxyde.

On peut constater qu'un certain nombre de particules présentent des contours très nets, ce qui semble attester de leur présence en surface du matériau. Cela implique qu'une mesure topographique pourra être effectuée afin de repérer ces particules de surface, ce qui nous permet de vérifier nos méthodes de mesures sur des zones où la présence d'oxyde est assurée avant de chercher à le détecter en profondeur.

À l'inverse les particules plus floues ou sombres attestent probablement de particules enfouies détectées du fait de leur présence au sein de la région d'excitation primaire du faisceau d'électrons (c'est à dire la région au sein de laquelle les électrons peuvent générer des électrons secondaires^[43], cette région peut s'étendre sur plusieurs centaines de nanomètres de profondeur). On peut notamment voir ce genre d'effet sur la Figure 5.4 où les grands agrégats semblent se prolonger sous le polymère.

5.3.2 Mesure de l'adhésion

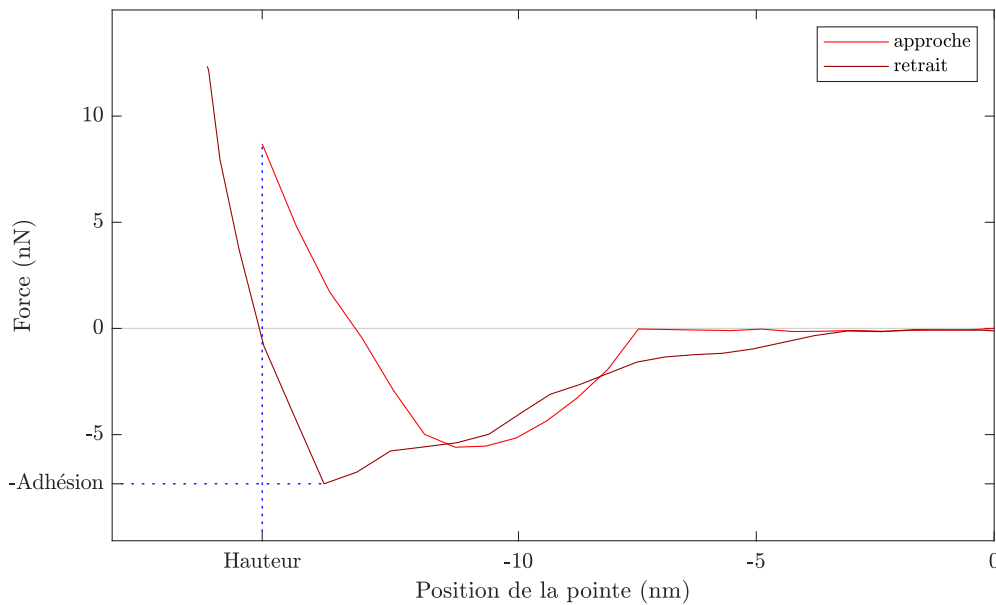


FIGURE 5.6 : Exemple de courbe de contact expérimentale réalisée au cours d'une cartographie rapide. Ici la limite en force est fixée à 5 nN. Cette courbe correspond à l'un des points de la cartographie présentée sur la Figure 5.7. La Hauteur est mesurée au premier point de l'approche dépassant la valeur nominale de la force, c'est également à ce moment là que le retrait commence. Lors du retour, l'adhésion maintient la pointe en contact avec la surface jusqu'à ce que la distorsion du levier les force à se détacher. Une bonne mesure de l'adhésion est donc la valeur absolue du minimum de force (c'est à dire de déformation du levier) mesuré lors du retrait. voir à ce sujet les explications de la partie 1.4.4

Le Laboratoire de Physique est équipé d'un AFM NanoWizard[®] 4 de JPK. On l'utilise pour faire des cartographies à partir de courbes d'approches. Comme expliqué dans la partie 1.4.4, l'idée est en chaque point d'effectuer une approche avec la pointe jusqu'à une déflexion (c'est à dire force de résistance) limite. Une fois cette valeur obtenue la pointe remonte à sa position de départ. On peut voir un exemple de parcours expérimental sur la Figure 5.6. Cette figure montre également comment on mesure la hauteur et la valeur de l'adhésion. Une cartographie de contact comme celle présentée sur la Figure 5.7 consiste à réaliser de telles courbes d'approches en chaque point d'une surface donnée. Les particules visibles sur la topographie 5.7a affichent sur la Figure 5.7b des valeurs d'adhésion un peu plus basses que le polymère environnant.

On peut voir sur la Figure 5.7c que les maxima topographiques correspondent bien à des minimas d'adhésion, cependant la différence d'adhésion entre les deux composés n'est pas très grande si on la compare au bruit de la mesure.

Sur la Figure 5.7b on remarque aussi des maxima locaux qui semblent correspondre aux creux observés en topographie. L'hypothèse que l'on peut avancer est que cette adhésion n'est pas due à une différence de propriété locale mais simplement qu'aux endroits concernés la pointe a eu tendance à s'enfoncer dans le creux que l'on voit en topographie, ce qui conduit à une plus grande surface de contact entre la pointe et le polymère, d'où une adhésion plus forte.

De même dans une moindre mesure on voit que la texture présente sur la topographie se retrouve également

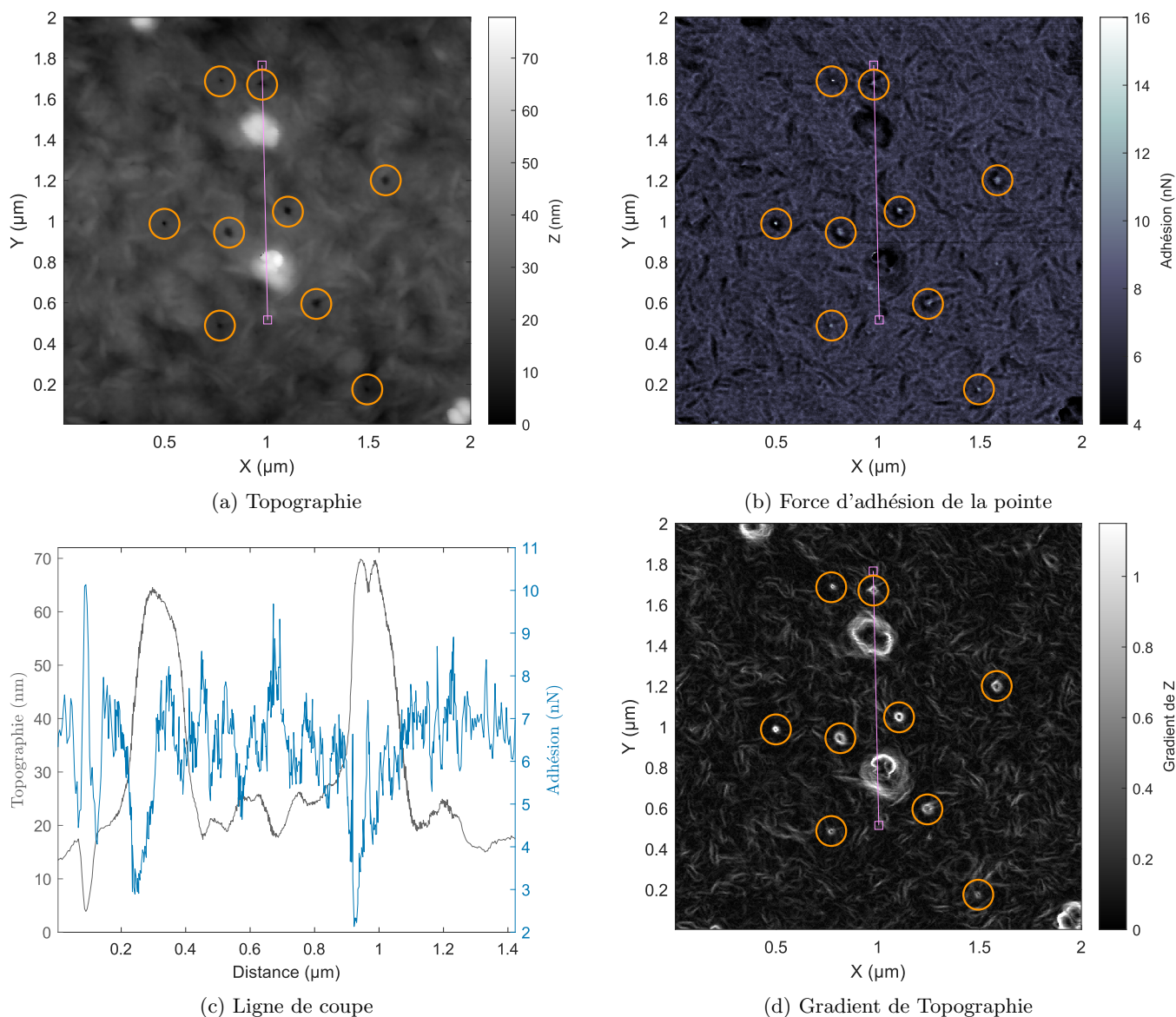


FIGURE 5.7 : Cartographies basées sur les courbes d'approche réalisées sur l'échantillon S_{50} . (a) La topographie est ici présentée par rapport à son minimum. (b) L'adhésion est mesurée simultanément par le minimum de la force avant rupture du contact. Les particules apparaissent en relief et correspondent à des minima d'adhésion. On remarque quelques trous de faible taille dans le polymère, correspondant à des maxima d'adhésions (cercles). (c) Comparaison entre la topographie et l'adhésion le long de la ligne visible sur les Figures 5.7a et 5.7b. (d) Norme du gradient de la topographie. La valeur affichée correspond à $\sqrt{\left(\frac{\partial Z}{\partial X}\right)^2 + \left(\frac{\partial Z}{\partial Y}\right)^2}$.

sur la mesure de l'adhésion. Ceci est vraisemblablement encore dû aux différences de surfaces de contact selon le relief local. En effet si on compare la cartographie de l'adhésion de la Figure 5.7b au gradient de la topographie illustré par la Figure 5.7d, on voit que les variations d'adhésions semblent fortement corrélées à la quantification des variations locales de topographies.

La texture observée quand à elle est peut-être due à des variations locales d'organisation du polymère. Il a été expliqué dans la partie 1.3.1.1 que ce dernier peut présenter différentes phases cristallines. Il est aussi mentionné dans cette partie que le PVdF-HFP a tendance à adopter une structure lamellaire^[13]. Celle-ci peut être à l'origine de la texture filamentaire que l'on observe.

5.3.3 Potentiel de surface

Une autre façon de différencier les chimies de surface de l'oxyde et du polymère peut être de s'intéresser au potentiel de surface ce qui est une mesure possible sur l'appareil NanoWizard[®] 4.

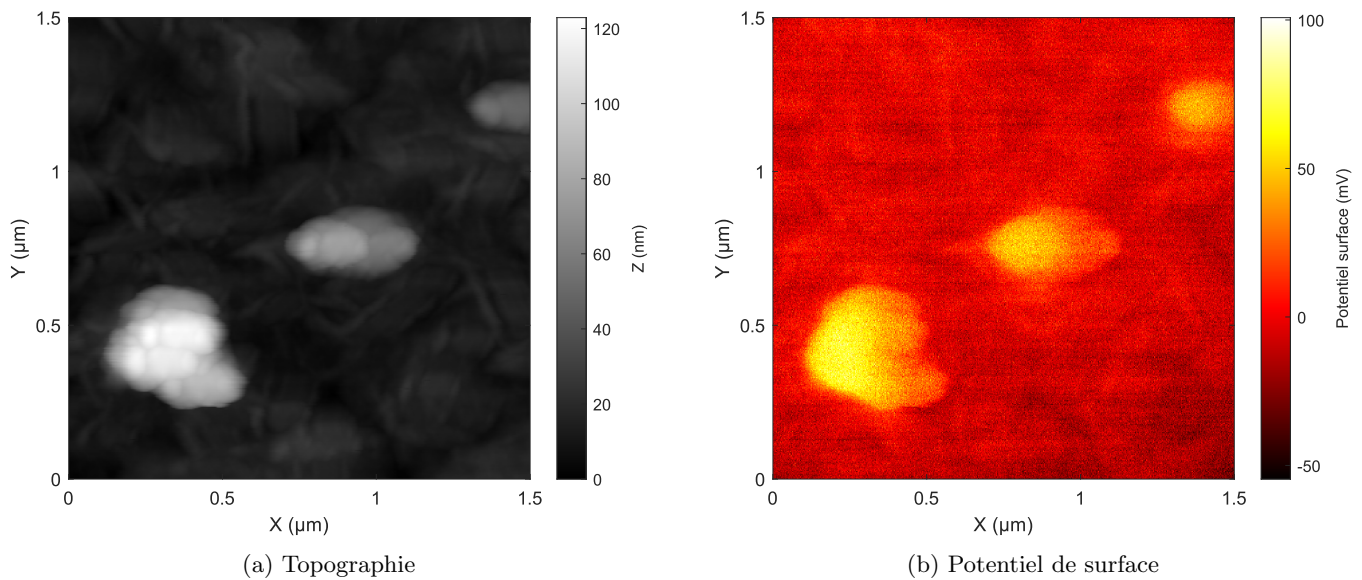


FIGURE 5.8 : Cartographies réalisées par la méthode KPFM sur l'échantillon S₅₀.

On mesure le potentiel de surface par la méthode de la Microscopie à sonde de Kelvin (KPFM) décrite dans la partie 1.4.7. Pour rappel, celle-ci consiste à exciter le levier par l'application d'une tension de la forme $V_0 + V_1 \sin(\omega_e t)$. La valeur de V_0 est ajustée en temps réel pour annuler la composante à ω_e de la déflexion, ce qui a lieu lorsque V_0 est égale à l'opposé du potentiel de la surface vu par la pointe. C'est cette valeur V_0 qui nous donne la cartographie que l'on voit sur la Figure 5.8b.

Dans le cas présenté ici on a assuré une distance pointe-surface fixe de la façon suivante : dans le cas d'une cartographie, le système effectue des allers-retours à chaque ligne de pixels. Lors de l'aller il effectue une mesure selon la méthode dite de "tapping", décrite dans la partie 1.4.5 et enregistre la topographie montrée sur la Figure 5.8a. Lors du retour, le système reproduit la topographie mesurée en y ajoutant une distance réglable (mode "lift"), et en réalisant la mesure KPFM.

On peut voir une bonne corrélation entre la topographie et les variations de potentiel de surface. Ceci nous confirme donc bien que les reliefs topographiques correspondent à un composé distinct du polymère et donc très certainement la partie émergée des particules d'oxyde que l'on cherche à cartographier.

5.4 Mesures diélectriques

Une fois ces premiers tests réalisés nous avons inséré les échantillons dans notre appareil décrit au chapitre 3 afin de réaliser l'étude de leurs propriétés diélectriques à l'échelle microscopique. Nous présentons dans cette partie une étude sur l'échantillon S₁₀₀.

Comme expliqué dans la partie 5.1, on a utilisé un levier de type C. En l'occurrence on a mesuré loin de la surface une fréquence de résonance de 118 kHz pour le levier utilisé ici.

5.4.1 Cartographies

On cherche ici à réaliser des cartographies locales du matériau afin de démontrer notre capacité à distinguer l'oxyde du polymère.

5.4.1.1 Topographie

On voit sur les images du MEB (Figures 5.2 et 5.3) et sur la mesure du potentiel de surface de la Figure 5.8b qu'en général on peut repérer certaines particules de BaTiO₃ par les reliefs qu'elles font apparaître. À ce titre pour effectuer une mesure on commence par faire des cartographies topographiques en mode AFM-FM (voir partie 1.4.6) afin de repérer des reliefs intéressants. Sur notre système, les cartographies sont réalisées lignes par

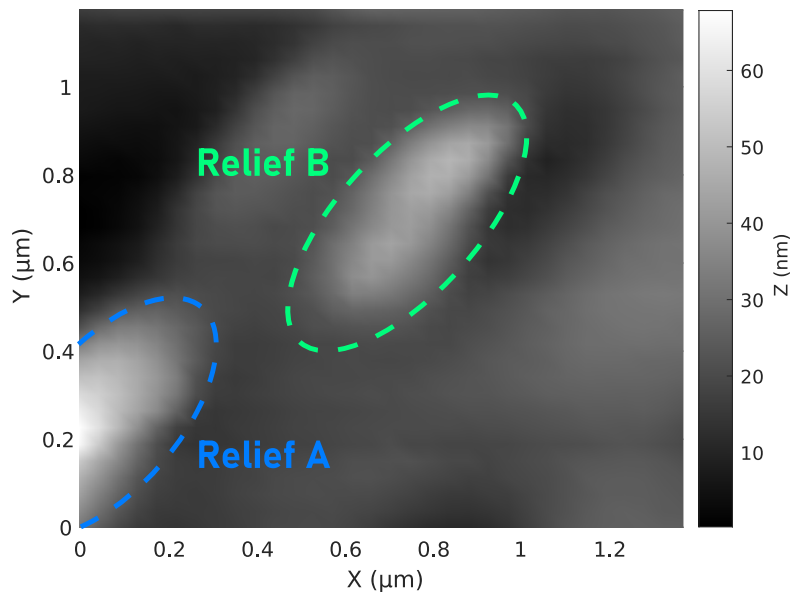


FIGURE 5.9 : Topographie de la zone considérée. On remarque deux proéminences similaires à celles que l'on peut observer sur les Figures 5.7a et 5.8a. On les appelle par la suite "Relief A" et "Relief B". On est ici sur un échantillon S_{100} . La mesure a été réalisée en mode AFM-FM avec en parallèle l'application d'une excitation électrique sur le levier pour réaliser la mesure diélectrique. La stabilité de l'instrument n'étant pas encore optimisée, la résolution de l'image a été réduite pour diminuer le temps de mesure. Cette image représente les variations de position de la pointe pour maintenir un gradient de force constant. La position est donc influencée par le relief (une épaisseur locale plus importante va augmenter le gradient ressenti et donc éloigner la pointe) mais n'en est pas une représentation quantitative.

lignes en effectuant des allers-retours. Sauf mention contraire on présente ici des cartographies réalisées à partir des lignes d'une même direction de progression de la pointe.

On peut voir ainsi sur la topographie de la Figure 5.9 la présence de deux reliefs pouvant correspondre de par leurs dimensions à des particules d'oxyde. La mesure diélectrique doit permettre d'analyser leur composition réelle.

5.4.1.2 Protocoles de mesure diélectrique

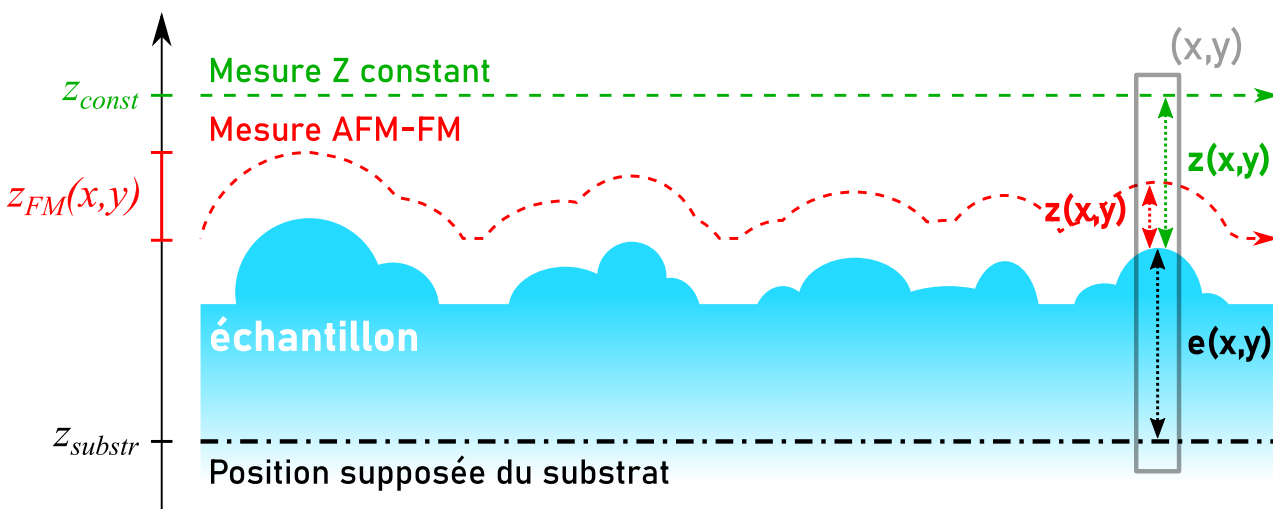


FIGURE 5.10 : Schéma explicatif des deux types de mesures effectuées. La mesure diélectrique dite "AFM-FM" est réalisée en parallèle d'une mesure en modulation de fréquence tel que décrite en partie 1.4.6. Dans le cas de la mesure dite "Z constant" on déplace simplement le levier à une position z_{const} fixée. En chaque point (x, y) on peut retrouver les valeurs de l'épaisseur de l'échantillon e et la distance pointe-échantillon z mentionnées dans le chapitre 2. Il faut noter ici que si l'épaisseur e est une valeur fixe à position (x, y) fixée, la valeur de z va elle également dépendre du protocole de mesure choisi.

La mesure diélectrique présentée en partie 1.4.8 repose sur le fait d'appliquer une tension $V = V_1 \cos(\omega_e t)$ et d'isoler la variation de la phase à $2\omega_e$ à l'aide d'une double détection synchrone (voir à ce sujet la partie 3.8.3). À la tension appliquée on ajoute un offset pour compenser les effets de tension de surface. Pour cela on ajuste l'offset de façon à annuler la composante du signal à ω_e . La première détection synchrone reçoit le signal de la déflexion et en extrait l'amplitude et la phase par rapport à l'excitation de sa composante à la fréquence d'excitation mécanique. La seconde récupère la phase calculée par la première et en extrait son amplitude à $2\omega_e$, c'est cette valeur que l'on mesure.

On présente deux protocoles, illustrés sur la Figure 5.10 :

Protocole "AFM-FM" Le protocole dit "AFM-FM" consiste, comme son nom l'indique, à réaliser une mesure en AFM-FM (voir partie 1.4.6) simultanément à la mesure diélectrique. Ceci permet d'être beaucoup plus proche de la surface.

Ceci est réalisé en appliquant une oscillation mécanique au levier via l'élément piézoélectrique à sa fréquence de résonance. En approchant la pointe de la surface, cette fréquence de résonance varie comme expliqué en partie 1.4.6. Si on envoie la mesure de la déflexion sur les appareils Nanonis (voir partie 3.8.2) qui fournissent l'excitation mécanique on peut mettre en place une boucle de rétroaction sur la fréquence mécanique afin de compenser le décalage en fréquence. D'après les considérations de la partie 2.1.6 cela signifie que l'image est réalisée à gradient de force constant.

Protocole "Z constant" Le protocole dit "Z constant" est plus simple, une fois la topographie de la zone d'intérêt connue on se place légèrement au-dessus du maximum enregistré et on survole ainsi le relief en mesurant en chaque point l'amplitude du déphasage du signal à l'aide des détections synchrones (voir Figure 3.16). Si ce protocole présente de faibles risques d'artéfacts, son éloignement de la surface risque de rendre sa mesure imprécise (voir les calculs de la partie 2.1.6 à ce sujet).

5.4.2 Résultats des protocoles

Les cartographies en amplitude de déphasage réalisées selon les deux protocoles sont présentées sur la Figure 5.11. On voit sur la Figure 5.11a qu'en AFM-FM le relief B présente une amplitude de phase inférieure à celle de son entourage alors que le relief A diffère à peine de son entourage. À l'inverse dans le cas d'une image effectuée à "Z constant" comme celle de la Figure 5.11b nous montre une amplitude de phase supérieure pour le relief A tandis que le relief B est parfaitement confondu avec son environnement.

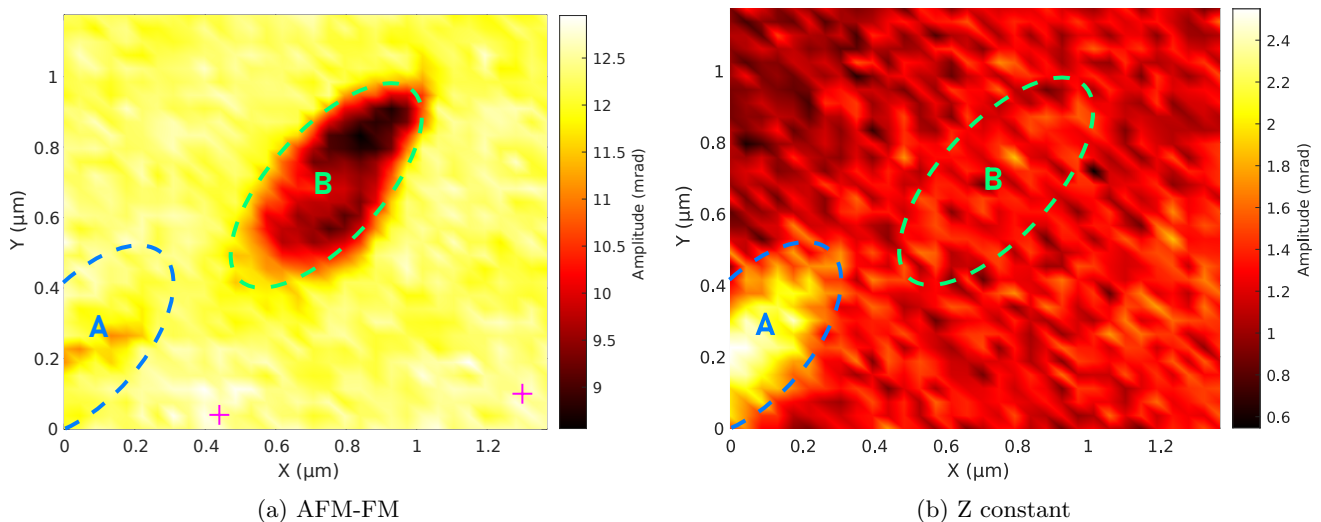


FIGURE 5.11 : Cartographie des amplitudes à $2\omega_e$ du déphasage d'oscillation induit par l'excitation électrique. Les deux cartographies ont été réalisées sur la zone présentée sur la Figure 5.9. La cartographie (a) a été réalisée par la technique de l'AFM-FM tandis que la (b) a été réalisée en parcourant la zone à une hauteur fixée. Les deux cartographies ont été réalisées en appliquant une tension sinusoïdale d'amplitude 1 V et de fréquence 330 Hz sur le levier avec un offset de 338 mV pour compenser le potentiel de contact sur le polymère.

Cette différence entre les deux images peut s'expliquer si on regarde la Figure explicative 5.10. On voit sur cette figure que lors de l'image en AFM-FM la distance de la pointe au substrat varie. Si on reprend les considérations de la partie 2.1.6 on voit que le gradient de force présente des variations importantes en fonction de la distance au substrat. Il est important de noter ici que l'on regarde l'échantillon S₁₀₀ dont l'épaisseur nominale est de 100 nm. On voit alors que les variations topographiques observées sur la Figure 5.9 sont importantes par rapport à cette valeur.

5.5 Interprétation des résultats

5.5.1 Correction par la distance

Afin d'obtenir une mesure pertinente à partir des données prises en AFM-FM il nous faut corriger nos données en tenant compte des variations de position de la pointe et de leurs effets sur le gradient de force. Pour cela on doit extraire de ces images les paramètres qui nous permettront de calculer le gradient de force ressenti par la pointe.

5.5.1.1 Paramètres importants

On a vu dans la partie 2.1.6 que l'expression du gradient de force en fonction de la distance est très complexe. Si on reprend les équations (2.36), (2.37) et (2.38), on voit que le gradient de force dépend ici de trois variables : l'épaisseur e , la distance pointe échantillon z et la permittivité locale ε . Les cartographies sont réalisées avec l'application d'une tension sinusoïdale de la forme :

$$V(t) = V_0 + V_1 \sin(\omega_e t) \quad (5.1)$$

Si on considère que le gradient de force ressenti par le levier est uniquement dû aux effets électrostatiques, on peut écrire :

$$\frac{\partial F_{tot}}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} [V_0^2 + 2V_0 V_1 \sin(\omega_e t) + \frac{V_1^2}{2} (1 + \sin(2\omega_e t))] \quad (5.2)$$

avec

$$\frac{\partial F_{tot}}{\partial z} = \frac{\partial F_1}{\partial z} + \frac{\partial F_2}{\partial z} + \frac{\partial F_3}{\partial z},$$

$\frac{\partial F_1}{\partial z}$, $\frac{\partial F_2}{\partial z}$ et $\frac{\partial F_3}{\partial z}$ étant les trois composantes explicitées par les équations (2.36), (2.37) et (2.38) correspondant à la contribution de la pointe, du cône et du levier respectivement.

Notre mesure nous donne accès à deux informations : la position de la pointe z_{FM} et l'amplitude de la phase à $2\omega_e$, de laquelle on extrait la composante du gradient de force à $2\omega_e$.

5.5.1.2 Correction de la mesure "AFM-FM"

D'après la Figure 5.10, on peut écrire que :

$$z_{FM} = z + e + z_{substr} \quad (5.3)$$

avec z la distance entre la pointe et la surface de l'échantillon, e l'épaisseur de l'échantillon et z_{substr} une constante inconnue correspondant à la position du substrat conducteur dans le référentiel de la mesure de la position de la pointe. La mesure ne nous donnant accès qu'aux variations de la position z_{FM} dans un référentiel inconnu par rapport à l'échantillon, on a besoin d'estimer z_{substr} afin de pouvoir définir les valeurs z et e . Pour cela on utilise deux courbes d'approches réalisées sur cet échantillon que l'on peut voir sur la Figure 5.12.

Les approches ont été réalisées avec une amplitudes de 5 nm, on estime donc la position de la surface à 5 nm en dessous du minimal de la courbe d'approche en l'absence d'excitation. On note cette position z_{surf} . Lorsque l'on applique la tension utilisée pour les cartographies on voit que la courbe d'approche change. On considère que l'épaisseur nominale $e_0 = 100$ nm fournie par le fabricant correspond à l'épaisseur de la couche de polymère en ce point. On note $z_0 = z_{image} - z_{surf}$, l'étude des courbes d'approche nous donne alors $z_0 = 25,6$ nm.

On note Δf_{carto} la valeur de décalage fréquentiel fixée pour la réalisation de la cartographie en AFM-FM. Ce décalage correspond à une moyenne temporelle du gradient de force que l'on note G_0 .

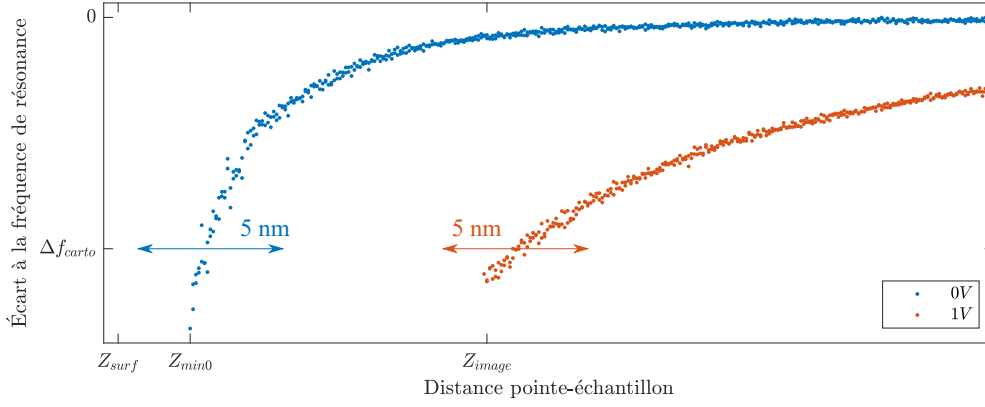


FIGURE 5.12 : Courbes d’approches filtrées passe-bas (<330 Hz) réalisées sur l’échantillon S_{100} juste avant la réalisation des cartographies discutées ici. La courbe rouge “1V” correspond à une approche dans les paramètres de réalisation de la cartographie avec une excitation mécanique à fréquence de résonance pour obtenir une amplitude de 5 nm et l’application d’une tension de la forme $V_1 \sin(\omega_e t) + V_0$, avec $V_1 = 1$ V, $V_0 = 338$ mV et $\omega_e = 330$ Hz. La courbe bleu “0V” a été réalisée avec des paramètres identiques à l’exception de V_1 , réduit à une valeur négligeable (1 mV). La valeur Δf_{carto} correspond à la valeur que l’on a fixé pour le maintien de la distance z durant la réalisation de la cartographie présentée sur les Figures 5.9 et 5.11a. De ce fait, z_{image} correspond à la hauteur correspondante au point où s’est effectuée la courbe d’approche. On voit que l’application d’une tension sinusoïdale a eu un impact notable sur la courbe d’approche : une imagerie à iso gradient de force ne se fait pas à la même distance moyenne de l’échantillon.

Comme on cherche à relever les inhomogénéités de permittivité, on effectue nos calculs en supposant un matériau polymère homogène, la valeur de $\varepsilon(f)$ ne dépend donc que de la fréquence considérée f .

L’image en AFM-FM est réalisée à gradient de force constant ce qui signifie qu’en tout point (x,y) de la cartographie :

$$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2}(e(x,y), \varepsilon(0), z(x,y)) \times (V_0^2 + \frac{V_1^2}{2}) = G_0 = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2}(e_0, \varepsilon(0), z_0) \times (V_0^2 + \frac{V_1^2}{2}) \quad (5.4)$$

en sachant que l’ajout d’un offset à la tension pour annuler la composante de l’amplitude de la phase à ω_e nous permet de considérer d’après l’équation (5.2) que $V_0^2 \ll \frac{V_1^2}{2}$. On prend donc $V_0 = 0V$ par la suite.

Cette équation contrôle la position de la pointe, la valeur de $z(x,y)$ dépend donc en chaque point de l’épaisseur locale $e(x,y)$

On sait que

$$\frac{\partial F}{\partial z}(e, \varepsilon, z) = \frac{\partial F_1}{\partial z}(e, \varepsilon, z) + \frac{\partial F_2}{\partial z}(e, \varepsilon, z) + \frac{\partial F_3}{\partial z}(e, \varepsilon, z) \quad (5.5)$$

avec $\frac{\partial F_1}{\partial z}$, $\frac{\partial F_2}{\partial z}$ et $\frac{\partial F_3}{\partial z}$ définis par les équations (2.36), (2.37) et (2.38). On cherche donc à trouver pour chaque valeur de e la valeur z telle que :

$$\frac{\partial F}{\partial z}(e, \varepsilon(0), z) = \frac{\partial F}{\partial z}(e_0, \varepsilon(0), z_0) = G_0. \quad (5.6)$$

En se basant sur les courbes de la Figure 1.6 de la partie 1.3.3.2 on prend $\varepsilon(0) = 14$, ce qui correspond à la valeur à basse fréquence de la permittivité du PVdF-HFP. En effet, on effectue ici nos calculs sur le présumé qu’on a affaire à du PVdF-HFP pur car c’est cette contribution que l’on veut gommer.

En effectuant sur une plage d’épaisseur pertinente une minimisation de $\frac{\partial F}{\partial z}(e, \varepsilon(0), z) - G_0$ on peut retrouver la relation entre z et e imposée par la cartographie en AFM-FM. Un tel calcul nous donne la Figure 5.13 d’où l’on peut extraire la relation entre z et e par une modélisation polynomiale :

$$z = 3,8 \cdot 10^5 \times e^2 - 0,22 \times e + 4,37 \cdot 10^{-8} \quad (5.7)$$

où tous les coefficients supposent que z et e sont exprimés en m. Cette relation implique :

$$z_{FM} - z_{substr} = z + e = 3,8 \cdot 10^5 \times e^2 + 0,78 \times e + 4,37 \cdot 10^{-8} \quad (5.8)$$

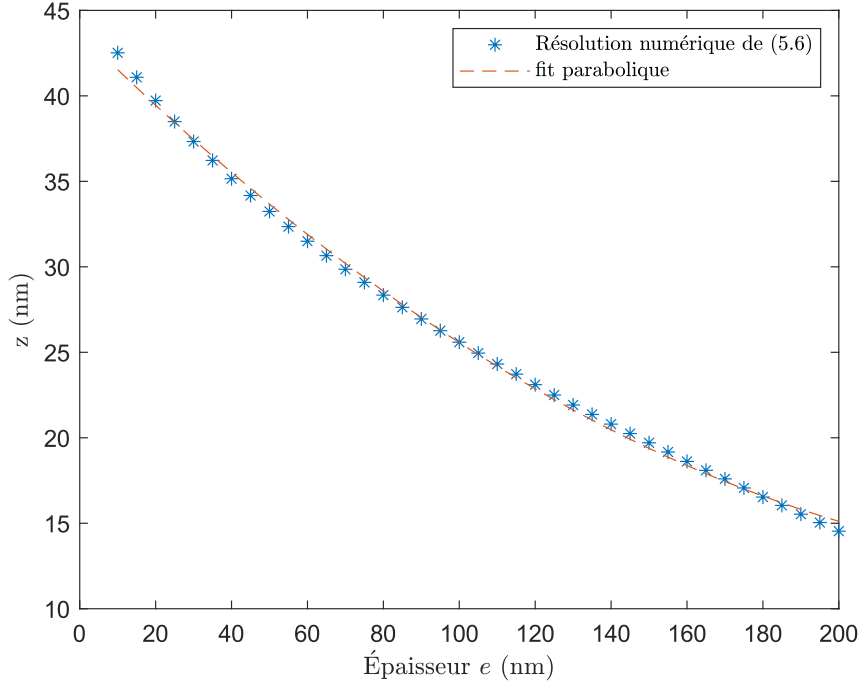


FIGURE 5.13 : Évolution de la distance z en fonction de l'épaisseur e pour un gradient de force constant. On a ici prit G_0 tel que défini à l'équation (5.6) avec $e_0 = 100$ nm, $z_0 = 25,6$ nm, $\varepsilon(0) = 14$, $V_0 = 0$ V et $V_1 = 1$ V. Lorsque l'épaisseur e de l'échantillon augmente, la rétroaction doit diminuer z pour maintenir un gradient de force constant.

Le même jeu de données nous donne également la conversion :

$$e(x, y) = -5,97 \cdot 10^5 \times (z_{FM}(x, y) - z_{substr})^2 + 1,32 \times (z_{FM}(x, y) - z_{substr}) - 5,62 \cdot 10^{-8} \quad (5.9)$$

Le calcul de z est alors simplement :

$$z = (z_{FM} - z_{substr}) - e \quad (5.10)$$

En supposant que z_{substr} se trouve à 125,6 nm en dessous de la moyenne des positions z_{FM} mesurées, on peut retrouver la valeur de l'épaisseur e à l'aide de l'équation (5.9) et la distance pointe-échantillon z en chaque point (x, y) à l'aide de la topographie visible sur la Figure 5.9. On peut voir l'épaisseur e ainsi obtenue sur la Figure 5.14.

La mesure nous permet de récupérer l'amplitude de la phase A_Φ :

$$A_\Phi \propto \frac{1}{2} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} (e(x, y), \varepsilon(2\omega_e), z(x, y)) \frac{V_1^2}{2}, \quad (5.11)$$

comme indiqué, la permittivité ε pertinente ici est celle prise à la fréquence $2\omega_e$. On sait d'après la partie 1.3.3.2 qu'elle est probablement différente de la valeur $\varepsilon(0)$ qui régit la relation entre e et z .

En connaissant ces deux valeurs e et z nous avons une base pour corriger la cartographie. Il reste cependant la question de la valeur $\varepsilon(2\omega_e)$ encore inconnue. Pour en avoir une estimation on prend deux points i et j sur la cartographie "AFM FM", que l'on peut voir en magenta sur la cartographie 5.14. On estime $\varepsilon(2\omega_e)$ en vérifiant :

$$\frac{\frac{\partial F}{\partial z}(e(x_i, y_i), \varepsilon(2\omega_e), z(x_i, y_i))}{\frac{\partial F}{\partial z}(e(x_j, y_j), \varepsilon(2\omega_e), z(x_j, y_j))} = \frac{A_\Phi(x_i, y_i)}{A_\Phi(x_j, y_j)} \quad (5.12)$$

Grâce à la Figure 5.15, on trouve alors la valeur :

$$\varepsilon(2\omega_e) = 5,57 \quad (5.13)$$

En utilisant cette valeur on peut maintenant tracer la cartographie d'une estimation théorique de la composante à $2\omega_e$ du gradient de force en chaque point de la cartographie :

$$\frac{\partial F}{\partial z}(e_{FM}(x, y), \varepsilon(2\omega_e), z_{FM}(x, y)) \quad (5.14)$$

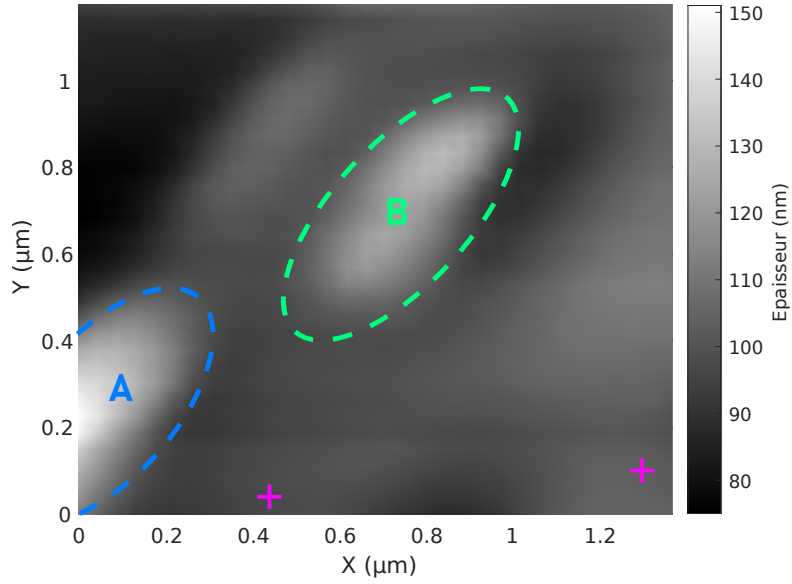


FIGURE 5.14 : Épaisseur $e(x, y)$ calculée à partir de la topographie de la Figure 5.9 et de l'équation (5.9). Si on compare cette image à la Figure 5.9, on voit que l'imagerie à iso-gradient de force sous-estime légèrement l'amplitude du relief.

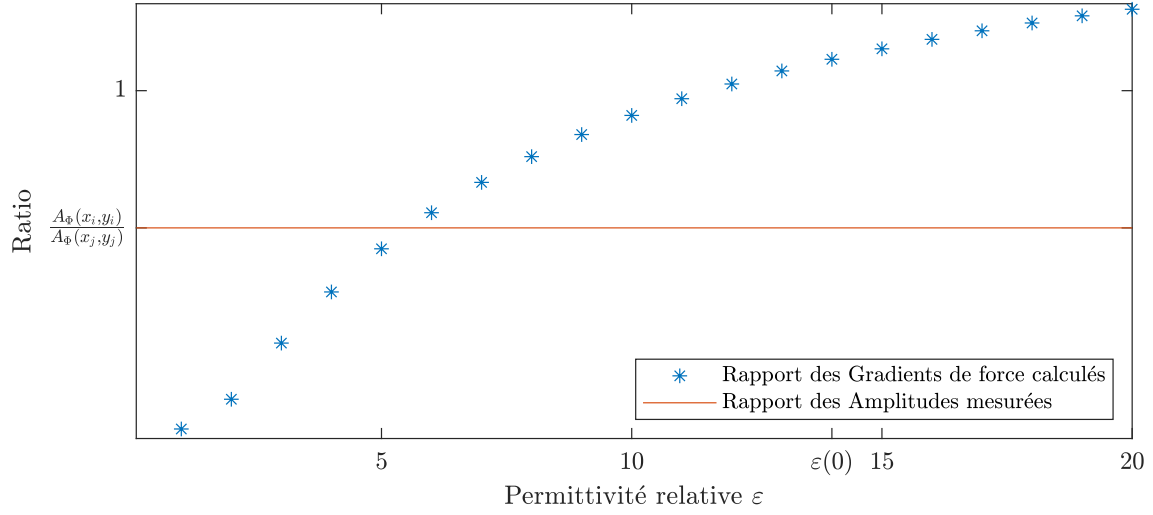


FIGURE 5.15 : Évolution du ratio $\frac{\frac{\partial F}{\partial z}(e(x_i, y_i), \varepsilon, z(x_i, y_i))}{\frac{\partial F}{\partial z}(e(x_j, y_j), \varepsilon, z(x_j, y_j))}$ en fonction de la permittivité ε calculé à l'aide des formules du chapitre 2. La courbe rouge représente le ratio que l'on obtient par les données de la mesure "AFM-FM" (voir Figure 5.11a).

5.5.1.3 Correction de la mesure "Z constant"

La correction de la mesure à "Z constant" suit une logique similaire. On reprend les estimations de z_{substr} et e_{FM} que l'on a obtenues de l'étude de la cartographie "AFM-FM". En revanche la valeur de z (que l'on va noter z_{zc} ici pour éviter les confusions) va différer de celle calculée dans la partie précédente puisque cette fois la position de la pointe est maintenue à une position constante que l'on note z_{const} (voir Figure 5.10).

$$z_{zc}(x, y) = (z_{const} - z_{substr}) - e(x, y) \quad (5.15)$$

Comme précédemment on utilise ces paramètres calculés pour réaliser la cartographie du gradient de force théorique :

$$\frac{\partial F}{\partial z}(e(x, y), \varepsilon(2\omega_e), z_{zc}(x, y)) \quad (5.16)$$

5.5.2 Mesures Corrigées

En utilisant l'épaisseur calculée de la Figure 5.14 et les équations (5.10) et (5.14) on peut retrouver la cartographie de gradient théorique que l'on obtiendrait pour un matériau de permittivité uniforme à $2\omega_e$. Un tel calcul nous donne la cartographie visible sur la Figure 5.16b.

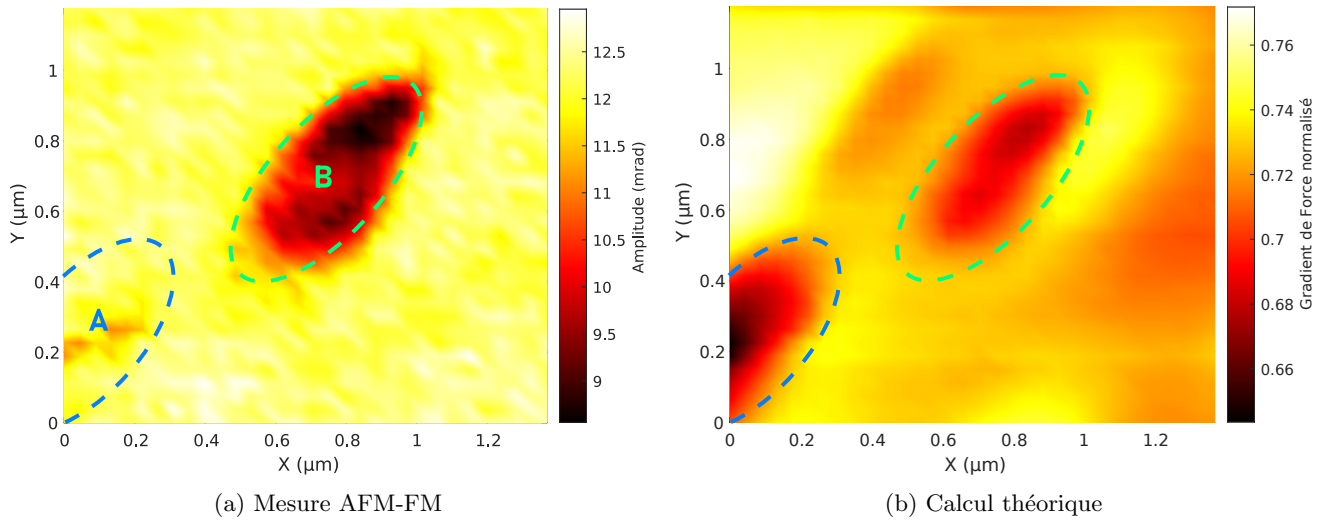


FIGURE 5.16 : Comparaison entre la cartographie d'amplitude mesurée (a) (identique à la Figure 5.11a) et l'évaluation du gradient de force (b) calculé grâce à l'estimation de l'épaisseur d'après l'équation 5.14. L'évaluation du gradient de force a été normalisée par la valeur G_0 définie en (5.4).

De même, les équations (5.15) et (5.16) nous permettent de réaliser la même simulation pour le protocole "Z constant". On peut en voir le résultat sur la Figure 5.17b.

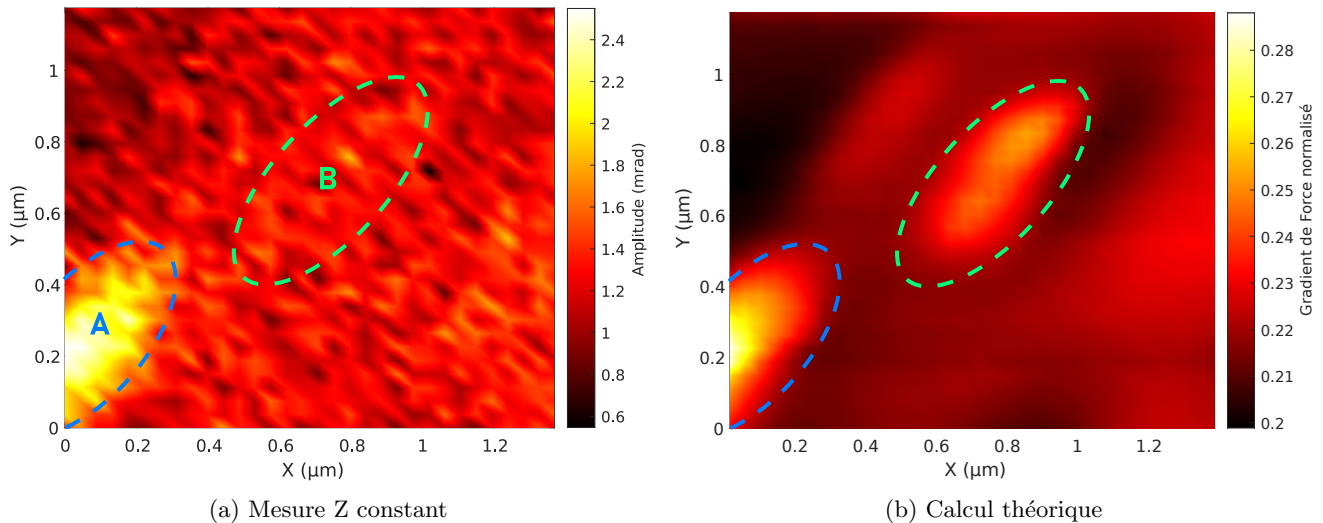


FIGURE 5.17 : Comparaison entre la cartographie d'amplitude mesurée (a) (identique à la Figure 5.11b) et l'évaluation du gradient de force (b) calculé grâce à l'estimation de l'épaisseur d'après l'équation 5.16. L'évaluation du gradient de force a été normalisée par la valeur G_0 définie en (5.4).

Si on compare les simulations des deux protocoles on peut voir que l'on retrouve sur la simulation du protocole "Z constant" (Figure 5.17b) une amplitude moyenne plus basse que celle obtenue sur la simulation "AFM-FM" (Figure 5.16b). Ceci est parfaitement cohérent avec le fait que la mesure à "Z constant" est effectuée plus loin du substrat que la mesure "AFM FM" et c'est d'ailleurs un phénomène que l'on retrouve si l'on compare les Figures 5.16a et 5.17a.

Si l'on regarde la Figure 5.16 on voit que les deux reliefs identifiés présentent des caractéristiques distinctes. Les reliefs A et B engendrent une diminution d'amplitude dans la simulation, mais seul le relief B présente une diminution d'amplitude notable sur la mesure. Il est donc probable que le relief B soit simplement dû à

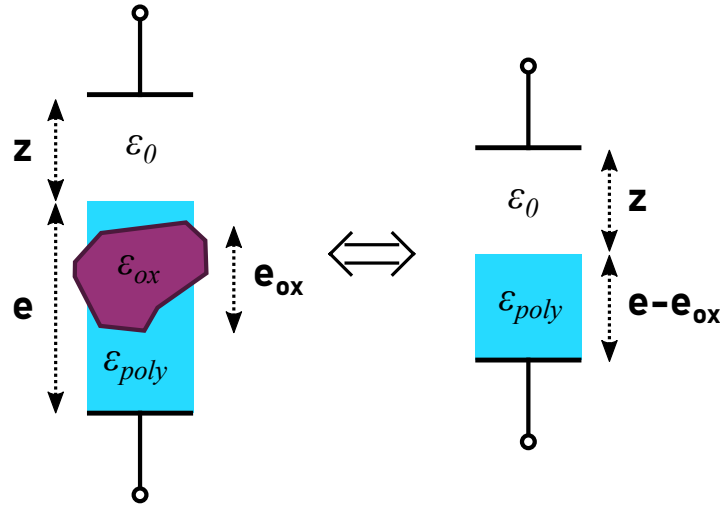


FIGURE 5.18 : Illustration de l'effet de la présence d'une particule d'oxyde dans la matrice polymère. Cette équivalence est vraie pour $\varepsilon_{ox} \gg \varepsilon_{poly} > 1$.

une surépaisseur de polymère. A contrario, le relief A correspondrait bien à la présence d'un élément avec une permittivité supérieure au polymère environnant, non pris en compte dans la simulation.

On peut le comprendre en reprenant les calculs sur la permittivité équivalente de la partie 2.1.3. Nous avons écrit (en première approximation) :

$$\frac{z + e}{\varepsilon_{tot}} = \frac{z}{1} + \frac{e}{\varepsilon_{poly}} \quad (5.17)$$

avec ε_{tot} la permittivité équivalente ressentie par la pointe et ε_{poly} la permittivité du polymère. En présence d'un oxyde sur une hauteur e_{ox} au sein du polymère comme sur la Figure 5.18 on a de même :

$$\frac{z + e}{\varepsilon_{tot}} = z + \frac{e - e_{ox}}{\varepsilon_{poly}} + \frac{e_{ox}}{\varepsilon_{ox}} \quad (5.18)$$

On a vu dans la partie 1.3 que la permittivité de l'oxyde était de 150 face à une permittivité entre 3 et 14 selon la fréquence pour le polymère. On a donc $\varepsilon_{ox} \gg \varepsilon_{poly} > 1$, on peut donc négliger le dernier terme :

$$\frac{z + e}{\varepsilon_{tot}} \approx z + \frac{e - e_{ox}}{\varepsilon_{poly}} \quad (5.19)$$

ce qui signifie que la présence d'un oxyde produit un effet équivalent à un rapprochement du substrat avec la pointe (ici de la distance e_{ox}), ce qui correspond bien à la compensation apparente de l'éloignement observé sur la Figure 5.16.

De la même façon pour la Figure 5.17, si le relief A apparaît bien comme un pic (d'amplitude de phase pour la mesure 5.17a et de gradient normalisé pour la cartographie calculée 5.17b) on peut constater que l'intensité de ce pic n'est guère comparable sur les deux cartographies. La simulation nous donne un pic dont le maximum inférieur à 0,29, ce qui représente une augmentation d'environ 30% par rapport à la valeur moyenne hors reliefs (estimée grossièrement à 0,22). La mesure, elle nous donne une amplitude au pic autour de 2,4 environ pour une valeur moyenne hors relief plutôt autour de 1,3 soit une augmentation de plus de 80%. Ceci est d'autant plus vrai qu'ici on a considéré que e et z étaient identiques sur les trois contributions du gradient de force alors que dans la pratique les contributions $\frac{\partial F_2}{\partial z}$ et $\frac{\partial F_3}{\partial z}$ voient plutôt une contribution moyennée qui applanira davantage les variations d'amplitudes de la Figure 5.17b.

Les comparaisons réalisées sur les Figures 5.16 et 5.17 attestent donc bien que la zone définie par le relief A présente une permittivité différente de celle de son environnement, on a donc ici repéré une particule d'oxyde. Au contraire, nous avons identifié que le relief B, pourtant un bon candidat compte tenu de sa morphologie, ne correspond pas à une particule d'oxyde.

5.6 Conclusion

Si un protocole fixe pour la réalisation de cartographies diélectriques n'a pas été arrêté, nous avons pu prouver qu'une telle mesure était possible avec l'instrument présenté au Chapitre 3. La cartographie en AFM-FM fonctionne mais peut encore être améliorée.

Notre manque de connaissance de l'épaisseur réelle $e(x, y)$ due à notre ignorance de la position réelle du plan du substrat, notamment, constitue une piste de réflexion à poursuivre. Une mesure de l'évolution de l'amplitude de la phase lors d'une courbe d'approche telle que celle de la Figure 5.12 nous permettra, à l'aide des modèles développés dans le chapitre 2 de retrouver la position réelle du plan du substrat. Ceci nous permettra alors de réaliser une image plus fiable des variations de permittivité à l'aide d'algorithmes de correction plus quantitatifs.

Conclusion

Conclusion générale

Nous avons présenté une preuve de concept de notre capacité à détecter les variations de permittivité au sein d'un échantillon composite polymère-oxyde. Si les images obtenues et leur interprétation sont encore perfectibles, les bases d'un protocole plus complet sont là et pourront être affinées en vue d'obtenir des cartographies plus précises et rapides. La capacité à discriminer l'oxyde du polymère a bien été démontrée dans la partie 5.5.2.

Appareil de mesure

Mon travail durant ces trois années a permis de doter le Laboratoire de Physique à l'ENS de Lyon d'un nouvel instrument capable de réaliser des mesures diélectriques locales, le chapitre 3 détaille les systèmes qui le composent. Cet instrument est hautement modulable. Le système de mesure de déflexion peut facilement être détaché et remplacé par un autre. Les différents câblages et passages de parois peuvent être rapidement reconfigurés selon les besoins. Dans la pratique, si l'instrument a été construit avec des mesures diélectriques en tête, sa structure le rend utilisable sans aucune modification matérielle (à l'exception d'un éventuel changement de levier) pour réaliser l'ensemble des techniques de mesures AFM décrites dans la partie 1.4 voir plus.

L'espace intérieur est suffisamment grand pour accueillir des échantillons de dimensions centimétriques. Le support du levier (voir partie 3.6.5) peut accommoder de nombreux types de leviers disponibles dans le commerce, et il est lui même facilement interchangeable. Le hublot qui le supporte (voir Figure 3.4) est également facilement démontable et nous disposons d'ailleurs d'un hublot similaire à face supérieure horizontale pouvant remplacer le hublot incliné utilisé durant ma thèse pour obtenir un levier plat par rapport à la surface de l'échantillon.

Capacité de Cartographie

Les résultats présentés dans la partie 5.4 nous montrent que la réalisation de cartographies diélectriques est possible. Si celles-ci demandent un peu de travail pour établir un protocole stable, possiblement à l'aide d'une calibration préalable, on a pu prouver la capacité de l'appareil à repérer les variations de permittivité. L'établissement d'un protocole plus robuste et précis devrait permettre une meilleure différenciation des particules de l'oxyde. L'intégration d'une interface plus flexible que celle offerte par Nanonis pourrait être envisagé dans ce cadre afin d'implémenter une mesure duale en aller-retour (dans la même veine que la mesure lift en KPFM décrite dans la partie 5.3.3), impossible avec le système actuellement utilisé.

Correction des distorsions optiques

Les nouvelles méthodes de corrections à destination des systèmes de mesures interférométriques à quadrature de phase présentées dans le Chapitre 4 ont fait l'objet d'un article publié dans la revue *Applied Physics Letters*^[39]. En particulier, la méthode de calibration harmonique présentée dans la partie 4.3.2 représente une méthode simple à mettre en œuvre dans ce genre de système. Lors des tests expérimentaux elle s'est avérée plus robuste et plus performante que la méthode de Heydemann.

Perspectives

L'appareil construit offre de nombreuses possibilités d'utilisation et son futur présente des perspectives variées.

Dynamique des polymères

Si la cartographie des particules d'oxyde a pu être réalisée, les quelques mesures que l'on a pu faire ne permettent pas vraiment de se prononcer sur des variations locales de constante diélectrique au sein de la matrice polymère. Une telle mesure demanderait de se rapprocher grandement de la surface de l'échantillon, d'autant que les variations de la constante diélectrique seront très inférieures à la différence entre les permittivités de l'oxyde et du polymère, qui aide grandement à leur distinction. Sa faisabilité reste donc en pratique à démontrer.

Spectroscopie Diélectrique

L'étude fréquentielle de la permittivité locale demeure le point en suspens de cette fin de thèse. Si la mesure est théoriquement faisable avec le système actuel, dans la pratique aucune mesure pertinente n'a pu être obtenue. Le sujet reste donc à étudier, notamment ce qui concerne les problèmes de bande passante des différents instruments. On sait par la littérature qu'une telle mesure est possible^[24]. Et on a pu voir à l'occasion que la mesure diélectrique était effectivement impactée par la fréquence d'excitation électrique. Cependant l'obtention d'un spectre probant est pour le moment resté sans succès. Les délais de mon travail de thèse ne m'ayant pas permis de mener l'investigation poussée que le sujet aurait mérité, une authentique spectroscopie diélectrique locale reste donc encore à réaliser.

La capacité à réaliser une telle mesure est très importante pour comprendre la dynamique locale des polymères, on a vu en effet dans la partie 1.2 que l'évolution de la permittivité selon la fréquence est un marqueur de l'organisation locale du composé. Pouvoir explorer les variations de spectre à l'échelle locale nous donnera donc un accès à l'organisation locale du polymère par rapport à la répartition des particules d'oxyde.

Possibilités offertes

Au delà des sujets abordés dans cette thèse les utilisations possibles de l'appareil sont nombreuses.

On a par exemple mentionné dans la partie 3.6.3 la présence au sein du support de l'échantillon de système de chauffage et de contrôle de la température. Une fois que la capacité à réaliser des spectres diélectriques aura été atteinte, cette fonctionnalité ouvrira la voie à des études précises de la dynamique locale des polymères autour de la transition vitreuse.

Annexe A

Modes de flexion du levier

On va détailler dans cette partie les formules utilisées pour calculer la forme du levier selon ses paramètres géométriques et l'excitation appliquée, notamment le mode fréquentiel excité. Ces formules ne font pas partie du travail que j'ai réalisé mais ont été utilisées dans les calculs du contraste, je me contente donc ici de les expliciter.

A.1 Mode fréquentiel

Le levier, en tant que poutre, possède différents modes de résonances associés à certaines fréquences. Le dispositif expérimental que l'on utilise nous permet souvent d'observer plusieurs de ces modes malgré le fait qu'on a surtout utilisés des leviers très rigides. On se limite ici aux modes 1, 2, 3 et 4 et les fréquences associées seront notés f_1 , f_2 , f_3 et f_4 .

A.1.1 Paramètre α_i

Appelons α_i la $i^{\text{ème}}$ solution de l'équation :

$$1 + \cos(\alpha) \times \cosh(\alpha) = 0$$

Les valeurs α_i correspondent aux valeurs propres de l'équation de Euler-Bernoulli pour des conditions aux limites encadrée d'un côté et libre de l'autre.

On utilise ici :

$$\alpha_1 \approx 1,8751 \quad (\text{A.1})$$

$$\alpha_2 \approx 4,6941 \quad (\text{A.2})$$

$$\alpha_3 \approx 7,8548 \quad (\text{A.3})$$

$$\alpha_4 \approx 10,9955 \quad (\text{A.4})$$

A.2 Forme des modes

A.2.0.1 Déformation

Soit h_{lev}^i la déformation par rapport au repos au point x_{lev} le long du levier pour le mode i , $i \in \mathbb{N}$.

$$h_{lev}^i(x_{lev}) = d \times \frac{\cos\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right) - \cosh\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right) - \frac{\cos \alpha_i + \cosh \alpha_i}{\sin \alpha_i + \sinh \alpha_i} \left(\sin\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right) - \sinh\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right) \right)}{\left| \cos \alpha_i - \cosh \alpha_i - \frac{\cos \alpha_i + \cosh \alpha_i}{\sin \alpha_i + \sinh \alpha_i} (\sin \alpha_i - \sinh \alpha_i) \right|} \quad (\text{A.5})$$

A.2.0.2 Inclinaison

À partir de l'équation (A.5) on peut déduire la dérivée :

$$\frac{\partial h_{lev}^i}{x_{lev}}(x_{lev}) = \frac{\alpha_i d}{L_{levier}} \frac{-\sin\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right) - \sinh\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right) - \frac{\cos\alpha_i + \cosh\alpha_i}{\sin\alpha_i + \sinh\alpha_i} \left(\cos\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right) - \cosh\left(\frac{\alpha_i x_{lev}}{L_{levier}}\right)\right)}{\left|\cos\alpha_i - \cosh\alpha_i - \frac{\cos\alpha_i + \cosh\alpha_i}{\sin\alpha_i + \sinh\alpha_i} (\sin\alpha_i - \sinh\alpha_i)\right|} \quad (\text{A.6})$$

Grâce à la dérivée on peut définir l'angle de la tangente locale par rapport à l'horizontale :

$$\Theta_{lev}^i(x_{lev}) = \arctan\left(\frac{\partial h_{lev}^i}{x_{lev}}(x_{lev})\right) \quad (\text{A.7})$$

A.3 Formules utiles

Dans la pratique on s'intéresse surtout à ce qui se passe à l'extrémité du levier puisque c'est là que la mesure interférométrique s'effectue. Les formules explicitées précédemment nous permettent alors de relier l'angle à l'extrémité du levier à la déflexion d :

$$\Theta_{lev}^i(L_{levier}, d) = \arctan\left(-\frac{\alpha_i d}{L_{levier}} \frac{\sin\alpha_i + \sinh\alpha_i + \frac{\cos\alpha_i + \cosh\alpha_i}{\sin\alpha_i + \sinh\alpha_i} (\cos\alpha_i - \cosh\alpha_i)}{\left|\cos\alpha_i - \cosh\alpha_i - \frac{\cos\alpha_i + \cosh\alpha_i}{\sin\alpha_i + \sinh\alpha_i} (\sin\alpha_i - \sinh\alpha_i)\right|}\right) \quad (\text{A.8})$$

A.3.1 Application numérique

On peut voir une illustration de la forme des différents modes pour une même déflexion sur la Figure 4.10.

Annexe B

Calcul des Forces exercées

Ici sont détaillés les calculs permettant d'arriver aux expressions des forces de la section 2.1.2. Ces calculs sont basés sur le travail réalisé par J. Colchero, A. Gil et A. M. Baró^[25]. La seule différence résidant dans le fait que ces derniers considéraient les deux électrodes séparées par un vide homogène tandis que nous avons à prendre en compte l'existence de la couche d'échantillon dont on cherche à mesurer la permittivité.

B.1 Géométrie

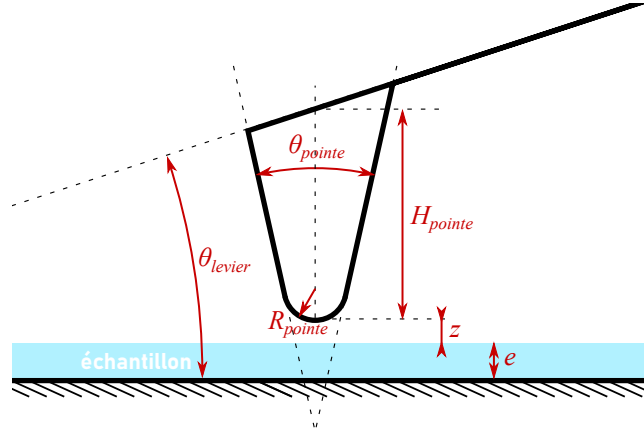


FIGURE B.1 : Illustration des paramètres géométriques génériques du montage. Il est à noter que nous modélisons la pointe comme suivant un axe perpendiculaire à la surface du substrat.

Comme dans l'article qui nous sert d'inspiration, nous décomposons la force exercée sur le levier en trois composantes.

La première composante est celle due à l'extrémité de la pointe dans la zone de la taille du rayon de courbure R_{pointe} à son extrémité.

La seconde est celle due au cône de la pointe.

La troisième est celle due au levier.

La Figure B.1 illustre certains paramètres géométriques importants pour les calculs à suivre. Une représentation schématique des trois composantes mentionnées peut être trouvée sur la Figure 2.2.

B.2 Formulation de la force

Pour chaque composante la force s'écrit comme l'intégrale du champ en suivant les lignes de champs.

$$F_i(z) = \int_{S_{substrat}} \frac{\epsilon_i}{2} E(x, y, z)^2 dS \approx \frac{\epsilon_0 V^2}{2} \int_{S_{substrat}} \frac{\epsilon_i(x, y, z)}{a_i(x, y, z)^2} dS \quad (\text{B.1})$$

avec E le champ électrique, ε_i la permittivité relative du milieu séparant les deux électrodes considérées et a la longueur de l'arc de cercle reliant le point (x, y) de la surface du substrat à l'électrode.

B.3 Calculs

On pose les paramètres géométriques suivants :

$$\delta = \frac{R_{pointe}}{\tan^2\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} \quad (\text{B.2})$$

B.3.1 Arcs de champs

L'expression des arcs de champs est différente pour chaque géométrie.

B.3.1.1 Extrémité de la pointe

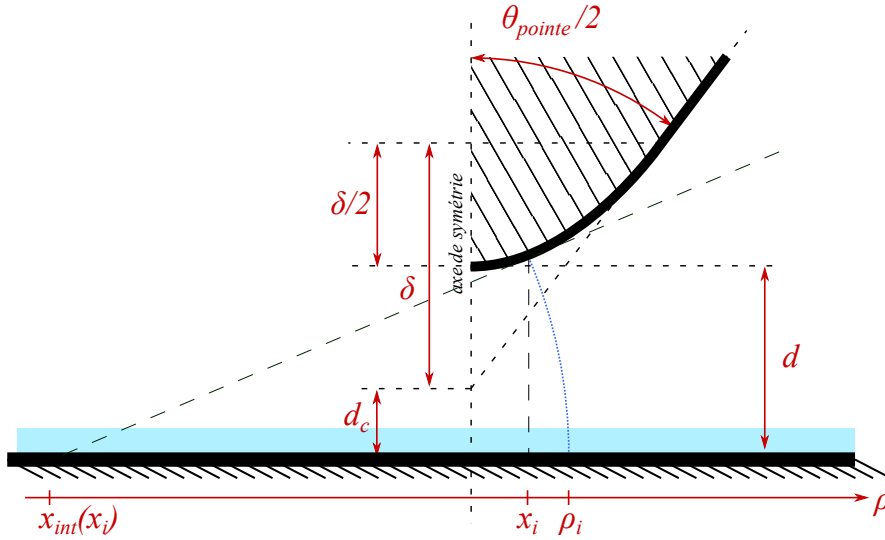


FIGURE B.2 : Illustration des paramètres géométriques importants pour le calcul de la force due à l'extrémité de la pointe. La ligne en pointillés bleus représente un exemple de ligne de champ.

La Figure B.2 montre schématiquement la géométrie considérée pour l'extrémité de la pointe. On considère que la pointe décrit une parabole d'équation $c(x)$:

$$c(x) = \frac{1}{2R_{pointe}}x^2 + d \quad (\text{B.3})$$

avec $d = z + e$.

À chaque point x_i de l'axe considéré on peut décrire une tangente associée d'équation :

$$t_{x_i}(x) = \left(\frac{x_i}{R_{pointe}}\right)(x - x_i) + c(x_i) \quad (\text{B.4})$$

Cette tangente coupe le plan du substrat en $x_{int}(x_i)$:

$$x_{int}(x_i) = \frac{x_i}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_i} \quad (\text{B.5})$$

On peut à partir de là calculer le rayon de l'arc :

$$r_1(x_i) = \sqrt{(x_i - x_{int}(x_i))^2 + c(x_i)^2} \quad (\text{B.6})$$

Duquel on peut tirer la longueur de l'arc :

$$a_1(x_i) = \frac{x_i}{R_{pointe}} r_1(x_i) = \frac{x_i}{R_{pointe}} \sqrt{\left(\frac{x_i}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_i}\right)^2 + \left(\frac{x_i^2}{2R_{pointe}} + d\right)^2} \quad (\text{B.7})$$

On utilise comme origine des arcs le point où ils croisent la surface, c'est à dire ici la valeur ρ_i de la Figure B.2. Dans l'expression de la force de l'équation B.1, c'est sur cette valeur qu'on effectue l'intégration pour avoir le champ complet. On considère par la suite^[25] :

$$x_i \approx \frac{\rho_i}{1 + \frac{d}{2R_{pointe}}} \quad (\text{B.8})$$

On obtient alors pour toute valeur sur l'axe ρ visible sur la Figure B.2 :

$$a_1(\rho, d) = \frac{\sqrt{\frac{16R_{pointe}^2}{(2R_{pointe}+d)^4} \rho^6 + \frac{4R_{pointe}(4d+R_{pointe})}{(2R_{pointe}+d)^2} \rho^4 + 4(d^2 - dR_{pointe})\rho^2 + d^2(2R_{pointe} + d)^2}}{2R_{pointe} + d} \quad (\text{B.9})$$

avec $d = z + e$:

$$a_1(\rho, z) = \frac{\sqrt{\frac{16R_{pointe}^2}{(2R_{pointe}+z+e)^4} \rho^6 + \frac{4R_{pointe}(4(z+e)+R_{pointe})}{(2R_{pointe}+z+e)^2} \rho^4 + 4(z+e)(z+e - R_{pointe})\rho^2 + (z+e)^2(2R_{pointe} + z + e)^2}}{2R_{pointe} + z + e} \quad (\text{B.10})$$

que l'on peut écrire

$$a_1(\rho, z) = \frac{4R_{pointe}}{(2R_{pointe} + z + e)^3} \sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)} \quad (\text{B.11})$$

avec

$$\alpha_1(z) = \frac{1}{4R_{pointe}} (4(z+e) + R_{pointe})(2R_{pointe} + z + e)^2 \quad (\text{B.12})$$

$$\beta_1(z) = \frac{1}{4R_{pointe}^2} (z+e)(z+e + R_{pointe})(2R_{pointe} + z + e)^4 \quad (\text{B.13})$$

$$\gamma_1(z) = \frac{1}{16R_{pointe}^2} (z+e)(2R_{pointe} + z + e)^6 \quad (\text{B.14})$$

B.3.1.2 Cône de la pointe

Les paramètres géométriques pertinents pour le calculs des arcs dus à la section conique de la pointe sont explicités sur la Figure B.3. On commence par expliciter certaines valeurs :

Le centre des arcs de cercles est :

$$x_0 = -d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \quad (\text{B.15})$$

On utilise le paramètre ρ comme variable pour décrire les arcs de cercles. On note $r(\rho)$ le rayon associé de l'arc de cercle.

$$r_2(\rho) = \rho - x_0 = \rho + d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \quad (\text{B.16})$$

En conséquence de quoi on peut exprimer la longueur de l'arc $a(\rho)$:

$$a_2(\rho, d_c) = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right) r_2(\rho) = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \left(\rho + d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right) \quad (\text{B.17})$$

avec

$$d_c = d - \frac{\delta}{2} = z + e - \frac{\delta}{2} \quad (\text{B.18})$$

ceci nous donne

$$a_2(\rho, z) = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \left(\rho + (z + e + \frac{\delta}{2}) \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right) \quad (\text{B.19})$$

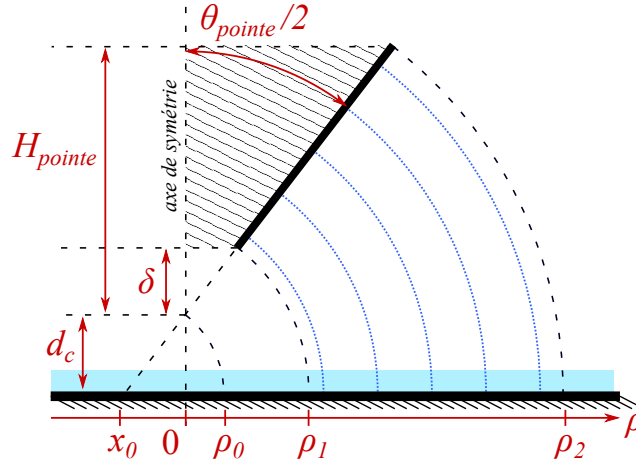


FIGURE B.3 : Illustration des paramètres géométriques importants pour le calcul de la force due au cône de la pointe. Les lignes en pointillés bleus représentent les lignes de champs.

B.3.1.3 Levier

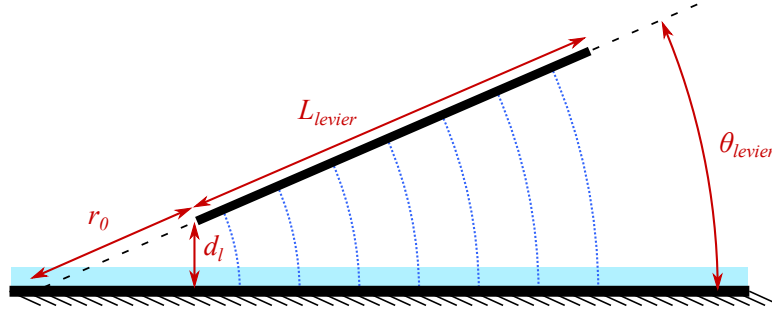


FIGURE B.4 : Illustration des paramètres géométriques importants pour le calcul de la force due au corps du levier. Les lignes en pointillés bleu représentent les lignes de champs.

La Figure B.4 montre les paramètres pertinents pour le calcul des arcs de champs dûs au levier. En posant x_3 dans l'axe du levier avec pour origine l'intersection de cet axe avec la surface du substrat, on a :

$$a_3(x_3, y_3, d_l) = x_3 \theta_{levier} \quad (\text{B.20})$$

Avec y_3 compris entre $-\frac{W_{levier}}{2}$ et $\frac{W_{levier}}{2}$ et x_3 compris entre r_0 et $r_0 + L_{levier}$ avec r_0 la distance séparant le levier du point d'intersection de l'axe du levier avec la surface du substrat, comme montré sur la Figure B.4.

$$r_0 = \frac{1}{2} d_l \cot\left(\frac{\theta_{levier}}{2}\right) \quad (\text{B.21})$$

avec

$$d_l = z + H_{pointe} + e \quad (\text{B.22})$$

B.3.2 Permittivité

Contrairement à l'article qui nous sert d'inspiration la permittivité n'est pas homogène entre le levier et le substrat du fait de la présence de l'échantillon.

On note ε_{ech} la valeur de la permittivité dans l'échantillon pour la zone concernée. Le reste de la cuve se trouve à un niveau de vide assez élevé en général, on lui attribue donc une permittivité relative de 1.

Du fait des considérations de la Section 2.1.3, on sait que la permittivité ε_i à considérer s'écrit sous la forme :

$$\varepsilon_i(x, y, z) = \frac{\varepsilon_{ech} a_i(x, y, z)}{a_{ic}(x, y, z) + \varepsilon_{ech} a_{iv}(x, y, z)} \quad (\text{B.23})$$

On a vu qu'on pouvait toujours écrire la longueur de l'arc sous la forme :

$$a_i(x, y, z) = \theta_i(x, y, z)r_i(x, y, z) \quad (\text{B.24})$$

On peut donc écrire

$$a_{ic}(x, y, z) = \theta_{ic}(x, y, z)r_i(x, y, z) \quad (\text{B.25})$$

avec

$$\theta_{ic}(x, y, z) = \arcsin\left(\frac{e}{r_i(x, y, z)}\right) \quad (\text{B.26})$$

d'où :

$$a_{ic}(x, y, z) = \arcsin\left(\frac{e}{r_i(x, y, z)}\right)r_i(x, y, z) \quad (\text{B.27})$$

B.3.2.1 Extrémité de la pointe

Dans le cas de l'extrémité de la pointe on a :

$$a_1(x, z) = \frac{x_1}{R_{pointe}}r_1(x_1, z) \quad (\text{B.28})$$

avec

$$r_1(x_1, z) = \sqrt{\left(\frac{x_1}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_1}\right)^2 + \left(\frac{x_1^2}{2R_{pointe}} + d\right)^2} \quad (\text{B.29})$$

et

$$a_{1c}(x, z) = \arcsin\left(\frac{e}{\sqrt{\left(\frac{x_1}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_1}\right)^2 + \left(\frac{x_1^2}{2R_{pointe}} + d\right)^2}}\right)\sqrt{\left(\frac{x_1}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_1}\right)^2 + \left(\frac{x_1^2}{2R_{pointe}} + d\right)^2} \quad (\text{B.30})$$

On a donc :

$$\varepsilon_1(x, y, z) \approx \frac{\varepsilon_{ech1} \frac{x_1}{R_{pointe}}}{(1 - \varepsilon_{ech1}) \arcsin\left(\frac{e}{\sqrt{\left(\frac{x_1}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_1}\right)^2 + \left(\frac{x_1^2}{2R_{pointe}} + d\right)^2}}\right) + \varepsilon_{ech1} \frac{x_1}{R_{pointe}}} \quad (\text{B.31})$$

B.3.2.2 Cône de la pointe

Dans le cas du cône, on a :

$$a_2(\rho, d_c) = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\left(\rho + d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right) \quad (\text{B.32})$$

et d'après les équations B.27 et B.16, on a :

$$a_{2c}(\rho, d_c) = \arcsin\left(\frac{e}{\rho + d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)}\right)\left(\rho + d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right) \quad (\text{B.33})$$

si on combine les équations B.23 et B.32, on obtient :

$$\varepsilon_2 \approx \frac{\varepsilon_{ech2} \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right)}{(1 - \varepsilon_{ech2}) \arcsin\left(\frac{e}{\rho + (z+e+\frac{\delta}{2}) \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)}\right) + \varepsilon_{ech2} \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} \quad (\text{B.34})$$

B.3.2.3 Levier

Dans le cas du levier, on a :

$$a_3(x_3, y_3, d_l) = x_3 \theta_{levier} \quad (\text{B.35})$$

et

$$a_{3c}(x_3, y_3, d_l) = \arcsin\left(\frac{e}{x_3}\right) x_3 \quad (\text{B.36})$$

On peut par conséquent écrire :

$$\varepsilon_3 \approx \frac{\varepsilon_{ech3} \theta_{levier}}{(1 - \varepsilon_{ech3}) \arcsin\left(\frac{e}{x_3}\right) + \varepsilon_{ech3} \theta_{levier}} \quad (\text{B.37})$$

B.3.2.4 Approximation utilisée

Dans les faits on peut considérer que $e \ll r_i(x, y, z)$, ce qui implique :

$$a_{ic}(x, y, z) \approx e \quad (\text{B.38})$$

L'expression de la permittivité que l'on utilise est donc :

$$\varepsilon_i(x, y, z) = \frac{\varepsilon_{echi} a_i(x, y, z)}{e + \varepsilon_{echi} (a_i(x, y, z) - e)} \quad (\text{B.39})$$

Ce qui nous donne :

$$\varepsilon_1(x, y, z) \approx \frac{\varepsilon_{ech1} \frac{x_1}{R_{pointe}} \sqrt{\left(\frac{x_1}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_1}\right)^2 + \left(\frac{x_1^2}{2R_{pointe}} + d\right)^2}}{e + \varepsilon_{ech1} \left(\frac{x_1}{R_{pointe}} \sqrt{\left(\frac{x_1}{2} - \frac{dR_{pointe}}{x_1}\right)^2 + \left(\frac{x_1^2}{2R_{pointe}} + d\right)^2} - e\right)} \quad (\text{B.40})$$

$$\varepsilon_2(x, y, z) \approx \frac{\varepsilon_{ech2} \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \left(\rho + d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right)}{e + \varepsilon_{ech2} \left(\left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2}\right) \left(\rho + d_c \tan\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)\right) - e\right)} \quad (\text{B.41})$$

Dans le cas du levier, on peut prendre en compte le fait que l'angle θ_{levier} est en général très faible et que l'épaisseur e est petite devant H_{pointe} . On peut alors considérer que :

$$a_{3c}(x, y, z) \approx e \quad (\text{B.42})$$

et

$$a_3 \approx z + H_{pointe} + e \quad (\text{B.43})$$

On a donc pour expression de la permittivité :

$$\varepsilon_3(x, y, z) \approx \frac{\varepsilon_{ech3} (z + H_{pointe} + e)}{e + \varepsilon_{ech3} (z + H_{pointe})} \quad (\text{B.44})$$

B.3.3 Force appliquée

Ayant déterminé les expressions de a_i et de ε_i pour chacun des composants on peut exprimer la force associée.

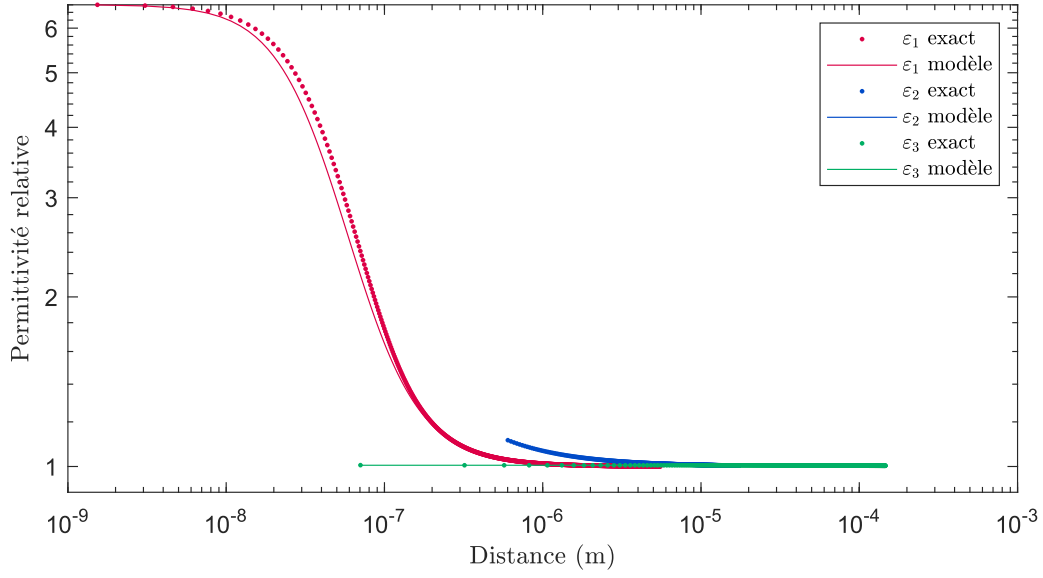


FIGURE B.5 : Comparaison de l'évolution suivant la longueur du levier des différentes valeurs de la permittivité. On a pris ici $z = 1$ nm. L'axe x est ici pris suivant l'axe du levier avec pour origine l'extrémité de la pointe, soit $x = \rho = x_3 - r_0$. Les valeurs de permittivité dites "exactes" sont données par les équations (B.31), (B.34) et (B.37) tandis que les valeurs dites "modèle" sont issues des équations (B.40), (B.41) et (B.44).

B.3.3.1 Extrémité de la pointe

En incorporant les expressions de a_1 et de ε_1 telles qu'exprimées respectivement dans les équations (B.10) et (B.39) à l'équation de la force (B.1) on obtient :

$$\begin{aligned}
F_1(z) &\approx \frac{\varepsilon_0 V^2}{2} \int_{S_{\text{substrat}}} \frac{\varepsilon_i(x, y, z)}{a_i(x, y, z)^2} dS \\
&\approx \frac{\varepsilon_0 V^2}{2} 2\pi \int_0^{\rho_{\max}(z)} \frac{\varepsilon_{\text{ech1}} a_1(\rho, z)}{e + \varepsilon_{\text{ech1}}(a_1(\rho, z) - e)} \frac{1}{a_1(\rho, z)^2} \rho d\rho \\
&\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \varepsilon_{\text{ech1}} \int_0^{\rho_{\max}(z)} \frac{1}{e + \varepsilon_{\text{ech1}}(a_1(\rho, z) - e)} \frac{\rho}{a_1(\rho, z)} d\rho
\end{aligned} \tag{B.45}$$

Avec $a_1(\rho, z)$ tel que défini dans l'équation (B.10) et

$$\rho_{\max}(z) = \frac{R_{\text{pointe}}}{2 \tan(\frac{\theta_{\text{pointe}}}{2})} - d \tan(\frac{\theta_{\text{pointe}}}{2}) - \sqrt{\left(\frac{R_{\text{pointe}}}{2 \tan(\frac{\theta_{\text{pointe}}}{2})} + d \tan(\frac{\theta_{\text{pointe}}}{2})\right)^2 + \left(\frac{R_{\text{pointe}}}{2 \tan^2(\frac{\theta}{2})} + d\right)^2} \tag{B.46}$$

Cette intégrale ne possède pas de solution exacte. On réalise donc des intégrations numériques pour déterminer son évolution.

$$\begin{aligned}
F_1(z) &\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \varepsilon_{\text{ech1}} \frac{(2R_{\text{pointe}} + z + e)^3}{4R_{\text{pointe}}} \\
&\times \int_0^{\rho_{\max}(z)} \frac{1}{e + \varepsilon_{\text{ech1}} \left(\frac{4R_{\text{pointe}}}{(2R_{\text{pointe}} + z + e)^3} \sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)} - e \right)} \\
&\times \frac{\rho}{\sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)}} d\rho
\end{aligned} \tag{B.47}$$

avec

$$\alpha_1(z) = \frac{1}{4R_{pointe}}(4(z+e) + R_{pointe})(2R_{pointe} + z + e)^2 \quad (B.48)$$

$$\beta_1(z) = \frac{1}{4R_{pointe}^2}(z+e)(z+e + R_{pointe})(2R_{pointe} + z + e)^4 \quad (B.49)$$

$$\gamma_1(z) = \frac{1}{16R_{pointe}^2}(z+e)^2(2R_{pointe} + z + e)^6 \quad (B.50)$$

B.3.3.2 Cône de la pointe

En incorporant les expressions de a_2 et de ε_2 tels qu'exprimées respectivement dans les équations (B.32) et (B.41) à l'équation de la force (B.1) on obtient :

$$\begin{aligned} F_2(z) &\approx \frac{\varepsilon_0 V^2}{2} \int_{S_{substrat}} \frac{\varepsilon_2(x, y, z)}{a_2(x, y, z)^2} dS \\ &\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \int_{\rho_1}^{\rho_2} \frac{\varepsilon_{ech2} a_2(\rho, z)}{e + \varepsilon_{ech2}(a_2(\rho, z) - e)} \frac{1}{a_2(\rho, z)^2} \rho d\rho \\ &\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \int_{\rho_1}^{\rho_2} \frac{\varepsilon_{ech2}}{e + \varepsilon_{ech2}(a_2(\rho, z) - e)} \frac{1}{a_2(\rho, z)} \rho d\rho \\ &\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \int_{\rho_1}^{\rho_2} \frac{\varepsilon_{ech2}}{e + \varepsilon_{ech2} \left[\left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \left(\rho + d_c(z) \tan \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \right) - e \right]} \\ &\quad \times \frac{1}{\left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \left(\rho + d_c(z) \tan \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \right)} \rho d\rho \end{aligned} \quad (B.51)$$

Soit :

$$F_2(z) \approx \varepsilon_0 V^2 \frac{\pi \varepsilon_{ech2}}{\alpha_2} \int_{\rho_1(z)}^{\rho_2(z)} \frac{\rho}{\varepsilon_{ech2} \alpha_2 \rho^2 + (2\varepsilon_{ech2} \alpha_2 \beta_2 (z + e - \frac{\delta}{2}) - e(\varepsilon_{ech2} - 1)) \rho + \varepsilon_{ech2} \alpha_2 \beta_2^2 (z + e - \frac{\delta}{2})^2} d\rho \quad (B.52)$$

avec :

$$\alpha_2 = \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \quad (B.53)$$

$$\beta_2 = \tan \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \quad (B.54)$$

$$(B.55)$$

et

$$\rho_1(z) = d_c(z) \frac{1 - \sin \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) + \frac{\delta}{d_c(z)}}{\cos \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right)} \quad (B.56)$$

$$\rho_2(z) = d_c(z) \frac{1 - \sin \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) + \frac{H_{pointe}}{d_c(z)}}{\cos \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right)} \quad (B.57)$$

On peut se référer à la Figure (B.3) pour la signification de ρ_1 et ρ_2 .

Là encore on utilise l'intégration numérique pour étudier l'évolution de la force en fonction de la distance z .

B.3.3.3 Levier

En incorporant les expressions de a_3 et de ε_3 tels qu'exprimées respectivement dans les équations (B.35) et (B.44) à l'équation de la force (B.1) on obtient :

$$\begin{aligned}
F_3(z) &\approx \frac{\varepsilon_0 V^2}{2} \int_{S_{\text{substrat}}} \frac{\varepsilon_3(x, y, z)}{a_3(x, y, z)^2} dS \\
&\approx \frac{\varepsilon_0 V^2}{2} \int_{-\frac{W_{\text{levier}}}{2}}^{\frac{W_{\text{levier}}}{2}} \int_{r_0}^{r_0+L_{\text{levier}}} \frac{\varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}} + e)}{e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}})} \frac{1}{x_3^2 \theta_{\text{levier}}^2} dx_3 dy_3 \\
&\approx \frac{W_{\text{levier}} \varepsilon_0 V^2}{2} \frac{\varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}} + e)}{e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}})} \frac{1}{\theta_{\text{levier}}^2} \int_{r_0}^{r_0+L_{\text{levier}}} \frac{1}{x_3^2} dx_3 \\
&\approx \frac{W_{\text{levier}} \varepsilon_0 V^2}{2} \frac{\varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}} + e)}{e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}})} \frac{1}{\theta_{\text{levier}}^2} \left(-\frac{1}{r_0(z) + L_{\text{levier}}} + \frac{1}{r_0(z)} \right) \\
&\approx 2W_{\text{levier}} \varepsilon_0 V^2 \frac{\varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}} + e)}{e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}})} \frac{1}{\theta_{\text{levier}}^2} \frac{L_{\text{levier}}}{d_l(z) \cot(\frac{\theta_{\text{levier}}}{2})(d_l(z) \cot(\frac{\theta_{\text{levier}}}{2}) + L_{\text{levier}})}
\end{aligned} \tag{B.58}$$

En utilisant le fait que $d_l = z + H_{\text{pointe}} + e$, on obtient alors :

$$F_3(z) \approx 2W_{\text{levier}} \varepsilon_0 V^2 \frac{\varepsilon_{ech3}}{e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{\text{pointe}})} \frac{1}{\theta_{\text{levier}}^2} \frac{L_{\text{levier}} \tan^2(\frac{\theta_{\text{levier}}}{2})}{z + H_{\text{pointe}} + e + L_{\text{levier}} \tan(\frac{\theta_{\text{levier}}}{2})} \tag{B.59}$$

B.3.4 Gradient de Force

Du fait du faible impact de la composante de la force associée à l'extrémité de la pointe on cherche à utiliser le gradient de la force comme expliqué dans la partie 2.1 .

B.3.4.1 Extrémité de la pointe

En dérivant l'équation (B.47) on obtient :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial F_1(z)}{\partial z} &\approx \varepsilon_0 V^2 \pi \varepsilon_{ech1} \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{(2R_{\text{pointe}} + z + e)^3}{4R_{\text{pointe}}} \right. \\
&\quad \times \int_0^{\rho_{\text{max}}} \frac{1}{e + \varepsilon_{ech1} \left(\frac{4R_{\text{pointe}}}{(2R_{\text{pointe}} + z + e)^3} \sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)} - e \right)} \\
&\quad \left. \times \frac{\rho}{\sqrt{\rho^6 + \alpha_1(z)\rho^4 + \beta_1(z)\rho^2 + \gamma_1(z)}} d\rho \right)
\end{aligned} \tag{B.60}$$

avec

$$\alpha_1(z) = \frac{1}{4R_{\text{pointe}}} (4(z + e) + R_{\text{pointe}})(2R_{\text{pointe}} + z + e)^2 \tag{B.61}$$

$$\beta_1(z) = \frac{1}{4R_{\text{pointe}}^2} (z + e)(z + e + R_{\text{pointe}})(2R_{\text{pointe}} + z + e)^4 \tag{B.62}$$

$$\gamma_1(z) = \frac{1}{16R_{\text{pointe}}^2} (z + e)^2 (2R_{\text{pointe}} + z + e)^6 \tag{B.63}$$

B.3.4.2 Cône de la pointe

En dérivant l'équation (B.52)

$$\frac{\partial F_2(z)}{\partial z} \approx \varepsilon_0 V^2 \frac{\pi \varepsilon_{ech2}^2}{\alpha_2} \frac{\partial}{\partial z} \left(\int_{\rho_1(z)}^{\rho_2(z)} \frac{\rho}{\alpha_2 \rho^2 + (2\alpha_2 \beta_2 (z + e - \frac{\delta}{2}) - e(\varepsilon_{ech2} - 1))\rho + \alpha_2 \beta_2^2 (z + e - \frac{\delta}{2})^2} d\rho \right) \quad (B.64)$$

avec :

$$\alpha_2 = \varepsilon_{ech2} \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \quad (B.65)$$

$$\beta_2 = \tan \left(\frac{\theta_{pointe}}{2} \right) \quad (B.66)$$

$$(B.67)$$

et

$$\rho_1(z) = d_c(z) \frac{1 - \sin\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) + \frac{\delta}{d_c(z)}}{\cos\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} \quad (B.68)$$

$$\rho_2(z) = d_c(z) \frac{1 - \sin\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right) + \frac{H_{pointe}}{d_c(z)}}{\cos\left(\frac{\theta_{pointe}}{2}\right)} \quad (B.69)$$

B.3.4.3 Levier

En dérivant l'équation (B.59) on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial F_3}{\partial z} \approx & - \frac{2W_{levier} \varepsilon_0 V^2 \varepsilon_{ech3} L_{levier} \tan^2\left(\frac{\theta_{levier}}{2}\right)}{\theta_{levier}^2 (e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{pointe}))(z + H_{pointe} + e + L_{levier} \tan\left(\frac{\theta_{levier}}{2}\right))} \\ & \times \left[\frac{\varepsilon_{ech3}}{e + \varepsilon_{ech3}(z + H_{pointe})} + \frac{1}{z + H_{pointe} + e + L_{levier} \tan\left(\frac{\theta_{levier}}{2}\right)} \right] \end{aligned} \quad (B.70)$$

Annexe C

Expression du contraste

On va expliciter dans cette partie les expressions qui nous permettent d'estimer théoriquement le contraste à partir des paramètres géométriques liés au montage d'interféromètre.

C.1 Principe

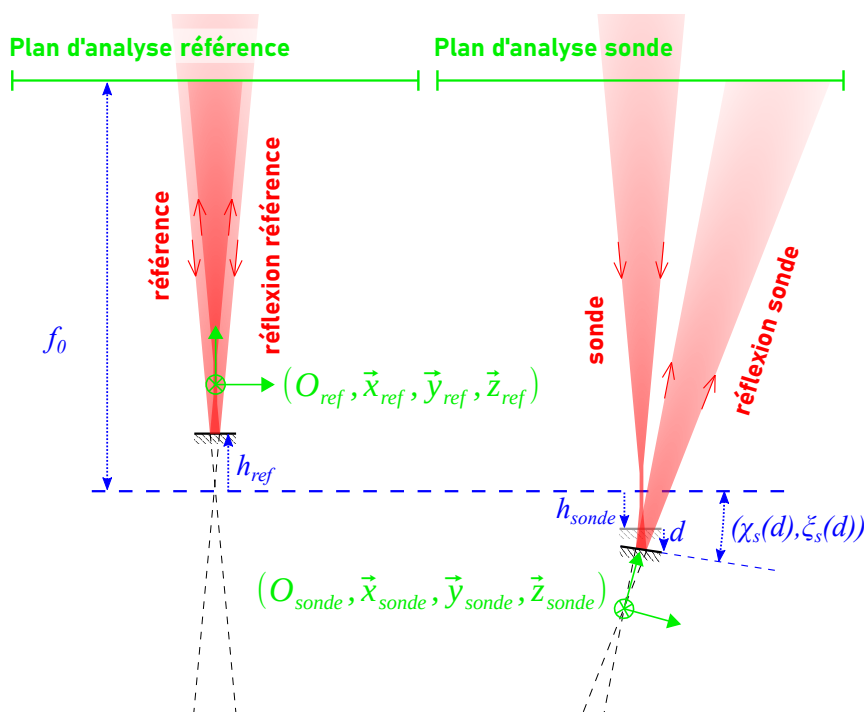


FIGURE C.1 : Illustration schématique du cas considéré. On voit en noir les surfaces de réflexion pour les rayons de la références et de la sonde. La surface de référence est considérée toujours orthogonale au rayon incident. La surface sonde quant à elle est inclinée par rapport à l'orthogonale au rayon incident. Cette inclinaison bi-dimensionnelle est définie par l'angle χ_s selon l'axe \vec{x} et par l'angle ψ_s selon l'axe \vec{y} . On voit une illustration des systèmes de coordonnées $(O_{ref}, \vec{x}_{ref}, \vec{y}_{ref}, \vec{z}_{ref})$ et $(O_{sonde}, \vec{x}_{sonde}, \vec{y}_{sonde}, \vec{z}_{sonde})$ que l'on utilise pour décrire le champ électromagnétique au niveau des plans d'analyse. Ces bases ont chacune pour origine le point focal du rayon réfléchi associé et pour axe \vec{z} la direction du rayon.

L'interféromètre repose sur l'interférence de deux rayons lasers que l'on appelle le rayon "sonde" et le rayon "référence". La mesure interférométrique permet donc de quantifier les différences de chemin optique entre la sonde et la référence.

Dans le cas de notre montage, le rayon de référence est celui qui se réfléchit sur la surface du chip tandis que la sonde se réfléchit sur l'extrémité du levier (voir la partie 3.7.1 ainsi que les Figures 3.12 et 4.2). On

détaille dans cette partie les formules que l'on peut utiliser pour retrouver les valeurs du contraste en fonction des paramètres géométriques du systèmes qui sont explicités sur la Figure C.1.

C.2 Formulation

C.2.1 Champs électromagnétique

La première étape est de définir la forme du champ \vec{E} du rayon lumineux. Le rayon est considéré comme gaussien. On considère que l'origine du repère spatial se trouve au point focal du rayon. On a donc l'expression suivante pour le champ électrique complexe $\vec{E}^{[40]}$:

$$\vec{E}(x, y, z, w_0) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-i\left(kz + k\frac{x^2 + y^2}{2R_c} - \zeta(z)\right)\right), \quad (C.1)$$

avec $w(z)$ la largeur du faisceau à l'altitude z :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}, \quad (C.2)$$

z_R la longueur de Rayleigh :

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}, \quad (C.3)$$

$R_c(z)$ le rayon de courbure du front d'onde en z :

$$R_c(z) = z\left[1 + \left(\frac{z_R}{z}\right)^2\right] \quad (C.4)$$

$\zeta(z)$ la phase de Gouy :

$$\zeta(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) \quad (C.5)$$

w_0 la largeur minimale du faisceau (la physique impose $w_0 \geq \frac{2\lambda}{\pi}$), $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ et λ la longueur d'onde du faisceau laser dans le milieu considéré. Pour le calcul de w_0 on se place dans l'approximation de Gauss, on a alors^[41] :

$$w_0 = \frac{\lambda f_0}{\pi R}$$

avec R le rayon du faisceau avant d'entrer dans la lentille ($R = w(f_0)$). Dans les cas considérés on a bien $f_0 \gg 2R$.

E_0 est la valeur absolue du champ électromagnétique au point $(0,0,0)$. Comme on s'intéresse à terme au calcul du contraste qui est un ratio d'intensité, cette constante a été prise égale à 1 pour les simulations.

C.2.2 Effet du prisme de Wollaston

Le prisme de Wollaston sépare le rayon laser pour créer les deux faisceaux (sonde et référence). Il recombine également leurs réflexions afin de créer l'interférence. L'intensité respective des deux faisceaux créés dépend de l'angle entre la polarisation du faisceau laser et les axes des deux matériaux biréfringents composant le prisme. Au sein du prisme les deux axes des matériaux sont perpendiculaires par construction. On note W l'angle entre la polarisation du faisceau incident et l'axe du premier matériau rencontré par le rayon. En sortie on a les deux rayons incidents :

$$E_{ref}^i(x, y, z) = E_{ref} \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(\frac{x^2 + y^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-i\left(kz + k\frac{x^2 + y^2}{2R_c} - \zeta(z)\right)\right) \quad (C.6)$$

$$E_{sonde}^i(x, y, z) = E_{sonde} \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(\frac{x^2 + y^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-i\left(kz + k\frac{x^2 + y^2}{2R_c} - \zeta(z)\right)\right) \quad (C.7)$$

avec

$$E_{ref} = E_0 \cos(W) \quad (C.8)$$

$$E_{sonde} = E_0 \sin(W) \quad (C.9)$$

Dans la pratique on vise $W \approx \frac{\pi}{4}$ et c'est cette valeur qu'on utilisera sauf mention contraire.

C.2.3 Plans d'analyse

Par simplicité les diodes du systèmes d'interférométrie sont ici modélisées par un plan d'analyse situé au niveau de la lentille (voir Figure C.1). Pour décrire le champ électromagnétique vu par les deux plans d'analyse on procède à un changement de variable.

On considère la base de référence comme étant centrée sur le point focal du rayon incident avec pour axe \vec{z} la direction du rayon incident et \vec{x} parallèle au levier. On note cette base $(O, \vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$. De ce point de vue, le rayon réfléchi peut être vu comme le rayon incident dont la base aurait changé.

Les deux nouvelles bases sont :

$$\begin{cases} x_{ref} = x \\ y_{ref} = y \\ z_{ref} = z - 2h_{ref} \end{cases} \quad (C.10)$$

$$\begin{cases} x_{sonde} = \cos(2\chi_s)x + \sin(2\chi_s)(z - h_{sonde} - d) \\ y_{sonde} = \frac{1}{\sqrt{\Delta}} [\sin(2\psi_s) \cos(2\chi_s) \sin(2\chi_s)x + \cos(2\psi_s)y + \sin(2\psi_s) \cos^2(2\chi_s)(z - h_{sonde} - d)] \\ z_{sonde} = \frac{1}{\sqrt{\Delta}} [-\sin(2\chi_s) \cos(2\psi_s)x - \sin(2\psi_s) \cos(2\chi_s)y + \cos(2\psi_s) \cos(2\chi_s)(z - h_{sonde} - d)] - h_{sonde} - d \end{cases} \quad (C.11)$$

avec

$$\Delta = 1 - (\sin(2\chi_s) \sin(2\psi_s))^2.$$

De cette façon, on peut exprimer la valeur des champs après réflexion en chaque point (x,y,z) du plan d'analyse :

$$E_{ref}^r(x, y, z) = E_{ref}^i(x_{ref}(x, y, z), y_{ref}(x, y, z), z_{ref}(x, y, z)) \quad (C.12)$$

$$E_{sonde}^r(x, y, z) = E_{sonde}^i(x_{sonde}(x, y, z), y_{sonde}(x, y, z), z_{sonde}(x, y, z)) \quad (C.13)$$

C.2.4 Contraste

En reprenant les équations (3.10) et (3.11) on peut écrire les champs électriques présents au niveau des différentes diodes.

Pour rappel la référence et la sonde sont certes recombinaisons au niveau du prisme de Wollaston mais sont constituées de rayons de polarisations orthogonales. L'interférence ne se produit qu'avec le passage par les prismes de calcite qui projettent les deux polarisations sur deux autre orientées à 45° (voir la Figure 3.13 ainsi que les formules explicitées dans la partie 3.7.3)

Au niveau de la première diode on a donc les recombinaisons suivantes :

$$E_{A_1} = E_{ref}^r + E_{sonde}^r \quad (C.14)$$

$$E_{B_1} = E_{ref}^r - E_{sonde}^r \quad (C.15)$$

et

$$E_{A_2} = E_{ref}^r - E_{sonde}^r \times e^{-i\frac{\pi}{2}} \quad (C.16)$$

$$E_{B_2} = E_{ref}^r + E_{sonde}^r \times e^{-i\frac{\pi}{2}}. \quad (C.17)$$

On a alors directement accès aux intensités vues par les différentes diodes :

$$I_{A_1}(x, y) = |E_{A_1}(x, y, f_0)|^2 \quad (C.18)$$

$$I_{B_1}(x, y) = |E_{B_1}(x, y, f_0)|^2 \quad (C.19)$$

$$I_{A_2}(x, y) = |E_{A_2}(x, y, f_0)|^2 \quad (C.20)$$

$$I_{B_2}(x, y) = |E_{B_2}(x, y, f_0)|^2 \quad (C.21)$$

Les deux composantes du contraste peuvent alors se retrouver en y intégrant la position et les dimensions des diodes.

$$C_1 = \frac{\int_{x_{A_1}} \int_{y_{A_1}} I_{A_1}(x, y) dx dy - \int_{x_{B_1}} \int_{y_{B_1}} I_{B_1}(x, y) dx dy}{\int_{x_{A_1}} \int_{y_{A_1}} I_{A_1}(x, y) dx dy + \int_{x_{B_1}} \int_{y_{B_1}} I_{B_1}(x, y) dx dy} \quad (\text{C.22})$$

$$C_2 = \frac{\int_{x_{A_2}} \int_{y_{A_2}} I_{A_2}(x, y) dx dy - \int_{x_{B_2}} \int_{y_{B_2}} I_{B_2}(x, y) dx dy}{\int_{x_{A_2}} \int_{y_{A_2}} I_{A_2}(x, y) dx dy + \int_{x_{B_2}} \int_{y_{B_2}} I_{B_2}(x, y) dx dy} \quad (\text{C.23})$$

avec x_{A_1} , y_{A_1} , x_{B_1} , y_{B_1} , x_{A_2} , y_{A_2} , x_{B_2} et y_{B_2} les plages de coordonnées selon les axes \vec{x} et \vec{y} des pixels des diode A_1 , B_1 , A_2 et B_2 respectivement, calculées à partir du centre du rayon incident.

Bibliographie

- [1] Ulf W. Gedde. *Polymer Physics*. Springer Dordrecht, 1999.
- [2] Malcolm L. Williams, Robert F. Landel, and John D. Ferry. The temperature dependence of relaxation mechanisms in amorphous polymers and other glass-forming liquids. *Journal of the American Chemical Society*, 77 :3701–3707, 1955.
- [3] Gilbert Teyssedre and Christian Laurent. Advances in high-field insulating polymeric materials over the past 50 years. *IEEE Electrical Insulation Magazine*, 29(5) :26–36, 2013.
- [4] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Electrodynamics of Continuous Media*. Pergamon Press, 1960.
- [5] Kramers H. A. La diffusion de la lumière par les atomes. *Atti Cong. Intern. Fisica (Transactions of Volta Centenary Congress) Como*, 2 :545–557, 1927.
- [6] R.P. Feynman, R.B. Leighton, and M. Sands. *The Feynman Lectures on Physics, Vol. II : The New Millennium Edition : Mainly Electromagnetism and Matter*. The Feynman Lectures on Physics. Basic Books, 2011.
- [7] Yasuyuki Nogi, Masayuki Watanabe, Kiyomitsu Suzuki, and Yasunori Ohkuma. Method of measuring dielectric constant using an oscilloscope. *American Journal of Physics*, 83 :782–786, 09 2015.
- [8] Lin Zhang, Patrick Bass, and Z.-Y. Cheng. Physical aspects of 0-3 dielectric composites. *Journal of Advanced Dielectrics*, 05(02) :1550012, 2015.
- [9] Nicolas Uguen. *Dispersion state, interfacial phenomena and dielectric properties in high-permittivity polymer-based nanocomposite*. PhD thesis, Université Claude Bernard Lyon 1, 43 boulevard du 11 Novembre 1918, 69100 Villeurbanne, France, March 2022.
- [10] Lianyun Yang, Xinyu Li, Elshad Allahyarov, Philip L. Taylor, Q.M. Zhang, and Lei Zhu. Novel polymer ferroelectric behavior via crystal isomorphism and the nanoconfinement effect. *Polymer*, 54(7) :1709–1728, 2013.
- [11] Xinping Hu, Kewang Yi, Jie Liu, and Baojin Chu. High energy density dielectrics based on pvdf-based polymers. *Energy Technology*, 6(5) :849–864, 2018.
- [12] Xin Zhou, Xuanhe Zhao, Zhigang Suo, Chen Zou, James Runt, Sheng Liu, Shihai Zhang, and Q. M. Zhang. Electrical breakdown and ultrahigh electrical energy density in poly(vinylidene fluoride-hexafluoropropylene) copolymer. *Applied Physics Letters*, 94(16) :162901, 2009.
- [13] S. Abbrent, J. Plestil, D. Hlavata, J. Lindgren, J. Tegenfeldt, and Å. Wendsjö. Crystallinity and morphology of pvdf-hfp-based gel electrolytes. *Polymer*, 42(4) :1407–1416, 2001.
- [14] J. B. Lando, H. G. Olf, and A. Peterlin. Nuclear magnetic resonance and x-ray determination of the structure of poly(vinylidene fluoride). *Journal of Polymer Science Part A-1 : Polymer Chemistry*, 4(4) :941–951, 1966.
- [15] Ludovic Bellon. *Exploring nano-mechanics through thermal fluctuations*. Habilitation à diriger des recherches, Ecole normale supérieure de lyon - ENS LYON, 2010. 176 pages format A5.

- [16] O. L. Warren, J. F. Graham, and P. R. Norton. Tapping mode imaging with an interfacial force microscope. *Review of Scientific Instruments*, 68(11) :4124–4131, 1997.
- [17] Pascal Febvre Richard Taillet, Loïc Villain. *Dictionnaire de physique*. De Boeck Supérieur, 2018.
- [18] N A Burnham, O P Behrend, F Oulevey, G Gremaud, P-J Gallo, D Gourdon, E Dupas, A J Kulik, H M Pollock, and G A D Briggs. How does a tip tap? *Nanotechnology*, 8(2) :67, jun 1997.
- [19] Hans-Jürgen Butt, Brunero Cappella, and Michael Kappl. Force measurements with the atomic force microscope : Technique, interpretation and applications. *Surface Science Reports*, 59(1) :1–152, 2005.
- [20] Constant A. J. Putman, Kees O. Van der Werf, Bart G. De Groot, Niek F. Van Hulst, and Jan Greve. Tapping mode atomic force microscopy in liquid. *Applied Physics Letters*, 64(18) :2454–2456, 1994.
- [21] Bert Voigtländer. *Atomic Force Microscopy*. Springer Cham, 2019.
- [22] Thierry Melin Nicolas Chevalier. Introduction à la microscopie à force électrostatique, 2017.
- [23] Luis A. Miccio, Mohammed M. Kummali, Gustavo A. Schwartz, Ángel Alegría, and Juan Colmenero. Afm based dielectric spectroscopy : Extended frequency range through excitation of cantilever higher eigenmodes. *Ultramicroscopy*, 146 :55–61, 2014.
- [24] P. S. Crider, M. R. Majewski, Jingyun Zhang, H. Oukris, and N. E. Israeloff. Local dielectric spectroscopy of polymer films. *Applied Physics Letters*, 91(1) :013102, 2007.
- [25] J. Colchero, A. Gil, and A. M. Baró. Resolution enhancement and improved data interpretation in electrostatic force microscopy. *Phys. Rev. B*, 64 :245403, Nov 2001.
- [26] P. S. Crider, M. R. Majewski, Jingyun Zhang, H. Oukris, and N. E. Israeloff. Local dielectric spectroscopy of near-surface glassy polymer dynamics. *The Journal of Chemical Physics*, 128(4) :044908, 2008.
- [27] Ht15w - 15w miniature cartridge heating element, 2018. Fiche de spécifications.
- [28] Temperature sensors platinum rtds hel-700. Fiche de spécifications.
- [29] Instruction for using piezoelectric elements and power supplies from *piezosystem jena*, 2018.
- [30] L. Bellon, S. Ciliberto, H. Boubaker, and L. Guyon. Differential interferometry with a complex contrast. *Optics Communications*, 207(1) :49–56, 2002.
- [31] Pierdomenico Paolino, Felipe A. Aguilar Sandoval, and Ludovic Bellon. Quadrature phase interferometer for high resolution force spectroscopy. *Review of Scientific Instruments*, 84(9) :095001, 2013.
- [32] Y. Martin, C. C. Williams, and H. K. Wickramasinghe. Atomic force microscope–force mapping and profiling on a sub 100-Å scale. *Journal of Applied Physics*, 61(10) :4723–4729, 1987.
- [33] P. Paolino and L. Bellon. Single beam interferometric angle measurement. *Optics Communications*, 280(1) :1–9, 2007.
- [34] SPECS Surface Nano Analysis GmbH, Voltastrasse, 5 13355 Berlin, Allemagne. *Real-Time Controller RC5 User Manual*, 2016.
- [35] SPECS Surface Nano Analysis GmbH, Voltastrasse, 5 13355 Berlin, Allemagne. *Signal Conversion SC5 User Manual*, 2016.
- [36] SPECS Surface Nano Analysis GmbH, Voltastrasse, 5 13355 Berlin, Allemagne. *Oscillation Controller OC4 User Manual*, 2018.
- [37] Stanford Research Systems, 1290-D Reamwood Avenue, Sunnyvale, California 94089. *MODEL SR830 DSP Lock-In Amplifier*, 1993. Manuel Utilisateur.

- [38] Stanford Research Systems, 1290-D Reamwood Avenue, Sunnyvale, California 94089. *Model SR844 RF Lock-In Amplifier*, 1997. Manuel Utilisateur.
- [39] Baptiste Ferrero and Ludovic Bellon. Harmonic calibration of quadrature phase interferometry. *Europhysics Letters*, 139(5) :55002, aug 2022.
- [40] Herwig Kogelnik. On the propagation of gaussian beams of light through lenslike media including those with a loss or gain variation. *Appl. Opt.*, 4(12) :1562–1569, Dec 1965.
- [41] Frank J. Duarte. *Tunable laser optics*. CRC Press, 2nd ed edition, 2014.
- [42] Peter L. M. Heydemann. Determination and correction of quadrature fringe measurement errors in interferometers. *Appl. Opt.*, 20(19) :3382–3384, Oct 1981.
- [43] Weilie Zhou, Robert Apkarian, Zhong Lin Wang, and David Joy. *Fundamentals of Scanning Electron Microscopy (SEM)*, pages 1–40. Springer New York, New York, NY, 2007.