



**HAL**  
open science

# Modélisations et Expérimentations en Microscopie à Force Atomique Dynamique en Ultra Vide

Jérôme Polesel

► **To cite this version:**

Jérôme Polesel. Modélisations et Expérimentations en Microscopie à Force Atomique Dynamique en Ultra Vide. Physique [physics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2005. Français. NNT : . tel-00009666

**HAL Id: tel-00009666**

**<https://theses.hal.science/tel-00009666>**

Submitted on 4 Jun 2017

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

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

Copyright

Université Toulouse III - Paul Sabatier

U.F.R. P.C.A.

# Thèse

présentée à

L'UNIVERSITÉ TOULOUSE III

ÉCOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE ET NANOPHYSIQUE

pour obtenir le grade de

Docteur en Physique

**Spécialité :** Physique des surfaces

Par

Jérôme Polesel

---

## **Modélisations et Expérimentations en Microscopie à Force Atomique Dynamique en Ultra Vide**

---

*Soutenue le 15 juin 2005 devant la commission d'examen composée de*

JÖEL CHEVRIER, Professeur à l'Université Joseph Fourier, LEPES-Grenoble	Rapporteur
GÉRARD COUTURIER, Professeur à l'Université Bordeaux I, CPMOH-Talence	Rapporteur
PHILIPPE DUMAS, Professeur à l'Université d'Aix-Marseille II, CRM-CN-Marseille	Président
MICHEL PUGNET, Professeur à l'Université Toulouse III, LAAS-Toulouse	Examinateur
ALEXIS BARATOFF, Professeur à l'Université de Basel, Institut für Physik-Basel	Examinateur
SÉBASTIEN GAUTHIER, Directeur de recherche CNRS, CEMES-Toulouse	Directeur de Thèse

---

Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales (CEMES-CNRS) UPR 8011

29, rue Jeanne Marvig, BP 4347, F-31055 Toulouse

# Déclaration

**Le code et le programme de simulation numérique *AFM virtuel (virtual AFM)* présentés dans ce manuscrit sont des créations exclusives de l'auteur du manuscrit.**

**Le code et le programme de simulation numérique *BaryMesh* présentés dans ce manuscrit sont des créations exclusives de l'auteur du manuscrit.**

**The *AFM virtuel (virtual AFM)* code and software introduced in this manuscript are exclusive creations of the author of the manuscript.**

**The *BaryMesh* code and software introduced in this manuscript are exclusive creations of the author of the manuscript.**

**Copyright © 2005 by Jérôme Polesel Maris.**

“The copyright of this thesis rests with the author. No quotations from it should be published without the author’s prior written consent and information derived from it should be acknowledged”.

“Le copyright de cette thèse incombe à l’auteur. Aucune citation de ce manuscrit ne devra être publiée sans le consentement écrit de l’auteur. L’auteur devra avoir connaissance des informations dérivées de ce manuscrit” .

# Remerciements

Je suis particulièrement reconnaissant envers Jean Pierre Launay, Directeur du CEMES, et Christian Joachim, directeur du groupe NanoScience du CEMES, de m'avoir donné l'opportunité de réaliser mon travail de thèse au sein du groupe NanoScience.

J'exprime toute ma reconnaissance envers Sébastien Gauthier, mon directeur de thèse, d'avoir stimuler quasi-quotidiennement mon travail. Les nombreuses questions soulevées lors de nos discussions en face d'un tableau noir sont au coeur des différentes études présentées dans ce manuscrit. Sa patience, son esprit critique sur mon travail et la confiance qu'il m'a toujours témoigné m'ont toujours stimulé pour mener à bien mes investigations aussi bien expérimentales que théoriques. Plus que tout, j'ai pu grâce à lui faire de la Physique dans le sens le plus noble du terme.

Je dois l'étude approfondie de nombreux thèmes de cette thèse grâce aux conseils toujours pertinents de Christian Girard. En me communiquant sa vision de la physique, la lumière a chaque fois jailli de problèmes complexes qui me paraissaient inextricables. Je dois beaucoup à ses encouragements et à son intérêt constant pour mes travaux.

Mille mercis à Tomaso Zambelli avec qui j'ai eu un plaisir immense à travailler. Son savoir faire et ses astuces expérimentales m'ont permis de rapidement être opérationnel sur le bâti ultra vide. Qui mieux que lui comprenait mon désarroi face aux nombreuses galères de l'ultra vide. Il a toujours su me donner une énergie positive pour surmonter les difficultés expérimentales.

Enseigner à l'université aux côtés de Michel Pugno a été un grand privilège. Les discussions matinales autour d'un café, avec Christian Aquilina, en salle de travaux pratiques ont toujours été un plaisir. Ses connaissances approfondies de nombreux domaines de la physique ont toujours su m'éclairer lors de mes stages de maîtrise et de DEA.

La partie expérimentale de ma thèse est fortement corrélée à la qualité et aux conseils du service mécanique et du service électronique du CEMES. Merci à Laurent Guiraud pour sa réactivité et son savoir-faire incomparable pour réaliser des pièces mécaniques, parfois d'une complexité hallucinante, en un temps record. Merci à Henri Pinna et à André Mayet pour leurs conseils d'électroniciens qui m'ont permis de solutionner rapidement des problèmes expérimentaux.

La partie calcul numérique de ce manuscrit s'est enrichie de manière considérable lors de ma collaboration londonienne avec Lev Kantorovich. I'm very grateful to Lev for all the discussions we had and for his constant interest on my works. I've learnt a lot of numerical tricks thanks to his advices. Thanks to Lev, I've also learnt LyX to write my thesis.

Je suis très reconnaissant envers Antoine Maïorano qui m'a énormément apporté sur le plan humain lors de nos nombreuses discussions (parfois philosophiques...), son soutien lors des phases chaotiques de la vie du thésard, et son initiation au Grand Yunnan Impérial.



Merci aussi à Béatrice pour ses riches conseils sur le monde de l'entreprise, Stéphane (courage ! c'est bientôt ton tour !), Erik pour ses relectures consciencieuses des articles que nous avons soumis, Carlos pour sa bonne humeur quotidienne, André qui a synthétisé les molécules utilisées dans ce travail, Thierry de m'avoir conseillé au CSEM, Elena pour avoir corrigé de manière si attentionnée mon manuscrit, Agnès, Haïming, David et tous ceux que je n'oublie pas.

Mes parents et mes soeurs ont toujours été une source d'énergie bénéfique et irremplaçable pour gérer les moments les plus difficiles de ces trois années de thèse.

Pour affronter le chemin accidenté d'une thèse, j'ai eu la chance d'avoir à mes côtés celle qui m'a le mieux compris et qui a toujours eu les mots apaisants pour que je continue et termine ce travail dans les moments les plus sombres. Merci Cécilia .

*A Monsieur Lelandais, aujourd'hui décédé, professeur de Physique et Chimie au Collège Louis Pasteur de Lavelanet, qui m'a donné l'étincelle de la Physique.*

*Pour tirer le meilleur parti des connaissances acquises, pour en extraire toute la richesse, il importe de ne pas s'y habituer trop vite, de se laisser le temps de la surprise et de l'étonnement.*

“L'Espace prend la forme de mon regard”, Hubert Reeves, 1995



# Chapitre 1

## Introduction générale

Aujourd'hui, la microscopie en champ proche [GJG00] comprend un vaste groupe d'instruments utilisés pour observer et mesurer les propriétés de matériaux chimiques, physiques ou biologiques. Les images en champ proche sont obtenues en balayant une sonde au-dessus d'une surface. Tout objet en surface perturbe le champ environnant de la sonde : les propriétés électroniques, mécaniques ou optiques du détecteur sont donc changées. C'est la traduction de ces perturbations au niveau de la pointe qui permet de former les images en fonction de la position spatiale de la sonde. On peut faire une analogie avec une personne non-voyante utilisant le bout de son doigt comme sonde pour palper le braille<sup>1</sup> présent sur un livre : le cerveau traduit le balayage régulier de son doigt sur la surface de l'ouvrage en une image tridimensionnelle des lettres permettant de décrypter le texte.

Les deux premiers microscopes en champ proche à être apparus sont la microscopie à effet tunnel (STM, *Scanning Tunneling Microscopy* en anglais) et la microscopie à force atomique (AFM, *Atomic Force Microscopy* en anglais). Le STM a été développé en 1982 chez IBM à Zurich par Binnig et al. [BRGW82]. L'invention du STM, pour lequel Binnig et Rohrer ont eu le Prix Nobel de Physique en 1986 [BR87], a eu un grand impact technologique et fondamental en permettant d'observer les atomes dans l'espace réel. En 1990, D. M. Eigler [ES90] utilise ce dernier non plus seulement comme un instrument d'observation mais comme un outil de manipulation atomique permettant à l'homme d'élaborer physiquement les plus petits édifices isolés jamais construits à l'unité. Mais bien que les capacités du STM à observer et à manipuler les objets du monde microscopique soient aujourd'hui bien maîtrisées, seules les surfaces électriquement conductrices sont exploitables avec un tel appareil. Ce constat limite de façon significative le type de matériaux qui peuvent être étudiés à l'échelle de l'angström. Cela a conduit, en 1986 au développement du microscope à force atomique (AFM) par Binnig, Quate et Gerber [BQG86]. Cette nouvelle machine a ouvert de nouvelles possibilités pour observer des détails à l'échelle nanométrique et atomique sur un large éventail de surfaces isolantes et conductrices comme les céramiques, les échantillons biologiques ou les polymères.

---

<sup>1</sup>Louis Braille (Coupvray, 1809-Paris, 1852) inventeur français, devenu aveugle à 3 ans, il créa pour les aveugles un système d'écriture en points saillants : le braille.

L'AFM fournit un certain nombre d'avantages par rapport aux techniques de microscopie conventionnelles. Ce microscope sonde l'échantillon et fait une mesure en trois dimensions ( $x$ ,  $y$  et  $z$  normal à la surface) qui permet une représentation tridimensionnelle des objets et surfaces étudiés. Cela procure un grand avantage par rapport aux techniques classiques de microscopie. L'AFM peut fonctionner aussi bien dans un milieu liquide, que dans l'air, ou dans l'ultra vide sur presque tout type d'échantillon. L'avantage de travailler dans le vide est de garder exempt de tout contaminant un échantillon, et d'obtenir des résolutions de 0.1 à 1 nm dans le plan (en  $x$  et en  $y$ ) avec quelques picomètres en hauteur (en  $z$ ) permettant d'accéder à la résolution atomique sur isolant. L'AFM a fonctionné dès sa naissance avec une sonde statique détectant mécaniquement les forces de surface. Ce principe a permis d'obtenir la résolution atomique sur des surfaces isolantes en 1991 (KBr (001), [Gie92]). Mais pour "observer" les atomes, la pointe "frotte" la surface en explorant les forces répulsives. Ce mode de fonctionnement n'était donc pas adapté à une investigation "douce" de l'échantillon afin d'éviter de détruire une structure sur la surface. En 1993, F. Ohnesorge et G. Binnig [OB93] immerge la sonde et un échantillon de calcite dans un liquide pour réduire les forces à longue portée responsables du saut au contact de la pointe [Isr92]. Par ce moyen, ils obtiennent ainsi la résolution atomique dans le régime répulsif et attractif des forces de surface. Mais voir sans perturber, avec le vide comme milieu, n'a été possible qu'avec le développement, chez IBM, d'un AFM dynamique par Y. Martin et al. [MWW87] et T. R. Albrecht et al. [AGHR91].

Le principe de fonctionnement de ce nouvel AFM repose sur la mesure non plus de la force entre la pointe et la surface mais du gradient de force qui provoque un changement de la fréquence de résonance de la sonde. En effet, dans ce mode, on maintient la sonde en oscillation et on mesure les changements des propriétés de résonance de cet oscillateur lorsqu'il interagit avec la surface. Ce système a permis à F. J. Giessibl [Gie95] d'obtenir la résolution atomique (figure 1.1), en 1995, sur une surface de silicium dans le régime majoritairement attractif des forces de surface donc peu perturbant pour l'échantillon.

Durant les neuf ans qui ont suivis, les atomes des surfaces isolantes et conductrices ont été observés avec ce mode AFM dynamique. Citons le cristal ionique KCl [Pat95], le xenon (111) [ASSW99],  $\text{CaF}_2$  [RB99], le cuivre (100) [LBP<sup>+</sup>00], l'alumine (0001) [BR01]. Une liste chronologique exhaustive est donnée à la page 28 de la référence [MWM03]. De façon ultime, le système AFM dynamique a permis de résoudre des détails subatomiques par F. J. Giessibl et al. en 2001 [GBHM01]. Des couches moléculaires sur différents types de surface ont été aussi observées avec ce mode de fonctionnement [UIK<sup>+</sup>00, YFU<sup>+</sup>02, IFK<sup>+</sup>03, FKYM04, FAF04, MBH<sup>+</sup>04, NBP<sup>+</sup>04, TSKM04].

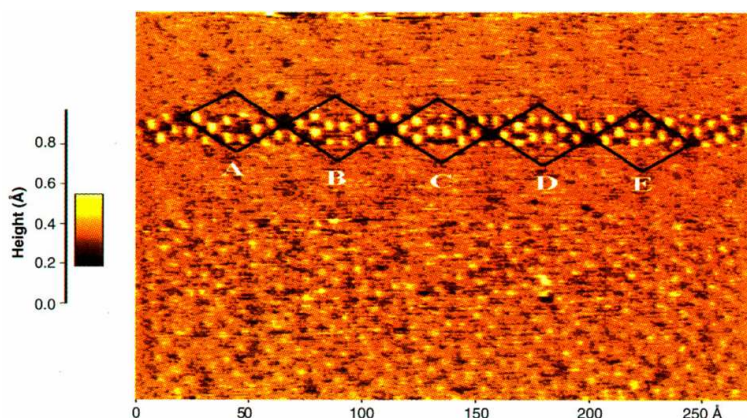


FIG. 1.1 – Première image de résolution atomique en AFM Non-Contact. Les dimensions de cette image en topographie sont  $(27 \times 19.5) \text{ nm}^2$ . Les paramètres de la sonde oscillante sont :  $f_0 = 114.224 \text{ kHz}$ ,  $\Delta f_c = -70 \text{ Hz}$ ,  $k_c = 17 \text{ N.m}^{-1}$ ,  $A = 34 \text{ nm}$ . Cette image en topographie montre la reconstruction  $7 \times 7$  du Silicium(111). D’après [Gie95].

On peut avec un tel appareil étudier des systèmes à plusieurs phases où cohabitent des agrégats métalliques nanométriques [BH04] avec des molécules sur des surfaces isolantes. L’objectif de ce genre de système est de pouvoir étudier dans un futur proche le contact électrique d’une molécule entre deux électrodes métalliques [NQH03]. Concevoir un tel fil moléculaire entre deux plots conducteurs sur une surface isolante permettrait ainsi d’éviter des fuites de charges. L’AFM serait dans ce cas un bon candidat pour observer cette “électronique moléculaire” [MJ99] embryonnaire. Malheureusement, l’étude de molécules isolées sur une surface en AFM dynamique se révèle beaucoup plus ardue que l’investigation des surfaces nues d’oxydes, de cristaux ioniques ou de métaux où la technique semble être arrivée à maturité. Le nombre de publications à ce sujet ne dépasse pas quelques dizaines [OSUI02, LGP<sup>+</sup>03, NFI04, NGB<sup>+</sup>04]. Et l’étude de la cohabitation d’îlots métalliques nanométriques avec des molécules isolées sur une surface isolante ou semiconductrice semble inexistante jusqu’à présent. Les difficultés pour observer ce genre de système de façon routinière ne sont pas encore claires. Mais il semble, comme nous le verrons au cours de nos études expérimentales, que l’origine de ces difficultés de résolution soit liée à l’état physique et chimique de l’apex de la pointe. La chimie et la physique entre la sonde et de tels systèmes sont la plupart du temps très complexes à interpréter car l’expérimentateur a une méconnaissance de la géométrie de l’apex ainsi que de sa composition chimique. Maîtriser le bout de pointe est un enjeu primordial pour rendre pérenne cette technique de champ proche.

L’autre enjeu de l’AFM dynamique est d’utiliser celui-ci comme son cousin le STM : en un outil de nanomanipulation, mais sur tout type de surface. L’intérêt de cette technique serait de pouvoir disposer les atomes ou molécules dans des lieux stratégiques de l’échantillon pour établir et étudier un contact moléculaire avec une nanoélectrode sur la surface isolante. Depuis 2003 [OCY<sup>+</sup>03], l’équipe de S. Morita (Osaka University, Japon) étudie les stratégies possibles de manipulations d’atomes sur une surface. D’abord à basse température (78 K), cette équipe utilise l’AFM dynamique pour faire de la manipulation verticale reproductible d’adatoms de silicium sur une surface de silicium(111) avec la

**Jérôme Polesel Maris**

reconstruction  $7 \times 7$ . Les auteurs utilisent de façon astucieuse les systèmes de régulation du microscope pour mettre au point une procédure de mise au contact de la sonde oscillante avec la surface pour piéger ou libérer l'adatom. Dernièrement, cette même équipe, a réussi avec le même système AFM dynamique à manipuler latéralement de façon contrôlée des atomes d'étain dans le plan de surface d'un substrat de germanium à température ambiante [OSA<sup>+</sup>05] comme on le voit sur la figure 1.2.

Depuis la première image en résolution atomique il y a dix ans (figure 1.1), on voit aujourd'hui que la microscopie à force atomique dynamique est dans une phase de transition où elle va passer de l'état d'instrument d'observation à celui d'outil d'élaboration à l'échelle atomique ou moléculaire. Mais avant de parvenir à cette nouvelle étape de l'histoire de l'AFM, nous devons comprendre les éléments clef de cette machine.

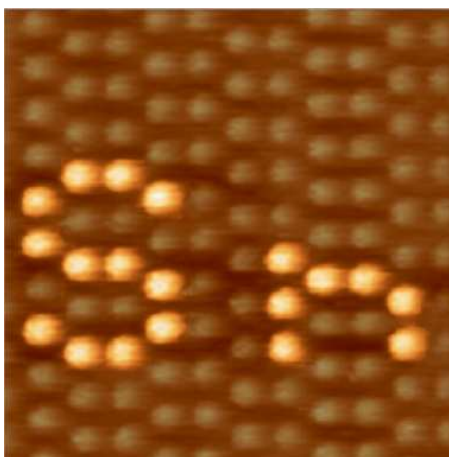


FIG. 1.2 – Manipulation d'adatoms Sn (en surbrillance) en AFM Non-Contact sur une surface de Ge(111) –  $c(2 \times 8)$  à température ambiante. Le motif atomique créé représente les lettres du symbole chimique de l'adatome. Les dimensions de cette image en topographie sont  $(7.7 \times 7.7)$  nm<sup>2</sup>. Les paramètres de la sonde oscillante sont :  $f_0 = 160.45$  kHz,  $\Delta f_c = -4.6$  Hz,  $k_c = 29.5$  N.m<sup>-1</sup>,  $A = 15.7$  nm. D'après [OSA<sup>+</sup>05].

Comment fonctionne le microscope ? Comment régler au mieux la machine ? Quels sont les mécanismes et forces de surface responsable des bonnes ou mauvaises images ? Que pouvons-nous ou ne pouvons-nous pas faire pour optimiser la clef de voûte de ce système : la sonde ?

Voilà le genre de questions auxquelles nous essaierons de répondre au cours de ce travail de thèse. Notre étude sera à la fois théorique pour comprendre au mieux les nombreux asservissements du microscope et expérimentale pour montrer quelles informations qualitatives et quantitatives nous pouvons obtenir d'une surface nue ou couverte d'objets de différentes natures. A partir de cela, nous verrons que la complexité apparente de l'électronique de ce système est un énorme avantage qui permet à l'expérimentateur de croiser différentes informations en parallèle sur un même échantillon. On utilisera la machine dans des modes de fonctionnement hybrides, peu classiques, avec différents signaux physiques pour la régulation de la distance entre la pointe et la surface.

**Jérôme Polesel Maris**



Le manuscrit comportera :

- Le chapitre 2 de présentation générale du microscope utilisé au cours de ce travail. Nous verrons de façon succincte le rôle des différents systèmes électroniques ainsi que les différents modes de fonctionnement de la machine. Les principales forces de surface ressentie par la sonde seront exposées. Nous discuterons ainsi des domaines d'interaction à longue portée et à courte portée, responsable de la résolution atomique.
- Le chapitre 3, donnant le lexique et techniques théoriques de l'Automatique linéaire et non linéaire nécessaires pour comprendre le traitement original du fonctionnement et des rôles des réglages des asservissements. La physique des interactions pointe-surface sera aussi introduite dans ce formalisme de façon simple.
- Le chapitre 4 où le fonctionnement de chaque bloc de la machine sera analysé en détails. Nous verrons les conditions de stabilité et l'optimisation des gains des asservissements ainsi que le traitement des bruits inévitables à toute expérimentation. Ce travail théorique aboutira à un outil de simulation numérique de la machine AFM développé au cours de ce travail de thèse.
- Le chapitre expérimental 5 où nous mettrons en évidence les non linéarités, dues aux forces de surface, induites sur la sonde oscillante de l'AFM, vue comme un oscillateur. Le formalisme développé aux chapitres précédents nous permettra d'extraire des informations quantitatives de l'interaction de surface mais aussi de la pointe ou plus exactement de l'apex de la pointe. L'énergie dissipée par cet oscillateur sera aussi mesurée en fonction de sa distance avec la surface.
- Le chapitre expérimental 6 au cours duquel nous élaborerons et étudierons un substrat semiconducteur couvert d'îlots métalliques nanométriques et de molécules isolées. Ce système nous permettra de faire fonctionner le microscope dans différentes configurations de régulations en distance. Nous mettrons donc le point sur la question : quelles stratégies devons-nous utiliser pour observer un tel système ? Des effets géométriques liés aux forces de dispersion seront mis en évidence et vérifiés numériquement par un outil de sommation développé au cours de ce travail de thèse.
- Une conclusion générale où nous discuterons des réponses et questions soulevées par ces travaux ainsi que des perspectives pour améliorer la reproductibilité de "bonnes" images en AFM dynamique.

A la fin du manuscrit, des annexes détailleront certains aspects évoqués au cours des chapitres précédents :

- L'annexe A discute du formalisme à utiliser pour traiter de façon rigoureuse les forces de dispersion omniprésentes dans les travaux expérimentaux de ce mémoire. La notion de couplage dipolaire macroscopique via la constante de Hamaker sera détaillée avec quelques valeurs expérimentales et numériques.
- L'annexe B présente des dispositifs électroniques et des méthodes de calibration fort utiles pour l'expérimentateur désireux de faire des mesures quantitatives.
- L'annexe C montre les réponses indicielles expérimentales de chaque bloc électronique de la machine avec leurs simulations numériques obtenues et injectées dans l'*AFM virtuel* décrit au chapitre 4.

- L'annexe D décrit de façon succincte les bases de la microscopie à effet tunnel avec une pointe statique mais aussi avec une pointe oscillante. Cette méthode de champ proche est en effet utilisée au cours du chapitre 6.



# Chapitre 2

## Présentation du microscope

Au cours de ce chapitre, nous allons dans un premier temps décrire la machine AFM dynamique utilisée au cours de ce travail de thèse. Une description succincte de chaque élément du dispositif expérimental sera faite. Le fonctionnement détaillé des blocs de commande du microscope sera étudié au cours du chapitre 4. Le but étant ici d'avoir une vision d'ensemble du système. Ainsi nous verrons la richesse des éléments constituant le microscope et son système de contrôle.

Dans un second temps, nous ferons un récapitulatif, non exhaustif, des différents types d'interactions pointe-surface mises en jeu lors de nos investigations expérimentales des chapitres 5 et 6.

### 2.1 Le microscope : dispositif expérimental et schémas de blocs

#### 2.1.1 Dispositif expérimental

Les travaux expérimentaux exposés dans ce manuscrit ont été menés dans un bâti ultra vide avec des pressions de l'ordre de  $1.10^{-9}$  à  $5.10^{-11}$  Torr. La préparation des échantillons ainsi que leur observation en champ proche, toujours à température ambiante, ont été faites dans ce même bâti présenté sur la figure 2.1.

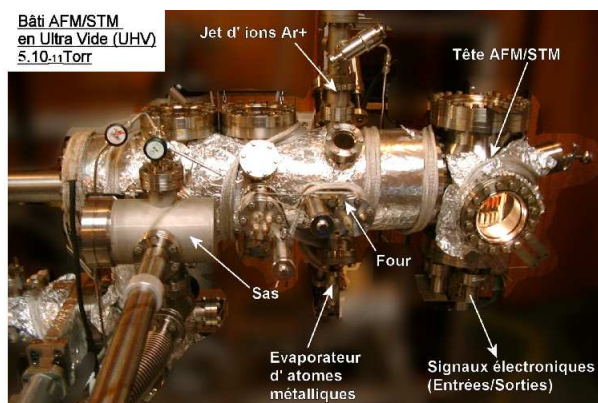


FIG. 2.1 – Le bâti ultra vide permettant de préparer et d'observer les échantillons.

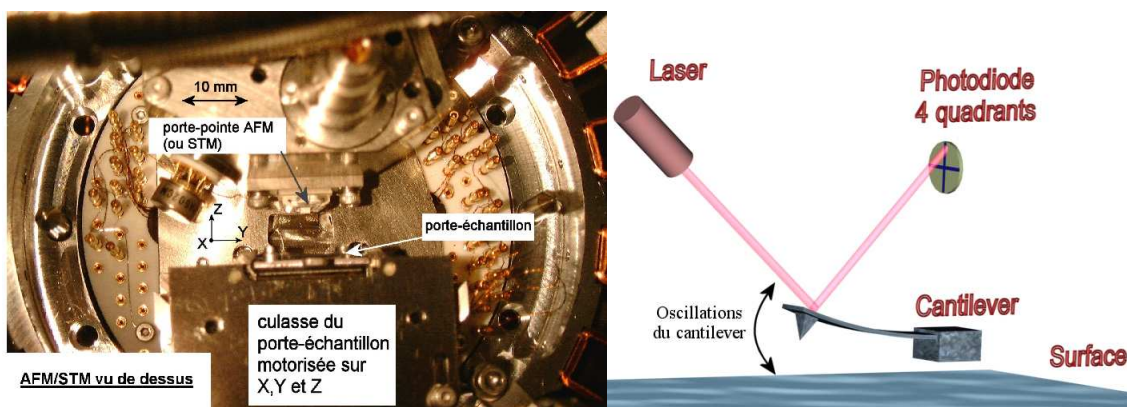
Dans cette enceinte, l'ultra vide est atteint et maintenu grâce à trois systèmes de pompage complémentaire :

- Une pompe à palettes permettant d'atteindre un vide primaire de  $1.10^{-3}$  Torr
- Une pompe turbomoléculaire pour atteindre la gamme de  $1.10^{-8}$  Torr
- Une pompe ionique, assisté d'un sublimateur au titane, pour arriver en ultra vide.

Ce vide poussé est indispensable pour maintenir propre le plus longtemps possible les échantillons à observer. De plus, il permet d'éviter les phénomènes d'adhésion de la sonde champ proche avec les surface à cause d'effets de capillarité [Isr92]. La disparition des phénomènes de viscosité et de frottement de la sonde dans son milieu permet d'obtenir de grands facteurs de qualité, environ cent fois plus élevés qu'à l'air.

Parmi les éléments majeurs de ce bâti (figure 2.1) on trouve :

- Un sas permettant le transfert des sondes pour la microscopie champ proche et des échantillons dans l'enceinte sans y rompre l'ultra vide
- Un canon à ions d'argon utilisé pour nettoyer les surfaces par bombardements
- Un four à filament et un four à lampe halogène permettant d'atteindre les  $1000^{\circ}\text{C}$  afin de procéder à des recuits des échantillons et/ou de chauffer les pointes du microscope pour enlever d'éventuels contaminants
- Un évaporateur à creuset et à filament qui permet de faire des dépôts métalliques (or, argent, cobalt, chrome et cuivre) à chaud sur les surfaces. La vitesse du dépôt étant calibrée à l'aide d'une balance à quartz



(a) La tête AFM/STM.

(b) Schéma de la sonde oscillante avec le système de détection optique.

FIG. 2.2 –

A droite de l'enceinte, on trouve la tête du microscope permettant d'observer les échantillons préparés. Nous utilisons le modèle RT-AFM ("Room Temperature AFM") de la société OMICRONNANOTECHNOLOGY<sup>TM</sup> [Omi]. La figure 2.2(a) montre une vue de dessus. Celle-ci est isolée des vibrations mécaniques parasites par un système de suspension magnétique. Elle permet par un simple changement de pointe d'utiliser l'appareil en microscopie à effet tunnel ou en microscopie à force atomique. Ceci offre une possibilité de comparer, pour les surfaces conductrices, des images STM et AFM d'un même échantillon.

**Jérôme Polesel Maris**

L'AFM peut être utilisé en mode statique ou oscillant. La figure 2.2(b) schématise la sonde AFM, nommée cantilever, avec le système de détection optique permettant de traduire les déflexions mécaniques de la poutre, en fonction de l'interaction avec la surface, en signal électrique exploitable par une électronique de contrôle. Cette conversion mécano-électrique se fait via un système de source lumineuse fixe (laser ou diode électroluminescente (LED)) dont le faisceau est réfléchi par le cantilever sur une photodiode à quatre quadrants fixe. Ces quadrants du récepteur permettent de détecter soit les torsions latérales de la poutre soit les déflexions normales.

Les cantilevers utilisés sont en silicium dopé  $n$  dégenéré [Tip]. Les dimensions (annexe B) sont de l'ordre de la centaine de microns en longueur pour quelques dizaines de microns en largeur. Une pointe pyramidale d'environ une dizaine de microns en hauteur se trouve à l'extrémité de la poutre. C'est l'apex de cette pointe qui va scruter la surface de l'échantillon et de lui dépendra en grande partie la qualité des images obtenues.

Ce cantilever est collé à la colle époxy chargée en argent sur un support bloqué mécaniquement sur un porte-pointe visible sur la figure 2.2(a). En mode AFM dynamique, on excite électriquement la céramique piézo-électrique située derrière le porte-pointe. Avec un signal électrique possédant une fréquence proche de la résonance du cantilever (annexe B) on fait alors vibrer celui-ci. Les fréquences de résonance typique de ces cantilevers vont de quelques dizaines à quelques centaines de kiloHertz. Ce résonateur possède une bande passante de l'ordre de quelques Hertz, dans ce vide poussé, pour des constantes de raideur allant de 20 à 40  $\text{N.m}^{-1}$ . Le facteur de qualité d'un tel système peut avoisiner des valeurs de l'ordre de 40000.

### 2.1.2 Système de contrôle du microscope AFM

Il existe plusieurs méthodes pour contrôler la distance pointe-surface en fonction de l'interaction de surface subie par la pointe du cantilever. L'électronique de commande détecte cette interaction en exploitant le signal sortant de la photodiode. Grâce à un mouvement dans le plan de l'échantillon via un actionneur piézo-électrique (voir culasse du porte échantillon motorisé en  $x$ ,  $y$  et  $z$  sur la figure 2.2(b)), on peut donc créer une image topographique. En effet, la comparaison du signal traité, sortant de la photodiode, à une valeur de consigne permet d'obtenir une régulation pointe-surface grâce à un servomécanisme piézoélectrique en  $z$ . La combinaison du balayage de la surface en  $x$ ,  $y$  avec la régulation en distance  $z$  permet de créer l'image.

#### Le mode Contact

Dans cette configuration, l'apex de la pointe "palpe" le relief de surface. Une déflexion normale négative du signal de photodiode indique une force pointe-substrat attractive alors qu'une déflexion normale positive indique une force répulsive du substrat. Grâce à cette déflexion, on peut donc faire une régulation de la distance pointe-surface sur une consigne de force. Nous avons utilisé ce mode pour la calibration du système optique de détection (voir annexe B) et dans de rares cas pour faire évoluer l'apex de la pointe par frottement sur la surface.

### Le mode Excitation Constante

Dans ce cas, on fait vibrer le cantilever à une amplitude d'excitation constante à une fréquence proche de sa fréquence de résonance. Le signal recueilli aux bornes de la photodiode est alors sinusoïdal avec une amplitude dépendant de l'interaction de surface. La mesure de cette amplitude et de la phase entre le signal d'excitation et le signal de réponse, venant de la photodiode, se fait au moyen d'une électronique qui sera décrite ultérieurement dans le manuscrit. Nous utiliserons ce mode de fonctionnement au chapitre 5.

On peut donc réguler la distance pointe-surface sur une consigne d'amplitude ou de phase pour obtenir des images topographiques. Dans la littérature ce mode de fonctionnement dynamique de l'AFM porte plusieurs appellations : AM-AFM (AM pour "modulation d'amplitude"), Contact Intermittent ou "Tapping", en anglais.

Ce mode de régulation est dépendant des variations d'amplitude du cantilever. L'amplitude étant stabilisée au bout d'un temps  $\tau_c = Q_c / (\pi f_0)$  [AGHR91],  $Q_c$  étant le facteur de qualité du résonateur et  $f_0$  sa fréquence de résonance, on obtient en ultra vide le régime stationnaire de l'oscillateur au bout d'environ 50 ms, pour toute variation de l'amplitude. Si l'on considère une image AFM standard composée de 256x256 pixels, il faudrait attendre environ 1 heure pour obtenir l'image ! Ce mode de fonctionnement est donc mal adapté à notre environnement pour étudier nos échantillons.

### Le mode Amplitude Constante

La solution a été proposée par Albrecht et al. [AGHR91] pour pouvoir utiliser l'AFM dynamique en ultra vide. En effet, si l'on maintient l'amplitude d'oscillation du cantilever constante à une consigne  $A_0$  au moyen d'une boucle de régulation, on peut étudier l'effet des interactions sur le changement de la fréquence de résonance  $f_0$  de l'oscillateur. Ce changement de fréquence, qui se produit de façon quasi-instantanée, de l'ordre de l'inverse d'une période d'oscillation  $1/f_0$ , est mesuré par un démodulateur de fréquence que nous décrirons en détails dans les prochains paragraphes. Ainsi, en comparant cet écart à la résonance, noté  $\Delta f$ , à une consigne  $\Delta f_c$ , on peut réguler la distance pointe-surface. C'est ce mode de fonctionnement de l'AFM, appelé FM-AFM (FM pour "modulation de fréquence") ou Non-Contact (NCAFM) dans la littérature, que nous étudierons en détails au long de ce manuscrit.

La figure 2.3 schématise les boucles d'asservissement (blocs verts) dans ce mode de fonctionnement. La boucle nommée "Démodulation AM" permet l'entretien de l'oscillation du cantilever à amplitude constante. La boucle nommée "Démodulation FM" permet de réguler la distance pointe surface en fonction de l'écart à la résonance  $\Delta f$  mesuré à partir du signal provenant de la photodiode.

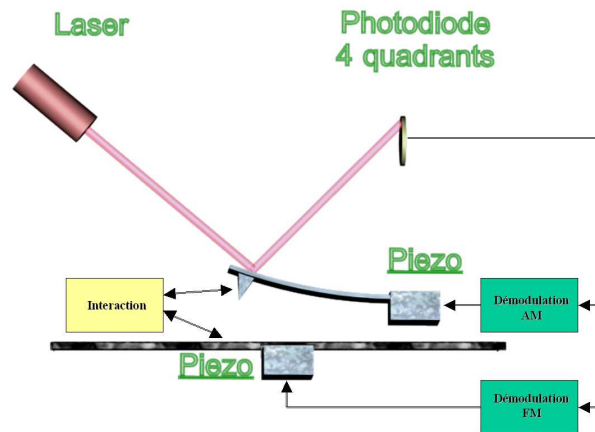


FIG. 2.3 – Schéma général du système régulé. La photodiode est utilisée en mode “Force normale”.

Sur la figure 2.4, nous avons photographié le poste de contrôle permettant de piloter la tête AFM/STM du microscope (figures 2.1 et 2.2(a)). On y voit tous les blocs permettant de piloter l’AFM en mode Non-Contact avec le PC de contrôle permettant de faire l’acquisition et le traitement des images. Nous allons décrire ces blocs électroniques au paragraphe suivant.

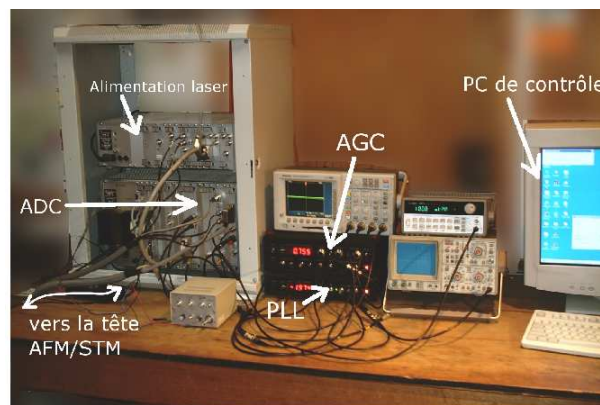


FIG. 2.4 – Blocs électroniques de contrôle du microscope. Nous utilisons l’AGC et la PLL de la société NANOSURF™ [Nan].

### 2.1.3 Schéma de blocs

On peut modéliser tous les blocs de contrôle de la figure 2.4 par le schéma 2.5. On reconnaît le système cantilever avec la détection optique. Le signal sinusoïdal provenant de la photodiode peut s’écrire, en première approximation :  $s(t) = A(t) \sin(2\pi f(t)t + \theta)$  avec l’amplitude d’oscillation  $A(t)$ , la fréquence instantanée  $f(t) = f_0 + \Delta f(t)$  du résonateur et la phase  $\theta$  entre le signal d’excitation du cantilever et la réponse, provenant de la photodiode.



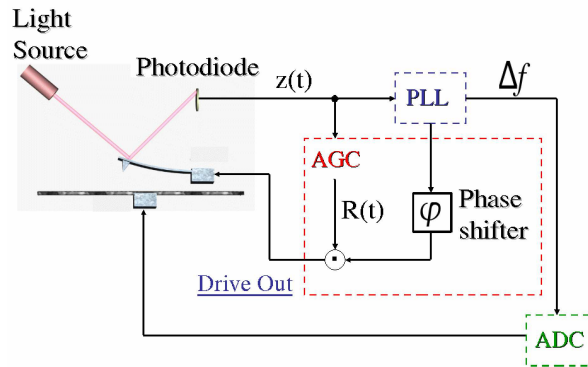


FIG. 2.5 – Schéma de blocs du système en configuration AFM mode Non-Contact.

L’asservissement en amplitude se nomme Contrôle Automatique de Distance (ADC, “Automatic Distance Control” en anglais). L’asservissement en amplitude se nomme Contrôle Automatique de Gain (AGC, “Automatic Gain Control” en anglais). La figure 2.6 montre une vue détaillée de ce bloc. Par l’intermédiaire d’une détection d’enveloppe, l’amplitude  $A(t)$  est extraite de l’oscillation du cantilever. Ensuite cette amplitude est comparée à une consigne  $A_0$  définie par l’utilisateur. On obtient ainsi un signal  $A(t) - A_0$ , appelé signal d’erreur, qui passe par un système de gains Proportionnel  $K_P^{AGC}$  et Intégral  $K_I^{AGC}$ , servant à régler la “nervosité” de l’asservissement en amplitude (nous détaillerons le rôle de ces gains au chapitre 4), pour devenir le signal :

$$R(t) = K_P^{AGC} [A(t) - A_0] + K_I^{AGC} \int_0^t [A(t') - A_0] dt' \quad (2.1)$$

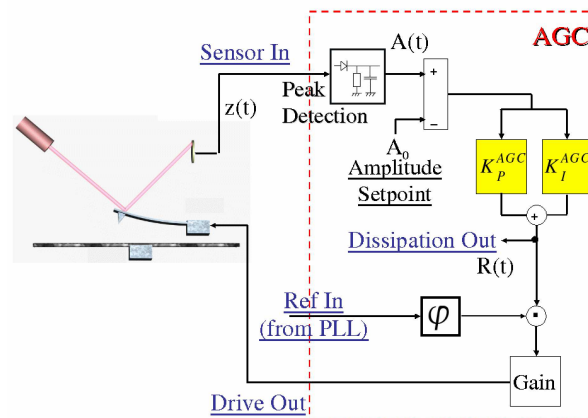


FIG. 2.6 – Schéma de blocs du Contrôle Automatique de Gain (AGC).

Ce signal  $R(t)$  est appelé : amplitude d’excitation, signal d’entretien, signal de dissipation ou “Damping”, en anglais. Notons qu’on peut aussi l’utiliser pour en faire une

image en fonction du balayage  $x, y$  de la surface ou pour régler la distance pointe-surface comme nous le verrons au chapitre 6.

Ce signal quasi-continu  $R(t)$  est ensuite mis en forme par un multiplieur pour devenir oscillant à la même fréquence que le cantilever. La mise en forme utilise un signal sinusoïdal à amplitude fixe ajusté en phase par un déphaseur  $\varphi$  réglable par l'utilisateur. Avant de venir exciter le cantilever, ce signal oscillant passe par un gain de conversion. Ce déphaseur joue, comme nous le verrons au chapitre 4, un rôle capital pour avoir une amplification cohérente de l'entretien de l'oscillation du cantilever. Il permet de régler la phase  $\theta$  à  $\pi/2$  radians afin de faire vibrer le cantilever à sa fréquence de résonance. Nous verrons que cet optimum de réglage de  $\varphi$  correspond au minimum du signal d'entretien  $R(t)$ .

L'asservissement en distance se nomme Contrôle Automatique de Distance (ADC, "Automatic Distance Control" en anglais). La figure 2.7 montre une vue détaillée de ce bloc. Au préalable, un démodulateur de fréquence, ici une boucle à verrouillage de phase [Bes90] (PLL, "Phase Locked Loop" en anglais), extrait l'écart en fréquence  $\Delta f(t)$  du signal d'oscillation du cantilever. Cet écart en fréquence est ensuite comparé à une consigne  $\Delta f_c$  définie par l'utilisateur. On obtient ainsi un signal d'erreur  $\Delta f(t) - \Delta f_c$  qui passe par un système de gains Proportionnel  $K_P^{ADC}$  et Intégral  $K_I^{ADC}$ , servant, comme pour l'AGC, à régler la "nervosité" de l'asservissement en distance (nous détaillerons le rôle de ces gains au chapitre 4), pour devenir le signal de distance pointe-surface :

$$D(t) = D_0 + K_P^{ADC} [\Delta f(t) - \Delta f_c] + K_I^{ADC} \int_0^t [\Delta f(t') - \Delta f_c] dt' \quad (2.2)$$

avec  $D_0$  une consigne en distance définie par l'utilisateur pour le mode hauteur constante.

Notons que le signal  $\Delta f(t)$  est utilisé pour la régulation en distance mais peut aussi servir pour faire une image en fonction du balayage  $x, y$  de la surface comme nous le verrons au chapitre 6.

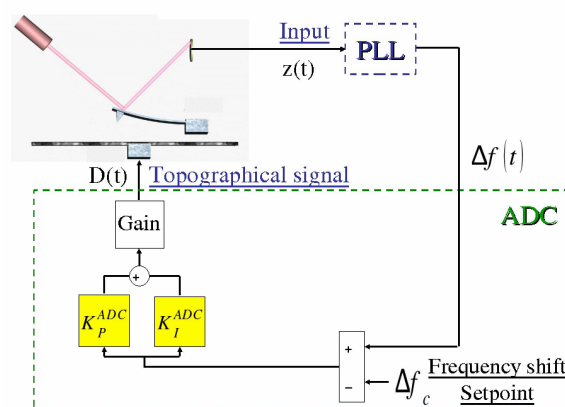


FIG. 2.7 – Schéma de blocs du Contrôle Automatique de Distance(ADC).

Le fonctionnement de cette électronique de régulation en amplitude (AGC) et en distance (ADC) ainsi que l'optimisation des réglages de boucles, qui doivent rester stables

lors du processus d'imagerie, ne sont pas triviaux. En effet, il n'existe pas de "lois" de réglage de ces boucles pour obtenir de bonnes images en AFM dynamique. Nous en détaillerons le fonctionnement au chapitre 4 pour nous rendre compte de l'importance des réglages des gains de boucles et pour trouver des critères de réglages.

Mais la connaissance du fonctionnement du microscope ne suffit pas pour obtenir des images exploitables d'un substrat. La connaissance des forces sondées par l'oscillateur est nécessaire pour optimiser les points de fonctionnement de la machine. Au paragraphe suivant, nous allons détailler les interactions *pointe-surface* représentées par le bloc jaune "Interaction" de la figure 2.3. En d'autres termes, nous allons détailler ce pourquoi l'AFM est fait, c'est à dire mesurer les forces entre la sonde et la surface.

## 2.2 Les forces de surface

Nous ne ferons pas une liste exhaustive des forces que ressent la sonde en s'approchant de la surface. Nous présenterons les interactions dominantes que nous rencontrerons au cours de nos investigations expérimentales des chapitres 5 et 6 sous ultra vide à température ambiante.

La figure 2.8 rend compte des interactions prépondérantes lors des allers et venues de la pointe au dessus de l'échantillon lors de son oscillation en mode dynamique. Loin de la surface, les forces qui agiront seront sommées sur les gros volumes que représentent le substrat et le corps de la pointe, souvent modélisée comme une sphère dans ce régime. L'effet de moyenne dû à la sommation sur un grand ensemble d'atomes (plusieurs millions) fait disparaître la notion de localisation. La résolution en champ proche n'existe donc pas : on parlera d'interactions à longue portée. Très près de la surface, à quelques diamètres atomiques, de nouvelles interactions très localisées entrent en jeu. La portée de ces nouvelles interactions est de l'ordre de la distance interatomique ce qui permet de gagner en résolution spatiale car seuls les derniers atomes de la pointe, constituant l'apex, seront mis à contribution. Si l'on considère une période d'oscillation de la pointe, on montrera au chapitre 3 que l'information recueillie par la démodulation de fréquence pour la régulation en distance (figure 2.7) correspond à la moyenne temporelle des interactions longue et courte portée ressenties par la sonde oscillante. Ainsi, pour augmenter la résolution en champ proche, il faudra minimiser les interactions longue portée et maximiser les forces à distance subnanométrique.

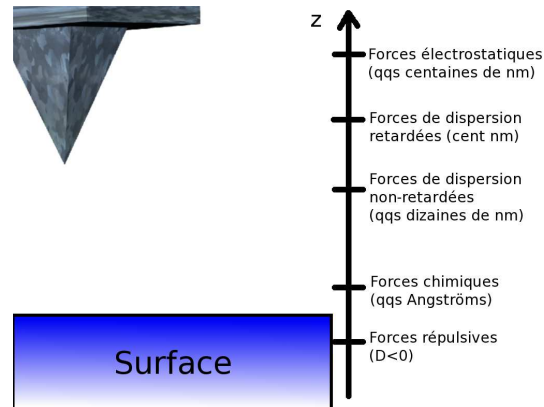


FIG. 2.8 – Schéma non exhaustif des interactions pointes-surfaces en fonction de la distance.

Les figures 2.9 montrent expérimentalement ce phénomène sur une surface de KBr(001) (image en topographie (a) à grande échelle) observée en mode AFM Non-Contact avec le dispositif décrit au paragraphe 2.1. L'image (b) montre, suivant le sens de balayage lent indiqué par la flèche noire en traits discontinus, l'apparition de la résolution atomique en diminuant la consigne d'écart en fréquence  $\Delta f_c$  de -17.0 Hz, en début d'image, à -19.1 Hz, en fin d'image. La diminution de  $\Delta f_c$  provoque une réduction de la distance pointe surface, via l'ADC, pour une même amplitude  $A$  d'oscillation. Ainsi, sur un cycle d'oscillation la contribution des interactions attractives à courtes portées est plus importante. L'image (c) montre des lacunes atomiques (flèches vertes) sur la surface de ce cristal ionique.

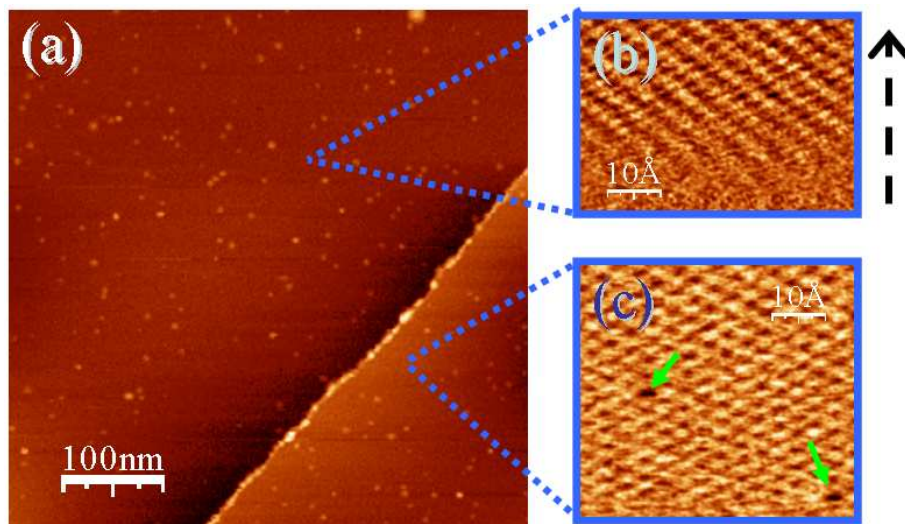


FIG. 2.9 – Résolution atomique sur KBr(001) en mode Non-Contact.  $f_0 = 277.8$  kHz,  $V_t = 0$  Volt,  $A = 8$  nm. L'échantillon a été clivé à l'air, puis recuit pendant 2 heures à 150°C sous ultra vide avant d'être observé.

### 2.2.1 Forces électrostatiques

On les nomme aussi forces capacitives. Elles peuvent avoir des portées d'interaction de l'ordre du micromètre. Elles sont dues à la présence de charges de surface sur l'échantillon et/ou la pointe. Il y a deux origines à ces charges :

- La première est liée à des phénomènes physiques qui échappent à l'expérimentateur. En effet, l'échantillon présent dans l'enceinte subit des événements physico-chimiques plus ou moins violents : bombardements, recuits, transferts, etc ... Ceux-ci peuvent produire ou révéler des charges électrostatiques sur un isolant par des défauts de surface par exemple. Les points blancs visibles sur l'image (a) à grande échelle de la surface de KBr(001) pourraient s'apparenter à de tels effets de charges piégées ;
- La seconde origine est contrôlée par l'expérimentateur. Effectivement, celui-ci a la possibilité d'appliquer une différence de potentiel entre la pointe conductrice et le substrat. L'utilité de cette tension de polarisation est de compenser les charges de surface de l'échantillon afin de réduire au mieux cette contribution à longue portée qui agit comme un brouillard de force empêchant l'obtention de la résolution atomique en AFM.

Dans un but de simplification du problème de mobilité des charges, que nous verrons plus en détails au chapitre 5, nous rendons compte de leurs effets sur le système par un potentiel effectif noté  $V_{eff}$  entre la pointe et la région observée sur la surface de l'échantillon. On peut alors assimiler le système à un condensateur variable  $C_{pointe-surface}$  par la distance  $D$  entre la sonde et le substrat avec la tension  $V_{eff}$  sur les armatures. Le milieu diélectrique étant ici le vide avec la permittivité  $\epsilon_0$ . L'énergie d'interaction électrostatique  $\mathcal{E}_{elec} = \frac{1}{2} C_{pointe-surface} V_{eff}^2$  donne par son gradient la force capacitive entre la pointe et le substrat :

$$F_{elec} = -\nabla \mathcal{E}_{elec} = -\frac{1}{2} V_{eff}^2 \nabla C_{pointe-surface} \quad (2.3)$$

Nous voyons ainsi que la résolution de cette force dépend de la capacité  $C_{pointe-surface}$  qui devra avoir la géométrie la plus pertinente en fonction de la distance pointe surface.

On trouvera des modélisations rigoureuses de ce problème d'électrostatique pour différentes géométries de pointe dans les références [SJHGB99, PS94] mais les expressions résultantes sont peu pratiques. S. Belaidi et al. [BGL97] ont proposé une étude à la fois analytique et numérique, par éléments finis, pour proposer des solutions plus simples à manipuler. Pour différentes distances pointe-surface, le modèle équivalent de la sonde change. Ainsi, pour de petites distances pointe-surface, le modèle sphère-plan, où la pointe est modélisée comme une boule de rayon  $b_1$ , est une bonne approximation. Autrement, si la distance devient supérieure à la centaine de nanomètres, le modèle ne fonctionne plus, il faut utiliser un modèle ligne chargée-plan. Les paramètres de ces deux modèles sont représentés sur la figure 2.10.

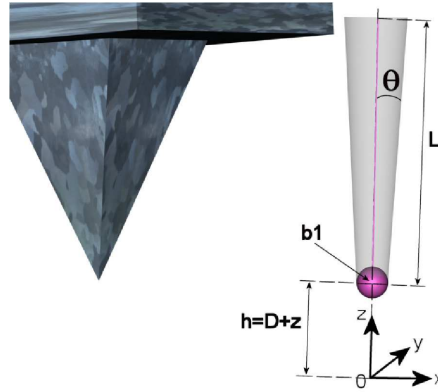


FIG. 2.10 – Pointe AFM et son modèle équivalent électrostatique sphère + ligne chargée.

Le modèle sphère-plan a été traité en détails par E. Durand [Dur66] grâce à la théorie des charges images [Jac75]. Il trouve une capacité sphère-plan :

$$C_{sphere-plan} = 4\pi\epsilon_0 b_1 \sinh(\alpha) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{\sinh(n\alpha)} \quad (2.4)$$

avec  $\cosh(\alpha) = h/b_1 = (D+z)/b_1$ . En différenciant cette capacité par rapport à la distance  $h$ , on obtient la force :

$$F_{elec} = -\frac{1}{2} V_{eff}^2 4\pi\epsilon_0 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\coth(\alpha) - n \coth(n\alpha)}{\sinh(n\alpha)} \quad (2.5)$$

S. Hudlet et al. [HSJGB98] propose une expression plus simple à utiliser qui s'écarte au maximum de 5% de l'expression 2.5 :

$$F_{elec} = -\pi\epsilon_0 \left( \frac{b_1^2}{h(h-b_1)} \right) V_{eff}^2 \quad (2.6)$$

Toujours dans la référence [Dur66], pour le modèle ligne chargée-plan, justifié quand  $h \gg b_1$ , E. Durand utilise la théorie des charges images pour trouver les équipotentielles  $V(r, z)$  de symétrie cylindrique présentes entre une ligne uniformément chargée, de longueur  $L$ , et un plan perpendiculaire chargé. Le plan, symbolisant la surface, est l'analogue d'un miroir entre les charges réelles, de densité linéique  $+\lambda$ , dans la pointe et les charges images, de densité linéique  $-\lambda$ , créées dans le volume comme le montre la figure 2.11.

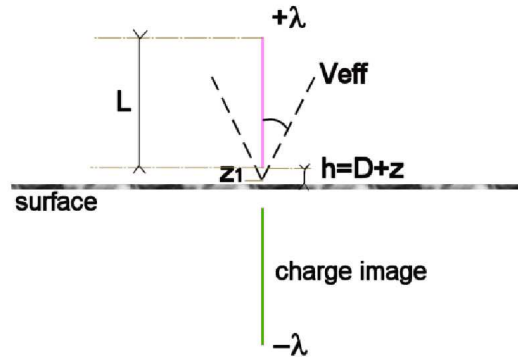


FIG. 2.11 – Le modèle équivalent ligne chargée dans la théorie des forces images.

Par cette méthode, on trouve les équipotentiellles :

$$\begin{aligned}
 V(r, z) &= \underbrace{\frac{\lambda}{4\pi\epsilon_0} \int_{z_1}^{\infty} \frac{dz'}{\sqrt{(z'+z)^2 + r^2}}}_{\text{dû aux charges réelles}} - (g_0) \underbrace{\frac{\lambda}{4\pi\epsilon_0} \int_{-\infty}^{-z_1} \frac{dz'}{\sqrt{(z'+z)^2 + r^2}}}_{\text{dû aux charges images}} \\
 &= \frac{\lambda}{4\pi\epsilon_0} \ln \left[ \frac{z_1 + z + \sqrt{(z_1 + z)^2 + r^2}}{z_1 - z + \sqrt{(z_1 - z)^2 + r^2}} \right]
 \end{aligned}$$

avec  $z_1 = h \sqrt{1 + \tan^2 \theta}$ ,  $\theta$  étant l'angle d'ouverture de la pointe,  $r$  est la coordonnée cylindrique de rayon et  $g_0$  un facteur correctif [VC81a] égal à 1 pour les métaux et inférieur à 1 pour les diélectriques ( $g_0 = 0.84$  pour le silicium). Pour simplifier notre résolution précédente, nous avons pris  $g_0 = 1$ .

Dans nos expérimentations, la distance bout de pointe-surface  $z_1$  est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres et donc beaucoup plus petite que la longueur  $L$  de la pointe de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$  [Tip], d'où :

$$V(\theta) = \frac{\lambda}{2\pi\epsilon_0} \operatorname{argsinh}(\cotan\theta)$$

représentant des équipotentiellles coniques dont une correspond à la forme conique de la pointe AFM avec la densité de charge linéique :

$$\lambda = \frac{2\pi\epsilon_0 V_{eff}}{\operatorname{argsinh}(\cotan\theta)}$$

contenant la géométrie de la pointe. On trouve la force électrostatique exercée par la charge réelle sur le substrat en utilisant le champ électrique en  $r = 0$  :

$E_z(z) = -\frac{\lambda}{4\pi\epsilon_0} \int_{-z_1-L}^{-z_1} \frac{dz'}{\sqrt{(z'+z)^2}}$  créé par la charge image. Ainsi [BGL97] :

$$F_{elec} = \int_{z_1}^{z_1+L} \lambda E_z(z) dz = -\frac{\lambda^2}{4\pi\epsilon_0} \ln \left[ \frac{(2z_1 + L)^2}{4z_1(z_1 + L)} \right] \quad (2.7)$$

### 2.2.2 Forces de dispersion

Les forces de van der Waals entre molécules des matériaux résultent d'interactions dipolaires. Ces dipôles peuvent être considérés comme les dipôles individuels présent dans une molécule ou comme les orbitales électroniques d'un atome ou d'une molécule. Nous verrons ultérieurement que pour produire une attraction macroscopique à partir de ces interactions dipolaires, une sommation est faite sur l'ensemble de ces attractions atomiques ou moléculaires des matériaux considérés.

Pour l'anecdote, c'est grâce aux forces de van der Waals que le gecko du désert utilise la pilosité très dense de ses pattes pour rester agrippé aux rochers à la verticale ou tête en bas à l'horizontale. Etant donné son poids d'environ 40 grammes, les forces de dispersion peuvent vaincre la force de pesanteur d'environ 0.4 Newton grâce à l'optimisation de la surface de contact. On voit donc que ces forces sont loin d'être négligeables.

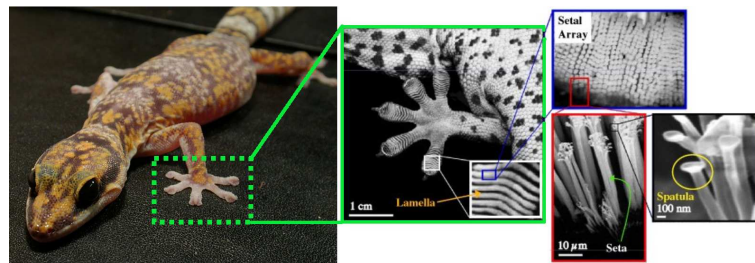


FIG. 2.12 – Le gecko du désert utilise la forte densité des poils micrométriques de ses pattes afin de maximiser les forces de dispersion pour vaincre la pesanteur. D'après [ASL<sup>+</sup>02].

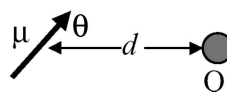
#### Forces inter-atomiques et inter-moléculaires

La cause de toutes les forces de surface provient de la force de Coulomb. L'énergie potentielle entre deux charges électriques  $Q_1$  et  $Q_2$  séparées d'une distance  $d$  s'écrit :

$$U = \frac{Q_1 Q_2}{4\pi\epsilon_0 d}$$

Toujours avec la loi de Coulomb on peut déduire l'énergie potentielle entre un dipôle  $\mu$  statique et une charge  $Q$  [Jac75] :

$$U = -\frac{Q\mu \cos\theta}{4\pi\epsilon_0 d^2}$$



Cette énergie dépend du moment dipolaire  $\mu$  souvent exprimé en Debye, avec 1 Debye =  $3.36 \cdot 10^{-30}$  C.m.

Une molécule libre spatialement de tourner, avec un moment dipolaire moyen nul en l'absence de champ, a aussi une *polarisabilité orientée* qui apparaît par l'effet d'un

**Jérôme Polesel Maris**



champ électrique sur les orientations moyennées, dépendant de la température via une distribution de Boltzmann, de ce dipôle tournant. Ainsi sous l'effet de  $\vec{E}$ , l'orientation moyenne n'est plus nulle mais s'aligne dans la direction du champ électrique. On obtient ainsi un moment dipolaire moyen non-nul [Isr92] :

$$\mu_{ind} = \left\langle \mu \cos \theta e^{\frac{\mu E \cos \theta}{k_B T}} \right\rangle = \frac{\mu^2}{3 k_B T} E \quad \text{pour} \quad \mu E \ll k_B T$$

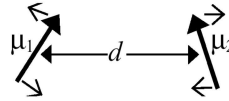
avec la *polarisabilité orientée*  $\alpha_{orientee} = \frac{\mu^2}{3 k_B T}$ .

Dans ce cas, l'énergie potentielle de ce dipôle tournant en interaction avec une charge devient :

$$U = -\frac{Q^2 \mu^2}{6 (4\pi \epsilon_0)^2 k_B T d^4}$$

Pour deux dipôles en interaction, libres de tourner, on obtient l'énergie potentielle dite "*énergie de Keesom*" (1912) :

$$U_{Keesom} = -\frac{\mu_1^2 \mu_2^2}{3 (4\pi \epsilon_0)^2 k_B T d^6} \quad (2.8)$$



Quand une charge  $Q$  approche d'une molécule sans moment dipolaire statique, alors les énergies considérées devraient être nulles. Néanmoins, il existe une force attractive quand on les rapproche. En effet, le monopôle électrostatique induit une déformation de la distribution de charge de la molécule non-polaire. Alors, un moment dipolaire induit apparaît, celui-ci interagit avec le monopôle. Cette énergie s'écrit :

$$U = -\frac{Q^2 \alpha}{2 (4\pi \epsilon_0)^2 d^4}$$

avec la polarisabilité  $\alpha$  de la molécule. Si on remplace la charge  $Q$  par une molécule avec un moment dipolaire statique  $\mu$ , on obtient l'énergie potentielle dite "*énergie de Debye*" (1920) :

$$U_{Debye} = -\frac{\mu^2 \alpha}{(4\pi \epsilon_0)^2 d^6} \quad (2.9)$$

Cette énergie de Debye ne disparaît pas à haute température contrairement à l'énergie de Keesom. Pour exister, elle nécessite la présence d'au moins un dipôle permanent et donc n'est pas universellement présente pour tous les atomes et molécules.

Toutes ces énergies peuvent être calculées en utilisant la physique classique. Malheureusement, elles n'expliquent pas l'interaction entre les atomes des gaz rares. London [Lon37] cite cet exemple que les gaz rares ont des moments dipolaire et quadrupolaire négligeables avec, cependant, des énergies d'interaction qui sont 100 fois plus grandes qu'en tenant seulement compte des énergies de Keesom et Debye. Il introduit donc l'idée que les liaisons interatomiques dans les atomes et molécules peuvent elles-mêmes induire

des moments dipolaires dans le voisinage des liaisons interatomiques. La fréquence caractéristique vibrationnelle des liaisons interatomiques se trouve dans le spectre du visible et des ultraviolets [OD88], et les liaisons peuvent générer des ondes électromagnétiques ou photons. L'explication standard de création des photons est quand un électron dans un état excité passe dans un état stable d'énergie plus basse en libérant un quantum de lumière d'énergie  $\mathcal{E} = h\nu$  égale à l'énergie perdue lors de la transition électronique.

London ne se focalisa pas sur la production "active" d'ondes électromagnétiques propagatives résultant du saut d'un électron vers son état stable. En effet, cette génération active de lumière est toujours associée à une perte d'énergie qui n'est pas à la base des interactions dans les gas rares. London utilisa alors les nouvelles idées de la mécanique quantique qui établissent qu'un électron, même dans son état stable au zéro absolu en température, exprime, de façon universelle, un *mouvement* ou *énergie de point zéro*. Ce mouvement de point zéro de l'électron, qui correspond au mouvement des fluctuations du nuage électronique, apparaît à la fréquence caractéristique de l'électron qui est dans le spectre du visible et cette énergie de l'état stable ne peut être dissipée. Ce mouvement de point zéro de l'électron est responsable d'ondes électromagnétiques propagatives qui aussi ne peuvent être dissipées, et nous associons à de telles ondes des *photons virtuels* qui doivent être distingués des photons dissipatifs d'énergie produits par la transition électronique de l'électron d'un état excité vers l'état stable.

Similairement à l'énergie de Debye induite par le champ électrique d'un dipôle permanent sur un autre dipôle, cette énergie de point zéro d'un électron d'un atome produit des ondes électromagnétiques, assimilées à des photons virtuels, dont les champs électriques associés peuvent induire des moments dipolaires dans les nuages électroniques des atomes voisins ou des molécules. Ce sont ces interactions *dipôle induit/dipôle induit* qui sont responsables de l'interaction attractive de London pour les gas rares mais aussi pour toutes les autres espèces d'atomes et molécules. Cet effet est universel. La force de dispersion naît entre les liaisons interatomiques individuelles qui interagissent par l'échange de photons virtuels. L'effet de dispersion est additif pour toutes les liaisons interatomiques avec le vide comme milieu de propagation de l'onde électromagnétique.

Ainsi l'"*énergie de dispersion de London*" entre deux molécules avec les énergies d'ionisation  $h\nu_1$  et  $h\nu_2$  et les polarisabilités  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  s'écrit :

$$U_{London} = -\frac{3}{2} \frac{\alpha_1 \alpha_2}{(4\pi\epsilon_0)^2 d^6} \frac{h\nu_1 \nu_2}{(\nu_1 + \nu_2)} \quad (2.10)$$

Cette relation est une approximation. En effet, il est crucial, dans l'énergie de dispersion, que les caractéristiques optiques des deux molécules, ou atomes, apparaissent dans l'expression des fréquences d'excitation. On trouvera plus de précisions à ce sujet dans l'annexe A.

### Retard des forces de dispersion

H. B. G. Casimir [CP48] a introduit le concept que l'effet de retard des forces de dispersion apparaît quand la distance  $d$  entre les particules devient grande par rapport à la longueur d'onde du photon virtuel entre les deux atomes ou molécules. La théorie de Lifchitz [DLP61, LL69a] inclut les effets de retard. Le cas non-retardé de l'interaction de London devient un cas limite quand on fait tendre la célérité de la lumière  $c$  vers l'infini.

Quand le retard de l'interaction de dispersion apparaît on observe une dépendance en distance de l'énergie en  $\frac{1}{d^7}$  [CTDL96] contrairement au cas non-retardé en  $\frac{1}{d^6}$  exprimé par la relation 2.10. Des mesures expérimentales de ces forces dites "*forces de Casimir*" ont été faites par Overbeek et al. [BDOS60], et plus récemment par B. W. Harris [HCM00] en AFM statique et par Chan et al. [CAK<sup>+</sup>01] sur un microsystème résonant, similaire à un cantilever d'AFM. L'effet de retard apparaît pour des distances supérieures à 100 nm environ. Au cours de ce travail de thèse, nous étudierons des effets expérimentaux sur des portées de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres au maximum. Nous limiterons donc notre étude au régime non-retardé. Néanmoins, le lecteur désireux d'en savoir plus pourra trouver des détails calculatoires dans l'annexe A.

### Forces de van der Waals non-retardées

La force de van der Waals résulte des interactions de Keesom (relation 2.8), Debye (relation 2.9) et London (relation 2.10) en d'autres termes toutes les interactions tenant compte des interactions dipolaires. Sans les effets de retard, les trois termes ont la même dépendance en distance en  $\frac{1}{d^6}$ . La plupart du temps le terme de dispersion de London est dominant [Isr92]. On définit la constante de couplage dipolaire  $C_6$  tenant compte des interactions dipolaires de l'énergie d'interaction de van der Waals entre deux atomes 1 et 2 :

$$\begin{aligned} U_{vdW}(d) &= -\frac{C_6}{d^6} = -\frac{[C_{Keesom} + C_{Debye} + C_{London}]}{d^6} \\ &= -\frac{\left[\frac{\mu_1^2 \mu_2^2}{3k_B T} + \mu_1^2 \alpha_2 + \mu_2^2 \alpha_1 + \frac{3\alpha_1 \alpha_2}{2} \frac{h\nu_1 \nu_2}{(\nu_1 + \nu_2)}\right]}{(4\pi \epsilon_0)^2 d^6} \end{aligned} \quad (2.11)$$

Notons que cette constante  $C_6$  est souvent appelée constante de London à cause de l'effet dominant des forces de dispersion.

Une fois que la nature des interactions des dipôles individuels fut identifiée, Hamaker [Ham37] proposa une détermination des interactions de van der Waals entre différents objets macroscopiques (sphères, plans) en sommant par paires toutes les interactions dipolaires des atomes et des molécules des solides caractérisés par leur densité volumique  $\rho$ . Cette sommation par paires est basée sur l'hypothèse de l'additivité des interactions de dispersion qui est valable pour deux solides interagissant dans le vide seulement. Nous allons voir ce calcul pour quelques géométries simples qui peuvent s'apparenter à notre système pointe AFM-surface.

En utilisant l'énergie d'interaction élémentaire molécule-molécule  $U_{vdW}(r) = -\frac{C_6}{r^6}$  (voir relation 2.11), on peut trouver l'énergie d'interaction entre une molécule, située au point  $P$  de la figure 2.13, et une boule de rayon  $b_1$  de densité volumique  $\rho_1$  et centrée au point  $O$ . Pour cela, on somme cette énergie sur tous les éléments de volume  $dv_1 = 2\pi r^2 \sin\theta d\theta dr$  de la boule suivant l'intégrale  $\int_{boule} -\frac{C_6}{r^6} dv_1$ . On pose  $OP = x$  et  $S_{ABC}$  la calotte de rayon  $r$  vue par la molécule au point  $P$  en direction du point  $O$  avec l'angle solide  $d\Omega = 2\pi \sin\theta d\theta$  tel que :

$$S_{ABC} = 2\pi \int_0^\theta r^2 \sin \theta' d\theta' = -2\pi r^2 (\cos \theta - 1)$$

avec  $\vec{b}_1 = \vec{x} - \vec{r}$  donnant :

$$b_1^2 = \|\vec{b}_1\|^2 = \|\vec{x} - \vec{r}\|^2 = x^2 + r^2 - 2xr \cos \theta$$

En combinant ces deux résultats, on a  $S_{ABC} = -\frac{\pi r}{x} [(x-r)^2 - b_1^2]$  qui permet de résoudre la sommation sur tous les éléments de volume  $dv_1$  de la boule de rayon  $b_1$  :

$$\int_{\text{boule}} -\frac{C_6}{r^6} dv_1 = \int_{x-b_1}^{x+b_1} \rho_1 \frac{\pi r}{x} [(x-r)^2 - b_1^2] \frac{C_6}{r^6} dr \quad (2.12)$$

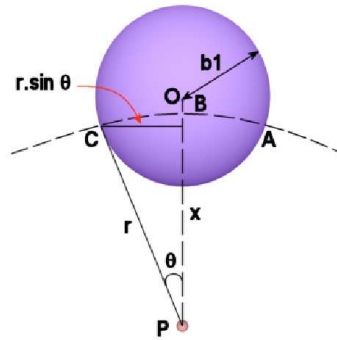


FIG. 2.13 – Interaction entre un molécule et une boule.

Pour avoir l'énergie d'interaction entre une boule de rayon  $b_1$  de densité volumique  $\rho_1$  et une boule de rayon  $b_2$  de densité volumique  $\rho_2$  (figure 2.14(a)) séparées d'une distance  $R$ , on fait la même intégration volumique sur cette seconde boule. On a ainsi l'énergie d'interaction :

$$\begin{aligned} U(R) &= - \underbrace{\pi^2 \rho_1 \rho_2 C_6}_{\text{constante de Hamaker}} \int_{R-b_2}^{R+b_2} \int_{x-b_1}^{x+b_1} \frac{r}{x} [b_1^2 - (x-r)^2] \frac{1}{r^6} dr \frac{x}{R} [b_2^2 - (R-x)^2] dx \\ &= -\frac{H}{6} \left[ \frac{2b_1 b_2}{R^2 - (b_1 + b_2)^2} + \frac{2b_1 b_2}{R^2 - (b_1 - b_2)^2} + \ln \left[ \frac{R^2 - (b_1 + b_2)^2}{R^2 - (b_1 - b_2)^2} \right] \right] \quad (2.13) \end{aligned}$$

où on fait apparaître la constante de Hamaker  $H = \pi^2 C_6 \rho_1 \rho_2$ , en unité d'énergie, traduisant le couplage dipolaire entre deux solides. Pour deux matériaux en interaction dans le vide, elle est de l'ordre de 1 à 2 eV [Ber97, FCDC95]. On trouvera des valeurs expérimentales et calculées de cette constante dans l'annexe A.

Afin de modéliser la pointe AFM en interaction avec une surface, on trouve la plupart du temps dans la littérature [SJHGB99, Hud97, BGL97] une géométrie sphère-plan. Soit  $b_1$  le rayon effectif de la pointe AFM, modélisée par une sphère, faisons alors tendre le rayon  $b_2$  vers l'infini pour trouver ce potentiel sphère-plan avec la distance  $D = R - b_2$

centre de sphère-plan, comme on le voit sur la figure 2.14(b). Ce potentiel, en utilisant l'expression 2.13, s'écrit ainsi :

$$U(D) = -\frac{H}{6} \left[ \frac{1}{\xi-1} + \frac{1}{\xi+1} + \ln \left[ \frac{\xi-1}{\xi+1} \right] \right] \quad \text{avec} \quad \xi = \frac{D}{b_1} \quad (2.14)$$

Le gradient négatif de ce potentiel par rapport à la distance  $D$  nous donne la force de van der Waals normale à la surface tel que :

$$F_{\text{sphère-plan}}(D) = -\frac{2}{3} \frac{H b_1^3}{(D^2 - b_1^2)^2} \quad (2.15)$$

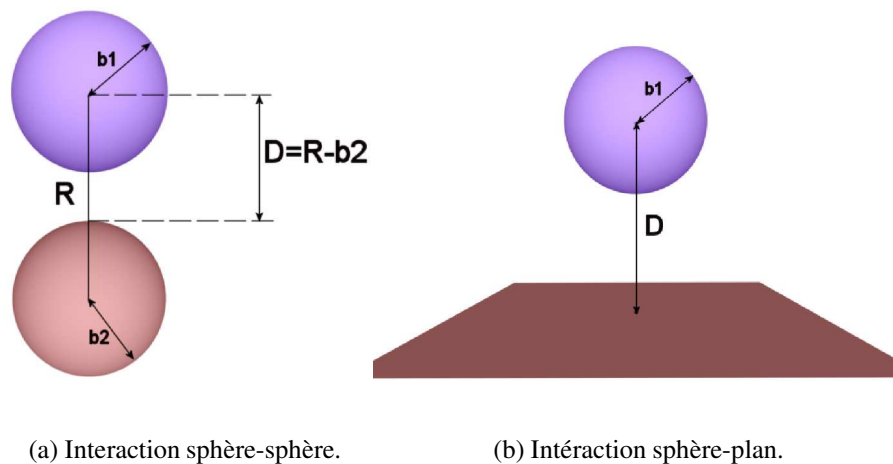


FIG. 2.14 – Modèles de Hamaker.

Pour des distances pointe-surface très petites, on fait tendre  $D$  vers  $b_1$  dans l'expression 2.14 pour obtenir le potentiel d'interaction limite :

$$U(D) = -\frac{H b_1}{6(D - b_1)} \quad (2.16)$$

et la force de van der Waals sphère-plan limite :

$$F_{\text{sphère-plan}}(D) = -\frac{H b_1}{6(D - b_1)^2} \quad (2.17)$$

Notons les approximations qui apparaissent dans cette méthode de sommation par paires. En effet, pour calculer la constante de Hamaker nous avons fait l'hypothèse que les contributions des forces de dispersion de London sont centrées autour d'une seule fréquence dominante (d'habitude dans l'ultraviolet) dans la définition de la constante  $C_6$ . Ce n'est pas une représentation réaliste du comportement réel des molécules. La polarisabilité des molécules est une fonction de la fréquence vibrationnelle qui peut être déterminée précisément avec des techniques modernes de spectroscopie [Ber97, OD88] et qui doit être considérée dans le calcul de la constante de Hamaker. De plus, bien que la technique de sommation par paires soit valable entre deux corps en interaction dans le vide selon

la théorie complète de Lifchitz [Lif56], nous n'avons pas tenu compte de façon explicite des effets d'écrantage électronique de la polarisation induite sur toutes les molécules, ou atomes, des deux corps. En effet, la force entre deux molécules est affectée par la présence des molécules voisines. L'annexe A permettra d'aborder un traitement plus pratique et réaliste de la constante de Hamaker ainsi que du traitement des forces de dispersion en général.

### 2.2.3 Forces chimiques

Grâce à l'élucidation de la structure électronique des atomes et des molécules et grâce au développement de la mécanique quantique dans les années 1920, il a été possible de comprendre l'origine des forces interatomiques et intermoléculaires et de donner des expressions [AdP04, OD88, Isr92] de leur potentiel d'interaction. Il a été établi que toutes les forces intermoléculaires ont une origine essentiellement électrostatique. Cette hypothèse est contenue dans le théorème de *Hellman-Feynman* (page 1182 dans [CTDL96]) qui établit qu'une fois la distribution spatiale des nuages électroniques déterminée en résolvant l'équation de Schrödinger, les forces intermoléculaires peuvent être calculées en utilisant les outils de l'électrostatique classique. Ce théorème simplifie grandement la façon de considérer la nature des forces intermoléculaires. Ainsi pour deux charges on a la force de Coulomb en inverse du carré de la distance alors que pour des charges en mouvement on a les forces électromagnétiques. Pour des distributions complexes de charges fluctuantes autour des atomes, on obtient les forces interatomiques et intermoléculaires de liaisons physiques et chimiques. La difficulté de ce traitement provient du fait qu'il n'est pas toujours simple de trouver des solutions exactes à l'équation de Schrödinger. On pourra citer l'exemple simple de deux atomes d'hydrogène interagissant dans le vide, traité à la page 1159 de [CTDL96].

La liaison chimique implique la mise en commun d'électrons entre deux atomes contrairement aux forces de dispersion où il n'y a pas cet échange électronique. Dans la liaison chimique, les atomes perdent leur nature discrète. Suivant sa position dans le tableau périodique des éléments, un atome peut participer à un certain nombre de liaisons covalentes avec d'autres atomes [Isr92]. Certains atomes auront plus tendance que d'autres à attirer le nuage électronique de la liaison chimique : on dit qu'ils sont plus électro-négatifs. Cette liaison chimique a une directionnalité spatiale, avec des angles bien définis, qui permet aux assemblages moléculaires ou cristallographiques d'avoir une géométrie périodique caractéristique.

Les forces chimiques ont de très courtes portées de l'ordre de 1 à 2 Å pour des énergies de liaisons pouvant atteindre 8 eV. Cette localisation spatiale de la liaison chimique est d'après de nombreux auteurs [DSP03, FGA<sup>+</sup>03, UST<sup>+</sup>97] responsable de la résolution atomique obtenue en AFM. La modélisation rigoureuse de cette interaction passe donc par un traitement atomistique de la pointe et de la surface. On trouvera de tels travaux numériques dans les références [Fos00, SLFC99, KFSS00, DSP03, HFS03] où le cas des cristaux ioniques est aussi traité. L'apex de la pointe y est modélisé comme une nanopointe de quelques dizaines d'atomes.

### 2.2.4 Forces répulsives

A l'échelle atomique, le principe d'exclusion de Pauli est responsable des forces interatomiques répulsives (page 1388 de [CTDL96] et [Fey65]). On définit, dans le potentiel de Lennard-Jones, une loi de répulsion électrostatique des nuages électronique en  $\frac{C_{12}}{r^{12}}$  avec la distance interatomique  $r$  et la constante ajustable  $C_{12}$  [Isr92]. En situation expérimentale, en AFM dynamique, il peut arriver que la pointe tape accidentellement le substrat [BBO<sup>+</sup>97]. Prendre en compte les millions d'atomes impliqués dans ce contact macroscopique emmenerait vite à un traitement atomistique lourd à manipuler. Il existe des modèles de continuum permettant de traiter plus facilement ce cas. Les plus connus [Fre03] sont le modèle de Hertz, ne tenant pas compte des effets d'adhésion, la théorie DMT (Derjaguin, Muller et Toporov (1975)), tenant compte des faibles adhésions pointe-surface, et la théorie JKR (Johnson, Kendall et Roberts (1971)) traitant les fortes adhésions avec un grand rayon de contact et des matériaux très déformables.

Etant données nos conditions expérimentales : atmosphère ultra vide avec des matériaux étudiés relativement durs, nous avons considéré le modèle de Hertz [LL69b]. On utilise comme point de départ le terme de collision élastique sphère-sphère sans adhésion, avec une profondeur de pénétration  $h$  entre une sphère de rayon  $b_1$  et une sphère de rayon  $b_2$  comme illustré sur la figure 2.15(a). On obtient ainsi la pénétration  $h$  en fonction de la poussée relative  $F_{app}$  (en Newtons) entre les deux sphères :

$$h = F_{app}^{\frac{2}{3}} \left[ \left( \frac{1}{E^*} \right)^2 \left( \frac{1}{b_1} + \frac{1}{b_2} \right) \right]^{\frac{1}{3}} \quad (2.18)$$

avec l'inverse du module d'Young effectif entre les deux matériaux en contact :

$$\frac{1}{E^*} = \frac{3}{4} \left[ \frac{1 - \sigma_1^2}{E_1} + \frac{1 - \sigma_2^2}{E_2} \right] \quad (2.19)$$

$\sigma$  étant le coefficient de Poisson du matériau considéré.

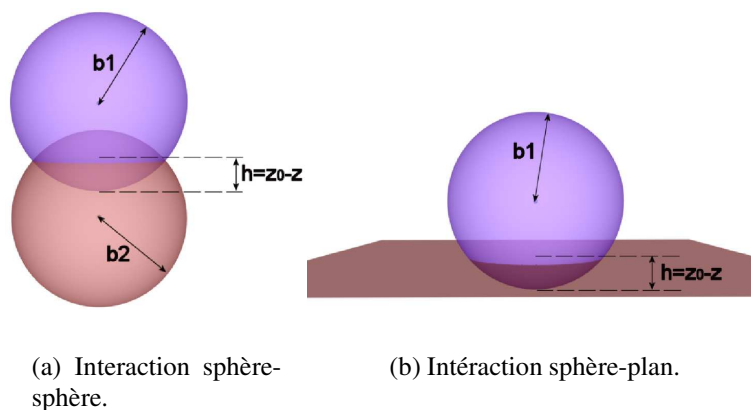


FIG. 2.15 – Modèles de contact macroscopiques.

Pour une configuration sphère-plan, illustrée sur la figure 2.15(b), pouvant modéliser l'impact de la pointe AFM sur l'échantillon, on fait tendre le rayon  $b_2$  vers l'infini pour

obtenir la force de réaction de la surface :

$$F_{reaction} = \frac{1}{E^*} \sqrt{b_2} h^{\frac{3}{2}} \quad (2.20)$$

avec la pénétration dans la surface  $h = z_0 - z$ ,  $z_0$  le rayon de sphère dure (de l'ordre de 150 pm [Non00]) et  $z$  la position de l'apex de la pointe AFM.

## Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté dans sa globalité le système qui va nous permettre, dans la suite de ce mémoire, d'explorer les forces de surface d'un substrat. Le microscope est un système complexe car mettant en jeu plusieurs systèmes d'asservissement dans le même temps. Avoir à l'esprit les ordres de grandeur des constantes de temps des différentes boucles de régulation est indispensable pour régler le système de façon optimale. Si la hiérarchie des temps de réponse n'est pas respectée par l'utilisateur, des artefacts de mesure apparaîtront voire même un comportement instable de la régulation en distance de la pointe au-dessus de la surface. Tous ces aspects d'instrumentation seront abordés en détails au cours des chapitres 3 et 4.

Le panorama non-exhaustif des forces de surface que peut analyser un tel système permettra au lecteur de mieux négocier les chapitres 5 et 6 où seront présentés plusieurs résultats expérimentaux qualitatifs et quantitatifs. Ces interactions ont une origine commune liée à l'arrangement des distributions électroniques dans la matière. Néanmoins il est préférable de séparer ces différentes interactions en fonction de leur portée. En effet, un tel classement permet de mieux se rendre compte des forces responsables de l'obtention de bonnes images en AFM et des forces que nous devons estomper et même effacer au mieux afin de supprimer ce fond continu empêchant le microscope d'atteindre la résolution atomique. Nous verrons que ce travail portera sur l'obtention d'une "bonne" pointe : clef de voûte de la microscopie en champ proche.





*(...) Il est même préférable, commercialement parlant, que l'utilisateur ignore qu' "il y a une erreur" dans le système qu'il a financé. Sans doute est-ce là la cause des multiples synonymes du terme "signal d'erreur" utilisés dans les notices de matériel : déviation, signal, correction, etc... Nous citerons à ce sujet les réflexions que faisait à l'issue de la visite d'un laboratoire de recherches, un ingénieur ignorant les notions, alors nouvelles, d'asservissement et de commande automatique (cela se passait en 1947) : "J'avoue rester perplexe après cette présentation de matériel. M. X... parlait tout le temps de l'erreur du pilote automatique. Cela me chagrissait, pour un matériel qu'on présente comme le fin du fin de la technique moderne. D'autant plus qu'à ma question : mais y a-t-il vraiment une erreur dans votre système, ne pouvez-vous pas l'éliminer ? il a répondu : mais non, il y a une erreur, c'est dans le principe de l'appareil. Je me suis alors dit qu'effectivement dans tout système précis on est obligé de se souvenir du principe qu'il a toujours des erreurs, et on cherche à les rendre le plus petites possible. Pour en avoir le coeur net, j'ai demandé : d'accord, vous avez toujours une erreur : qu'en faites-vous ? Il me fut répondu : on l'amplifie. Alors j'ai renoncé à comprendre.(...)*

"Théorie et calcul des asservissements linéaires", J.-Ch. Gille et al., 1967

# Chapitre 3

## Eléments d'Automatique

Dans ce chapitre, nous introduirons un formalisme issu du monde des automaticiens. En effet, la machine AFM est un instrument complexe par son fonctionnement. L'électronique est omniprésente afin d'extraire l'information physique contenue dans le signal oscillatoire de la sonde interagissant avec la surface. Deux approches s'offrent donc à nous pour comprendre tout le traitement du signal entre le moment où la pointe palpe l'interaction de surface et le moment où l'expérimentateur visualise le signal correspondant sur son écran. Soit nous prenons le choix de traiter de manière rigoureuse [CBNA03, CASB01] toutes les cartes électroniques de traitement du signal et de régulation au risque de perdre en compréhension globale de fonctionnement, soit nous prenons le choix de garder une vision globale de tout le système [Gie03] afin d'avoir une idée plus claire de savoir comment l'AFM fonctionne au risque de passer à côté de subtilités nécessaires.

Nous avons pris le choix de proposer une interprétation intermédiaire du fonctionnement de la machine AFM. L'Automatique [GDP92, GPD56] semble être la méthode la plus naturelle pour parvenir à cette tâche. Elle permet d'encapsuler chaque élément de régulation ou de traitement du signal sous forme de blocs nommés fonctions de transfert. On peut ainsi garder une vision globale du système sans perdre les subtilités de fonctionnement.

Dans un premier temps nous introduirons les outils nécessaires afin de comprendre les notions d'asservissement, de signal d'erreur, de stabilité, de bruit de mesure. Le néophyte automaticien trouvera ici les éléments de base pour comprendre le chapitre suivant traitant de la machine dans son ensemble.

### 3.1 Automatique linéaire

L'Automatique est la discipline des Sciences de l'Ingénieur consacrée aux développements de concepts, méthodes et techniques pour l'analyse des procédés ainsi que leur commande. On désigne par "analyse d'un procédé" la caractérisation de ses propriétés ainsi que la détermination de son évolution consécutivement à une excitation. Le vocable "commande" est lié à la notion d'asservissement : le but est d'agir de manière automatique sur le procédé de telle façon que son comportement suive une référence préalablement définie. On nommera cette référence consigne. D'autres problématiques telles que le contrôle d'exécution d'une tâche, le diagnostic, la supervision, etc... relèvent également de l'Automatique.

L'objet central de l'Automatique est la notion de système. Bien qu'un système soit généralement un procédé physique, la modélisation qui en est faite permet de le traiter comme un objet abstrait pouvant n'avoir aucune réalité physique. Il s'en suit que l'Automatique est une discipline transversale, dont les champs d'application peuvent être multiples. Ainsi, ses avancées théoriques peuvent être utilisées à des degrés de complexité divers en électronique (amplificateurs à contre-réaction, oscillateurs, boucle à verrouillage de phase ("Phase Locked Loop" en anglais P.L.L., ...)), en mécanique (systèmes de suspension automobile, systèmes de freinage, ...), en biotechnologie (commande de réacteurs chimiques, études de populations de micro-organismes, ...), etc ...

Les développements théoriques de l'Automatique présentent une forte connexité avec les Mathématiques Appliquées et les Processus d'Optimisation.

Nous allons appliquer des techniques élémentaires d'Automatique en vue d'acquies des notions sur les systèmes de commandes, les problèmes de stabilité d'un système asservi ainsi que sur quelques méthodes théoriques pour étudier le bon ou mauvais fonctionnement du système.

### 3.1.1 Cas général

Dans de nombreux systèmes, l'utilisateur désire que la grandeur de sortie soit l'image fidèle et précise de la grandeur de commande à l'entrée. Le cas le plus simple revient à entrer cette commande dans un système  $L$  et à observer le signal de sortie, appelé réponse du système. Le bloc  $L$  est une "boîte" qui encapsule toute la physique du système. Ce bloc, représenté à la figure 3.1, représente une fonction linéaire.



FIG. 3.1 – Fonction linéaire  $L$  représentant le système.

Cette physique est soit connue par le biais des équations différentielles reliant entrée et réponse du système, soit inconnue. Dans ce cas, l'Automaticien pourra approcher la réponse du procédé par une modélisation, pouvant être incomplète, au moyen de techniques d'analyse impulsionnelle, indicielle, spectrale... qui lui permettront de définir une fonction de transfert  $L$  qui aura le comportement le plus proche possible du système physique. Cette fonction de transfert aura donc toujours un domaine de validité à définir.

On voit que l'obtention d'une image fidèle de la commande sur le signal de réponse est dépendante du système  $L$ . Dans bien des cas, pour ne pas dire tout le temps, la réponse ne sera jamais une réplique de la commande. En effet, un tel système est dépendant des perturbations. Ces perturbations peuvent être internes comme par exemple une électronique défaillante (vieillesse des composants, dérive de la caractéristique des composants sous l'effet de la chaleur liée à leur fonctionnement, ...), ou bien des perturbations externes telle que des incompatibilités électromagnétiques avec le milieu. La réponse d'un tel système sera imprévisible.

Pour remédier à cela, on réalise une boucle fermée en soustrayant la réponse du système, que l'on notera  $s$ , à la commande, ou à une consigne, à l'entrée que l'on notera  $e$ . La sortie  $s$  peut être acheminée vers le comparateur par l'intermédiaire d'un capteur. La soustraction est obtenue par un élément linéaire nommé comparateur. A la sortie du comparateur, représenté sur la figure 3.2, on obtient un signal d'erreur  $\varepsilon$  égal à la différence entre la consigne  $e$  et la réponse  $s$ . Ce signal d'erreur va par l'intermédiaire d'un bloc de commande, noté  $R$ , permettre d'exciter le système  $L$ .

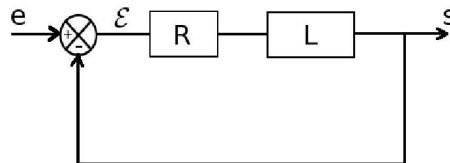


FIG. 3.2 – Système bouclé à rétroaction à gain unitaire.

Ce bloc de commande  $R$  peut lui aussi être représenté par une fonction de transfert. Il permet de réinjecter le signal d'erreur dans le système  $L$  suivant une loi définie par le concepteur.

On remarque que les ordres envoyés à chaque instant, en sortie du bloc de commande  $R$ , dépendent à la fois du comportement souhaité, par la consigne  $e$ , mais aussi de leur effet sur le comportement effectif du système  $L$ . Cette stratégie est qualifiée de commande en boucle fermée. L'interconnexion d'un procédé -ici le bloc  $L$ - avec sa commande en boucle fermée porte le nom de système asservi ou asservissement.

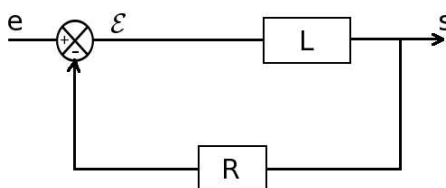
On constate que tant que le signal d'erreur  $\varepsilon$  est différent de zéro, signifiant que la sortie  $s$  n'est pas égale à la consigne  $e$ , le bloc de commande agit sur  $L$  via un signal  $R\varepsilon$ . Le schéma fonctionnel de la figure 3.2 montre que la rétroaction, ici à gain unitaire, permet si besoin de générer le signal  $R\varepsilon$  afin que la consigne  $e$  puisse être atteinte malgré la présence d'une éventuelle perturbation.

En formalisant le fonctionnement d'un tel asservissement, on note que  $s = RL\varepsilon$  avec  $\varepsilon = e - s$ . Ainsi, on obtient la fonction de transfert en boucle fermée du système asservi :

$$\begin{aligned} \frac{s}{e} &= \frac{RL}{1 + RL} \\ &= \frac{1}{1 + \frac{1}{RL}} \end{aligned} \quad (3.1)$$

On voit que si l'on choisit  $R \gg \frac{1}{L}$  alors  $s = e$ . Grâce à la rétroaction, via le bloc de commande  $R$ , la convergence de la réponse  $s$  vers la consigne  $e$  devient robuste par rapport à l'état du système  $L$ .

Dans la littérature, on peut trouver aussi ce type de schéma fonctionnel où la rétroaction n'est plus à gain unitaire :

FIG. 3.3 – Système bouclé à rétroaction avec un gain  $R$ .

où :

$$\frac{s}{e} = \frac{1}{\frac{1}{L} + R} \quad (3.2)$$

On voit que si l'on choisit  $R \gg \frac{1}{L}$  alors  $s = e/R$ . Les propriétés du système dépendent seulement du bloc de commande  $R$  défini par le concepteur.

En utilisant l'équation 3.1, on remarque que le schéma fonctionnel 3.2 est équivalent à :

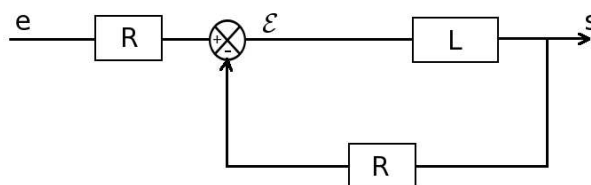


FIG. 3.4 – Système bouclé équivalent au schéma fonctionnel 3.2.

L'intérêt de générer des systèmes équivalents par réarrangement des blocs, comme on le voit entre les schémas 3.2 et 3.4, est d'obtenir des systèmes bouclés à gain unitaire.

Une fois que la nécessité de la boucle fermée est acquise, plusieurs problèmes potentiels et plusieurs exigences peuvent être recensés.

Qu'il s'agisse de l'analyse d'un schéma tel que celui de la figure 3.2 ou de la conception du bloc de commande  $R$ , il est nécessaire d'étudier la stabilité du système asservi. En effet, un bloc de commande correctement conçu permettra à la variable contrôlée  $s$  d'atteindre une valeur constante lorsqu'une valeur de consigne constante  $e$  est souhaitée. Un tel comportement du système asservi doit cependant être vu comme un cas extrêmement favorable. Il est très facile d'imaginer que le bloc de commande soit tel que pour cette même valeur de consigne,  $s$  oscille indéfiniment sans se stabiliser vers une valeur constante, voire même diverge !

Sauf cas exceptionnels, ces derniers comportements sont proscrits et leur occurrence doit naturellement être étudiée en premier lieu. Nous appliquerons au prochain paragraphe, sur un exemple pratique, des méthodes pour discerner les zones de fonctionnement stable et instable du système asservi.

Si l'asservissement est stable, il convient ensuite de caractériser ses performances. Bien sûr, on attend de lui qu'il soit rapide, c'est à dire que  $s$  tende vers sa valeur définitive

**Jérôme Polesel Maris**

en un temps de réponse suffisamment faible. Cependant, ce temps de réponse ne pourra pas être rabaissé indéfiniment, sous peine de saturer les actionneurs du système réel ou de trop les brutaliser par l'envoi d'un signal de commande admettant des valeurs trop élevées ou des variations trop brusques. Nous verrons au prochain paragraphe, que l'on pourra jouer sur l'amortissement du système asservi, c'est à dire sur les oscillations que  $s$  présente pendant la phase de convergence vers sa valeur finale.

Toujours dans l'hypothèse de stabilité, des problèmes de précision doivent également être considérés. Ainsi si la valeur constante  $s(t \rightarrow \infty)$  vers laquelle converge  $s$  est égale à la consigne  $e$ , l'asservissement sera dit posséder une erreur de position (ou erreur statique) nulle. Sinon, nous définirons l'erreur de position telle que :  $\varepsilon_0 = e - s(t \rightarrow \infty)$ . Dans le prochain paragraphe, nous verrons comment modifier le bloc de commande  $R$  pour annuler l'erreur de position  $\varepsilon_0$ .

### 3.1.2 Un exemple pédagogique : le circuit RLC

Nous allons approfondir les notions introduites précédemment à travers un exemple pratique. Un circuit électrique passe-bas du second ordre RLC composé d'une résistance  $R$ , d'une bobine  $L$ , d'une capacité  $C$  et d'un gain d'entrée  $A$  (qui pourra dépendre du temps) composera notre système  $L$  schématisé sur la figure 3.5.

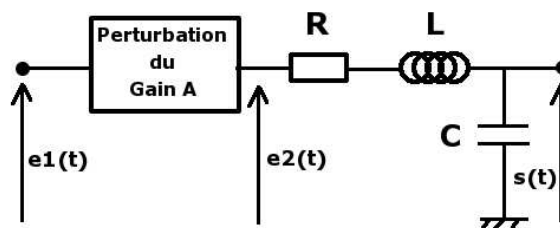


FIG. 3.5 – Le système  $L$  : un circuit RLC avec un gain d'entrée  $A$ .

Nous souhaitons obtenir une tension de sortie  $s(t)$  égale à la tension d'entrée  $e_1(t) = e(t)$ . Malheureusement les composants actifs (non représentés sur la figure 3.5) de l'étage d'entrée sont très sensibles à la température. La chaleur qu'ils dégagent provoque une dérive de leur caractéristique électrique provoquant une évolution du gain  $A$  d'entrée comme le montre la figure 3.6.

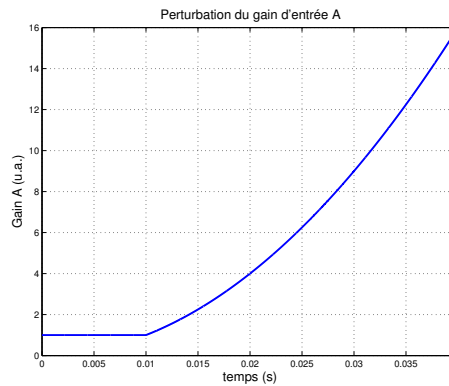


FIG. 3.6 – Evolution temporelle du gain d'entrée A, du circuit de la figure 3.5, due à un échauffement des composants de l'étage d'entrée.

Nous allons donc faire une étude pour rendre insensible ce système à cette perturbation grâce à un asservissement.

### Les équations du circuit

Comme on le voit sur la figure 3.5, la tension de sortie  $s(t)$  est prélevée sur le condensateur C. On exprime donc l'évolution temporelle de  $s(t)$  en fonction de la tension intermédiaire d'entrée  $e_2(t) = A(t).e_1(t)$  par l'équation :

$$LC\ddot{s}(t) + RC\dot{s}(t) + s(t) = A(t).e_1(t) \quad (3.3)$$

Cette équation admet des solutions analytiques simples pour des tensions d'entrée  $e_1(t)$  simples. Par exemple, pour un échelon en entrée  $e_1(t) = E_1$  en considérant le gain A constant on obtient :

$$s(t) = E_1 A \left[ 1 - e^{-\frac{\omega_0 t}{2Q}} \left[ \cos \left( \omega_0 t \sqrt{1 - \frac{1}{4Q^2}} \right) + \frac{1}{\sqrt{4Q^2 - 1}} \sin \left( \omega_0 t \sqrt{1 - \frac{1}{4Q^2}} \right) \right] \right] \quad (3.4)$$

avec la pulsation de résonance  $\omega_0 = \frac{1}{\sqrt{LC}}$  et le facteur de qualité  $Q = \frac{L}{R} \omega_0 > \frac{1}{2}$ .

De façon générale, si l'équation différentielle d'un système linéaire peut être mise sous la forme :

$$B_n \frac{d^n s(t)}{dt^n} + \dots + B_1 \frac{ds(t)}{dt} + B_0 s(t) = e(t) \quad (3.5)$$

On montre [GPD56] que pour, respectivement,

$$\begin{aligned} e(t) &= 1 \\ e(t) &= t \\ e(t) &= A \sin(\omega t + \Phi) \end{aligned}$$



on obtient les réponses du système :

$$\begin{aligned} s(t) &= C_1 + g_1(t) \\ s(t) &= C_2 t + g_2(t) \\ s(t) &= C_3 \sin(\omega t + \Phi_3) + g_3(t) \end{aligned}$$

c'est à dire la somme :

- d'une fonction de même forme que l'entrée (*l'intégrale particulière*) : c'est le *régime permanent*.
- d'une autre fonction (*l'intégrale générale* de l'équation sans second membre), somme d'exponentielles à exposants complexes qui dépendent des racines de l'équation caractéristique

$$B_n p^n + \dots + B_1 p + B_0 = 0 \quad (3.6)$$

c'est le *régime transitoire*.

Or les systèmes asservis travaillent pratiquement toujours en régime transitoire à cause du caractère essentiellement aléatoire des entrées du système [Eti03, GPD56]. Ce sont les qualités du régime transitoire de l'appareil qui lui permettent de suivre les variations fines du phénomène à analyser pour l'asservissement.

Ce régime transitoire peut théoriquement se calculer en utilisant l'équation 3.5. Dans le cas de systèmes linéaires dont le second membre est précisément la fonction d'entrée, le régime transitoire est représenté par *l'intégrale générale* de l'équation sans second membre qui satisfait aux conditions initiales du problème.

Mais l'application pratique de cette méthode est limitée par les inconvénients suivants :

- elle conduit, dès que la complexité des systèmes augmente, à des calculs longs et vite inextricables ;
- elle exige que l'on connaisse l'équation différentielle du système auquel on l'applique ; or, bien souvent, on a affaire à des systèmes physiques dont on désire connaître le régime transitoire, mais dont l'équation n'est pas calculable. Nous verrons par la suite, que cela est le cas pour l'étude Automatique du Microscope à Force Atomique dynamique.

Nous allons donc utiliser une méthode qui ne présente pas ces deux inconvénients et dont l'outil de base est la *Transformée de Laplace* [ME89, ME90].

On définit la Transformée de Laplace  $F(p)$  de la fonction  $f(t)$  [PM98, AS70] :

$$F(p) = \int_0^{\infty} f(t) e^{-pt} dt = \mathcal{L}\{f(t)\} \quad (3.7)$$

On définit la Transformée de Fourier  $F(j\omega)$  de la fonction  $f(t)$  [PM98] :

$$F(j\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) e^{-j\omega t} dt = \mathcal{F}\{f(t)\} \quad (3.8)$$

avec  $p = j\omega$ .

Ces deux transformées permettent de transformer un produit de convolution, dans l'espace temporel, en un produit simple dans l'espace des fréquences. On gagne ainsi en commodité de calcul en s'aidant de tables (par exemple dans la référence [AS70]). La

transformée inverse du résultat du produit permet de trouver la solution dans l'espace temporel.

Ainsi la Transformée de Laplace de l'équation 3.3 pour le circuit RLC, nous donne comme fonction de transfert :

$$L(p) = \frac{S(p)}{E(p)} = \frac{A}{\frac{p^2}{\omega_0^2} + \frac{p}{Q\omega_0} + 1} \quad (3.9)$$

avec la variable de Laplace <sup>1</sup>  $p$ ,  $\mathcal{L}\{\dot{f}(t)\} = pF(p)$  et  $\mathcal{L}\{e_1(t)\} = E(p)$ ,  $\mathcal{L}\{s(t)\} = S(p)$  et  $\mathcal{L}\{A(t)\} = A$  constant pour le moment.

On propose alors le schéma de blocs 3.7.

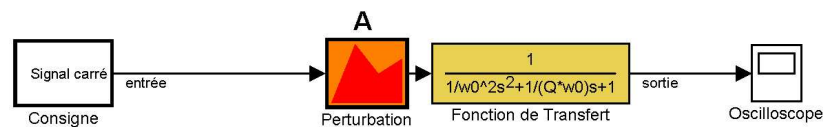


FIG. 3.7 – Schéma de blocs du circuit RLC en boucle ouverte. Sur ce schéma SIMULINK la pulsation  $\omega_0$  est notée  $w_0$ .

On y identifie la fonction de transfert  $L(p)$ , avec la notation Anglo-Saxonne pour la variable de Laplace (voir note de bas de page 1), précédée par le gain d'entrée  $A$  sensible aux perturbations thermiques. Dans un premier temps, nous fixerons le gain  $A$  constant dans le temps.

Afin d'analyser la réponse indicielle d'un tel système, on utilise un signal carré à basse fréquence  $f_{GBF}$  comme signal de commande. Ce signal carré périodise un échelon unique donnant la réponse indicielle. Au cours de cette étude, on utilisera les paramètres suivants :  $L=235$  mH,  $R=100$  k $\Omega$ ,  $C=10$  nF,  $f_{GBF}=50$  Hz et  $A=0.5$ .

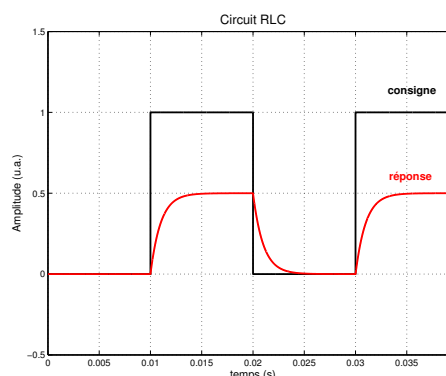


FIG. 3.8 – Commande (en trait plein noir) et réponse (en trait plein rouge) du système  $L$  en boucle ouverte.

<sup>1</sup>En France, la variable de Laplace se note  $p$ . Dans les pays Anglo-Saxons, on la note  $s$ . Au cours de ce mémoire, on trouvera des schémas fonctionnels produits sous le logiciel Simulink<sup>TM</sup>(MATHWORKS) avec la variable de Laplace notée  $s$ .

On observe sur la figure 3.8 que la condition d'égalité, voulue par le concepteur du système, entre le signal d'entrée  $e$  et de sortie  $s$  n'est pas respectée. Nous allons donc boucler ce système au moyen d'un retour à gain unitaire en suivant l'équation 3.1.

### Bloc de commande

La rétroaction à gain unitaire permet grâce au comparateur d'obtenir un signal d'erreur  $\varepsilon$  égal à la différence entre le signal carré de consigne  $e$  et la réponse  $s$  du système. Afin de faire tendre ce signal d'erreur  $\varepsilon$  vers zéro, nous allons utiliser un gain Proportionnel dans le bloc de commande  $R$  qui va amplifier via un gain constant  $K_P$  le signal d'erreur pour commander le système  $L$ . Donc notre loi de commande peut se formaliser sous la forme  $R\varepsilon = K_P\varepsilon$  comme le montre la figure 3.9.

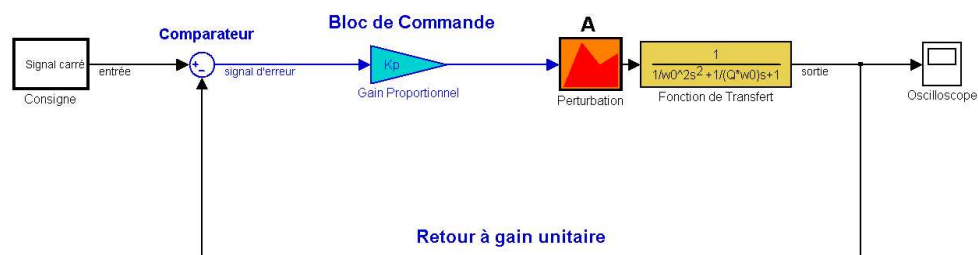


FIG. 3.9 – Schéma de blocs du circuit RLC en boucle fermée avec un gain Proportionnel.

On obtient ainsi la fonction de transfert du système bouclé, en utilisant 3.1 et 3.9 :

$$\begin{aligned} \frac{s}{e} &= \frac{RL}{1 + RL} \\ &= \frac{K_P A}{\frac{p^2}{\omega_0^2} + \frac{p}{Q\omega_0} + 1 + K_P A} \end{aligned} \quad (3.10)$$

Les réponses indicielles du système boucle ouverte et boucle fermée avec un bloc de commande  $R = K_P$  ont été tracées sur la figure 3.10.

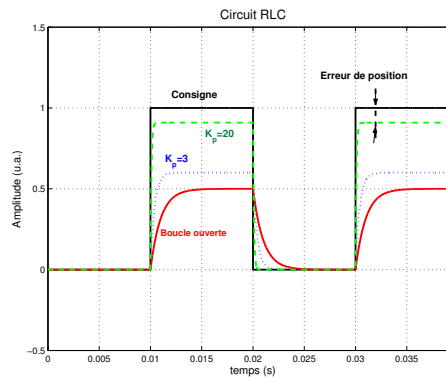


FIG. 3.10 – Réponses indicielles du système en boucle ouverte (trait plein rouge) et en boucle fermée avec deux valeurs différentes pour le gain  $K_P$  (trait pointillé bleu et trait ligne vert).

L'effet du gain proportionnel est double : plus  $K_P$  est élevé plus l'erreur de position entre la réponse et la consigne diminue et plus le temps de réponse du système diminue. Avec les valeurs prises à la page 39 pour la cellule RLC, nous sommes dans le cas où  $Q \ll 1$ . On montre alors que la fonction de transfert 3.10 devient un système du premier ordre :

$$\frac{s}{e} \cong \frac{K_P A}{\frac{p}{Q\omega_0} + 1 + K_P A} \quad (3.11)$$

avec la réponse indicielle associée en prenant  $e = \mathcal{L}\{E_1 U(t)\} = \frac{E_1}{p}$  ( $U(t)$  est la fonction de Heaviside) :

$$s(t) = E_1 \frac{K_P A}{1 + K_P A} \left( 1 - e^{-\omega_0 (1 + K_P A) Q t} \right) \quad (3.12)$$

où on voit clairement dans le préfacteur le rôle du gain  $K_p$  sur la réduction de l'erreur de position en régime permanent et son rôle dans la réduction du temps de réponse dans le terme exponentiel en régime transitoire. Aussi petite soit elle, l'erreur de position sera toujours présente dans un tel système. De plus, dans un système réel, on ne pourra pas augmenter indéfiniment ce gain Proportionnel sans saturer les amplificateurs du bloc de commande. C'est pourquoi, nous devons améliorer notre loi de commande dans le bloc  $R$  afin d'annuler cette erreur de position sans saturer le système.

Intuitivement, on remarque que plus la réponse  $s$  du système converge vers la consigne de fonctionnement, plus le signal d'erreur  $\varepsilon$  sera proche de zéro et moins la commande  $R\varepsilon$  aura d'effet sur le système  $L$  pour qu'il converge vers la consigne. Pour échapper à ce dilemme, on introduit un intégrateur dans le bloc de commande avec un gain  $K_I$ . Cet intégrateur va sommer le signal d'erreur  $\varepsilon$  jusqu'à ce que cette quantité ait une action notable sur le système  $L$  :

$$\text{Action integrale} = K_I \int_0^{\infty} \varepsilon(t) dt$$

L'avantage d'un tel procédé est de permettre au système asservi d'atteindre et même de franchir la consigne afin d'annuler l'erreur de position même avec un signal d'erreur

proche de zéro. Nous avons donc une nouvelle loi de commande qui peut se formaliser, en notation de Laplace, sous la forme  $R\varepsilon = \left(K_p + \frac{K_I}{p}\right) \varepsilon$  comme on le voit sur la figure 3.11.

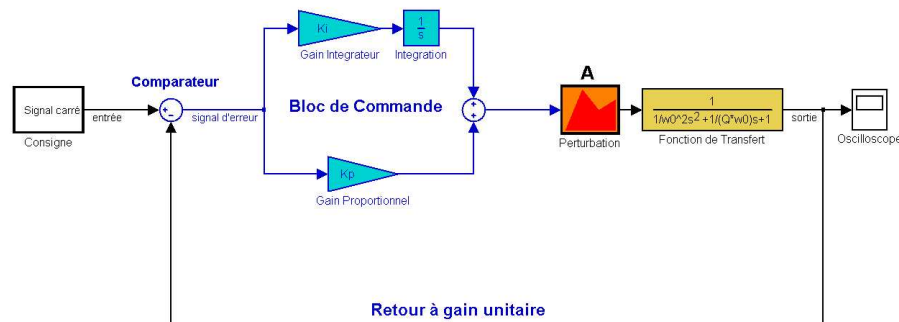


FIG. 3.11 – Schéma de blocs du circuit RLC en boucle fermée avec un gain Proportionnel et Intégrateur.

On obtient ainsi la fonction de transfert du système bouclé, en utilisant 3.1 et 3.9 :

$$\begin{aligned} \frac{s}{e} &= \frac{RL}{1 + RL} \\ &= \frac{A(pK_P + K_I)}{\frac{p^3}{\omega_0^2} + \frac{p^2}{Q\omega_0} + p(1 + K_P A) + AK_I} \end{aligned} \quad (3.13)$$

Les réponses indicielles du système boucle ouverte et boucle fermée avec un bloc de commande  $R = \left(K_p + \frac{K_I}{p}\right)$  ont été tracées sur la figure 3.12.

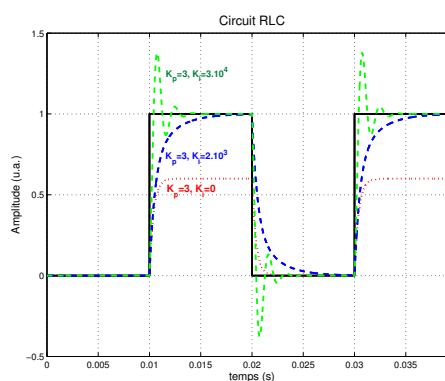


FIG. 3.12 – Réponses indicielles du système boucle fermée avec trois valeurs différentes pour le gain  $K_I$  en gardant constant le gain  $K_P = 3$ .

L'intégrateur permet ainsi d'annuler l'erreur de position du système en régime permanent. Mais on remarque sur la figure 3.12 qu'un gain Intégrateur  $K_I$  trop élevé entraîne

un comportement oscillatoire du signal de réponse en régime transitoire. Si on ne garde que le gain Intégrateur en annulant la valeur du gain Proportionnel, on observe d'autant plus ce comportement oscillatoire du système asservi autour de la valeur de consigne sur la figure 3.13.

On note que le gain Proportionnel  $K_P$  a donc un effet bénéfique sur la stabilité du système dans le régime transitoire. **De façon générale, pour garder ce compromis stabilité-précision, la présence simultanée d'un gain Proportionnel et d'un gain Intégrateur est indispensable dans le bloc de commande d'un système asservi.**

Parfois, on rajoute une action Dérivée avec un gain  $K_D$  pour augmenter la marge de stabilité du système bouclé. Le lecteur désireux d'en savoir plus à ce sujet pourra se reporter aux références bibliographiques [ME90, GPD56].

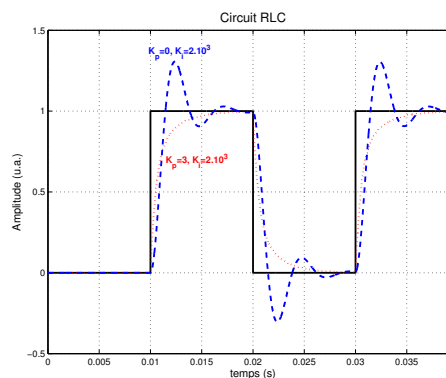


FIG. 3.13 – Réponses indicielles du système bouclé fermé avec un gain  $K_I$  constant.  $K_P$  est non nul sur la courbe rouge pointillée.  $K_P$  est nul sur la courbe bleue en traits.

### Stabilité d'un système asservi

La présence simultanée d'un gain Proportionnel et d'un gain Intégrateur dans le bloc de commande du système bouclé nous amène à la question du choix des valeurs de ces gains pour obtenir un système précis et véloce mais, plus que tout, stable. La littérature en Automatique sur les algorithmes et méthodes de calcul des gains  $K_P$  et  $K_I$  pour de nombreux systèmes asservis est très importante. On pourra par exemple se reporter aux références [WS00, SDB01], où les auteurs expliquent comment optimiser au mieux un bloc de commande Proportionnel-Intégrateur tout en gardant le système stable.

Dans ce paragraphe, nous allons utiliser deux méthodes pour analyser la stabilité de notre système bouclé sans rentrer dans les détails mathématiques. Pour en savoir plus, nous guiderons le lecteur vers les ouvrages correspondants.

Si nous revenons à la page 38, nous avons vu qu'analyser la stabilité d'un système revient à analyser son régime transitoire c'est à dire *l'intégrale générale* de l'équation 3.5 du système linéaire sans second membre. Les racines de l'équation caractéristique 3.6 donnent les exposants des exponentielles contenues dans la solution du régime transitoire.

On peut étendre cet énoncé aux systèmes bouclés présentant une fonction de transfert, en notation de Laplace :

$$\begin{aligned} \frac{s}{e} &= \frac{RL}{1+RL} \\ &= \frac{b_n p^n + \dots + b_1 p + b_0}{a_n p^n + \dots + a_1 p + a_0} = \frac{N(p)}{D(p)} \end{aligned} \quad (3.14)$$

Les  $n$  racines  $P_n$  du dénominateurs  $D(p)$  correspondent aux pôles de la sortie  $s$  du système lorsque l'entrée est une impulsion  $e = E$ . Chaque pôle  $P_n$  conduit à une solution originale de la forme :  $A_n e^{P_n t}$ . Ainsi si la partie réelle de tous les zéros  $P_n$  du dénominateur  $D(p)$  est négative, la solution générale du régime transitoire converge : le système est stable.

**Critère de Routh** Nous choisirons le critère de Routh pour étudier les pôles de  $\frac{s}{e}$ . Ce critère est basé sur l'étude mathématique des polynômes. On montre [Gui49, Gan66] que, pour une équation du  $n$ -ième degré :  $a_n p^n + \dots + a_1 p + a_0 = 0$  la partie réelle des racines est négative, si et seulement si, les conditions suivantes sont satisfaites :

- aucun des coefficients  $a_k$  ne doit être nul ;
- tous les coefficients  $a_k$  doivent être de même signe ;
- on construit le tableau suivant :

$p^n$	$a_n$	$a_{n-2}$	$a_{n-4}$	...
$p^{n-1}$	$a_{n-1}$	$a_{n-3}$	$a_{n-5}$	...
$p^{n-2}$	$b_1$	$b_2$	$b_3$	...
.	$c_1$	$c_2$	$c_3$	...
.	...	...	...	...

TAB. 3.1 – Tableau de Routh.

$$\text{avec : } \begin{aligned} b_1 &= \frac{a_{n-1} a_{n-2} - a_n a_{n-3}}{a_{n-1}}, & b_2 &= \frac{a_{n-1} a_{n-4} - a_n a_{n-5}}{a_{n-1}}, & \text{etc...} \\ c_1 &= \frac{b_1 a_{n-3} - a_{n-1} b_2}{b_1}, & c_2 &= \frac{b_1 a_{n-5} - a_{n-1} b_3}{b_1}, & \text{etc ...} \end{aligned}$$

le système est stable si tous les coefficients de la première colonne du tableau 3.1 sont de même signe.

Revenons à la fonction de transfert 3.13 de notre système asservi. Sous une impulsion  $e = 1$  comme consigne, on construit le tableau de Routh à partir du dénominateur de la transmittance  $s$  :

$p^3$	$\frac{1}{\omega_0^2}$	$1 + K_P A$	0
$p^2$	$\frac{1}{Q \omega_0}$	$A K_I$	0
$p^1$	$1 + A K_P - A K_I \frac{Q}{\omega_0}$	0	
$p^0$	$A K_I$	0	

TAB. 3.2 – Tableau de Routh du système asservi.

Pour satisfaire à la condition que les coefficients de la première colonne du tableau de Routh soient de même signe, on obtient les conditions de stabilité suivantes :

$$A > 0 \quad \text{et} \\ 0 < K_I < \frac{\omega_0}{Q} \left[ \frac{1}{A} + K_P \right] \quad (3.15)$$

Ce que nous vérifions numériquement (figures 3.14 et 3.15) avec le diagramme fonctionnel 3.11 avec les paramètres RLC de la page 39.

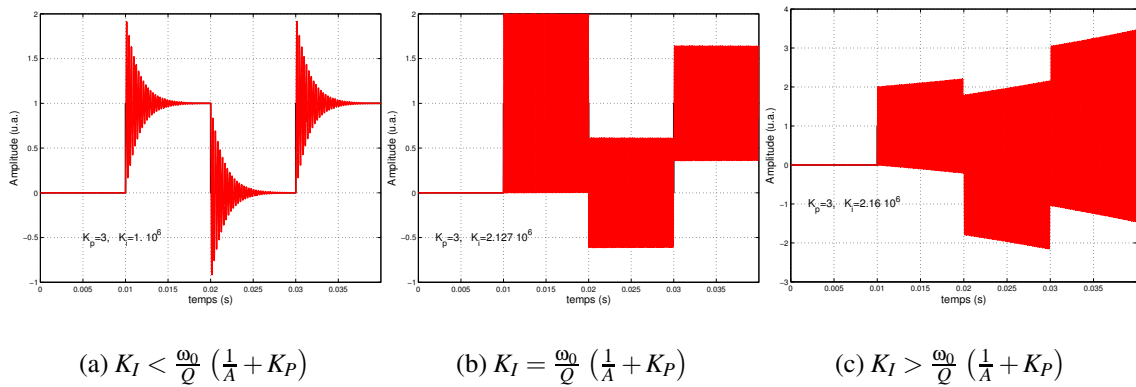


FIG. 3.14 – Vérification numérique de la relation 3.15 pour  $K_P = 3$ .

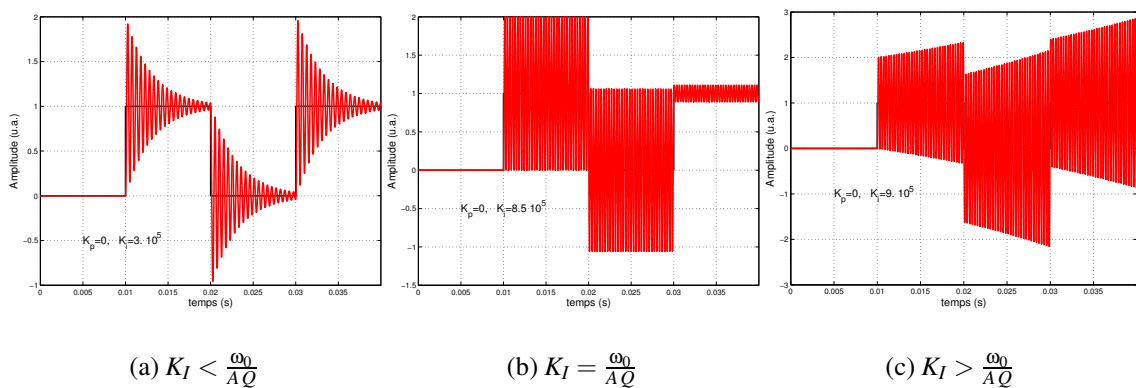


FIG. 3.15 – Vérification numérique de la relation 3.15 pour  $K_P$  nul.

En fait l'application pratique du critère de Routh est assez limitée.

En premier lieu, ce critère exige que l'on connaisse l'équation caractéristique du système dont on veut étudier la stabilité : il ne saurait donc s'appliquer lorsqu'au moins un élément du système est défini par des résultats expérimentaux (pratiquement : par son lieu de transfert).



En second lieu, lorsqu'un système dépend de plusieurs paramètres, les conditions de stabilité de Routh conduisent pour les valeurs admissibles de ces paramètres à des expressions compliquées et vite inextricables pour un système de complexité moyenne, en particulier pour les systèmes à retour.

Nous allons donc voir une méthode applicable spécialement aux systèmes asservis qui ne présente pas les deux inconvénients précédents.

**Critère de Nyquist** L'analyse de Nyquist, méthode ayant trait à la réponse fréquentielle, consiste essentiellement en un procédé graphique de détermination de la stabilité absolue et relative des systèmes de commande en boucle fermée. On obtient directement des renseignements sur la stabilité à partir du graphe de la fonction harmonique  $R(j\omega)L(j\omega)$ , une fois le système mis sous sa forme canonique. La méthode de Nyquist s'applique à des systèmes à retard de parcours sans qu'on ait besoin de faire des approximations, et par conséquent donne des résultats exacts sur la stabilité aussi bien absolue que relative.

Les méthodes de Nyquist ont également leur utilité pour obtenir des renseignements sur les fonctions de transfert des constituants ou des systèmes à partir des données expérimentales concernant la réponse fréquentielle. On peut tracer la courbe en polaires à partir des mesures faites en régime permanent sinusoïdal sur les constituants réalisant la fonction de transfert en boucle ouverte. Cette possibilité est très utile dans la détermination des caractéristiques de la stabilité du système quand on ne dispose pas des fonctions de transfert des constituants de boucle sous forme analytique, ou quand les systèmes physiques ont à être essayés et mesurés expérimentalement.

Sur la figure 3.16, on voit un exemple de tracé du lieu de Nyquist d'une fonction sinusoïdale de transfert  $R(j\omega)L(j\omega)$  sur l'axe des Réels en abscisse et l'axe de Imaginaires en ordonnées. Les flèches noires indiquent le sens croissant des fréquences. Pour chaque fréquence, ou pulsation  $\omega$ , on a un couple de valeurs : le module  $|RL|$  (flèche rouge) et l'argument  $Arg\{RL\}$  (angle vert). L'ensemble de ces couples de points forme le lieu de Nyquist. Le lieu de Nyquist en trait plein correspondant aux fréquences positives  $\omega \in [0; +\infty[$  est accessible expérimentalement en étudiant la réponse harmonique de la fonction de transfert  $R(j\omega)L(j\omega)$ . Le lieu de Nyquist en pointillé correspondant aux fréquences négatives  $\omega \in ]-\infty; 0]$  n'a qu'une existence mathématique.

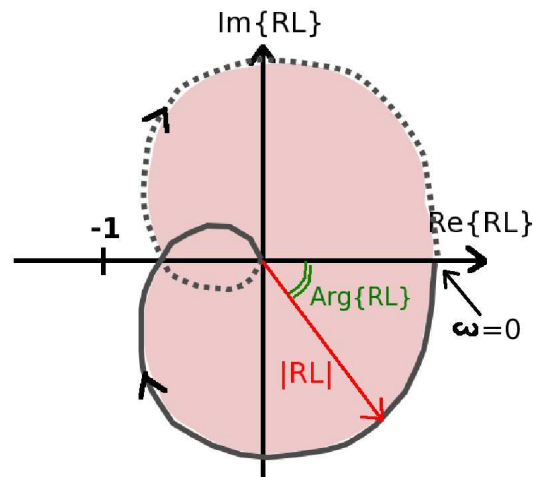


FIG. 3.16 – Exemple de diagramme de Nyquist.

Nous ne serons pas exhaustif en ce qui concerne l'explication mathématique du lieu et critère de Nyquist qui dérivent du théorème de Cauchy ou principe de l'Argument. Pour avoir la démonstration mathématique de ce critère, le lecteur pourra consulter l'ouvrage [Eti03] et consulter l'ouvrage [GDP92] pour de nombreuses applications pratiques du lieu de Nyquist. Pour notre analyse prochaine du système AFM dynamique, nous resterons dans le cadre du critère de Nyquist simplifié dit "critère du revers".

Un système de commande en boucle fermée est absolument stable, si les racines de son équation caractéristique ont leur partie réelle négative comme nous l'avons vu à la page 43.

**En considérant le dénominateur  $1 + RL$  des relations 3.1 et 3.2, on montre [Eti03, SSW74] que si le lieu du système boucle ouverte  $RL$  stable, c'est à dire ne possédant aucun pôle instable, laisse le point critique  $-1 + j0$  à sa gauche lors d'un parcours dans le sens croissant des  $\omega$ , alors les racines du dénominateur  $1 + RL$  ont une partie réelle strictement négative, le système en boucle fermée est donc stable.** De façon simple, tous les points situés à droite du lieu sont dits intérieurs au contour correspondant à l'aire grisée de la figure 3.16. Si le point critique  $-1 + j0$  est situé à l'intérieur de ce domaine, le système est instable. Si le point critique  $-1 + j0$  est situé sur le contour de ce domaine, le système est juste oscillant. Si le point critique  $-1 + j0$  est situé à l'extérieur de ce domaine, le système est stable.

Appliquons ce critère à notre système RLC asservi en traçant le lieu de Nyquist du gain harmonique en boucle ouverte  $RL$  avec la variable de Laplace  $p = j\omega$ . Nous avons tracé quatre lieux de Nyquist correspondant à quatre valeurs du gain Intégrateur  $K_I$  pour  $\omega \in [0, +\infty[$  avec un gain Proportionnel constant. La figure 3.17 représente un agrandissement d'une partie de ce graphe autour du point critique  $-1 + j0$ .

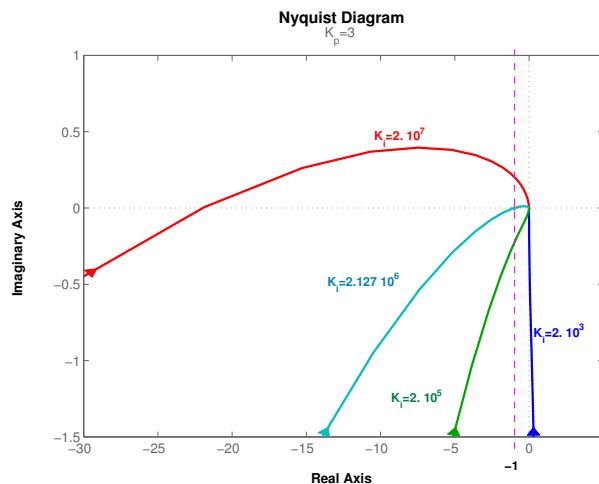


FIG. 3.17 – Diagramme de Nyquist de la fonction de transfert harmonique  $R(j\omega)L(j\omega)$  du système de la figure 3.11.  $K_P$  est constant et égal à 3. Les quatre lieux correspondent à quatre valeurs du gain Intégrateur  $K_I$ .

La stabilité du système asservi dans ces différentes conditions saute aux yeux. En nous basant sur le point critique  $-1 + j0$  et sur le sens des lieux, on voit sur cette figure 3.17 que la courbe rouge avec  $K_I = 2 \cdot 10^7$  correspond à un système instable. Ce que nous avons obtenu numériquement sur la figure 3.14(c). La courbe bleu cyan avec  $K_I = 2.127 \cdot 10^6$  correspond à un système juste oscillant. Ce que nous avons obtenu numériquement sur la figure 3.14(b). La courbe verte avec  $K_I = 2 \cdot 10^5$  correspond à un système stable. Ce que nous avons obtenu numériquement sur la figure 3.14(a). La courbe bleu foncé avec  $K_I = 2 \cdot 10^3$  correspond aussi à un système stable mais avec une *marge de phase* supérieure. Cela signifie que si l'on trace le cercle de module  $|RL| = 1$ , avec l'origine comme centre, le point d'intersection de ce cercle unité avec la courbe verte ( $K_I = 2 \cdot 10^5$ ) donne un argument  $\text{Arg}\{RL\}$  plus grand que l'argument  $\text{Arg}\{RL\}$  obtenu avec la courbe bleu foncée ( $K_I = 2 \cdot 10^3$ ) interceptant le cercle unité. De façon simple, cela signifie que le régime transitoire du système asservi avec un gain  $K_I = 2 \cdot 10^3$  sera “moins” oscillant et amplifié que le régime transitoire du système asservi avec un gain  $K_I = 2 \cdot 10^5$ .

### Le système asservi et optimisé

Nous avons vu pourquoi et comment asservir un système pour qu'il atteigne une consigne voulue par l'utilisateur. Cela nous a permis d'introduire la notion de bloc de commande, de stabilité et d'optimisation. La figure 3.18 nous montre l'effet final de la régulation sur notre système RLC de départ. Ici, le gain  $A$  d'entrée de l'étage n'est plus constant mais dérive dans le temps comme nous l'avons vu à la figure 3.6 : le système subit une perturbation. Cette perturbation débute à  $t = 10\text{ms}$ . Après un léger transitoire, le système asservi joue pleinement son rôle et maintient la réponse du système à la valeur de consigne. Or, cette interaction se traduit généralement par un terme non linéaire dans l'équation différentielle du système, ce qui va nous obliger à introduire des méthodes d'Automatique adaptées.

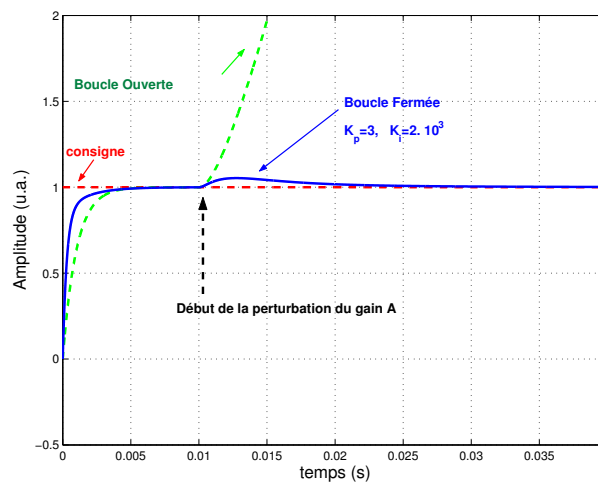


FIG. 3.18 – Comportement du système face à une perturbation du gain  $A$  (Cf. figure 3.6) d'entrée du circuit RLC. La consigne désirée est en traits rouges. Le système en boucle ouverte est en traits verts. Le système asservi avec le bloc de commande  $R = \left( K_p + \frac{K_I}{p} \right)$  est en trait plein bleu.

Nous retrouverons toutes ces notions sur l'asservissement et la stabilité dans le fonctionnement de la machine AFM. Mais il nous reste à étudier comment nous pouvons traiter un processus physique, à savoir l'interaction entre la sonde et la surface, du point de vue automatique.

## 3.2 Automatique non linéaire

Dans cette partie, nous allons appliquer les outils de l'automatique au système AFM dynamique soumis à une interaction vue comme un bloc non linéaire.

Pourquoi vouloir utiliser l'Automatique comme moyen d'investigation du système ?

Premièrement, la machine AFM dynamique régulée a été pensée et optimisée grâce aux méthodes de l'Automatique pour trouver les meilleurs compromis stabilité-précision [GDP92,dL00,SSW74] de ses boucles d'asservissements. Il semble donc naturel de revenir à l'Automatique comme moyen d'analyse. De plus, la notion de diagramme fonctionnel (laplacien ou harmonique) permet d'avoir une lecture plus facile du fonctionnement de la machine. L'encapsulation d'une fonction dans des blocs permet de suivre facilement le parcours de l'information (et du bruit !) de bloc en bloc. La difficulté provient du fait que l'outil transformée de Laplace n'est applicable, en première approximation, qu'à des systèmes linéaires i.e. représentables par des équations différentielles linéaires à coefficients constants.

En Automatique, l'hypothèse de linéarité équivaut au principe de superposition (propriétés d'additivité et de proportionnalité des effets aux causes). L'utilisation et la validité des techniques utilisées (Transformée de Laplace, transformée de Fourier) repose sur cette hypothèse. Or, certains blocs fonctionnels de l'AFM sont non-linéaires (comme le contrôle automatique du gain, l'interaction de surface). Si le principe de superposition n'est plus applicable, existe-t-il des issues pour pouvoir quand même appliquer ces outils très visuels et efficaces de l'Automatique ?

**Jérôme Polesel Maris**

La réponse est oui. En effet, il existe des méthodes d'attaque [GDP88, GPD56, Mir90, Coa57] de classes particulières de problèmes non linéaires bien qu'il n'y ait pas de théorie d'ensemble des systèmes non linéaires. Parmi ces stratégies d'investigation, la méthode très élégante de *l'approximation de l'équivalent harmonique* [GDP88] a été choisie pour sa simplicité et sa robustesse dans le cas de l'AFM dynamique.

### 3.2.1 Conventions et méthode

#### Conventions

L'étude automatique du système va nous confronter à deux formes de fonctions ou blocs utilisés parfois dans un même schéma fonctionnel :

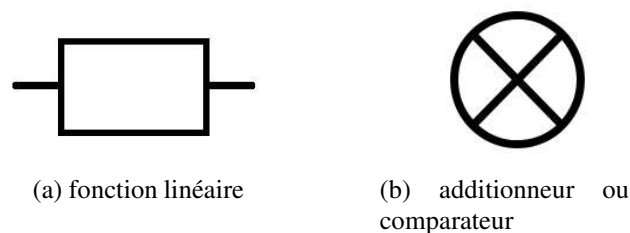


FIG. 3.19 – Les blocs linéaires.

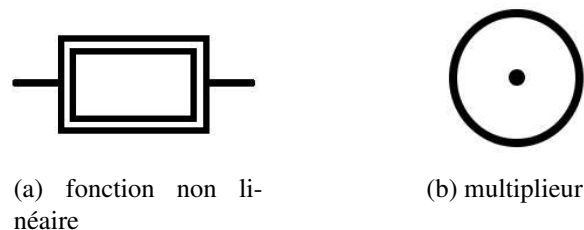
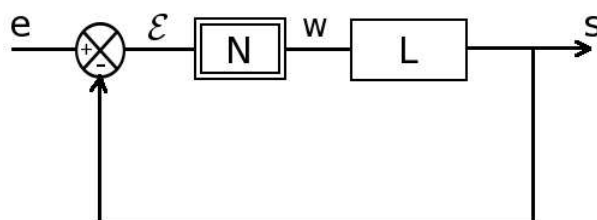


FIG. 3.20 – Les blocs non linéaires.

#### Méthode de l'approximation de l'équivalent harmonique

Cette méthode et son cadre d'utilisation ont été définies après la seconde guerre mondiale, indépendamment, par des chercheurs français [Dut50], russe [Gol47] et américain [Koc50a, Koc50b].

Pour un système linéaire d'entrée  $e$  et de sortie  $s$ , on définit la fonction de transfert à partir d'essais sinusoïdaux du type  $e(t) = e_0 \sin(\omega t)$  par le rapport d'amplitudes  $\rho = \frac{s_0}{e_0}$  et la phase  $\Phi$  de la réponse  $s(t) = s_0 \sin(\omega t + \Phi)$ . Grâce aux propriétés de linéarité,  $\rho$  et  $\Phi$  sont des fonctions de la fréquence de l'entrée, mais ils ne dépendent pas de son amplitude : ceci permet de définir une fonction de transfert qui est une fonction de  $\omega$  uniquement.

FIG. 3.21 – Système asservi comportant un bloc non linéaire noté  $N$ .

Afin d'étendre ce procédé à un système non linéaire, on est conduit à étudier la sortie pour une entrée harmonique  $\varepsilon(t) = \varepsilon_1 \sin(\omega t)$ . Cette sortie sera en général périodique mais non sinusoïdale. Si par une convention quelconque, on définit une fonction sinusoïdale :

$$w(t) = w_1 \sin(\omega t + \Upsilon) = a_1 \sin(\omega t) + a'_1 \cos(\omega t) \quad (3.16)$$

qu'on déclare (arbitrairement) équivalente à la sortie  $s(t)$ , on peut définir pour le système une "fonction de transfert équivalente" ou "généralisée" avec :

$$\text{Module} = \frac{w_1}{\varepsilon_1} \quad \text{et} \quad \text{Argument} = \Upsilon$$

Comme fonction sinusoïdale équivalente on prend généralement le premier harmonique de  $s(t)$ . La différence avec le cas linéaire est double :

- Il y a un élément arbitraire dans le choix de la sinusoïde équivalente de sortie ;
- La "fonction de transfert équivalente" obtenue dépend non seulement de  $\omega$ , **mais aussi** de l'amplitude d'entrée  $\varepsilon_1$ , puisqu'il n'y a plus de proportionnalité des effets aux causes comme dans le cas linéaire :

$$N(\varepsilon_1, \omega) = \frac{w_1}{\varepsilon_1} e^{j\Upsilon} \quad \text{et} \quad \Upsilon = \Upsilon(\varepsilon_1, \omega) \quad (3.17)$$

$$\text{avec} \quad w_1 e^{j\Upsilon} = a_1 + ja'_1 \quad (3.18)$$

Ainsi, géométriquement, on aura affaire à une famille de lieux de transfert dans le diagramme de Nyquist (Cf. page 46) pour chaque amplitude  $\varepsilon_1$ . La notion de stabilité d'un système peut donc changer en fonction de sa fréquence de fonctionnement mais aussi de l'amplitude du signal entrant dans la fonction de transfert.

Si la "fonction de transfert équivalente" ne dépend que de  $\omega$ , on parlera alors de *système pseudo linéaire* [FPG64, BF63].

Si la "fonction de transfert équivalente" ne dépend que de  $\varepsilon_1$ , on parlera alors de *gain équivalent* [Mir90, GDP88]  $N(\varepsilon_1) = \frac{w_1}{\varepsilon_1} e^{j\Upsilon}$ .

**Justification :** *La validité pratique de cette méthode repose sur le filtrage hautes fréquences que réalise la fonction de transfert  $L$  du système. En particulier, pour un système où le bloc linéaire  $L$  qui suit l'organe non linéaire présente un pic de résonance accusé l'approximation devient légitime. L'organe non linéaire devient dans ce cas "quasi linéaire". La composante continue du signal est, dans ce cas, aussi négligée.*

Malheureusement, il est très difficile de préciser exactement ses conditions de validité et l'erreur commise quand on l'emploie. Selon [GDP88], la comparaison avec l'expérience et le calcul rigoureux (analytiquement ou numériquement, lorsque celui-ci est possible) montre des résultats corrects pour à peu près tous les problèmes de servomécanismes. Toujours dans la référence [GDP88] à la page 58 de la deuxième partie, on trouve un contre exemple où la méthode est mise en défaut dans un problème théorique imaginé dans le seul but de la mettre en défaut ...

Nous nous efforcerons, par la suite, de toujours comparer les résultats obtenus par cette méthode avec des résultats issus de calculs analytiques quand cela est possible ou, à défaut, de simulations numériques.

### 3.2.2 Cas pratique : Interaction sonde-surface

Dans ce paragraphe, nous allons utiliser l'approximation de l'équivalent harmonique pour étudier un oscillateur harmonique amorti en interaction avec un terme non linéaire [LL87]. Le système est schématisé sur la figure 3.22.

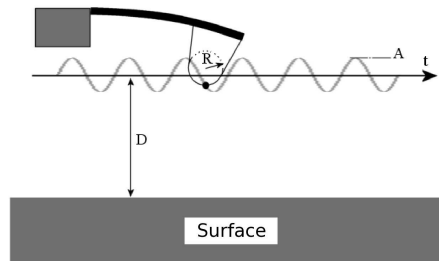


FIG. 3.22 – Cantilever d'AFM en interaction avec une surface.

L'oscillateur est un cantilever d'AFM portant une pointe modélisée par une boule de rayon  $R$ . On définira  $A$  l'amplitude d'oscillation du cantilever en notant sa coordonnée spatiale  $z(t) = A \sin(\omega t)$ ,  $\omega_0$  sa pulsation de résonance libre,  $k_c$  sa constante de raideur,  $Q_c$  son facteur de qualité et  $m = \frac{k_c}{\omega_0^2}$  sa masse effective.

$w(t)$  est la force d'excitation du cantilever.

On notera  $F_{int}[z(t), \dot{z}(t), D(t)]$  la force d'interaction entre la pointe et la surface. C'est cette interaction qui introduira les non linéarités de notre système oscillant. Cette force peut être conservative et/ou dissipative.  $D(t)$  est la distance entre la sonde au repos et la surface.

La relation fondamentale de la dynamique nous donne donc pour ce système :

$$m\ddot{z}(t) = -\frac{m\omega_0}{Q_c}\dot{z}(t) - k_c z(t) + w(t) + F_{int}[z(t), \dot{z}(t), D(t)] \quad (3.19)$$

Notons  $C$  la fonction de transfert de la poutre oscillante obtenue en appliquant la transformée de Laplace à l'équation 3.19 sans le terme d'interaction :

$$C(p) = \frac{Z}{W} = \frac{1}{k_c} \frac{1}{\frac{p^2}{\omega_0^2} + \frac{p}{Q_c \omega_0} + 1} \quad (3.20)$$

Notons  $N$  le terme d'interaction pointe surface. Appliquons donc l'*approximation du premier harmonique* à ce système bouclé schématisé sur la figure 3.23.

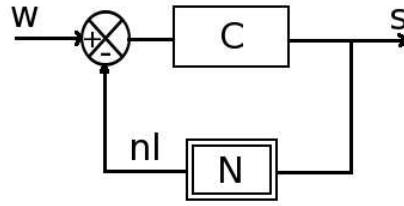


FIG. 3.23 – Schéma fonctionnel du cantilever d'AFM en interaction avec une surface.

Notons  $s(t) = s_1 \sin(\omega t)$  le signal sortant du bloc cantilever  $C$  et  $w(t) = w_0 \sin(\omega t + \varphi)$  le signal d'excitation, ou de commande, du système bouclé cantilever-surface. En considérant la figure 3.23 on aboutit à la fonction harmonique :

$$\frac{S}{W} = \frac{1}{\frac{1}{C(j\omega)} + N(s_1)} \quad (3.21)$$

avec l'amplitude  $w_0$  du signal de forçage sinusoïdal et l'amplitude  $s_1$  du signal de sortie considéré comme sinusoïdal dans l'*approximation du premier harmonique*.

### Cas d'un interaction conservative

Considérons pour cette étude une force pointe-surface de type van der Waals sphère-plan (voir relation 2.17 page 26) que nous noterons :

$$nl(t) = \frac{HR}{6(D + s(t))^2} \quad (3.22)$$

le signe moins de la force attractive étant contenu dans le comparateur illustré sur le schéma 3.23.

$H$  étant la constante de Hamaker effective entre la pointe et la surface,  $R$  le rayon de pointe,  $D$  est supposée constante. Cette relation entre  $s(t)$  et  $nl(t)$  correspond au bloc  $N$  de la figure 3.23.

A partir de cette relation, obtenons le gain équivalent  $N(s_1)$  sachant que  $nl(t) = a_1 \sin(\omega t) + a'_1 \cos(\omega t)$  (voir relation 3.16) dans l'approximation de l'équivalent harmonique. Pour cela, on définit les termes  $a_1$  et  $a'_1$  tels que :

$$a_1 = \frac{\omega}{\pi} \int_0^{\frac{2\pi}{\omega}} nl(t) \sin(\omega t) dt \quad (3.23)$$

et

$$a'_1 = \frac{\omega}{\pi} \int_0^{\frac{2\pi}{\omega}} nl(t) \cos(\omega t) dt \quad (3.24)$$

En remplaçant  $nl(t)$  par la relation 3.22 on trouve :  $a_1 = -\frac{HR}{3} \frac{s_1}{(D^2 - s_1^2)^{\frac{3}{2}}}$  et  $a'_1 = 0$ . En utilisant les équations 3.16 et 3.17, on trouve :

**Jérôme Polesel Maris**



$$N(s_1) = -\frac{HR}{3} \frac{1}{(D^2 - s_1^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (3.25)$$

La fonction de transfert équivalente ne dépend que de  $s_1$ , c'est donc un gain équivalent. Celui-ci est purement réel, ce qui caractérise toute interaction conservative, comme on le montrera à la fin de cette partie (page 59).

Pour trouver la fonction harmonique du cantilever oscillant en interaction avec la surface, utilisons ce dernier résultat avec la fonction de transfert boucle fermée 3.21 en faisant le changement de variable  $p = j\omega$ . On obtient :

$$\frac{s_1}{w_0}(j\omega) = \frac{1}{k_c} \frac{1}{\left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2}\right) + j \frac{\omega}{Q_c \omega_0} - \frac{HR}{3k_c} \frac{1}{(D^2 - s_1^2)^{\frac{3}{2}}}} \quad (3.26)$$

On remarque sur cette dernière relation la raison du phénomène de non linéarité : la sortie du système dépend de la sortie !

Le module de 3.26 donne :

$$w_0 = s_1 k_c \sqrt{\left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} - \frac{HR}{3k_c} \frac{1}{(D^2 - s_1^2)^{\frac{3}{2}}}\right)^2 + \left(\frac{\omega}{Q_c \omega_0}\right)^2} \quad (3.27)$$

Et l'argument de 3.26 donne :

$$\varphi = -\arctan \left[ \frac{\omega}{Q_c \omega_0} \frac{1}{\left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} - \frac{HR}{3k_c} \frac{1}{(D^2 - s_1^2)^{\frac{3}{2}}}\right)} \right] \quad (3.28)$$

La relation 3.28 a une signification particulière pour le mode AFM dit Non-Contact. Nous verrons en détails le fonctionnement au paragraphe 4.1, mais on peut déjà dire que dans son principe de fonctionnement le bloc de commande, nommé *Contrôle Automatique de Gain* (CAG ou **AGC** en anglais), se charge de maintenir constante l'amplitude d'oscillation  $s_1$  du cantilever. Nous avons déjà expliqué son rôle au cours du chapitre 2 à la page 14. Ainsi le terme d'interaction, pour une distance  $D$  constante, est lui aussi constant dans la relation 3.28. Autrement dit, les courbes de phases obtenues pour différentes distances  $D$  entre le cantilever et la surface ont la même morphologie comme on le voit sur la figure 3.24. Elles ne sont pas déformées de façon singulière mais sont juste translatées vers les basses fréquences à cause du terme d'interaction attractive dépendant seulement de  $D$  dans ce cas. On peut retrouver de telles courbes expérimentales dans [LBG<sup>+</sup>99] et analytiques dans [CBNA03].

**Ce Contrôle Automatique de Gain compense donc la non linéarité due à l'interaction.** Sans cette régulation de l'amplitude  $s_1$  les effets de non linéarité dues à l'interaction de surface se manifesteraient en déformant la courbe de phase comme on le voit sur la figure 3.25 (b).

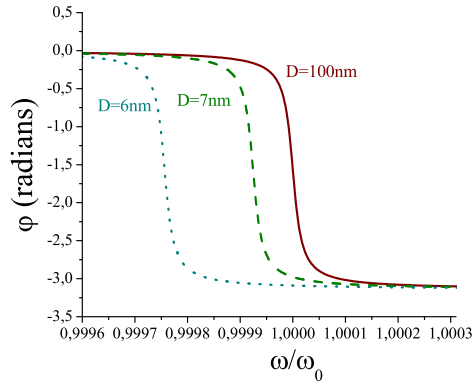
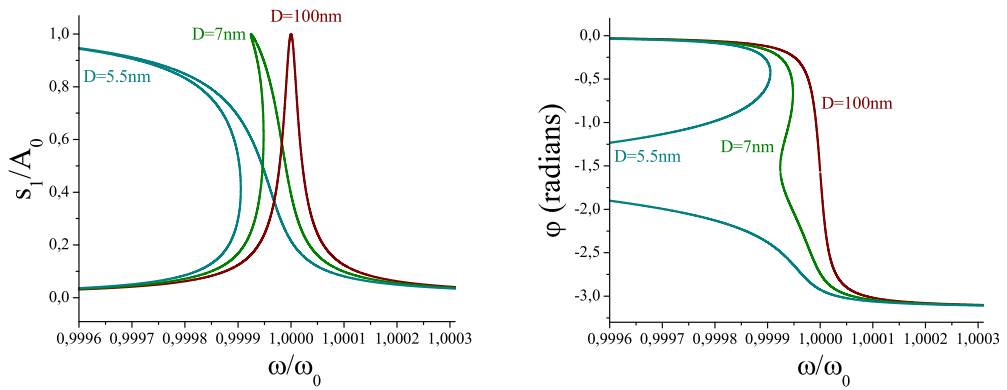


FIG. 3.24 – Argument  $\varphi(\omega)$  de la fonction harmonique 3.26 pour trois distances  $D$  pointe-surface.  $s_1=5\text{nm}$ ,  $H=1\text{eV}$ ,  $R=10\text{nm}$ ,  $k_c=30\text{N/m}$ ,  $Q=40000$ .

Pour obtenir l'évolution de l'amplitude  $s_1$  en fonction de la fréquence d'excitation  $\omega$ , c'est à dire la courbe de résonance de l'oscillateur, on utilise l'expression 3.27 pour avoir, par fonction inverse,  $s_1 = f^{-1}(\omega)$ . Nous obtenons ainsi, après une résolution de l'équation canonique :

$$\omega_{\pm} = \omega_0 \sqrt{\left(\frac{w_0 Q_c}{k_c s_1}\right)^2 - \left[\frac{1}{2Q_c} \left(1 \pm \sqrt{1 - 4Q_c^2 \left(1 - \left(\frac{w_0 Q_c}{k_c s_1}\right)^2 - \frac{HR}{3k_c} \frac{1}{(D^2 - s_1^2)^{\frac{3}{2}}}\right)}\right)\right]^2} \quad (3.29)$$

qui n'est autre que la relation proposée par l'équipe de Bordeaux [NBA99,Non00] par une méthode Lagrangienne de minimisation de l'action du système. Avec leurs conventions d'amplitude normalisée  $a = \frac{k_c s_1}{w_0 Q_c}$  ( $A_0 = \frac{Q_c}{k_c} w_0$  étant l'amplitude d'oscillation à la résonance sans interaction de surface) et de fréquence normalisée  $u_{\pm} = \frac{\omega_{\pm}}{\omega_0}$ . Ainsi, on peut voir l'effet non linéaire de l'interaction sur la courbe de résonance du cantilever sur la figure 3.25 [ST99, LHRR02]. Nous reviendrons plus en détails sur ce point dans la partie 3.2.3 et au chapitre 5.



(a) Courbes d'amplitude.

(b) Courbes de phase.

FIG. 3.25 – Evolution de la courbe de résonance (a) et de phase (b) pour trois différentes distances pointe-surface.  $A_0=5\text{nm}$ ,  $H=1\text{eV}$ ,  $R=10\text{nm}$ ,  $k_c=30\text{N/m}$ ,  $Q=40000$ .

Nous avons vu une première application de la méthode de l'équivalent harmonique appliquée à l'Automatique qui nous a permis d'introduire de façon simple l'effet non linéaire d'une interaction conservative entre la sonde oscillante et la surface.

### Cas d'une interaction dissipative et généralisation

Voyons à présent comment nous pouvons traiter de façon analogue une interaction non linéaire et non conservative. Non conservative dans le sens où les trajets énergétiques entre l'aller et le retour de la sonde vers la surface ne sont pas identiques.

Par ailleurs, cette étude va nous permettre de généraliser le formalisme analytique pour toute interaction conservative et/ou dissipative.

Dans cette partie nous allons introduire de façon simple un processus de dissipation lié à un effet d'hystérésis entre l'excitation due au mouvement  $s(t)$  du cantilever et la réponse  $nl(t)$  d'un objet de surface. Cet hystérésis est équivalent à un effet de retard entre l'excitation et la réponse. Comme la figure 3.26 le montre, l'effet de déclenchement de l'interaction de surface a lieu pour les seuils d'amplitude  $\Delta$  et  $-\Delta$  de l'oscillation  $s(t) = s_1 \sin(\omega t)$  du cantilever tel que  $|\Delta| < s_1$ , cela entre les valeurs 0 ou  $-F_1$  de la force d'interaction.

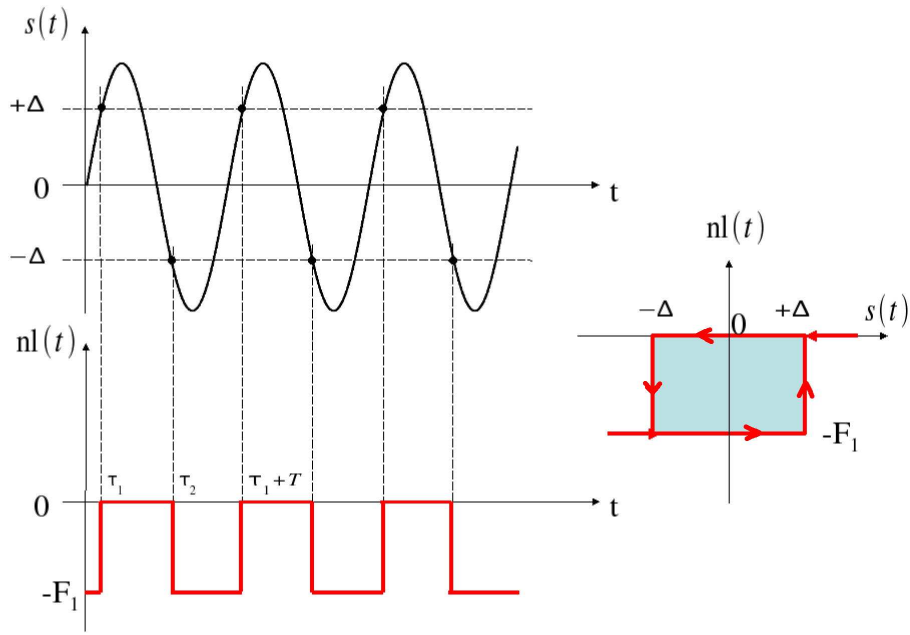


FIG. 3.26 – L'effet de retard de l'interaction entre l'excitation  $s(t)$  et la réponse  $nl(t)$  induit un effet d'hystérésis.

On remarque sur la figure 3.26, les temps caractéristiques  $\tau_1 = \frac{1}{\omega} \arcsin\left(\frac{\Delta}{s_1}\right)$  et  $\tau_2 = \frac{1}{\omega} \left[\pi + \arcsin\left(\frac{\Delta}{s_1}\right)\right]$  de déclenchement de l'interaction avec la période  $T = \frac{2\pi}{\omega}$ . A partir de ces hypothèses, établissons comme au paragraphe précédent l'expression du gain équivalent complexe  $N(s_1)$  sachant que  $nl(t) = a_1 \sin(\omega t) + a'_1 \cos(\omega t)$  (voir relation 3.16) dans l'approximation de l'équivalent harmonique. On utilise les relations 3.23 et 3.24 pour obtenir :

$$a_1 = \frac{\omega}{\pi} \int_0^{\tau_1} F_1 \sin(\omega t) dt + \frac{\omega}{\pi} \int_{\tau_2}^{\frac{2\pi}{\omega}} F_1 \sin(\omega t) dt = -\frac{2F_1}{\pi} \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta}{s_1}\right)^2}$$

et

$$a'_1 = \frac{\omega}{\pi} \int_0^{\tau_1} F_1 \cos(\omega t) dt + \frac{\omega}{\pi} \int_{\tau_2}^{\frac{2\pi}{\omega}} F_1 \cos(\omega t) dt = \frac{2F_1}{\pi} \frac{\Delta}{s_1}$$

Ainsi on obtient un gain équivalent complexe :

$$N(s_1) = \frac{a_1 + ja'_1}{s_1} = -\frac{2F_1}{\pi s_1} \left( \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta}{s_1}\right)^2} - j \frac{\Delta}{s_1} \right) \quad (3.30)$$

Avec la fonction harmonique caractérisant le cantilever oscillant en interaction :

$$\frac{s_1}{w_0}(j\omega) = \frac{1}{k_c} \frac{1}{\left[ \left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2}\right) - \frac{2F_1}{\pi k_c s_1} \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta}{s_1}\right)^2} \right] + j \frac{\omega}{Q_c \omega_0} \left[ 1 + \frac{Q_c \omega_0}{\omega} \frac{2F_1}{\pi k_c} \frac{\Delta}{s_1^2} \right]} \quad (3.31)$$

La comparaison avec l'expression 3.26 montre que la partie imaginaire du gain équivalent conduit à une diminution du facteur de qualité effectif du système. Ceci est la conséquence directe du caractère dissipatif de l'interaction et on peut aisément généraliser cette observation à toute interaction dissipative, comme on le montrera à la fin de cette partie (page 59).

Posons  $\Xi = 1 + \frac{Q_c \omega_0}{\omega} \frac{2F_1}{\pi k_c} \frac{\Delta}{s_1^2}$  quantité sans dimension qui nous permet d'obtenir un facteur de qualité effectif  $\frac{\Xi}{Q_c}$  du résonateur en fonction de l'interaction dissipative.  $\Xi$  est lié au rapport de l'énergie dissipée par cycle, égale à l'aire  $\mathcal{A}$  du cycle présenté à la figure 3.26,  $\mathcal{A} = 2F_1 \Delta$  à l'énergie d'entretien de l'oscillation du cantilever  $\mathcal{E} = \pi \frac{k_c}{Q_c} s_1^2$ . Nous posons aussi  $\Psi = -\frac{2F_1}{\pi k_c s_1} \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta}{s_1}\right)^2}$ , sans dimension, rapport entre la "raideur" de la force d'interaction conservative et la raideur du cantilever. Avec ces considérations, on définit la fonction harmonique généralisée d'un oscillateur perturbé par un terme de force conservatif ou non :

$$\frac{s_1}{w_0}(j\omega) = \frac{1}{k_c} \frac{1}{\left[ \left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2}\right) + \Psi \right] + j \frac{\omega}{Q_c \omega_0} \Xi} \quad (3.32)$$

Si nous voulons obtenir l'évolution de  $s_1$  en fonction de la fréquence de forçage  $\omega$ , utilisons l'équation :

$$w_0 = s_1 k_c \sqrt{\left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} + \Psi\right)^2 + \left(\frac{\omega}{Q_c \omega_0} \Xi\right)^2} \quad (3.33)$$

pour avoir par fonction inverse  $s_1 = f^{-1}(\omega)$ . En effet, nous obtenons après une résolution de l'équation canonique de 3.33 une expression plus complète pour les courbes de résonance, tenant compte de la dissipation :

$$\omega_{\pm} = \omega_0 \sqrt{\left(\frac{w_0}{k_c s_1} \frac{Q_c}{\Xi}\right)^2 - \left[\frac{\Xi}{2Q_c} \left(1 \pm \sqrt{1 - \frac{4Q_c^2}{\Xi^2} \left(1 - \left(\frac{w_0}{k_c s_1} \frac{Q_c}{\Xi}\right)^2 + \Psi\right)}\right)\right]^2} \quad (3.34)$$

Avec l'argument de 3.32 entre l'excitation en force et la réponse en amplitude du cantilever :

$$\varphi = -\arctan \left[ \frac{\omega}{Q_c \omega_0} \frac{\Xi}{\left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} + \Psi\right)} \right] \quad (3.35)$$

La relation 3.35 peut s'écrire aussi, en considérant<sup>2</sup>  $\omega \approx \omega_0$  pour faire apparaître  $\Delta\omega$  :

$$\frac{\omega^2 - \omega_0^2}{\omega_0^2} = \Psi + \frac{\omega}{Q_c \omega_0} \frac{\Xi}{\tan(\varphi)} \cong \frac{2\Delta\omega}{\omega_0} \quad (3.36)$$

En ce qui concerne le signal de forçage ou d'entretien  $w_0$  de l'oscillation du cantilever, appelé aussi *signal de dissipation* en mode AFM dit Non-Contact comme nous le verrons au paragraphe 4.1, en combinant les expressions 3.33 et 3.35, on a :

$$w_0 = s_1 k_c \frac{\omega}{Q_c \omega_0} \Xi \sqrt{1 + \frac{1}{\tan^2(\varphi)}} = s_1 k_c \frac{\omega}{Q_c \omega_0} \Xi \frac{1}{\sin(\varphi)} \quad (3.37)$$

L'écart en fréquence  $\Delta f = \frac{\Delta\omega}{2\pi}$  et le signal d'entretien de l'oscillation  $w_0$  sont les deux quantités accessibles en AFM Non-Contact comme nous l'avons vu au chapitre 2. On observe que si on fixe le déphasage (entre l'excitation du cantilever et la réponse en amplitude)  $\varphi = \frac{\pi}{2}$  radians alors  $\Delta\omega$  ne dépend que de  $\Psi$  et  $w_0$  ne dépend que de  $\Xi$ . On découple les deux quantités physiques. Dans ce cas :

$$\frac{2\Delta\omega}{\omega_0} \cong \Psi \quad (3.38)$$

qui signifie que *le décalage en fréquence, observé en AFM dit Non-Contact, dépend seulement du terme conservatif de l'interaction, et :*

$$w_0 = s_1 k_c \frac{\Xi}{Q_c} \quad (3.39)$$

signifiant que *les variations en dissipation, mesurées en AFM dit Non-Contact, dépendent des forces non conservatives entre la sonde et la surface mais aussi des forces conservatives* via la dépendance en fréquence du terme dissipatif  $\Xi$  [CBNA03] dans une moindre part car le cantilever oscille toujours à des écarts en fréquence, en valeur absolue, rarement au-dessus de 1 % de la résonance  $\omega_0$ . Ceci justifie l'appellation "Dissipation" (ou "Damping" en anglais) du signal  $w_0$ .

Pour compléter ce paragraphe, nous finirons par les expressions généralisées des termes  $\Psi$  et  $\Xi$  pour tout type de force d'interaction pointe-surface (conservatives et/ou non conservatives) dans *l'approximation de l'équivalent harmonique* :

$$\Psi = \frac{\omega}{s_1 \pi k_c} \int_0^{\frac{2\pi}{\omega}} \text{Force}[s(t), D] \sin(\omega t) dt = \frac{a_1}{s_1 k_c} \quad (3.40)$$

$$\Xi = 1 + \frac{Q_c \omega_0}{s_1 \pi k_c} \int_0^{\frac{2\pi}{\omega}} \text{Force}[s(t), D] \cos(\omega t) dt = 1 + \frac{a_1'}{s_1 k_c} \frac{Q_c \omega_0}{\omega} \quad (3.41)$$

On retrouve des expressions similaires dans la référence [Gie97]. Comme annoncé précédemment,  $\Psi$  ne dépend que de la partie réelle de la fonction de transfert équivalente, alors que  $\Xi$  ne dépend que de la partie imaginaire de la fonction de transfert équivalente.

<sup>2</sup>La dérive en fréquence due à l'interaction avec la surface est suffisamment faible (moins de 1 % de  $\omega_0$ ) dans les conditions d'AFM dit Non-Contact en Ultra Vide pour que cette hypothèse reste vraie.

### 3.2.3 Stabilité, phénomène du saut

Si nous reprenons les figures 3.25 montrant l'évolution des courbes de résonance de l'oscillateur en fonction de sa distance à la surface, on voit que la non linéarité provoque des zones de rebroussement sur les courbes d'amplitude et de phase. Il y a apparition de zones d'instabilité inatteignables physiquement [CNBA02]. La figure 3.27 reprend la courbe d'amplitude à  $D=7\text{nm}$  de la figure 3.25(a) avec les mêmes paramètres de simulation.

L'interaction de surface provoque une torsion de cette résonance en créant une zone d'instabilité entre les points de sauts  $J_1$  et  $J_2$  aux fréquences respectives  $f_{J_1}$  et  $f_{J_2}$ . Ainsi si on excite l'oscillateur avec un balayage en fréquence croissant, on obtiendra un saut d'amplitude du point  $J_1$  vers la branche supérieure de la courbe de résonance. A contrario, un balayage en fréquence décroissant, provoquera un saut d'amplitude du point  $J_2$  vers la branche inférieure de la courbe de résonance. Nous montrerons des mesures expérimentales de cet effet au chapitre 5.

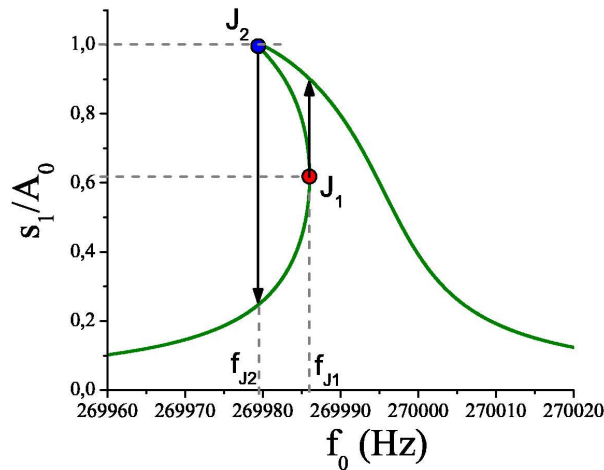


FIG. 3.27 – Courbe de résonance extraite de la figure 3.25(a). Les deux points de saut  $J_1$  et  $J_2$  apparaissent aux fréquences  $f_{J_1}$  et  $f_{J_2}$ .

On peut voir ce phénomène de saut d'une autre manière pour une fréquence constante de forçage de l'oscillateur. En effet, en reprenant la fonction de transfert 3.21, on peut tracer l'évolution de l'amplitude d'oscillation  $s_1$  en fonction de l'amplitude de forçage  $w_0$ . En prenant les paramètres de la figure 3.27, on utilise :

$$w_0 = s_1 \left| \frac{1}{C} + N(s_1) \right| \quad (3.42)$$

pour tracer la figure 3.28 pour deux fréquences de forçage différentes. On voit que pour certaines fréquences d'excitation du système, on peut obtenir une variation brusque de l'amplitude d'oscillation  $s_1$  à partir d'un seuil d'amplitude de forçage  $w_0$  de l'oscillateur. De plus, le phénomène de saut est différent pour un balayage croissant ou décroissant de l'amplitude de forçage  $w_0$ . On voit ici aussi un phénomène de saut dû à un rebroussement topologique de la courbe [Kor63]. L'arc intermédiaire, entre les deux zones de saut, correspond à des oscillations forcées instables qui n'apparaissent pas physiquement. La

négativité de la pente de la courbe  $\frac{ds_1}{dw_0}$  entraîne le résultat anormal que l'amplitude d'oscillation diminuerait quand celle du signal d'excitation augmente. La démonstration rigoureuse de cette constation qualitative de zone instable se trouve dans la référence [KP53].

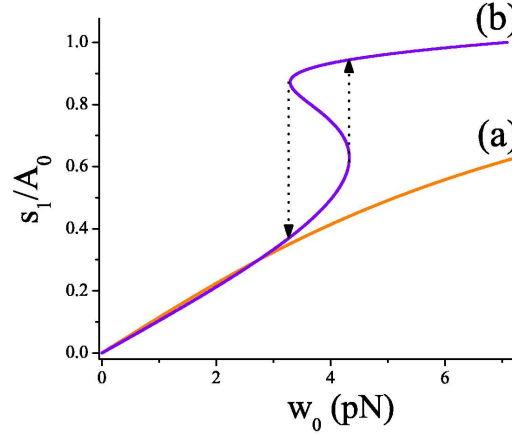


FIG. 3.28 – Evolution de l'amplitude  $s_1$  de l'oscillation du cantilever en fonction de l'amplitude de forçage  $w_0$  pour deux fréquences  $f$  constante d'excitation : (a)  $f = f_0 = 270$  kHz qui est la fréquence de résonance de l'oscillateur libre, (b)  $f = f_0 - 12$  Hz.

On voit donc que ces points de saut se situent là où la dérivée  $\frac{dw_0}{ds_1}$  est nulle. Une étude de la dérivée de la fonction 3.42 va nous permettre de trouver un critère graphique de stabilité pour un oscillateur de fonction de transfert  $C$  en interaction avec un gain équivalent  $N$ .

Pour cela, posons :  $\frac{1}{C(j\omega)} = U(\omega) + jV(\omega)$  et  $N(s_1) = P(s_1) + jQ(s_1)$ . Le gain équivalent  $N$  est purement réel si l'interaction est uniquement conservative. En utilisant la relation 3.42, on obtient ainsi :

$$w_0^2 = s_1^2 \left[ (U + P)^2 + (V + Q)^2 \right]$$

que l'on dérive par rapport à  $s_1$  pour obtenir la condition de saut :

$$U^2 + V^2 + K_U U + K_V V + K_0 = 0 \quad (3.43)$$

avec  $K_U = \frac{2P+s_1 \frac{dP}{ds_1}}{1+\frac{s_1}{2}}$ ,  $K_V = \frac{2Q+s_1 \frac{dQ}{ds_1}}{1+\frac{s_1}{2}}$  et  $K_0 = \frac{P^2+Q^2+s_1 \frac{d}{ds_1} \left( P \frac{dP}{ds_1} + Q \frac{dQ}{ds_1} \right)}{1+\frac{s_1}{2}}$ . La relation 3.43 est l'équation d'un cercle de contour  $\Gamma$  :

$$\left( U + \frac{K_U}{2} \right)^2 + \left( V + \frac{K_V}{2} \right)^2 = \frac{K_U^2 + K_V^2}{4} - K_0 \quad (3.44)$$

ayant pour centre  $\left( -\frac{K_U}{2}, -\frac{K_V}{2} \right)$  et pour rayon  $r = \sqrt{\frac{K_U^2 + K_V^2}{4} - K_0}$  dans le plan complexe  $(U, V)$ .

Ce cercle  $\Gamma$  dépend entièrement de la caractéristique du gain équivalent  $N$  et donc de l'interaction de surface. Lorsque l'amplitude  $s_1$  varie, ce contour  $\Gamma$  va aussi changer. Un saut ne peut se produire à la fréquence  $\omega$  si le point  $U(\omega), V(\omega)$  est à l'intérieur ou sur le



cercle [Bon58, GDP88] :

- Si le lieu  $\frac{1}{C}$  coupe l'enveloppe  $\Gamma$ , des sauts ne peuvent se produire qu'aux fréquences correspondant à des points du lieu de Nyquist  $\frac{1}{C(j\omega)}$  intérieur à  $\Gamma$ .
- Si le lieu  $\frac{1}{C(j\omega)}$  du cantilever est tout entier extérieur à  $\Gamma$ , les oscillations forcées sont toujours stables, et aucun saut n'est à craindre.

En reprenant le gain équivalent 3.25 purement conservatif (donc purement Réel), déjà utilisé pour tracer la figure 3.27, on obtient le diagramme de Nyquist 3.29 sur lequel on a tracé le lieu  $\frac{1}{C}$  en noir où la flèche indique le sens des fréquences croissantes (signe +). On a aussi tracé les contours  $\Gamma_1$  (rouge) et  $\Gamma_2$  (bleu), en utilisant l'équation du cercle 3.44. Chaque contour  $\Gamma$  correspond respectivement aux points de saut  $J_1$  et  $J_2$  de la figure 3.27. Ainsi le premier point d'intersection du lieu  $\frac{1}{C}$  avec  $\Gamma_1$ , en prenant une direction croissante de balayage en fréquence, nous donne la fréquence de saut  $f_{J_1}$  de la courbe de résonance 3.27. Et, le premier point d'intersection du lieu  $\frac{1}{C}$  avec  $\Gamma_2$ , en prenant une direction décroissante de balayage en fréquence, nous donne la fréquence de saut  $f_{J_2}$  de la courbe de résonance 3.27.  $f_0$  étant la fréquence de résonance de l'oscillateur libre.

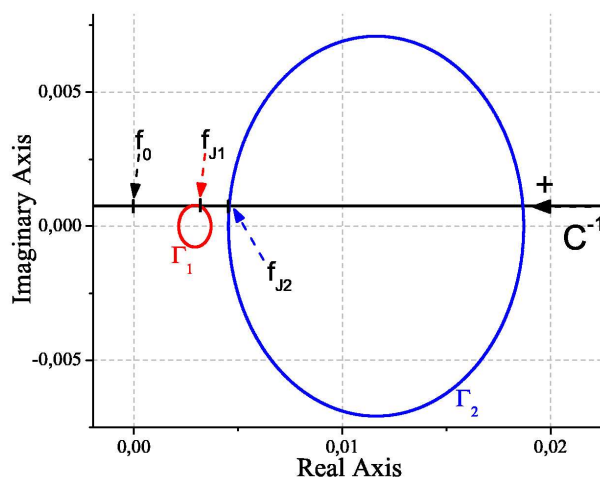


FIG. 3.29 – Diagramme de Nyquist du lieu  $\frac{1}{C}$ . Ce lieu traverse les contours  $\Gamma_1$  et  $\Gamma_2$ . Cela prouve l'existence du phénomène de saut d'amplitude.

Cette méthode très visuelle, dérivée des méthodes de *l'équivalent harmonique* de l'Automatique non linéaire [FM66], permet pour un lieu  $\frac{1}{C}$  fixe, correspondant à l'oscillateur libre, de savoir très rapidement pour une collection de contours  $\Gamma$ , représentant chacun une interaction pointe-surface différente, dans quels cas le système présentera un phénomène de saut. Si oui, le diagramme de Nyquist permet de savoir pour quelle fréquence de forçage l'instabilité apparaîtra.

## Conclusion

Durant ce chapitre, nous avons introduit un formalisme qui nous a permis de retrouver des résultats analytiques admis concernant l'effet d'une interaction de surface sur un cantilever oscillant [NBA99]. Les méthodes de *l'équivalent harmonique* nous ont aussi

**Jérôme Polesel Maris**

permis de retrouver les critères de stabilité d'un tel système. Ces outils vont nous être nécessaires à l'analyse de la machine AFM étudiée au chapitre suivant.



# Chapitre 4

## Automatique du microscope

Dans ce chapitre, nous utiliserons le formalisme introduit au chapitre précédent pour analyser les différents constituants de la machine. Ainsi, les critères et domaines de stabilité des réglage de chaque asservissement seront traités en détails. Les limitations de la machine seront introduites en étudiant l'effet de perturbations externes ou internes sous forme de bruits. Nous finirons par le développement d'un outil numérique de simulation du microscope [PMG05] qui validera notre étude analytique de la machine.

### 4.1 La machine AFM dynamique du point de vue automatique

Les raisons de modéliser la machine AFM sont multiples. Nos motivations sont fondées sur la compréhension du fonctionnement de la machine dans son ensemble, le rôle et l'optimisation des réglages de boucles par l'utilisateur et le comportement de la machine face à des perturbations internes ou externes tel que les bruits liés à l'électronique ou à la sonde elle-même.

Nous avons présenté au chapitre 2 les différents blocs composant le système. Vouloir intégrer dès le début de l'étude toutes les boucles de régulation en même temps serait un travail compliqué et inextricable. Fort heureusement, ces boucles de régulations, au nombre de trois, ne travaillent pas dans le même régime fréquentiel. Cela va nous permettre d'isoler les blocs de régulation afin de les analyser indépendamment.

Les boucles de régulation travaillent sur le même signal provenant de la photodiode que l'on peut écrire, en première approximation :

$$z(t) = A(t) \sin(\omega(t)t) \quad (4.1)$$

La régulation d'amplitude via un Contrôle Automatique de Gain, qui commande le vibreur piézoélectrique du cantilever, va isoler le terme d'amplitude  $A(t)$  afin de le rendre égal à une consigne  $A_c$  définie par l'utilisateur. Dans l'annexe C, des mesures expérimentales sur cet asservissement en amplitude montre que la bande passante de travail reste toujours inférieure à 1 kHz autour de 0 Hz.

La régulation sur l'entretien de l'oscillation travaille sur la pulsation  $\omega(t)$  du cantilever via un déphaseur permettant d'obtenir une amplification cohérente et via une Boucle à Verrouillage de Phase [Bes90, Enc90] (PLL en anglais i.e. *Phase Locked Loop*) qui me-

sure  $\omega(t)$ . Ces deux systèmes fonctionnent dans la gamme de fréquence de l'oscillateur, donnant une période de l'ordre de l'inverse de la pulsation de résonance  $\omega_0$  du cantilever c'est à dire entre 3 et 30  $\mu\text{s}$ .

La régulation en distance (ADC en anglais i.e. *Automatic Distance Control*) entre la sonde et la surface, par commande sur un actionneur piézoélectrique, va permettre de faire converger  $\omega(t)$ , mesurée par le démodulateur en fréquence, à une consigne  $\omega_c$  définie par l'utilisateur en jouant sur cette distance  $D$  entre la sonde et la surface. Comme nous le verrons ce temps de réaction est très dépendant de la distance  $D$  mais nous avons observé qu'il est toujours supérieur à la milliseconde.

La figure 4.1 illustre le positionnement des constantes de temps de chaque asservissement sur un diagramme fréquentiel. Les phénomènes physiques observés en champ proche tels que des mouvements moléculaires ou atomiques avec des temps caractéristiques inférieurs à la picoseconde ([MWM03] p. 400) seront donc fortement moyennés par le système lors du processus de mesure.

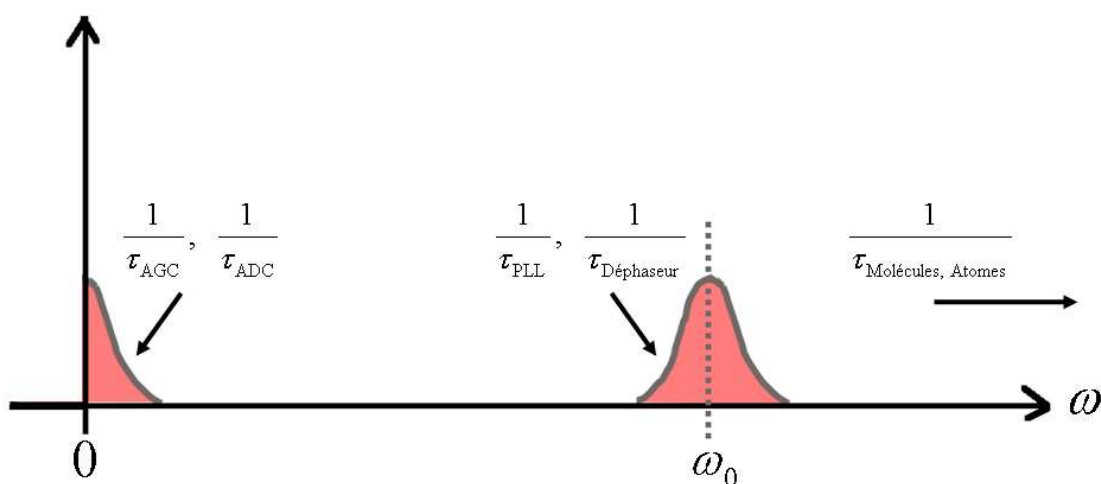


FIG. 4.1 – Diagramme fréquentiel des constantes de temps de la machine AFM.

#### 4.1.1 Considérations fréquentielles

L'entretien de l'oscillation du cantilever n'est possible que si l'on boucle la sortie du vibreur  $s(t)$  en cohérence de phase avec l'excitation d'entrée  $w(t)$ . Afin de pouvoir optimiser ce comportement oscillatoire nous allons faire évoluer le schéma fonctionnel 3.23 en ajoutant à la sortie un déphaseur qui peut être vu comme un délai  $e^{-\lambda p}$  en notation de Laplace comme le montre la figure 4.2.

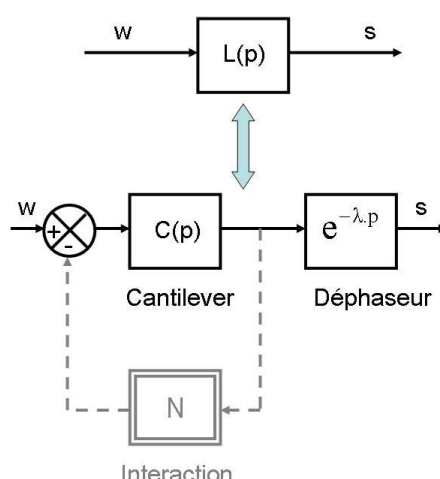


FIG. 4.2 – Rajout d’un déphaseur sur la sonde.  $N$  représente toujours l’interaction de surface avec le cantilever.

Désormais, nous encapsulerons dans un bloc nommé  $L$  le système cantilever + interaction + déphaseur. Le signal de sortie de ce bloc  $L$ , que l’on peut écrire  $s(t) = s_1 \sin(\omega t + \theta)$  en première approximation, fournit une amplitude  $s_1$  utilisée par la régulation d’amplitude, que l’on appellera *Boucle A*, et le signal oscillatoire  $\sin(\omega t + \theta)$  dont la phase est réglée par le déphaseur dans la boucle d’oscillation que l’on appellera *Boucle  $\omega$* .

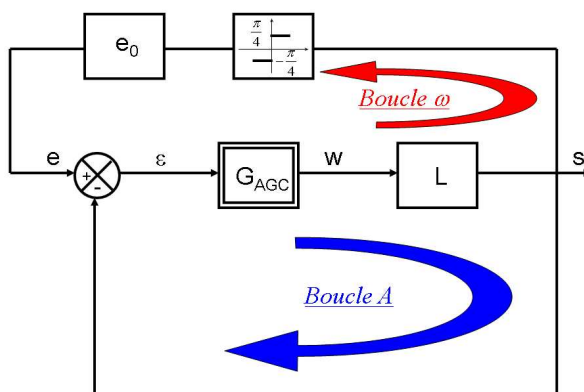


FIG. 4.3 – Boucles d’asservissement en amplitude et d’oscillation auto-entretenu.

Sur la figure 4.3 nous avons modélisé ces deux boucles.

La *Boucle A* d’asservissement en amplitude travaille sur des variations fréquentielles de  $s_1$  inférieures au kiloHertz à cause de ses filtrages internes contenus dans le gain non linéaire  $G_{AGC}$ . Nous verrons plus en détails ce gain  $G_{AGC}$  dans la prochaine section mais nous pouvons déjà dire que la *Boucle A* n’est pas sensible aux variations du signal à la pulsation  $\omega$ .

La *Boucle  $\omega$*  d’entretien de l’oscillation agit sur la partie du signal à la fréquence  $\omega$  à quelques centaines de kiloHertz. Le gain  $G_{AGC}$  est donc vu comme constant dans cette *Boucle  $\omega$* . Dans cette boucle, on note la présence d’un limiteur qui “tue” la dépendance

en amplitude  $s_1$  du signal de sortie de  $L$ . Ce limiteur transforme donc une sinusoïde à amplitude variable en un signal carré à amplitude constante et le multiplie par un gain  $\frac{\pi}{4}$ . Ce signal est décomposable en :  $\sum_k^{\infty} \frac{1}{2k+1} \sin((2k+1)\omega t + \theta_{(2k+1)})$ . Ce signal est ensuite multiplié par  $e_0$  qui est la consigne en amplitude souhaitée par l'utilisateur. En utilisant les arguments de l'*approximation de l'équivalent harmonique* vus à la page 51, le filtrage passe-bande du bloc  $L$  qui présente une pointe de résonance accusée, nous permet d'avancer que seul le premier harmonique  $e_0 \sin(\omega t + \theta)$  de ce signal limité aura un rôle significatif dans l'oscillation du cantilever. Le signal  $e - s = (e_0 - s_1) \sin(\omega t + \theta) = \varepsilon$  sera considéré comme signal d'erreur traité par le gain  $G_{AGC}$ .

Pour résumer, d'un point de vue fréquentiel, on considère les *Boucles A* et  $\omega$  comme indépendantes.

### 4.1.2 Evolution de la fréquence de résonance en fonction du réglage du déphaseur

Considérons le système en boucle ouverte  $G_{AGC}L$  où  $G_{AGC}$  est vu comme un gain constant dans le référentiel en fréquence  $\omega$  du cantilever et :

$$L(j\omega) = \frac{1}{k_c} \frac{\cos(\theta) + j \sin(\theta)}{\left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2}\right) + j \frac{\omega}{Q_c \omega_0}} \quad (4.2)$$

d'après la relation 3.32 en considérant qu'il n'y a pas d'interaction de surface pour l'instant.

L'argument de  $G_{AGC}L$  doit être égal à  $-\pi$  radians pour qu'il y ait une rotation de phase de  $2\pi$  radians du signal exciteur  $w$  à la sortie du bloc  $G_{AGC}$  en considérant le signe moins du comparateur et  $e_0$  nul pour le raisonnement. Dans ce cas l'amplification est cohérente et comme il a été démontré au chapitre 3, c'est à cette condition que l'on peut traduire le signal d'excitation en puissance dissipée par l'interaction pointe-surface. On écrit ainsi :

$$\begin{aligned} \text{Arg}\{G_{AGC}L\} &= \theta - \arctan\left[\frac{\frac{\omega}{Q_c \omega_0} \frac{1}{1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2}}}{\omega^2 + \omega \frac{\omega_0}{Q_c \tan(\theta + \pi)} - \omega_0^2}\right] = -\pi \\ \iff &\omega^2 + \omega \frac{\omega_0}{Q_c \tan(\theta + \pi)} - \omega_0^2 = 0 \end{aligned}$$

La résolution de cette équation du second degré donne :

$$\omega_r^{\pm} = -\frac{\omega_0}{2 Q_c \tan(\theta + \pi)} \pm \omega_0 \sqrt{\frac{1}{4 Q_c^2 \tan^2(\theta + \pi)} + 1} \quad (4.3)$$

On trace l'expression de l'évolution de la fréquence de résonance  $f_{\theta} = \frac{\omega_r^+}{2\pi}$  (solutions positives) du système en fonction du déphasage  $\theta$  sur la figure 4.4.

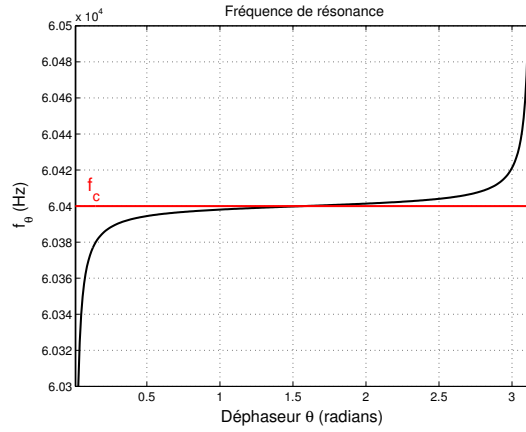


FIG. 4.4 – Fréquence de résonance du système sans interaction de surface ( $\Psi = 0$  et  $\Xi = 1$ ) en fonction du déphasage  $\theta$ . Paramètres :  $\omega_0 = 2\pi 60400 \text{ rad.s}^{-1}$ ,  $Q_c = 10000$ .

En tenant compte d'une interaction pointe surface, on obtient (voir expressions 3.40 et 3.41 pour  $\Xi$  et  $\Psi$ ) :

$$\omega_r^\pm = -\frac{\omega_0 \Xi}{2 Q_c \tan(\theta + \pi)} \pm \omega_0 \sqrt{\frac{\Xi^2}{4 Q_c^2 \tan^2(\theta + \pi)} + 1 + \Psi} \quad (4.4)$$

On voit donc (Cf. figure 4.4) qu'un réglage à  $\theta = \frac{\pi}{2}$  radians du déphaseur permet d'avoir une fréquence de résonance  $\omega_r$  du système égale à la fréquence de résonance du cantilever  $\omega_0 \sqrt{1 + \Psi}$ . Cette condition correspond à une minimisation de l'énergie d'entretien de l'oscillation comme le montre le diagramme de Nyquist 4.5 de la relation 4.2 pour trois valeurs de  $\theta$ .

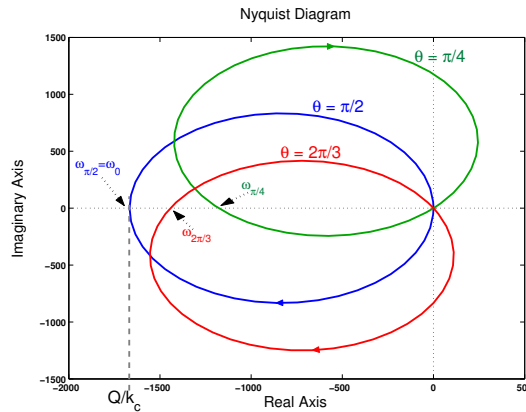


FIG. 4.5 – Diagrammes de Nyquist du système en fonction du déphasage  $\theta$ . Paramètres :  $\omega_0 = 2\pi 60400 \text{ rad.s}^{-1}$ ,  $Q_c = 10000$ ,  $k_c = 6 \text{ N.m}^{-1}$ .

Pour les trois cas, le point d'intersection du diagramme de Nyquist avec l'axe des Réels négatifs, correspondant à un argument de  $-\pi$  radians, donne sur le lieu la fréquence de résonance  $\omega_r$  et la norme correspondante donne l'inverse de la force d'entretien  $w_1$



nécessaire à maintenir l'auto-oscillation du résonateur. On voit donc que celle-ci est minimale et égale à  $w_1 = \frac{k_c}{Q_c} s_1$  pour  $\theta = \frac{\pi}{2}$  radians où  $\omega_r = \omega_0$ . Nous allons approfondir ce point dans le prochain paragraphe.

### 4.1.3 Le Contrôle Automatique de Gain (AGC)

Le rôle de ce bloc de commande, associé au bloc  $G_{AGC}$  de la figure 4.3, est d'optimiser la vitesse et la précision de la *Boucle A* de régulation en amplitude. Nous avons vu à la section 3.1.2 page 43 qu'un système de commande Proportionnel-Intégrateur permet cela. De plus ce système fonctionne dans les basses fréquences de variation de l'amplitude de sortie  $s_1$  du bloc  $L$ . **On notera  $\Omega$  les fréquences correspondant aux fréquences de fonctionnement de la *Boucle A* pour les différencier des hautes fréquences  $\omega$  d'oscillation du cantilever.**

Ce bloc de commande devra donc extraire l'information  $\varepsilon_1 = e_0 - s_1$  du signal d'erreur  $e - s = (e_0 - s_1) \sin(\omega t + \theta) = \varepsilon$  et rejeter l'information haute fréquence  $\omega$  au moyen d'un filtre passe-bas que nous noterons  $F_{AGC}$  avec une constante de temps notée  $\tau_D$ . Ce procédé d'extraction d'un signal modulant basse fréquence  $\Omega$  d'une porteuse haute fréquence  $\omega$  est couramment utilisé en télécommunication sous le nom de démodulation d'amplitude. Il existe différentes techniques de démodulation d'amplitude, les plus courantes étant la détection d'enveloppe [Mal02, ME89] et la démodulation synchrone [ME89, ME90]. La figure 4.6 modélise ainsi ce Contrôle Automatique de Gain. Cette modélisation ne doit être considérée que comme un support théorique pour traduire la transmittance du signal de sortie de forçage du cantilever  $w(t)$  en fonction du signal d'entrée  $s(t)$  provenant de l'oscillation du cantilever, dans le cadre de l'approximation de l'équivalent harmonique.

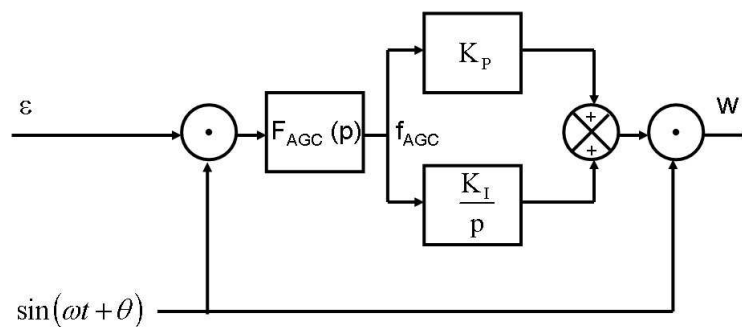


FIG. 4.6 – Modélisation du Contrôle Automatique de Gain (AGC).

On voit que ce gain est non-linéaire au sens Automatique du terme. En effet, la présence de multipliers justifie cette appellation. On peut retrouver un démodulateur d'amplitude avec une structure similaire dans [Cha72].

Pour extraire le signal d'erreur  $\varepsilon_1 = e_0 - s_1$  provenant du signal  $\varepsilon(t) = (e_0 - s_1) \sin(\omega t + \theta)$ , un premier multiplicateur donne le produit entre  $\varepsilon(t)$  et la partie sinusoïdale  $\sin(\omega t + \theta)$ , de ce même signal. Pratiquement, la partie sinusoïdale du signal  $\varepsilon(t)$  peut être extraite par une boucle à verrouillage de phase qui permet, de plus, de contraindre la phase de la

porteuse générée localement à être la même que celle du signal modulant entrant dans le récepteur.

Ensuite, on obtient  $f_{AGC}(t)$ , le signal  $\varepsilon_1 \sin^2(\omega t + \theta)$  filtré par le passe-bas  $F_{AGC}(p) = \frac{2}{1 + \tau_D p}$ , en notation de Laplace, tel que :

$$\begin{aligned} f_{AGC}(t) &= \left[ \frac{2}{\tau_D} \int_{-\infty}^t \varepsilon_1 \sin^2(\omega t + \theta) e^{\frac{t'}{\tau_D}} dt' \right] e^{-\frac{t}{\tau_D}} \\ \Leftrightarrow f_{AGC}(t) &= \varepsilon_1 - \frac{\varepsilon_1}{1 + (2\omega\tau_D)^2} [\cos(2\omega t) + 2\omega\tau_D \sin(2\omega t)] \cong \varepsilon_1 \end{aligned} \quad (4.5)$$

Le filtre  $F_{AGC}$  coupe la composante haute fréquence  $\omega$  de l'ordre de la centaine de kiloHertz. Expérimentalement, dans l'annexe C, nous avons mesuré  $\tau_D = 2\text{ms}$  soit une fréquence de coupure de 80Hz. Ce signal  $f_{AGC}(t) = \varepsilon_1$  transite ensuite dans les gains Proportionnel-Intégrateur  $K_P + \frac{K_I}{p}$  pour être mis en forme par le second multiplieur effectuant le produit avec la partie sinusoïdale  $\sin(\omega t + \theta)$ . Une fois de plus, cette partie sinusoïdale pourrait être issue de la boucle à verrouillage de phase au niveau du premier multiplieur mais aussi du signal  $\varepsilon(t)$  normalisé par l'amplitude  $\varepsilon_1$  détectée après le filtre passe-bas  $F_{AGC}$  tel que  $\sin(\omega t + \theta) = \frac{\varepsilon(t)}{\varepsilon_1}$ . Finalement, on obtient le signal de sortie d'entretien d'oscillation du cantilever :  $w(t) = [K_P \varepsilon_1 + K_I \int^t \varepsilon_1 dt'] \sin(\omega t + \theta) = w_1 \sin(\omega t + \theta)$ .

Ainsi on a le gain harmonique du Contrôle Automatique de Gain :

$$G_{AGC}(j\Omega) = \frac{w_1}{\varepsilon_1} = \left( K_P + \frac{K_I}{j\Omega} \right) \frac{1}{1 + j\Omega\tau_D} \quad (4.6)$$

Ce Contrôle Automatique de Gain translate vers les basses fréquences  $\Omega$  l'information d'amplitude du résonateur  $L$  centrée sur les hautes fréquences  $\omega$ . Il effectue un hétérodyne. Pour analyser l'action du gain de l'AGC sur la fonction de transfert  $L$ , nous allons donc traduire la fonction harmonique du résonateur 4.2 par le changement de variable  $\omega \rightarrow \omega_0 + \Omega$ . Ceci nous donne la fonction harmonique basse fréquence :

$$L(j\Omega) \cong \frac{1}{k_c} \frac{\cos(\theta) + j \sin(\theta)}{-\frac{2\Omega}{\omega_0} + j \frac{1}{Q_c}} \quad (4.7)$$

Il est intéressant de tracer l'évolution du signal d'entretien d'oscillation  $w_1$  en fonction de  $\theta$  pour repérer le minimum, mais aussi en fonction des gains  $K_P$  et  $K_I$ . Si on revient sur le schéma de principe 4.3, on peut extraire la fonction harmonique boucle fermée :

$$\begin{aligned} \frac{w_1}{e_0} &= \frac{G_{AGC}}{1 + G_{AGC} L} \\ &= \frac{\Omega \left[ \frac{K_P}{Q_c} + \frac{2K_I}{\omega_0} \right] - j \left[ \frac{K_I}{Q_c} - \frac{2K_P \Omega^2}{\omega_0} \right]}{\left[ \frac{\Omega}{Q_c} - \frac{2\tau_D \Omega^3}{\omega_0} + \frac{\Omega K_P}{k_c} \sin \theta - \frac{K_I}{k_c} \cos \theta \right] + j \left[ \left( \frac{\tau_D}{Q_c} + \frac{2}{\omega_0} \right) \Omega^2 - \frac{\Omega K_P}{k_c} \cos \theta - \frac{K_I}{k_c} \sin \theta \right]} \end{aligned} \quad (4.8)$$

La figure 4.7 représente la relation 4.8 en fonction de  $\theta$  pour plusieurs jeux de paramètres  $K_P$  et  $K_I$ . La fréquence  $\Omega = \omega - \omega_0$  en fonction de  $\theta$  est donnée par la relation 4.3.

Les courbes noires en trait plein (a), (b), (c) et (d) correspondent respectivement à des valeurs de  $K_P = \frac{k_c}{Q_c}$ ,  $2\frac{k_c}{Q_c}$ ,  $5\frac{k_c}{Q_c}$  et  $0.1 \text{ N.m}^{-1}$  pour une valeur de  $K_I$  nulle. La courbe (e) en ronds verts correspond à une superposition des quatre mêmes courbes (a), (b), (c) et (d) mais avec une valeur de  $K_I = 2 \text{ N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ .

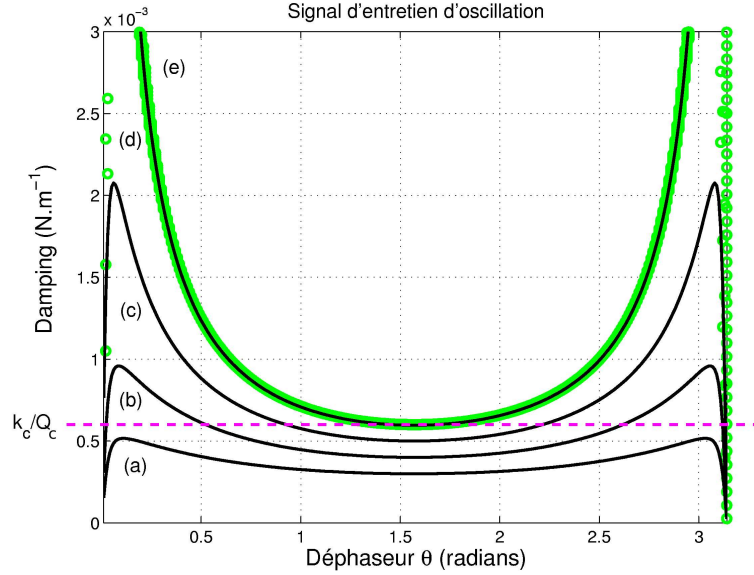


FIG. 4.7 – Fonction harmonique  $\frac{w_1}{e_0} = \frac{G_{AGC}}{1+G_{AGC}L}$  (Le signal d’entretien d’oscillation est parfois appelé “Damping”). Mêmes paramètres que la figure 4.5 avec  $\tau_D = 2 \text{ ms}$ .

Cette figure 4.7 amène deux observations. Premièrement, on vérifie que le minimum pour la force d’entretien de l’oscillateur correspond à  $\theta = \frac{\pi}{2}$  radians.

Deuxièmement, le fait de donner une valeur non-nulle à  $K_I$  permet au signal d’entretien de l’oscillation  $w_1$  de converger immédiatement vers la valeur minimale d’auto-oscillation du résonateur  $w_1 = \frac{k_c}{Q_c} e_0$  quelle que soit la valeur de  $K_P$ . Nous avons déjà abordé le rôle du gain Intégrateur à la section 3.1.2 page 43. Le gain  $K_P$  seul ne peut pas faire atteindre au système sa valeur de consigne sous peine de saturer les amplificateurs du bloc de commande.

On peut mieux révéler ce phénomène en écrivant la fonction harmonique boucle fermée entre l’amplitude de sortie  $s_1$  et la consigne en amplitude  $e_0$  :

$$\begin{aligned} \frac{s_1}{e_0} &= \frac{G_{AGC}L}{1+G_{AGC}L} \\ &= \frac{[\Omega K_P \sin \theta - K_I \cos \theta] - j [\Omega K_P \cos \theta + K_I \sin \theta]}{\left[ \frac{k_c \Omega}{Q_c} - \frac{2k_c \tau_D \Omega^3}{\omega_0} + \Omega K_P \sin \theta - K_I \cos \theta \right] + j \left[ k_c \left( \frac{\tau_D}{Q_c} + \frac{2}{\omega_0} \right) \Omega^2 - \Omega K_P \cos \theta - K_I \sin \theta \right]} \end{aligned} \quad (4.9)$$

et étudier la convergence de la fonction harmonique pour le cas limite  $\Omega \rightarrow 0$  c’est à dire pour  $t \rightarrow +\infty$  dans le domaine temporel.

– Si  $K_I = 0$  alors :

**Jérôme Polesel Maris**

$$\frac{s_1}{e_0} = \frac{1}{1 + \frac{k_c}{Q_c} \frac{1}{K_P (\sin \theta - j \cos \theta)}} \quad (4.10)$$

a) Si  $\theta = -\frac{\pi}{2}$  radians, alors  $\frac{s_1}{e_0} = \frac{1}{1 - \frac{k_c}{Q_c K_P}}$ . Dans ce cas le dénominateur peut devenir nul si  $K_P = \frac{k_c}{Q_c}$ , d'où une divergence de l'amplitude d'oscillation  $s_1$  du cantilever. Ce réglage de  $\theta$  est donc à proscrire.

b) Si  $\theta = +\frac{\pi}{2}$  radians, alors  $\frac{s_1}{e_0} = \frac{1}{1 + \frac{k_c}{Q_c K_P}}$ . Dans ce cas, il faut faire tendre  $K_P$  vers l'infini pour avoir l'amplitude d'oscillation  $s_1$  du cantilever égale à la consigne  $e_0$ . Cela est impossible en pratique sous peine de saturer les amplificateurs du bloc de commande. On rajoute donc un gain Intégrateur  $K_I$  pour éviter cela.

– Si  $K_I \neq 0$  alors la relation 4.9 devient  $\frac{s_1}{e_0} = 1$ . La régulation fonctionne, l'amplitude de sortie  $s_1$  du cantilever est égale à la consigne  $e_0$ .

### Stabilité de la régulation d'Amplitude

Le gain  $K_I$  permet au système de gagner en précision à condition que sa valeur ne soit pas trop élevée sous peine de perdre en stabilité. Nous allons donc utiliser le critère de Routh pour trouver une règle sur le choix de  $K_I$  sur le schéma de principe 4.3.

Reprenons l'expression 4.7 du bloc  $L$  avec la condition de phase maintenant établie  $\theta = +\frac{\pi}{2}$  radians. En posant la variable de Laplace  $p = j\Omega$ , on obtient la fonction de transfert :

$$L(p) = \frac{Q_c}{k_c} \frac{1}{\frac{2Q_c p}{\omega_0} + 1} \quad (4.11)$$

Pour le bloc de commande  $G_{AGC}$ , on a :

$$G_{AGC}(p) = \left( K_P + \frac{K_I}{p} \right) \frac{1}{1 + p\tau_D} \quad (4.12)$$

La fonction de transfert  $\frac{s_1}{e_0} = \frac{G_{AGC}L}{1+G_{AGC}L}$  s'écrit alors :

$$\frac{s_1}{e_0} = \frac{pK_P + K_I}{p^3 \frac{2k_c\tau_D}{\omega_0} + p^2 \left( \frac{\tau_D}{Q_c} + \frac{2}{\omega_0} \right) k_c + p \left( K_P + \frac{k_c}{Q_c} \right) + K_I} \quad (4.13)$$

On construit le tableau de Routh (page 44) à partir du dénominateur de 4.13 pour trouver une condition de stabilité sur  $K_I$  :

$$K_I < \left( K_P + \frac{k_c}{Q_c} \right) \left( \frac{1}{\tau_D} + \frac{1}{\tau_c} \right) \quad (4.14)$$

avec le temps caractéristique de la sonde  $\tau_c = 2Q_c/\omega_0$ . Notons que la "raideur" de l'asservissement en amplitude représentée par le gain  $K_P$  est toujours supérieure à la raideur physique  $k_c/Q_c$  et que le temps de réponse  $\tau_D$  de la détection d'amplitude doit toujours être plus petit que le temps caractéristique de la sonde  $\tau_c$  (voir annexe C) pour obtenir une régulation en amplitude optimale.

On retrouve cette condition 4.14 sur le diagramme de Nyquist 4.8 de la fonction harmonique boucle ouverte  $G_{AGC}(j\Omega)L(j\Omega)$ . La courbe bleue (a) correspond à  $K_I =$

$2 \text{ N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  c'est à dire  $K_I < \left(K_P + \frac{k_c}{Q_c}\right) \left(\frac{1}{\tau_D} + \frac{\omega_0}{2Q_c}\right)$ . Le critère du revers nous dit que le système boucle fermé est stable dans ce cas car le lieu laisse à sa gauche le point critique  $-1 + j0$ . La courbe verte (b) correspond à  $K_I = 52.21 \text{ N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  c'est à dire  $K_I = \left(K_P + \frac{k_c}{Q_c}\right) \left(\frac{1}{\tau_D} + \frac{\omega_0}{2Q_c}\right)$ . Le critère du revers nous dit que le système boucle fermé est juste oscillant dans ce cas car le lieu passe par le point critique  $-1 + j0$ . La courbe rouge (c) correspond à  $K_I = 70 \text{ N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  c'est à dire  $K_I > \left(K_P + \frac{k_c}{Q_c}\right) \left(\frac{1}{\tau_D} + \frac{\omega_0}{2Q_c}\right)$ . Le critère du revers nous dit que le système boucle fermé est instable dans ce cas car le lieu laisse à sa droite le point critique  $-1 + j0$ .

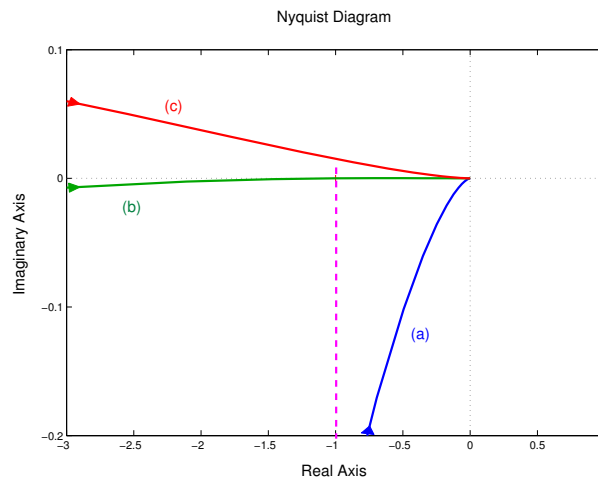


FIG. 4.8 – Diagramme de Nyquist de la fonction harmonique boucle ouverte  $G_{AGC}(j\Omega)L(j\Omega)$ . Mêmes paramètres que la figure 4.5 avec  $\tau_D = 2 \text{ ms}$  et  $K_P = 0.1 \text{ N.m}^{-1}$ . La direction des fréquences croissantes est indiquée sur les trois courbes.

Ce critère de stabilité 4.14 se fonde sur l'hypothèse d'un filtre passe-bas  $F_{AGC}$  du premier ordre à l'intérieur de l'AGC. En considérant un filtre d'ordre supérieur, on fait évoluer ce critère de stabilité. Ainsi dans la référence [CBNA03], G. Couturier et al. considèrent un filtrage du second ordre dans l'AGC. Dans ce cas, la condition de stabilité construite à partir du tableau de Routh donne une dépendance quadratique et non plus linéaire du gain  $K_I$  en fonction du gain  $K_P$ .

#### 4.1.4 La Boucle à Verrouillage de Phase (PLL) : entretien de l'oscillation, mesure de la fréquence

Au chapitre 2, nous avons décrit le double rôle de ce dispositif électronique dans la machine AFM. Son premier rôle est d'extraire la porteuse  $\omega$  du signal modulé ou bruité. Lorsque que la pointe oscillante de l'AFM n'est soumise à aucune interaction, on a  $\omega = \omega_0$ . En revanche nous avons vu (voir la relation 3.38) qu'une interaction conservative entre la pointe et la surface va induire une dérive en fréquence telle que la nouvelle fréquence du signal de réponse de l'oscillateur sera  $\omega = \omega_0 + \Delta\omega$ .

La démodulation en fréquence de la boucle à verrouillage de phase va permettre de mesurer la dérive en fréquence  $\Delta\omega$  (nous noterons  $\Delta\omega_s$  la mesure de  $\Delta\omega$  par le démodu-

lateur) afin de piloter le Contrôle Automatique de Distance (ADC) entre la pointe et la surface. Nous verrons ce système en détail au prochain paragraphe.

L'autre rôle qu'elle peut jouer est celui de générateur de fréquence pour exciter le cantilever à sa fréquence de résonance. Jusqu'à maintenant nous avons considéré dans le schéma de principe 4.3 du système AFM un oscillateur auto-entretenu. Mais le système peut également être utilisé en oscillation forcée comme le montre le schéma de principe 4.9.

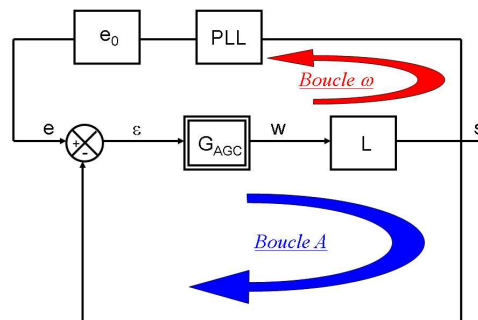


FIG. 4.9 – Boucles d'asservissement en amplitude et d'oscillation forcée avec système PLL.

L'avantage d'une telle configuration est de profiter des capacités de filtrage de la boucle à verrouillage de phase pour disposer d'un signal d'excitation du cantilever très propre au niveau du bruit.

Une boucle à verrouillage de phase, que nous nommerons PLL, est constituée de trois éléments principaux. Un oscillateur commandé en tension (*Voltage Controlled Oscillator*, VCO en anglais) produit un signal  $y(t) = A_{pll} \cos(\omega_{pll} t + \phi_{pll})$  qui est comparé par un comparateur de phase avec le signal d'entrée. La différence de phase de ces deux signaux est convertie à la sortie du comparateur en signal d'erreur. Ce dernier est ensuite filtré par un filtre de boucle généralement de type passe-bas afin d'obtenir une valeur moyenne en tension basse fréquence. Celle-ci est utilisée pour commander le VCO qui va délivrer un signal périodique avec la fréquence correspondante. Ce signal est comparé de nouveau avec le signal de référence jusqu'à ce que la différence de phase devienne nulle. A cet instant, on obtient, à la sortie du VCO, le signal d'horloge synchronisé en fréquence et en phase avec le signal d'entrée.

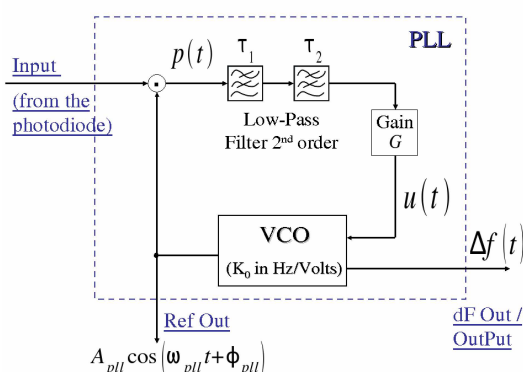


FIG. 4.10 – Schéma fonctionnel d'une boucle à verrouillage de phase.

### Fonctionnement

Lorsque la PLL est dans un état de verrouillage, elle peut être analysée comme un système de contrôle linéaire de phase [Enc90] entre les signaux d'entrée et de sortie. On représentera alors le schéma fonctionnel 4.10 par le système asservi de la figure 4.11. Les paramètres de la boucle seront expliqués par la suite.

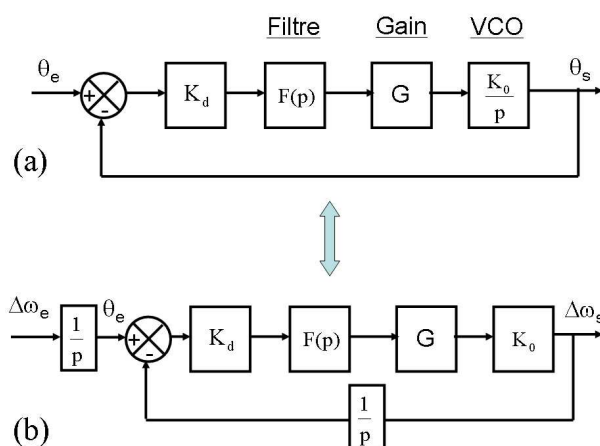


FIG. 4.11 – Modèles linéaires équivalents : (a) d'une Boucle à verrouillage de Phase, (b) d'une Boucle à verrouillage de Fréquence.

A partir de ce modèle, nous allons d'abord présenter la fonction de transfert des éléments constituant la boucle.

**Le comparateur ou détecteur de phase** Cet élément détecte la différence de phase entre les signaux appliqués à ses entrées. Ici, ce sont le signal d'entrée et le signal provenant du VCO. Ce circuit produit en sortie un signal de différence ou signal d'erreur contenant une composante continue et des composantes oscillantes. La composante continue est, de façon idéale, linéairement proportionnelle à l'erreur de phase  $\Delta\theta = \theta_e - \theta_s$  suivant

l'expression :  $K_d \Delta\theta$  où  $K_d$  est le gain du comparateur de phase généralement exprimé en  $V \cdot \text{rad}^{-1}$ .  $\theta_e$  et  $\theta_s$  sont respectivement le déphasage des signaux d'entrée et de sortie.

**Filtre de boucle : Filtre passe-bas** On notera celui-ci  $F(p)$ . Ce filtre joue un rôle de lissage. En effet, il moyenne le signal de sortie du comparateur de phase et le transforme en une tension continue qui servira à contrôler le VCO. En général,  $F(p)$  est un filtre passe-bas actif ou passif. Ce filtre possède éventuellement un gain ajustable  $G$  qui jouera un rôle dans le réglage de stabilité de l'asservissement [Lop00]. Les paramètres du filtre sont les éléments déterminant les caractéristiques de l'ensemble de la boucle, telles que la rapidité et la stabilité. Un des plus simple à réaliser est le filtre passif du 1<sup>er</sup> ordre avec la fonction de transfert  $F(p) = \frac{1}{1+\tau_1 p}$ . Mais un filtre du second ordre s'avère beaucoup plus efficace pour filtrer les bruits du signal de sortie du comparateur [Bes90]. Ainsi nous considérerons dans notre étude un filtre :

$$F(p) = \frac{1}{1+\tau_1 p} \frac{1}{1+\tau_2 p} = \frac{1}{\tau_2 \tau_1 p^2 + (\tau_2 + \tau_1) p + 1} \quad (4.15)$$

où les constantes de temps  $\tau_1$  et  $\tau_2$  sont déterminées expérimentalement dans l'annexe C. Notons que l'ordre du filtre peut rarement dépasser trois pour des raisons liées à la stabilité et à une réalisation difficile [Bes90, Sug87, Enc90].

**Oscillateur commandé en tension ou VCO** Un VCO délivre un signal périodique (sinusoïdal ou bien carré [KYI<sup>+</sup>01] selon le type) dont la pulsation  $\omega_{pll}$  est fonction de la tension de commande provenant du filtre passe-bas tel que :

$$\omega_{pll} = \omega_{VCO} + K_0 u(t) \quad (4.16)$$

où  $\omega_{VCO}$  est la pulsation centrale qui définit la fréquence d'oscillation libre du VCO,  $K_0$  est le gain du VCO exprimé en  $\text{Hz} \cdot \text{V}^{-1}$  ou en  $\text{rad} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$ ,  $u(t)$  étant la tension de sortie du filtre  $GF(p)$ . Le réglage du gain  $K_0$  est un paramètre libre pour l'utilisateur. Plus  $K_0$  est grand, plus la plage de capture en fréquence de la PLL sera importante et moins le système à verrouillage de phase sera stable. Dans le cas de la machine AFM,  $\omega_{VCO}$  sera réglée à la fréquence de résonance libre  $\omega_0$  du cantilever avant chaque campagne de mesure. L. Nony [Non05] a étudié les effets de l'écart entre la pulsation  $\omega_{VCO}$ , réglée à la résonance  $\omega_0$  du cantilever loin de la surface, et la pulsation de résonance du cantilever près de la surface qui devient  $\omega_0 \sqrt{1+\Psi}$ . Il en résulte qu'un soin particulier doit être porté au réglage de  $\omega_{VCO}$  par l'expérimentateur sous peine de mélanger des effets dissipatifs à la mesure du signal d'écart en fréquence (voir chapitre 3 relation 3.38).

Pour un régime sinusoïdal, le signal de sortie du VCO est donné par :

$$y(t) = A_{pll} \cos(\omega_{pll} t + \phi_{pll})$$

où :

$$\omega_{pll} t = \omega_{VCO} t + K_0 \int_{-\infty}^t u(t') dt'$$

avec le déphasage de sortie  $\theta_s = K_0 \int_{-\infty}^t u(t') dt'$ . Ainsi, grâce à la transformée de Laplace, la fonction de transfert du VCO se traduit par :



$$\frac{\theta_s(p)}{U(p)} = \frac{K_0}{p} \quad (4.17)$$

### Fonction de transfert de la boucle

En tenant compte des fonctions de transfert des quatre blocs composant la PLL sur le schéma 4.11(a), la fonction de transfert en boucle ouverte est donnée par :

$$H_{BO}(p) = K_d F(p) G \frac{K_0}{p} \quad (4.18)$$

et en boucle fermée :

$$H_{BF}(p) = \frac{\theta_s(p)}{\theta_e(p)} = \frac{K_v}{\frac{p}{F(p)} + K_v} \quad (4.19)$$

avec le gain équivalent  $K_v = K_d K_0 G$  que l'on nomme aussi pulsation naturelle [Bes90] de la PLL.

De plus, en notant  $\theta_s = K_0 \int_{-\infty}^t u(t') dt' = \int_{-\infty}^t \Delta\omega_s(t') dt'$  et  $\theta_e = \int_{-\infty}^t \Delta\omega_e(t') dt'$ , on aboutit au schéma équivalent 4.11(b) de boucle à verrouillage en fréquence qui peut encore se simplifier avec le schéma suivant :

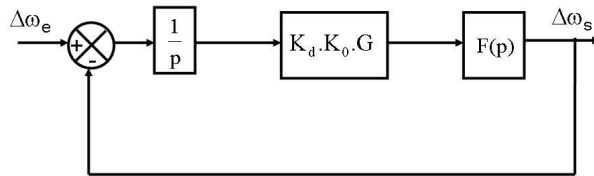


FIG. 4.12 – Modèle linéaire simplifié de la Boucle à verrouillage de Fréquence 4.11(b).

Celui-ci permet de constater que les fonctions de transfert boucle fermée pour la boucle à verrouillage de phase et la boucle à verrouillage en fréquence sont les mêmes et s'expriment par la relation 4.19 :  $H_{BF}(p) = \frac{\theta_s(p)}{\theta_e(p)} = \frac{\Delta\omega_s(p)}{\Delta\omega_e(p)}$

### Stabilité de la boucle

La stabilité de la boucle à verrouillage de phase dépend du type de filtre  $F(p)$ . Nous allons voir que le réglage du gain équivalent  $K_v$  permet de retrouver un système stable. Pour cela, utilisons l'expression 4.15 pour le filtre passe-bas  $F(p)$  dans la fonction de transfert boucle fermée 4.19. On aboutit à l'expression :

$$H_{BF}(p) = \frac{\Delta\omega_s(p)}{\Delta\omega_e(p)} = \frac{K_v}{p^3 \tau_2 \tau_1 + p^2 (\tau_2 + \tau_1) + p + K_v} \quad (4.20)$$

Le diagramme de Bode de la fonction de transfert 4.20 est représenté sur la figure 4.13(a) pour quatre valeurs différentes du gain équivalent  $K_v$ .

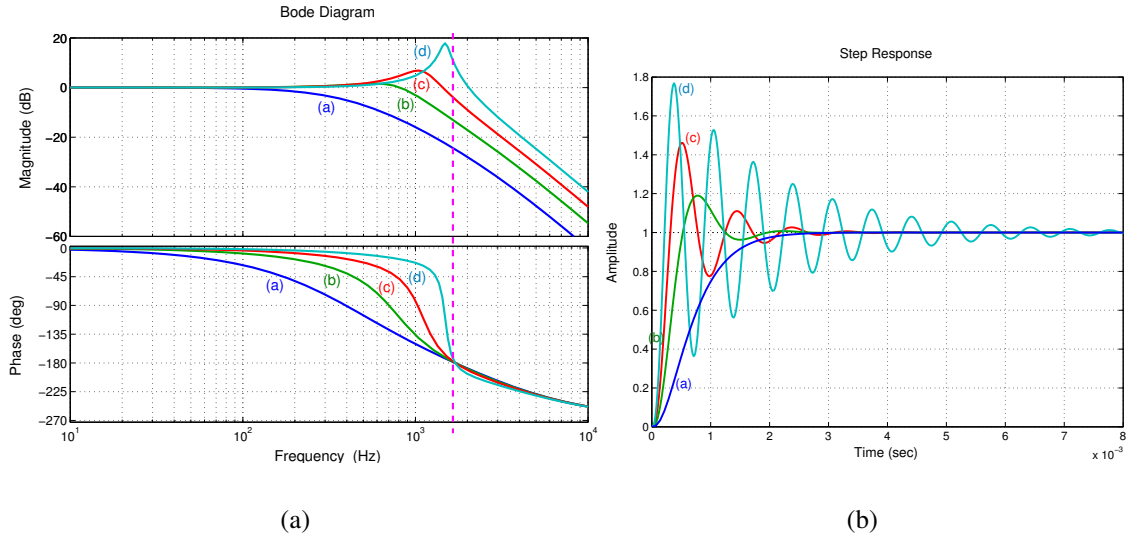


FIG. 4.13 – Diagrammes de Bode (a) et réponses indicielles (b) de la fonction harmonique boucle fermée  $H_{BF}(\omega)$  de la PLL.

Sur cette figure,  $G = 6$ ,  $K_d = 1$ ,  $\tau_1 = 160\mu\text{s}$  et  $\tau_2 = 55\mu\text{s}$  ont été déterminés expérimentalement. Les mesures sont précisées dans l'annexe C. Les quatre courbes correspondent respectivement aux quatre valeurs du facteur de conversion  $K_0$  du VCO : (a)  $K_0 = 220\text{Hz}\cdot\text{V}^{-1}$ , (b)  $K_0 = 700\text{Hz}\cdot\text{V}^{-1}$ , (c)  $K_0 = 1500\text{Hz}\cdot\text{V}^{-1}$  et (d)  $K_0 = 3000\text{Hz}\cdot\text{V}^{-1}$ .

Augmenter le facteur  $K_0$  permet à la boucle à verrouillage de phase d'augmenter sa plage de capture en fréquence. Cela est nécessaire, si l'excursion en fréquence du cantilever  $\omega = \omega_0 + \Delta\omega$  devient très grande due à une forte interaction conservative entre la pointe et la surface. En revanche, le système devient oscillant voir instable pour une valeur trop importante de  $K_0$  et donc par la même de  $K_v$ . Ce phénomène est illustré par la réponse indicelle sur la figure 4.13(b) avec les mêmes paramètres que la figure 4.13(a). Nous devons donc trouver un critère de stabilité pour le gain équivalent  $K_v$ .

On construit le tableau de Routh (page 44) à partir du dénominateur de 4.20 pour trouver une condition de stabilité sur la pulsation naturelle  $K_v$  :

$$K_v < \frac{\tau_2 + \tau_1}{\tau_2 \tau_1} \quad (4.21)$$

Ainsi, l'expérimentateur devra optimiser autant que possible le gain équivalent  $K_v$  de la boucle à verrouillage de phase pour avoir un système rapide mais stable.

#### 4.1.5 Le Contrôle Automatique de Distance (ADC)

La mesure de la dérive en fréquence  $\Delta f = \frac{\Delta\omega}{2\pi}$  du cantilever en interaction par un démodulateur de fréquence peut avoir soit un rôle passif, i.e. l'utilisateur visualise et enregistre cette mesure pour avoir des informations sur la surface observée avec une distance cantilever-surface constante, soit un rôle actif. Dans ce cas, ce signal est exploité par la machine AFM pour réguler la distance pointe-surface à une consigne en écart en fréquence  $\Delta f_c$  définie par l'utilisateur. En effet, la relation 3.38 établit clairement le lien

entre la force d'interaction, dépendante de la distance  $D$  pointe-surface, et la dérive  $\Delta\omega$  de la fréquence de résonance de l'oscillateur.

L'exploitation active du signal  $\Delta\omega$  sortant du démodulateur de fréquence est pratiquée par une troisième boucle de régulation en distance que nous nommerons *Boucle D*. Nous avons conceptualisé cette nouvelle boucle sur le schéma 4.14.

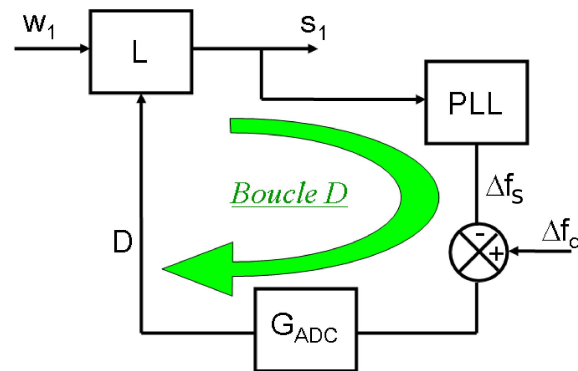


FIG. 4.14 – Boucle d'asservissement en distance.

On y reconnaît le bloc  $L$  qui représente l'oscillateur en interaction avec le substrat (page 67). L'écart en fréquence  $\Delta f = \frac{\Delta\omega}{2\pi}$  du signal oscillant émergent du bloc  $L$ , via une photodiode, est analysé par une PLL. Le signal mesuré  $\Delta f_s = \frac{\Delta\omega_s}{2\pi}$  par la PLL est comparé à une consigne d'écart en fréquence  $\Delta f_c$ . On obtient ainsi un signal d'erreur traité par un gain  $G_{ADC}$ . Comme on le voit sur la figure 4.15, ce gain est constitué d'un autre système Proportionnel-Intégrateur, comme pour l'AGC (page 4.6), pour obtenir le meilleur compromis stabilité-précision de la boucle. On y voit aussi une fonction de transfert du premier ordre avec une constante de temps  $\tau_{Piezo}$  symbolisant le temps de réaction, en boucle ouverte, de l'amplificateur haute tension du servo-mécanisme piézoélectrique qui pilote la distance cantilever-surface.

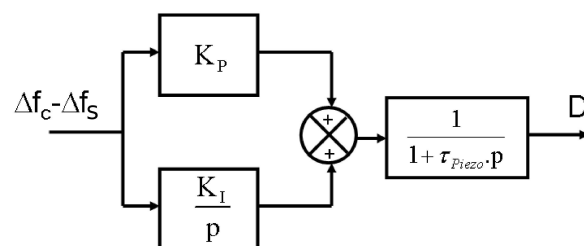


FIG. 4.15 – Modélisation du Contrôle Automatique de Distance (ADC).

Ce gain  $G_{ADC}$  transforme donc un signal d'erreur en fréquence en distance  $D$  dans l'interaction pointe-surface  $N$  contenu dans le bloc  $L$ . Dans la suite de ce paragraphe, nous considérerons directement le bloc  $N$  d'interaction déjà traité grâce à l'*approximation de l'équivalent harmonique* à la section 3.2.2 au lieu de reconsidérer le bloc  $L$  dans son

ensemble. Nous utiliserons donc la relation 3.38 entre la dérive en fréquence  $\Delta\omega$  et l'interaction conservative  $\Psi$  pour définir  $M$  tel que :

$$M = \frac{\Delta\omega}{D} = -\frac{\omega_0}{2D} \Psi \quad (4.22)$$

avec  $\Psi = \Psi(D, s_1)$   
et  $M = M(D, s_1)$

$s_1$  étant l'amplitude du signal d'oscillation du cantilever. Dans la relation 4.22, le signe moins provient du signe négatif du comparateur (voir figures 3.23 page 53 et 4.2 page 67) entre la force d'entretien  $w$  de l'oscillateur et le signal  $nl$  de la force d'interaction du bloc  $N$ . Ce signe moins dans le comparateur traduit une interaction attractive. Ainsi une force d'interaction pointe-surface attractive donne un gain  $M > 0$  car  $\Psi$  est négatif dans ce cas et une force d'interaction répulsive donne un gain  $M < 0$  car  $\Psi$  est positif dans ce cas.

En considérant le schéma 4.14, on aboutit à la fonction de transfert boucle fermée de la Boucle  $D$  du rapport entre l'écart en fréquence  $\Delta f_s$  mesuré par le démodulateur et la consigne  $\Delta f_c$  fixée par l'utilisateur :

$$\frac{\Delta f_s}{\Delta f_c} = \frac{K_v M (p K_p + K_I)}{\left(\frac{p}{F(p)} + K_v\right) p (p \tau_{Piezo} + 1) + K_v M (p K_p + K_I)} \quad (4.23)$$

### Stabilité de la boucle

Des réglages  $K_v$ ,  $K_p$  et  $K_I$  et du filtre  $F(p)$  dépendra la stabilité du signal d'écart en fréquence  $\Delta f_s$  mesuré par le démodulateur de fréquence. Mais on constate également dans l'expression 4.23 que la stabilité de la Boucle  $D$  va dépendre aussi de la distance pointe surface par le biais du gain  $M$ . Ce gain  $M$  d'interaction fait partie intégrante de la boucle de régulation en distance. Pour une distance  $D$  infinie, ce gain  $M$  est nul : la boucle est alors ouverte.

Nous allons étudier la stabilité de cette boucle en fonction des paramètres utilisateurs  $K_v$ ,  $K_p$  et  $K_I$  pour différentes valeurs de distance  $D$  pointe-surface. Nous allons utiliser la construction du tableau de Routh (page 44) pour mener à bien cette analyse qualitative. Pour simplifier le calcul des coefficients du tableau nous considérerons la constante de temps  $\tau_{Piezo}$  nulle. Un calcul rigoureux tenant compte de ce temps de réaction montre que cela ne change en rien les conclusions qualitatives de cette étude. Dans ce cas, en utilisant l'expression 4.15 pour le filtre  $F(p)$  de la PLL, on a :

$$\frac{\Delta f_s}{\Delta f_c} = \frac{K_v M (p K_p + K_I)}{p^4 \tau_1 \tau_2 + p^3 (\tau_1 + \tau_2) + p^2 + p K_v (1 + K_p M) + K_v M K_I} \quad (4.24)$$

qui nous donnent les inégalités de stabilité du système de régulation en distance :

$$K_P < \left( \frac{\tau_1 + \tau_2}{K_V \tau_1 \tau_2} - 1 \right) \frac{1}{M} \quad (4.25)$$

et

$$K_I < \frac{(1 + K_P M) (\tau_1 + \tau_2 - K_V (1 + K_P M) \tau_1 \tau_2)}{M (\tau_1 + \tau_2)^2} \quad (4.26)$$

L'inégalité de stabilité 4.21 pour la boucle à verrouillage de phase utilisée dans l'expression 4.25 nous donne la condition de stabilité  $M > 0$ . En d'autre terme, **une force conservative globalement attractive entre la pointe et la surface est une condition nécessaire à la stabilité de la boucle de régulation en distance.**

Il existe cependant des exceptions où l'automatique de la boucle de régulation en distance est conçue pour fonctionner pour des interactions répulsives [GBHM01].

Nous avons tracé l'autre condition nécessaire sur le gain Intégrateur  $K_I$  pour une interaction de van der Waals (relation 3.22 avec un rayon de 20 nm, une amplitude  $s_1 = 5$  nm et  $H = 1$  eV) avec les mêmes paramètres que la figure 4.13 pour la PLL. Les paramètres de l'oscillateur sont les mêmes que ceux de la figure 4.5 page 69. La figure 4.16 met en évidence les domaines de stabilité de l'asservissement en distance pour différents couples de valeurs  $(K_P, K_I)$ . Les quatre courbes noires notées  $(a_n)$  sont tracées pour une valeur de  $K_V = 1320 \text{ rad.s}^{-1}$ . Les quatre courbes rouges en traits discontinus notées  $(b_n)$  sont tracées pour une valeur de  $K_V = 2640 \text{ rad.s}^{-1}$ . La numérotation de 1 à 4 correspondent à quatre distances  $D$  pointe-surface différentes : les courbes  $(x_1)$  correspondent à une distance  $D = 10$  nm, les courbes  $(x_2)$  correspondent à une distance  $D = 9$  nm, les courbes  $(x_3)$  correspondent à une distance  $D = 8$  nm et les courbes  $(x_4)$  correspondent à une distance  $D = 7$  nm.

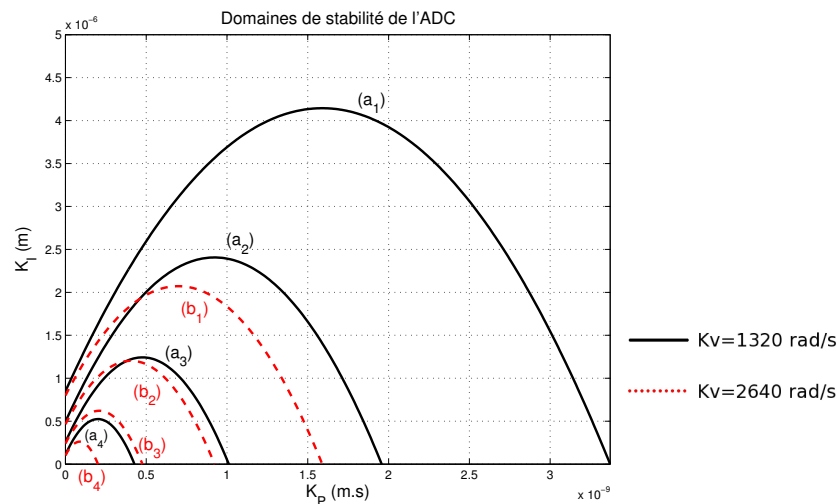


FIG. 4.16 – Domaines de stabilité de l'asservissement en Distance en fonction de  $K_P$ ,  $K_I$ ,  $K_V$  (voir relation 4.19) et de la distance  $D$  cantilever-surface.

L'aire située au-dessus d'une courbe parabolique correspond à la zone d'instabilité du système, et la surface décrite au-dessous de la courbe correspond aux couples de valeurs

( $K_P$ ,  $K_I$ ) permettant de garder un asservissement en distance convergeant. On remarque que plus la sonde est proche de la surface, plus l'aire de stabilité de l'asservissement diminue. Il faut donc diminuer les gains  $K_P$  et  $K_I$  pour éviter l'apparition d'instabilités lors de l'approche de la sonde vers la surface. Mais dans un même temps, nous avons vu (page 43) que pour des valeurs trop faibles des gains Proportionnel-Intégrateur, le système a un temps de réaction trop lent et peut même ne pas atteindre la consigne de fonctionnement.

Pour compliquer la situation, on peut montrer que plus la frontière zone instable/stable, dépendante de la distance  $D$ , se rapproche d'un couple initialement stable de coordonnées fixes ( $K_P$ ,  $K_I$ ) plus le temps de réaction du système va diminuer jusqu'à obtenir un système oscillant et instable une fois la frontière franchie.

Ce phénomène est illustré sur les simulations numériques 4.17 (a), (b), (c) et (d) réalisées avec l'AFM virtuel que nous décrirons au paragraphe 4.3. Dans les quatre cas, pour un couple de valeurs ( $K_P$ ,  $K_I$ ) constant, on étudie la réponse indicielle en fréquence (courbes rouges) du système stabilisé sur une consigne en écart en fréquence  $\Delta f_c$ . L'interaction est de type attractive entre la pointe et la surface avec les mêmes paramètres de sonde que la figure 4.16. On perturbe donc la distance pointe-surface  $D$  avec un signal carré de 0.5 angströms d'amplitude et de période 50 ms (en traits discontinus bleus) et on observe la réponse en fréquence du système pour rétablir la consigne  $\Delta f_c$ . Respectivement pour les sous-figures (a), (b), (c) et (d) on a  $\Delta f_c$  égal à -14 Hz, -34 Hz, -64 Hz et -84 Hz. Plus  $\Delta f_c$  sera grand en valeur absolue, plus la distance pointe-surface  $D$  sera petite et donc plus la frontière de stabilité de l'asservissement se rapproche dangereusement du couple de valeur ( $K_P$ ,  $K_I$ ) constant. Cela se traduit au début ((a) à (b)) par une diminution du temps de réponse du système. Ensuite ((c) et (d)), le système commence à devenir oscillant, ce qui est à éviter.

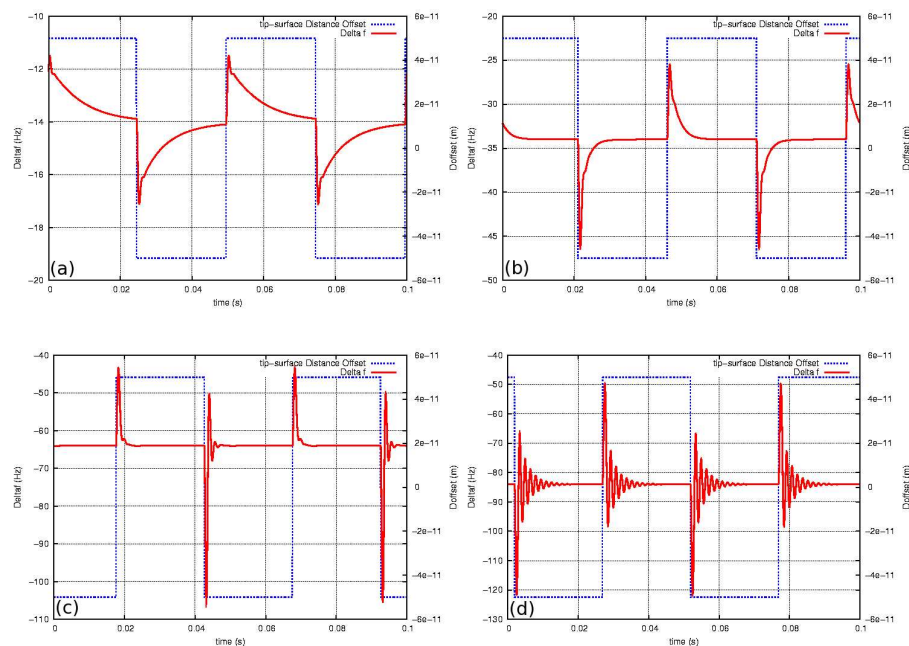


FIG. 4.17 – Réponses indicielles de l'asservissement en Distance en fonction de  $\Delta f_c$ .

Pour résumer, nous avons vu qu'établir une relation simple de réglage des gains de boucle pour l'expérimentateur face à un AFM en mode Non-Contact est utopique. Expérimentalement, il devra suivre visuellement, avec un oscilloscope, les signaux d'erreur du démodulateur de fréquence et du circuit de régulation de distance pour adapter au mieux les réglages des gains  $K_P$ ,  $K_I$  et  $K_V$  afin de garder le système stable bien qu'assez vélocé pour réagir rapidement aux corrugations et accidents de la surface.

## 4.2 Les Bruits

Les limites de détection de l'AFM sont dues aux différentes perturbations intrinsèques ou extrinsèques à la machine. L'objet de cette partie sera d'analyser le comportement des boucles de régulation de la machine AFM face à ces perturbations.

Dans ces perturbations on retrouve des bruits de diverses origines. Certains sont inévitables à cause de leurs origines liées à la présence de la sonde (bruit Brownien thermique, bruit de Grenaille du photodétecteur, ...), d'autres apparaissent dans le processus du traitement du signal (bruits électroniques), et enfin certains sont liés à l'environnement macroscopique dans lequel baigne la chaîne de mesure (bruits mécanique basse fréquence, bruit  $\frac{1}{f}$ , ...). Le recensement de toutes les origines de bruits dans la machine AFM a fait l'objet de plusieurs études [YAMQ98, Sar91, Tam05, AGHR91]. Nous nous appuyerons sur ces différentes études pour ne prendre en compte que les principales sources de bruits dans un Microscope à Force Atomique avec un système de détection optique [Sar91] à diode laser (ou LED) [Paw87, YAMQ98] par déflexion.

### 4.2.1 Sources de bruits

Les principales sources de bruit d'un tel système sont au nombre de quatre en recouper les études faites dans les références [CR02, Tam05, YAMQ98, Sar91, Kar00, Gie03, RWGM00].

#### Bruit du cantilever

Le cantilever est un système mécanique qui peut être vu comme un oscillateur dissipant de l'énergie. Cette dissipation d'énergie est directement corrélée au facteur de qualité  $Q_c$  du système. Les systèmes qui dissipent de l'énergie sont nécessairement des sources de bruits, la réciproque est souvent vraie [CW51]. Ce principe provient du *théorème fluctuation-dissipation* à l'équilibre mieux connu dans la relation des circuits électriques où il est nommé théorème de Nyquist-Johnson [Nyq28].

On applique le *théorème fluctuation-dissipation* au résonateur mécanique avec l'énergie thermique  $k_B T \gg \hbar \omega$  comme seule source de fluctuations. Ces fluctuations engendrent un bruit thermique ayant comme origine le couplage entre l'oscillateur et son milieu. Les forces thermiques, que nous noterons  $F_{th}$ , sont non-corrélées pour des échelles de temps plus importantes que le temps moyen de collision intermoléculaire. Ainsi, en utilisant le *théorème d'équipartition* égalisant l'énergie potentielle moyenne du système avec l'énergie thermique sur un degré de liberté de l'oscillateur [Kar00], on aboutit à la fonction d'autocorrélation de ce bruit de force  $\langle F_{th}(t)F_{th}(t') \rangle = S_F^{th} \delta(t - t')$  [Tam05] avec la densité spectrale de bruit blanc (en  $N^2 \cdot rad^{-1} \cdot s$ ) :

**Jérôme Polesel Maris**

$$S_F^{th} = \frac{2k_B T k_c}{\pi Q_c \omega_0} \quad (4.27)$$

Par la même, ce résultat multiplié par la fonction harmonique de l'oscillateur, déduite de la fonction de transfert 3.20 avec  $p \rightarrow j\omega$ , permet d'obtenir la densité spectrale de bruit thermique en amplitude  $S_A^{th}$  de l'oscillateur mécanique libre (en  $\text{m}^2 \cdot \text{rad}^{-1} \cdot \text{s}$ ) :

$$S_A^{th} = \frac{1}{k_c^2} \frac{S_F^{th}}{\left(1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2}\right)^2 + \left(\frac{\omega}{Q_c \omega_0}\right)^2} \quad (4.28)$$

### Bruit de grenaille (“shot-noise”) de la photodiode

La détection et la conversion en courant électrique de l'oscillation du cantilever se font via une photodiode à quatre quadrants. La détection de lumière à travers les quadrants de la photodiode produit le processus quantique d'absorption de photons à un niveau d'énergie  $h\nu$ , dépendant du gap du matériau de la photodiode, et de création d'électrons libres responsable de la création d'un photocourant  $I_{ph}$ . Dû à la nature discrète et aléatoire du processus de création d'électrons, le photocourant est bruité [BZWT95, OR97]. Ce bruit associé à la valeur finie de la charge de l'électron  $q_e$  est appelé bruit de grenaille (ou “shot-noise” en anglais). Selon [ME89], on peut considérer ce bruit blanc jusqu'à 1 GHz avec la densité spectrale de bruit en courant :  $I_{ShotNoise} = 2q_e I_{ph}$  (en  $\text{A}^2 \cdot \text{Hz}^{-1}$ ).

Ce photocourant est converti en tension par un amplificateur transimpédance [Mal02, ME89] défini par sa résistance  $R_{trans}$  de conversion. On obtient donc la phototension de sortie  $V_{ph} = R_{trans} I_{ph}$  avec la densité spectrale de bruit en tension totale, pour les quatre quadrants :  $V_{ShotNoise} = \frac{1}{2} q_e V_{ph} R_{trans}$  (en  $\text{V}^2 \cdot \text{Hz}^{-1}$ ).

Le système de détection optique de la déviation du cantilever permet de convertir une donnée en unité de distance, l'oscillation de la poutre, en une phototension via le système photodiode+amplificateur transimpédance exploitable par l'électronique en aval de la chaîne de mesure. Un facteur à la fois géométrique [Sar91] et électronique va donc caractériser le système de détection. Nous nommerons  $G_{opt}$  (en  $\text{nm} \cdot \text{V}^{-1}$ ) ce facteur donnant la sensibilité du système. On trouvera les mesures de cette sensibilité à la page 191 dans l'annexe B. Ainsi ce gain de conversion permet d'obtenir la densité spectrale de bruit en amplitude due au bruit de grenaille (en  $\text{m}^2 \cdot \text{rad}^{-1} \cdot \text{s}$ ) :

$$S_A^{ShotNoise} = \frac{1}{4\pi} q_e V_{ph} R_{trans} G_{opt}^2 \quad (4.29)$$

Cette relation tient compte du circuit électronique du système de détection optique, composé de quatre préamplificateurs courant-tension pour les quatre quadrants de photodiode, de notre microscope RT-AFM OMICRONNANOTECHNOLOGY détaillé dans le manuel des schémas électroniques fourni par le fabricant [Omi]. Les quatre densités spectrales de bruit, pour chaque quadrant, sont sommées en tenant compte du mode *force normale* et multipliées par les gains de la chaîne de mesure.



### Bruit du convertisseur courant-tension

Comme nous venons de le voir au paragraphe précédent, ce convertisseur courant-tension, nommé aussi amplificateur transimpédance, converti le photocourant  $I_{ph}$  de la photodiode en phototension  $V_{ph} = R_{trans} I_{ph}$  via sa résistance  $R_{trans}$  de conversion. En général, la valeur de cette résistance est importante (de l'ordre du mégaOhm) pour obtenir une tension suffisamment grande pour être exploitable. Mais cette résistance  $R_{trans}$ , vue comme une impédance réelle, est une source de bruits dont la densité spectrale en tension est donnée par le *théorème fluctuation-dissipation*.

Pour les quatre quadrants de la photodiode, en utilisant le facteur  $G_{opt}$ , on obtient la densité spectrale de bruit en amplitude due au bruit du transimpédance (en  $m^2 \cdot rad^{-1} \cdot s$ ) :

$$S_A^{Johnson} = \frac{1}{2\pi} k_B T R_{trans} G_{opt}^2 \quad (4.30)$$

Cette relation tient compte du circuit électronique du système de détection optique, composé de quatre préamplificateurs courant-tension pour les quatre quadrants de photodiode, de notre microscope RT-AFM OMICRONNANOTECHNOLOGY détaillé dans le manuel des schémas électroniques fourni par le fabricant [Omi]. Les quatre densités spectrales de bruit, pour chaque quadrant, sont sommées en tenant compte du mode *force normale* et multipliées par les gains de la chaîne de mesure.

### Bruit en $\frac{1}{f}$

Ce bruit provient de phénomènes stochastiques à très basse fréquence. En AFM statique, dit Contact, le signal d'imagerie est donné par la composante continue de déflexion du cantilever. Ce signal est donc très sensible à ce bruit basse fréquence [Gie03]. En AFM dynamique, ce bruit basse fréquence est évité car la fréquence de résonance  $f_0$  du cantilever est supérieure à la fréquence de coupure de ce bruit en  $\frac{1}{f}$ . Avec un filtrage passe-bande autour de  $f_0$ , seule la densité spectrale de bruit blanc est intégrée dans la bande passante du résonateur. Ainsi, nous allons ignorer ce bruit dans la suite de cette étude en AFM dynamique, la fréquence de résonance du cantilever est suffisamment élevée pour que ce bruit devienne négligeable.

#### 4.2.2 Bruits dans le Contrôle Automatique de Gain (AGC)

Comme nous l'avons vu au paragraphe 4.1.3, le signal d'erreur  $w_1$  du contrôle automatique de gain, appelé aussi signal d'excitation, de dissipation ou de "damping" (en anglais), est un signal de force qui permet d'entretenir l'oscillation du cantilever pour que son amplitude d'oscillation  $s_1$  converge vers une consigne en amplitude  $e_0$  définie par l'utilisateur.

Comme le montre la figure 4.18, nous avons inclus dans cette régulation d'amplitude deux perturbations. La perturbation en force  $w_p$  correspond au bruit thermique de force du cantilever avec la densité spectrale 4.27 tel que  $|w_p|^2 = S_F^{th}$ . La perturbation en amplitude  $s_p$  correspond au bruit de grenaille de la photodiode avec la densité spectrale 4.29 et au bruit de l'amplificateur transimpédance avec la densité spectrale 4.30 tel que  $|s_p|^2 = S_A^{ShotNoise} + S_A^{Johnson}$ .

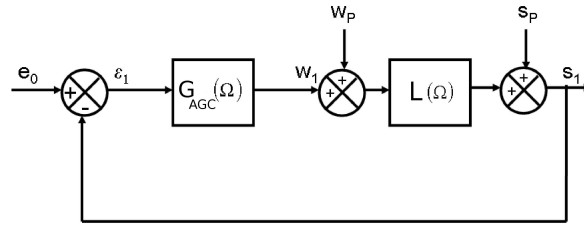


FIG. 4.18 – Schématisation des bruits de force  $w_p$  et d'amplitude  $s_p$  du circuit de régulation d'amplitude.

A partir des fonctions de transfert adéquates, nous allons voir comment ces bruits blancs se retrouvent dans le signal d'excitation du cantilever et sur le signal de sortie de la photodiode en fonction des réglages des gains de la boucle de régulation en amplitude. Nous reprendrons l'expression 4.6 pour le bloc  $G_{AGC}$  et l'expression 4.7 pour le bloc  $L$  de l'oscillateur. Nous considérerons la consigne  $e_0$  nulle pour établir les fonctions de transfert boucle fermée.

### Bruit du signal d'excitation

On établit la fonction harmonique boucle fermée du signal d'excitation pour la perturbation en force  $w_p$  :

$$\frac{w_1}{w_p} = -\frac{G_{AGC}L}{1 + G_{AGC}L}$$

qui donne la densité spectrale de bruit de force en boucle fermée :

$$|w_1|^2 = \left| \frac{G_{AGC}L}{1 + G_{AGC}L} \right|^2 S_F^{th} \quad (4.31)$$

De la même manière, on établit la fonction harmonique boucle fermée du signal d'excitation pour la perturbation en amplitude  $s_p$  :

$$\frac{w_1}{s_p} = -\frac{G_{AGC}}{1 + G_{AGC}L}$$

qui donne la densité spectrale de bruit de force en boucle fermée :

$$|w_1|^2 = \left| \frac{G_{AGC}}{1 + G_{AGC}L} \right|^2 \left( S_A^{ShotNoise} + S_A^{Johnson} \right) \quad (4.32)$$

La figure 4.19(a) représente la densité spectrale 4.31 avec le bruit thermique de force  $S_F^{th}$  du cantilever comme source avec une température  $T = 300\text{K}$ . La figure 4.19(b) représente la densité spectrale 4.32 avec les bruits d'amplitude  $S_A^{ShotNoise}$  et  $S_A^{Johnson}$  comme sources. Pour les paramètres de ces bruits, nous avons utilisé les données constructeur (OMICRON NANOTECHNOLOGY<sup>TM</sup>) tel que  $R_{trans} = 500\text{kOhms}$ ,  $V_{ph} = 1\text{V}$  et le paramètre  $G_{opt} = 400\text{nm.V}^{-1}$  mesuré expérimentalement (Cf. annexe B) sur notre machine. Pour les deux figures, les paramètres du cantilever sont :  $\omega_0 = 2\pi 60400\text{ rad.s}^{-1}$ ,  $Q_c = 10000$ ,  $k_c = 6\text{ N.m}^{-1}$  avec  $\tau_D = 2\text{ ms}$ ,  $\theta = \frac{\pi}{2}$  radians.

**Jérôme Polesel Maris**

Ces figures 4.19 montrent que le gain Proportionnel  $K_P$  de l'AGC joue un rôle prédominant, par rapport au gain Intégrateur  $K_I$ , en ce qui concerne l'amplification du bruit du signal d'excitation du cantilever. L'utilisateur devra donc éviter une valeur trop importante du gain Proportionnel  $K_P$  sous peine d'avoir un signal d'excitation trop bruité pour détecter des phénomènes fins de dissipation sur une surface. Pire, on voit qu'augmenter  $K_P$  de manière démesurée crée une pointe de résonance accusée risquant de faire osciller la boucle.

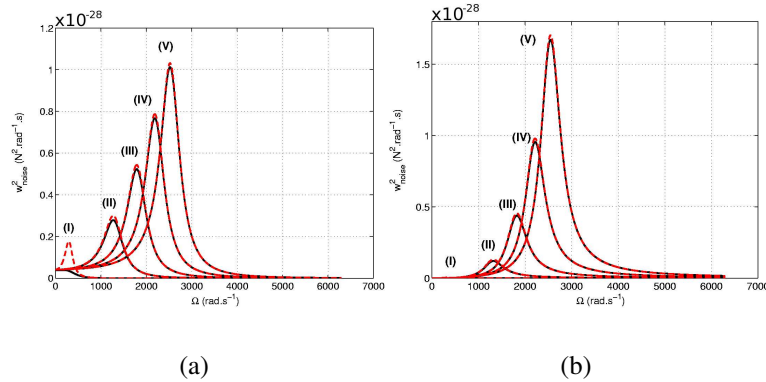


FIG. 4.19 – Bruits de force dus : (a) au bruit thermique de force  $w_p$  du cantilever ( $T = 300\text{K}$ ) et (b) aux bruits d'amplitude  $s_p$  pour  $K_I$  nul (courbes noires) et  $K_I = 10\text{N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  (courbes en traits discontinus rouges). Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de  $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$  et  $0.4\text{N.m}^{-1}$ .

Les figures 4.20 comparent les densités spectrales du signal d'excitation pour deux types de cantilevers. Les paramètres sont les mêmes que ceux des figures 4.19.

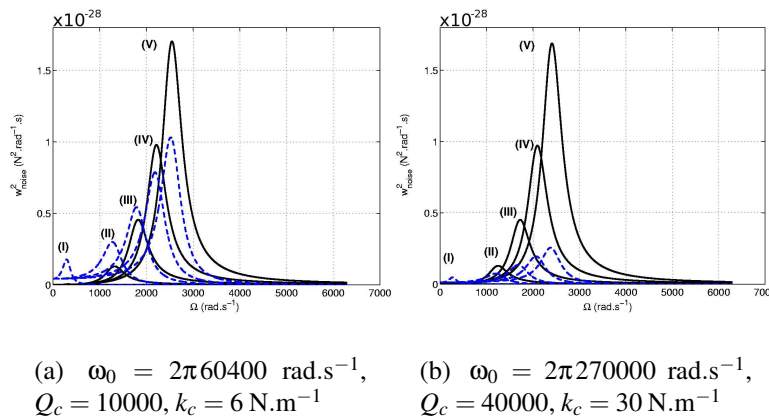


FIG. 4.20 – Bruits de force dus au bruit thermique de force  $w_p$  du cantilever ( $T = 300\text{K}$ ) (courbes en traits discontinus bleus) et aux bruits d'amplitude  $s_p$  (courbes noires) pour  $K_I = 1\text{N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ . Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de  $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$  et  $0.4\text{N.m}^{-1}$ .

Ces figures montrent qu'un cantilever plus raide avec une fréquence de résonance plus haute et donc avec un facteur de qualité plus grand permet de réduire de façon significative le bruit du signal d'excitation dû au bruit thermique de force seulement. Le bruit du signal d'excitation dû aux bruits du système photodiode et transimpédance reste dominant.

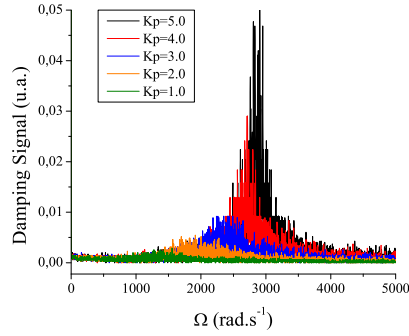


FIG. 4.21 – Mesure expérimentale du spectre de bruits de force sur le signal d'erreur (“Damping Signal”) de l'AGC (Nanosurf™) pour différentes valeurs de  $K_P$  à température ambiante.  $K_I$  étant défini à une valeur fixe par le constructeur et non-connue par l'utilisateur. Les paramètres expérimentaux de la sonde sont :  $f_c = 260\text{kHz}$ ,  $Q_c = 39600$ ,  $k_c = 37\text{N.m}^{-1}$ .

Ces calculs ont été comparés avec les résultats de simulations numériques. Le bon accord obtenu valide les fonctions harmoniques analytiques établies.

La figure 4.21 superpose plusieurs spectres expérimentaux de bruit du signal d'excitation pour différentes valeurs du gain Proportionnel  $K_P$  de l'AGC (sans unité). La comparaison de l'évolution de ces courbes expérimentales avec celles tiré du modèle 4.18 est satisfaisante.

### Bruit en sortie de photodiode

On établit la fonction harmonique boucle fermée du signal d'amplitude  $s_1$  pour la perturbation en force  $w_p$  :

$$\frac{s_1}{w_p} = \frac{L}{1 + G_{AGC}L}$$

qui donne la densité spectrale de bruit de force en boucle fermée :

$$|s_1|^2 = \left| \frac{L}{1 + G_{AGC}L} \right|^2 S_F^{th} \quad (4.33)$$

Cette densité spectrale de bruit est tracée sur la figure 4.22 pour différentes valeurs du gain  $K_P$  dans les cas où le gain  $K_I$  est nul ou non-nul. Les paramètres sont les mêmes que ceux des figures 4.19.

Cette figure 4.22 montre que le gain Proportionnel  $K_P$  de l'AGC joue un rôle prédominant, par rapport au gain Intégrateur  $K_I$ , en ce qui concerne la diminution du bruit du signal d'amplitude du cantilever. Si on revient sur les figures 4.19, on remarque le rôle

antagoniste du gain Proportionnel  $K_P$ . L'utilisateur devra en définitive trouver un compromis de réglage du gain  $K_P$  : pour avoir une amplitude  $s_1$  d'oscillation du cantilever avec moins de bruit il faudra augmenter ce gain, pour avoir un signal d'excitation  $w_1$  du cantilever avec moins de bruit il faudra réduire ce gain.

Remarquons qu'en boucle ouverte, c'est à dire  $G_{AGC} = 0$ , on retrouve avec la relation 4.33 la densité spectrale de bruit thermique en amplitude  $S_A^{th}$  de l'oscillateur mécanique libre définie par la relation 4.28.

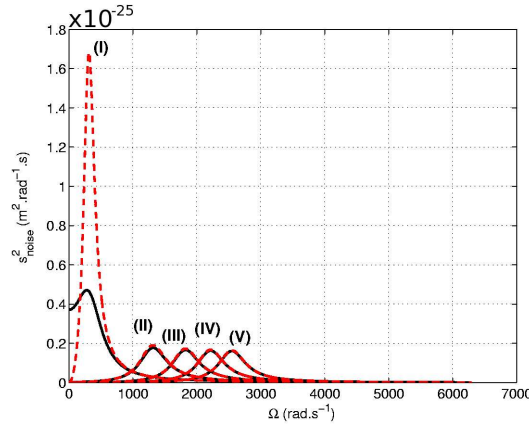
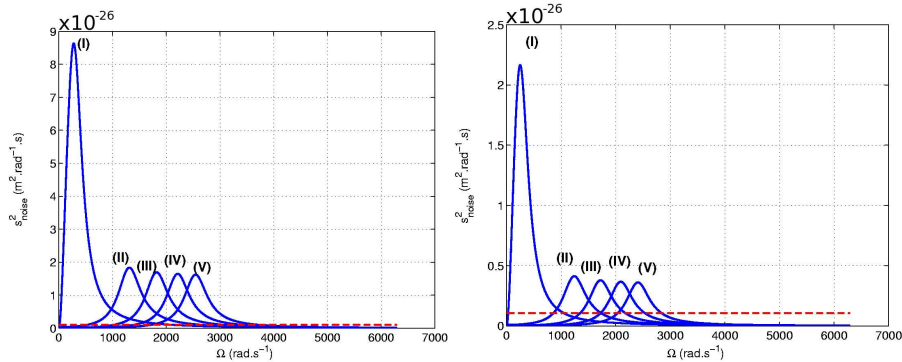


FIG. 4.22 – Bruit d'amplitude dû au seul bruit thermique de force  $w_p$  du cantilever pour  $K_I$  nul (courbes noires) et  $K_I = 10 \text{ N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  (courbes en traits discontinus rouges) . Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de  $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$  et  $0.4 \text{ N.m}^{-1}$ .

Les figures 4.23 comparent les densités spectrales de bruit du signal d'amplitude  $s_1$  pour deux types de cantilevers. Les paramètres sont les mêmes que ceux des figures 4.19.



(a)  $\omega_0 = 2\pi 60400 \text{ rad.s}^{-1}$ ,  $Q_c = 10000$ ,  $k_c = 6 \text{ N.m}^{-1}$

(b)  $\omega_0 = 2\pi 270000 \text{ rad.s}^{-1}$ ,  $Q_c = 40000$ ,  $k_c = 30 \text{ N.m}^{-1}$

FIG. 4.23 – Bruits d'amplitude dus au bruit thermique de force  $w_p$  du cantilever ( $T = 300\text{K}$ ) (courbes bleues) et aux bruits d'amplitude  $s_p$  (ligne en traits discontinus rouges) pour  $K_I = 1 \text{ N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$  . Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de  $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$  et  $0.4 \text{ N.m}^{-1}$ .

Ces figures montrent qu'un cantilever plus raide avec une fréquence de résonance plus haute et donc avec un facteur de qualité plus grand permet de réduire de façon significative le bruit du signal d'amplitude d'oscillation dû au bruit thermique de force seulement.

Pour résumer ce paragraphe, nous avons démontré le rôle antagoniste du gain Proportionnel  $K_P$  du Contrôle Automatique de Gain sur les bruits du signal d'excitation du cantilever et du signal d'amplitude d'oscillation. Pour réduire ces deux bruits dans le même temps, l'utilisateur aura intérêt à utiliser un cantilever raide avec une fréquence de résonance plus haute et donc avec un facteur de qualité plus grand.

### 4.2.3 Bruit en sortie du démodulateur de fréquence

La fonction de transfert de la boucle à verrouillage de phase 4.19 et 4.20 établie au paragraphe 4.1.4 nous a permis de mettre en évidence le filtrage passe-bas de ce bloc, tracé sur le diagramme de Bode 4.13(a).

Ce démodulateur de fréquence reçoit le signal oscillatoire du cantilever venant de la photodiode. Comme nous l'avons vu, ce signal est contaminé par le bruit thermique du cantilever et le bruit d'amplitude du système photodiode+amplificateur transimpédance. Ce démodulateur va traduire ce bruit d'amplitude total, que l'on note  $b(t)$ , en gigue ou bruit de phase [HL98, LH00] tel que :

$$s_1 \sin(\omega_0 t + \theta) + b(t) = s_1 \sin(\omega_0 t + \theta + \beta(t))$$

Cette correspondance entre bruit d'amplitude et bruit de phase est clairement établie dans les références [Bla76, CR02]. La figure 4.24 illustre cette équivalence entre bruit d'amplitude et bruit de phase quand celui-ci traverse la PLL. En effet, ce diagramme se situe dans l'espace  $\omega_0$  quand la PLL est verrouillée sur le signal entrant  $s_1 \sin(\omega_0 t + \theta)$ . Dans ce cas, le schéma équivalent du démodulateur devient celui de la figure 4.11(a) où  $\Delta\theta$  traduit le déphasage entre le signal entrant et le signal du VCO. On note  $r$  la norme du bruit avec  $r^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} S_A d\Omega$ ,  $S_A$  étant la densité spectrale de bruit en amplitude que l'on intègre sur tout l'espace des pulsations  $\Omega$  autour de  $\omega_0$  pour avoir la variance selon le théorème de Parseval [Bes90]. Cette norme  $r$  peut être décomposée en deux contributions : en phase avec la projection  $b(t) = r \cos \delta\varphi(t)$  donnant le bruit en amplitude, et en quadrature avec la projection  $a(t) = r \sin \delta\varphi(t)$ ,  $\delta\varphi(t)$  étant l'argument aléatoire du bruit. Le bruit de phase est alors donné par  $\beta(t) \cong \frac{a(t)}{s_1} = \frac{r \cos \delta\varphi(t)}{s_1}$  dans le cas  $r \ll s_1$ . La moyenne temporelle de cette quantité élevée au carré permet d'obtenir la variance en bruit de phase :

$$\langle \beta^2(t) \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} S_A d\Omega}{2 |s_1|^2} \quad (4.34)$$

donnant, en dérivant par rapport à  $\Omega$ , la densité spectrale  $\phi_P$  du bruit de phase :

$$\phi_P = \frac{S_A}{2 |s_1|^2} \quad (4.35)$$

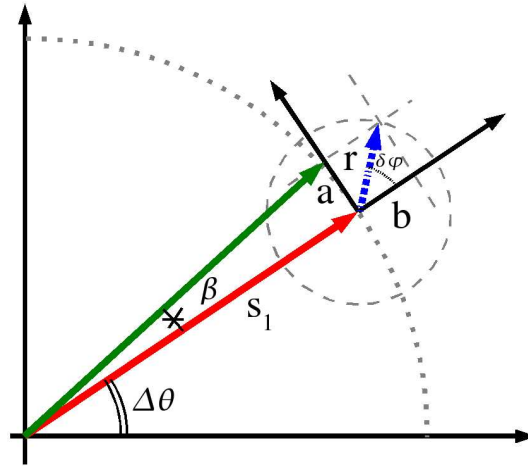


FIG. 4.24 – Diagramme tournant dans l'espace  $\omega_0$  quand la PLL est verrouillée (voir figure 4.11(a)).

La densité spectrale de bruit en amplitude  $S_A$  est donnée par :

$$S_A = S_A^{ShotNoise} + S_A^{Johnson} + \left| \frac{L}{1 + G_{AGC}L} \right|^2 S_F^{sh} \quad (4.36)$$

Cleland et al. [CR02] montrent aussi que les fluctuations de phase peuvent être aussi vues comme des fluctuations en fréquence. On a donc la densité spectrale  $\phi_{\delta f}$  de bruit en fréquence équivalente (en  $\text{rad.s}^{-1}$ ) :

$$\phi_{\delta f} = \Omega^2 \phi_P = \Omega^2 \frac{S_A}{2 |s_1|^2} \quad (4.37)$$

$\Omega = \omega - \omega_0$  étant la pulsation considérée autour du pic du signal de référence à la pulsation  $\omega_0$ .

On voit que pour réduire le bruit en fréquence, l'utilisateur devra travailler avec une grande amplitude d'oscillation  $s_1$  du cantilever. Cette densité spectrale  $\phi_{\delta f}$  de bruit en fréquence intégrée sur la bande passante  $BW$  du démodulateur donne l'écart type de bruit en fréquence (en Hz) :

$$\gamma = \sqrt{\frac{2\pi\phi_P}{3}} BW^{1.5} = \sqrt{\frac{2\pi S_A}{6 |s_1|^2}} BW^{1.5} \quad (4.38)$$

Cette dépendance du bruit en fréquence en  $BW^{1.5}$  a été prévue par [DSB97, AGHR91] et vérifiée expérimentalement par [Gie03]. Cette dépendance du bruit en puissance 1.5 de la bande passante n'est pas anodine car elle marque une réelle différence avec la microscopie à effet tunnel où le bruit en distance est définie en puissance 0.5 de la bande passante [Gie03]. Cela signifie que l'AFM dynamique a une sensibilité plus marquée sur la vitesse de balayage d'une surface et mérite une attention particulière pour avoir un bon fonctionnement de la régulation en distance.

En utilisant la fonction de transfert de la boucle à verrouillage de phase 4.19, la densité spectrale de bruit en fréquence en sortie du démodulateur s'exprime :

**Jérôme Polesel Maris**

$$|\Delta f_S|^2 = \left| \frac{K_v}{\frac{p}{F(p)} + K_v} \right|^2 \phi_{\delta f} \quad (4.39)$$

#### 4.2.4 Bruit en distance dans le Contrôle Automatique de Distance (ADC)

Au paragraphe 4.1.5, nous avons vu que le signal d'erreur du Contrôle Automatique de Distance correspond à un signal de distance  $D$  permettant de piloter, via un servomécanisme piézoélectrique, la distance entre le cantilever et la surface pour faire converger la dérive en fréquence  $\Delta f_{s1}$  de la fréquence de résonance  $f_0 = \frac{\omega_0}{2\pi}$  du cantilever vers une consigne  $\Delta f_c$  définie par l'utilisateur.

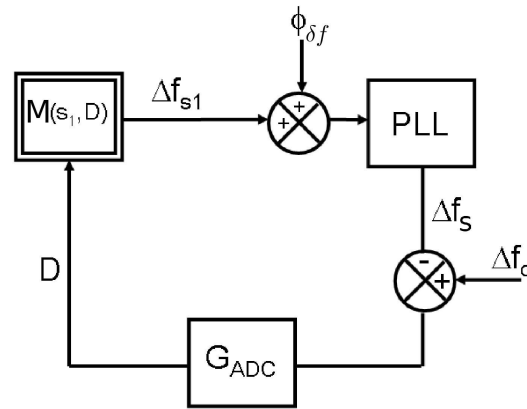


FIG. 4.25 – Schématisation du bruit de phase (ou de fréquence)  $\phi_P$  sur le circuit de régulation de distance.

Le schéma 4.25 de la boucle de régulation en distance inclut la densité spectrale de bruit en fréquence  $\phi_{\delta f}$  liée, comme nous venons de le voir, aux différents bruits en amplitude et phase provenant de la photodiode. Pour trouver le lien entre le bruit en distance entre le cantilever et la surface et le bruit en fréquence, établissons la transmittance de la densité spectrale de bruit en distance  $S_D$  en fonction de la densité spectrale de bruit en fréquence  $\phi_{\delta f}$  à l'entrée de la PLL. Nous reprenons la modélisation de la figure 4.15 pour le bloc  $G_{ADC}$  et l'expression 4.22 pour le bloc  $M$  d'interaction avec la surface. Nous considérerons la consigne  $\Delta f_c$  nulle pour établir la fonction de transfert boucle fermée.

On établit la densité spectrale de bruit en distance :

$$S_D = \left| \frac{K_v G_{ADC}}{\left( \frac{p}{F(p)} + K_v \right) + K_v M G_{ADC}} \right|^2 \phi_{\delta f} \quad (4.40)$$

Sans interaction pointe-surface,  $M = 0$ , on trouve la transmittance boucle ouverte :

$$S_D = \left| \frac{K_v G_{ADC}}{\left( \frac{p}{F(p)} + K_v \right)} \right|^2 \phi_{\delta f}. \text{ A contrario, pour une interaction pointe-surface très forte on a :}$$

$$S_D \rightarrow \frac{1}{M^2} \phi_{\delta f} \text{ pour les très basses fréquences.}$$

**Jérôme Polesel Maris**



La figure 4.26 représente le module  $\sqrt{\frac{S_D}{\Phi_{\delta f}}}$  (en  $\text{m.Hz}^{-1/2}$ ), tiré de la densité spectrale de bruit en distance 4.40, pour différentes distances  $D$  pointe-surface.

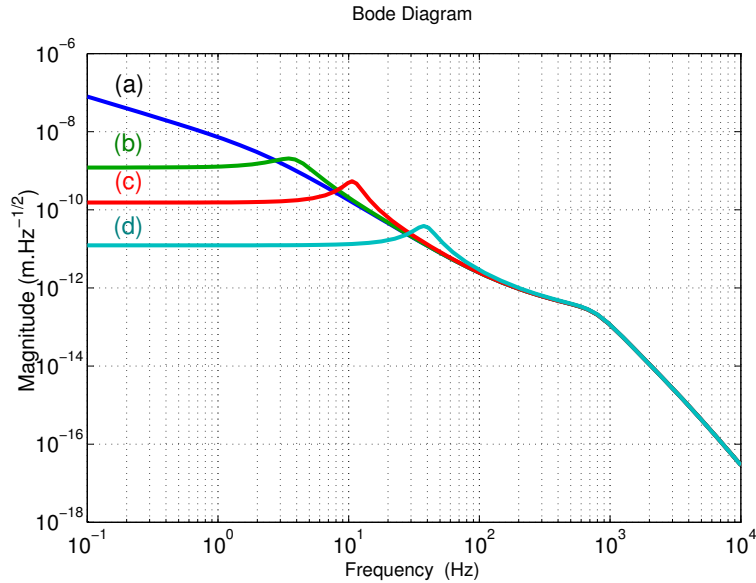


FIG. 4.26 – Module de la fonction harmonique  $\sqrt{\frac{S_D}{\Phi_{\delta f}}}$  de l'ADC pour quatre distances  $D$  pointe-cantilever. (a) Distance infinie : pas d'interaction pointe-surface, (b)  $D = 5$  nm, (c)  $D = 2$  nm et (d)  $D = 0.5$  nm. Paramètres de l'ADC :  $K_P = 7 \cdot 10^{-11}$  m.s,  $K_I = 50 \cdot 10^{-9}$  m,  $\tau_{Piezo} = 70$  ms. Paramètres de l'interaction : interaction de van der Waals (relation 3.22) avec un rayon de 20 nm, une amplitude  $s_1 = 5$  nm et  $H = 1$  eV.  $K_v = 4200 \text{ rad.s}^{-1}$  pour la PLL.

On remarque que plus la distance pointe-surface est petite, plus le terme  $M$  est grand, plus le module de la densité spectrale de bruit en distance diminue. La proximité de la surface a un effet bénéfique sur la réduction du bruit en distance, en prenant garde au critère de stabilité de la boucle de régulation en distance énoncé au paragraphe 4.1.5.

### 4.3 L'AFM virtuel

La première conséquence de l'étude Automatique de la machine AFM dynamique a été une meilleure compréhension de l'optimisation des réglages de boucles. Une application numérique de cette analyse a débouché sur un outil de simulation reprenant intégralement tous les blocs, boucles de régulations et bruits introduits analytiquement aux paragraphes 4.1 et 4.2. Les différentes constantes et temps de réponses introduits dans cette analyse ont été mesurés expérimentalement grâce aux réponses impulsionnelles, indicielles et fréquentielles [ME90, GPD56] de chaque bloc (AGC, PLL, ADC) et sous bloc (détection d'enveloppe, déphaseur, filtre passe-bas de la PLL, ...). L'annexe C expose ces réponses. Nous exposons en détails l'implémentation numérique dans la référence [PMG05]. En particulier, l'algorithme dynamique de Verlet [Ver67] utilisé pour résoudre l'équation 3.19 de la dynamique du cantilever. En effet, la simulation numérique traite la résolution de chaque bloc dans l'espace temporel. A contrario, notre analyse ana-

lytique précédente se base sur l'étude des différentes fonctions de transfert et fonctions harmoniques du microscope : c'est une analyse fréquentielle.

Cette idée d'AFM virtuel n'est pas nouvelle [CASB01, GPA<sup>+</sup>02], mais le fait de pouvoir calculer des images en un temps raisonnable sur un ordinateur de bureau, en tenant compte des délais de réaction des asservissements et des bruits introduits dans le paragraphe 4.2, n'avait pas encore été publié à notre connaissance.

### 4.3.1 Validation de l'outil numérique

La première étape fut la validation de la résolution numérique.

Nous l'avons d'abord validée sur un cas expérimental de réponse indicielle. La réponse en fréquence à une variation de la distance cantilever-surface  $D$  est une signature appropriée du comportement global du système car il implique toutes les boucles de régulation. La figure 4.27(a) montre la réponse en fréquence à une excitation périodique carrée ajoutée à la distance cantilever-surface  $D$  pendant que le microscope est en régulation à  $\Delta f$  constant sur un échantillon de MoS<sub>2</sub>. Cette mesure a été faite pour deux réglages différents du gain de boucle de l'ADC. Un gain de boucle de 2 % (réponse lente) correspond à une valeur typique lors du processus d'imagerie de surface tandis qu'un gain de boucle de 20 % (réponse rapide) est seulement utilisé pour l'approche de la surface au début de chaque campagne de mesure. L'asymétrie de la réponse entre un écart en fréquence  $\Delta f$  positif et négatif (le pic positif est plus petit et large que le pic négatif) est une conséquence de l'augmentation de la valeur absolue de la pente de l'interaction de van der Waals quand la pointe approche la surface.

La figure 4.27(b) montre la réponse calculée avec l'AFM virtuel. La pointe est modélisée par une sphère de 20 nm de rayon en considérant une interaction sphère-Plan de van der Waals avec une constante de Hamaker de 1eV. Les paramètres de la sonde sont :  $f_0 = 270$  kHz,  $k_c = 30$  N.m<sup>-1</sup>,  $Q_c = 45000$  et  $e_0 = 20$  nm. Pour l'AGC :  $\tau_D = 2$  ms,  $K_P = 0.1$  N.m<sup>-1</sup>,  $K_I = 2$  N.m<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>. Pour la PLL :  $\tau_1 = 55$   $\mu$ s et  $\tau_2 = 160$   $\mu$ s avec  $G = 6$  et  $K_0 = 700$  Hz. Le comportement expérimental peut être bien reproduit en choisissant les gains  $K_P$  et  $K_I$  de l'ADC. La forme des pics est qualitativement correcte ainsi que les constantes de temps, allant de quelques millisecondes avec le gain de boucle à 20 % à quelques dizaines de millisecondes pour un gain de boucle à 2 %, qui sont du même ordre de grandeur que les valeurs expérimentales.

Comme nous l'avons vu sur les résultats de la figure 4.17, ces constantes de temps dépendent de la distance pointe-surface à cause de la non linéarité de l'interaction.

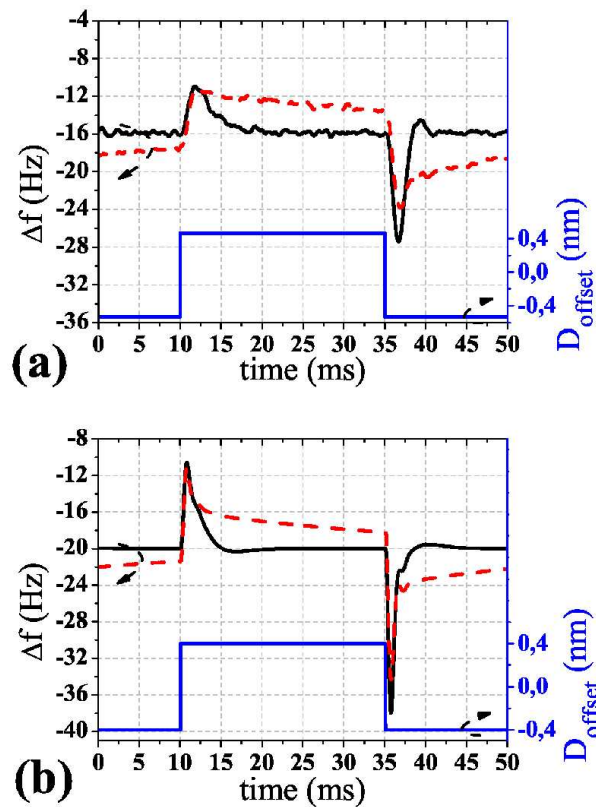


FIG. 4.27 – Réponses (a) expérimentales et (b) numériques de l'AFM en mode Non-Contact. (a) Gain de boucle=20 % (traits discontinus rouges) et gain de boucle=2 % (trait plein noir). (b)  $K_P = 7 \cdot 10^{-11}$  m.s et  $K_I = 50 \cdot 10^{-9}$  m (traits discontinus rouges),  $K_P = 7 \cdot 10^{-11}$  m.s et  $K_I = 5 \cdot 10^{-9}$  m (trait plein noir). Les forces électrostatiques sont compensées suivant la référence [GBL<sup>+</sup>00].

Une seconde validation a été faite sur un cas analytique. La figure 4.28 montre une image calculée avec l'AFM virtuel au-dessus d'une surface de  $\text{CaF}_2(111)$  en utilisant un champ de force calculé par Foster et al. [Fos00, KF00, BFR<sup>+</sup>01]. Ce champ de force a été obtenu en utilisant l'approximation de l'équilibre thermodynamique. La force agissant entre la nanopointe, terminée par un atome de magnésium, et la surface de  $\text{CaF}_2(111)$  est purement conservative. Pour cette image, l'asservissement en distance (ADC) est bloqué à une distance bout de pointe-surface  $D = 0.4$  nm et la vitesse de balayage  $V_{\text{scan}} = 10$  nm.s<sup>-1</sup>. On voit une structure en nid d'abeilles avec un maximum d'intensité sur l'ion calcium Ca(3), qui résulte de l'interaction répulsive avec la nanopointe, et un minimum d'intensité sur l'ion Fluor F(1). Un profil d'écart en fréquence  $\Delta f$ , indiqué par la flèche en pointillés sur la figure 4.28, est tracé sur la figure 4.29(a).

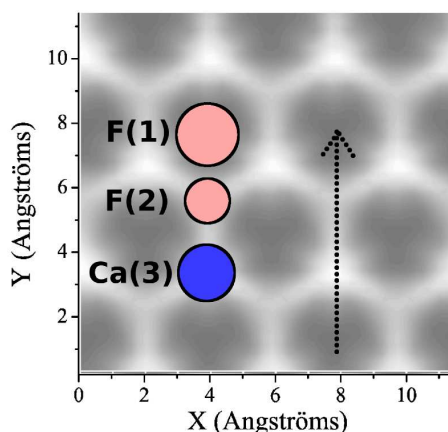


FIG. 4.28 – Image calculée à hauteur constante sur une surface de  $\text{CaF}_2(111)$ . Vitesse de balayage  $V_{scan} = 10\text{nm}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Le profil  $\Delta f$  de la figure 4.29(b) a été obtenu dans l'approximation statique. Cela signifie que le système pointe-substrat est toujours à l'équilibre thermodynamique, la pointe suit une trajectoire sinusoïdale et les boucles de régulation, qui contrôlent l'amplitude d'oscillation et l'écart en fréquence, sont supposées fonctionner de façon idéale. On retrouve ces conditions en utilisant la formule analytique du calcul de l'écart en fréquence 3.38 avec la relation 3.40 initialement proposée dans la référence [Gie97].

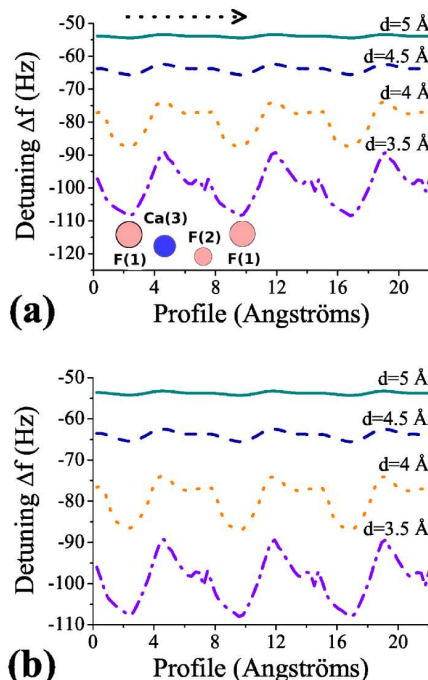


FIG. 4.29 – Profil à hauteur constante sur  $\text{CaF}_2(111)$  : (a) flèche en pointillés sur la figure 4.28 , (b) calculé en utilisant l'approximation statique.

On constate que les profils sont identiques, démontrant que, pour les vitesses lentes de

**Jérôme Polesel Maris**

balayage  $V_{scan}$ , les deux méthodes, numérique et analytique, donnent les mêmes résultats. Suivant la référence [MWM03], nous considérons  $V_{scan} = 10 \text{ nm.s}^{-1}$  comme vitesse lente de balayage et  $V_{scan} = 100 \text{ nm.s}^{-1}$  comme vitesse rapide de balayage.

### 4.3.2 Calcul d'images en Non-Contact AFM

Nous utiliserons à nouveau le champ de force  $\text{CaF}_2(111)$  de la figure 4.28 pour illustrer des exemples de calcul d'image avec l'outil numérique. Dans ces exemples, nous allons faire apparaître un artefact de distorsion des images lié à la vitesse de balayage et cela en tenant compte ou pas des bruits étudiés au paragraphe 4.2.

Les simulations ont été produites dans les conditions d'AFM en mode Non-Contact réglé sur une consigne en écart en fréquence  $\Delta f_c = -84 \text{ Hz}$ . L'ADC va donc asservir la distance  $D$  entre le cantilever et la surface pour maintenir cette consigne. Nous nommerons les images utilisant le signal de distance  $D$  images en topographie.

Dans le même temps, le signal d'écart en fréquence  $\Delta f$  sera utilisé aussi pour avoir une image du bon fonctionnement de la régulation.

Les paramètres de la sonde et des blocs fonctionnels du microscope sont les mêmes qu'au paragraphe 4.3.1.

#### Sans les bruits

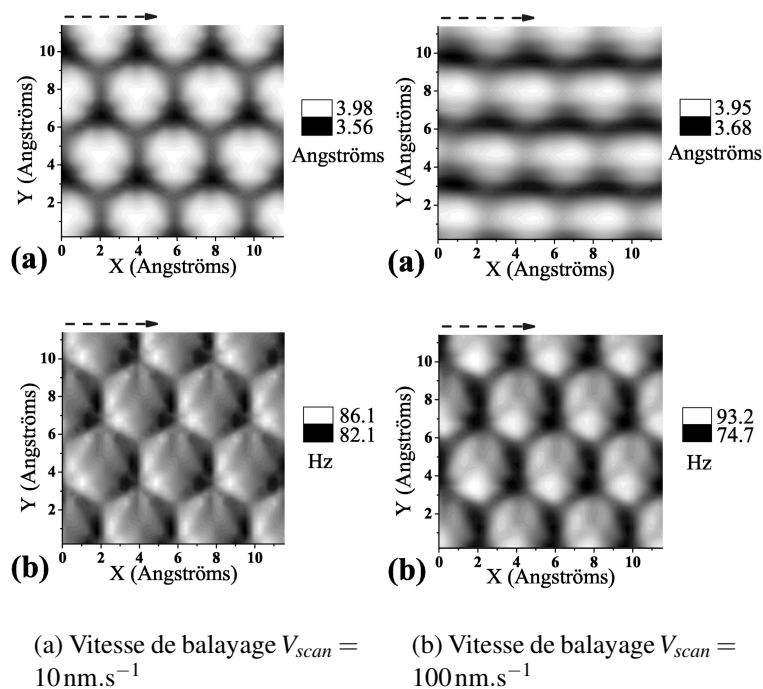


FIG. 4.30 – Images calculées avec le champ de force  $\text{CaF}_2(111)$  en régulation en distance t.q.  $\Delta f = -84 \text{ Hz}$ . (a) Image en topographie  $D$ , (b) image en écart en fréquence  $|\Delta f|$ . Les flèches en traits discontinus indiquent la direction de balayage rapide. Les motifs de symétrie trois superposés sur les sites atomiques sont la conséquence de singularités non-physique dans le champ de force  $\text{CaF}_2(111)$  [BFR<sup>+</sup>01].

Les images en distance  $D$  (topographiques) et en  $|\Delta f|$  (écart en fréquence absolu) calculées dans la limite des faibles vitesses de balayage sont représentées sur les figures 4.30 (à gauche). L'image en topographie est un réseau en nid d'abeille de bosses qui correspondent aux atomes de fluor étant donné la polarisation positive de la pointe. Un motif associé est aussi observable sur l'image en  $|\Delta f|$  avec un contraste de 4 Hz. Ainsi, l'asservissement en distance ne fonctionne pas de façon idéale même pour une vitesse de balayage considérée comme faible. Néanmoins, des différences qualitatives ne sont pas observées pour de plus lentes vitesses de balayage.

Les figures 4.30 (à droite) illustrent le cas d'une grande vitesse de balayage, calculées avec les mêmes conditions. D'importantes distorsions, dans le sens du balayage, apparaissent. Par rapport aux images à faible vitesse de balayage, le contraste des images en topographie diminue de 0.042 à 0.027 nm, alors que le contraste des images en  $|\Delta f|$  augmente de 4 à 18.5 Hz. L'asservissement n'est donc pas assez rapide pour suivre la consigne  $\Delta f_c = -84$  Hz. L'effet de filtrage des boucles d'asservissement agit dans la direction  $X$  de balayage rapide mais pas dans la direction de faible vitesse de balayage  $Y$ . Cela induit l'alternance de rubans horizontaux blanc et noir sur l'image 4.30 (à droite) en topographie.

### Avec les bruits

Une autre application de l'outil numérique est l'évaluation réaliste des limitations induites par le bruit généré par les divers composants du système.

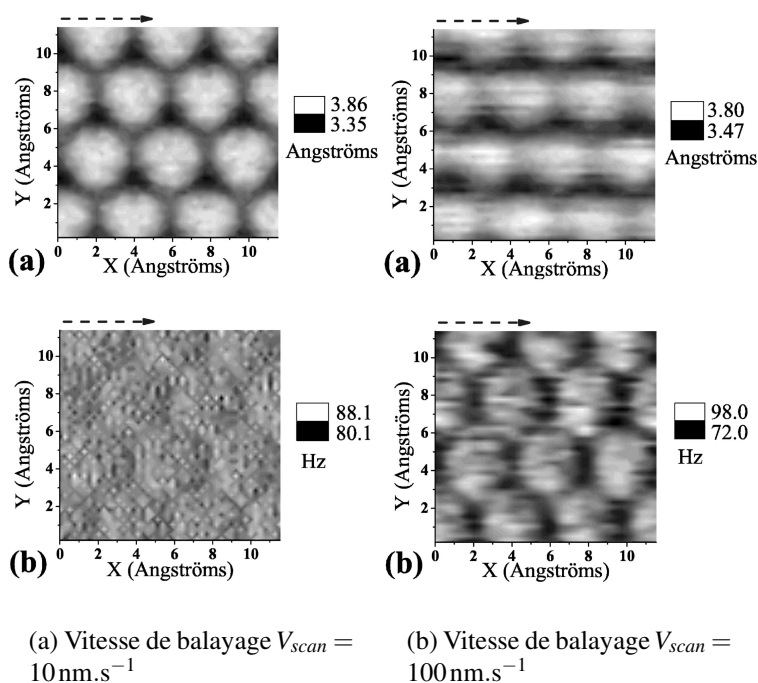


FIG. 4.31 – (a) Image en topographie  $D$ , (b) image en écart en fréquence  $|\Delta f|$ , avec tous les bruits.  $T=300$  K.

Nous considèrerons cette fois dans les simulations numériques tous les bruits analysés au paragraphe 4.2. La température du bruit de force thermique (expression 4.27) est de 300 K.

Les bruits de grenaille (expression 4.29) et Nyquist-Johnson (expression 4.30) d'amplitude, issue respectivement de la photodiode et de l'amplificateur transimpédance, ont les mêmes paramètres que ceux pris à la page 87.

Les images 4.31 sont calculées dans les mêmes conditions que celles des figures 4.30 mais en tenant compte des bruits. Le résultat est beaucoup plus réaliste : les imperfections du champ de force sont estompées dans les images en topographie et le contraste résiduel des images en  $|\Delta f|$ , observé sur l'image à vitesse de balayage faible 4.31(b) (à gauche), est maintenant difficilement discernable. Pour une grande vitesse de balayage (figure 4.31 (à droite)), le motif en  $|\Delta f|$  reste visible, mais trouble, en accord avec les images expérimentales de C. Barth et al. dans [MWM03, FBS<sup>+</sup>02] comme on le voit sur la figure 4.32.

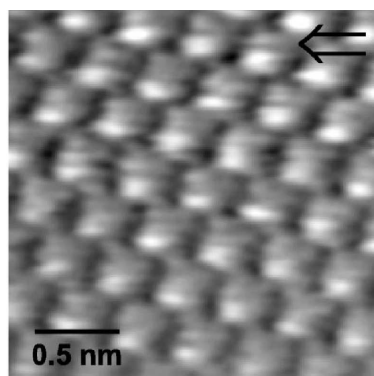


FIG. 4.32 – Image expérimentale en écart en fréquence  $|\Delta f|$ .  $\Delta f = -146\text{Hz}$  et  $A = 35\text{nm}$ . La flèche indique la direction de balayage rapide. D'après [FBS<sup>+</sup>02]

L'amplitude de bruit des images des figure 4.31 (à gauche), à faible vitesse de balayage, peut être estimée par l'écart type entre les figures 4.31(a) et 4.30(a) (à gauche) et ensuite entre les figures 4.31(b) et 4.30(b) (à gauche). Les écarts types en topographie et en  $|\Delta f|$  sont, respectivement, de **0.02 angströms** et **2.5 Hz**.

Analytiquement, on peut utiliser les relations du paragraphe 4.2 page 84, pour obtenir l'écart type en bruit de fréquence  $\gamma$  donné par la relation 4.38.

On estime la densité spectrale  $S_A$  de bruit totale en amplitude (donnée par la relation 4.36) à une valeur d'environ  $7 \cdot 10^{-23} \text{m}^2 \cdot \text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$  en utilisant la relation 4.28 à la résonance pour avoir la densité spectrale de bruit d'amplitude  $S_A^{th}$  due au bruit thermique de force du cantilever (relation 4.27). Or, cette valeur n'est juste qu'à la résonance du cantilever. Nous avons vu au paragraphe 4.2.2 que les gains de boucles  $K_P$  et  $K_I$  permettent de minimiser ce bruit d'amplitude. La figure 4.23(b) nous montre donc cet effet de réduction du bruit thermique d'amplitude. Avec cette considération, on estime la densité spectrale  $S_A$  de bruit totale en amplitude à environ  $2 \cdot 10^{-26} \text{m}^2 \cdot \text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$ .

La bande passante pour la PLL est d'environ 1 kHz (d'après la courbe (b) du diagramme de Bode 4.13 page 79). Ainsi on trouve un écart type en bruit de fréquence

$\gamma \cong 1.4 \text{ Hz}$  d'après l'expression 4.38.

En ce qui concerne l'écart type en bruit de distance, que nous nommons  $\delta D$ , utilisons le fait qu'à la consigne  $\Delta f_c = -84 \text{ Hz}$  atteinte la distance  $D$  minimale bout de la pointe-surface est de  $D = 4.4 \text{ angströms}$ . En effet, comme nous l'avons vu au paragraphe 4.2.4, pour des distances pointe-surface très petites (de l'ordre de quelques angströms) la dépendance de la densité spectrale de bruit en amplitude  $S_D$  devient  $S_D = \frac{1}{M^2} \phi_{\delta f}$  (voir page 93) avec  $M = \frac{\Delta \omega}{D}$  (voir relation 4.22 page 81).

Dans ce cas, l'écart type en bruit de distance  $\delta D$  devient :

$$\delta D = \frac{\gamma D}{|\Delta \omega|} = \frac{\gamma D}{2\pi |\Delta f_c|}$$

donnant une valeur de **0.012 angströms**.

Ainsi, l'approche numérique, par traitement temporel, et l'approche analytique, par traitement fréquentiel, donnent des valeurs d'écart type en bruit de distance et en bruit de fréquence raisonnablement proches validant ainsi notre analyse fonctionnelle de l'AFM en mode dit Non-Contact. Cette analyse pourrait être poursuivie en tenant en compte les effets de l'interaction sur la régulation d'amplitude (AGC).

## Conclusion

L'étude analytique dans l'espace des fréquences de chaque bloc du microscope nous a permis de mieux saisir les subtilités de fonctionnement de cette machine fort complexe. Le rôle des différents gains de boucle est crucial pour trouver le meilleur compromis *stabilité-précision-niveau de bruit* de la machine. La tâche est d'autant plus dure que les zones de stabilité du système changent en fonction de l'interaction de surface. L'étude analytique nous a démontré que trouver une relation simple pour régler l'appareil dans son ensemble est une tâche ardue. Ces modèles analytiques développés, bien que simplifiés à l'extrême, ont trouvé leur validation par des mesures expérimentales et par un outil numérique que nous avons développé pour le calcul d'image.

Pour clore ce chapitre, nous dirons que l'outil numérique de simulation [PMG05, KPM04] est désormais le point de départ de nouveaux travaux pour étudier le comportement du microscope face à diverses interactions conservatives et dissipatives. Un des objectifs étant d'interpréter la signature d'un mouvement moléculaire sur les signaux d'erreur des boucles de régulation et comment régler au mieux le système pour observer un tel signal.





# Chapitre 5

## Etudes expérimentales de l'effet non linéaire de l'interaction de surface

Au cours de ce chapitre, des résultats expérimentaux montreront les effets de l'interaction de surface sur les propriétés de résonance de la sonde vibrante. Aucune boucle de régulation n'agit dans ce cas : nous considérons simplement un oscillateur dans le régime forcé. Ces effets ont déjà été abordés analytiquement au cours des paragraphes 3.2.2 et 3.2.3. Nous verrons que l'étude quantitative de ces phénomènes non linéaires permettra de caractériser les constantes de couplage polaire et dipolaire entre la pointe et la surface.

Nous verrons la frontière entre le régime conservatif et le régime dissipatif des forces de surface sur un substrat isolant et un substrat métallique. Ces informations mettront en évidence des phénomènes sur des portées de l'ordre du nanomètre.

### 5.1 Système expérimental

Dans les deux principaux modes de fonctionnement en microscopie à force dynamique (DFM) (mode contact intermittent ou "tapping" et mode Non-Contact), l'analyse de l'évolution des quantités mesurées (Amplitude et phase pour le mode contact intermittent et dissipation et écart en fréquence pour le mode Non-Contact) se fait en fonction de la distance pointe surface  $D$ . Dans cette étude, afin de comprendre un peu plus en détails les interactions et leur rôle en DFM, nous utilisons une approche complémentaire qui consiste à mesurer, en même temps, les courbes de résonance en amplitude et en phase du cantilever, soumis à une force d'entretien constante en amplitude, en fonction de la distance pointe surface  $D$ .

Quelques études de résonance, la plupart qualitative, de l'évolution de l'amplitude  $A(\omega, D)$  et de la phase  $\varphi(\omega, D)$  sont abordées dans les références [GKB91, KSB97, LBG<sup>+</sup>99, EO98]. Ici, nous décrirons une méthode expérimentale pour analyser les spectres en amplitude et en phase d'un cantilever standard de Non-Contact AFM [Tip] interagissant avec une surface d'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ , puis avec une surface de cuivre  $\text{Cu}(100)$ , avec des amplitudes d'oscillation de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, des facteurs de qualité de l'ordre de 40000 et des constantes de raideur de l'ordre de  $30 \text{ N.m}^{-1}$  typiques du mode Non-Contact AFM en Ultra Vide. Nous explorerons toutes les distances pointe-surface  $D$  où une oscillation stationnaire du cantilever peut être maintenue. Comme nous le verrons, deux régimes différents peuvent être distingués : un régime grande distance où

seulement les interactions conservatives à longue portée du type van der Waals et électrostatique contribuent, et un régime courte distance où les interactions conservatives et dissipatives à courte portée commencent à jouer un rôle significatif. Nous comparerons ces résultats expérimentaux au formalisme analytique décrit au paragraphe 3.2.2 à la page 52.

Une électronique décrite dans l'annexe B et schématisée sur la figure 5.1 permet de mesurer simultanément le module (i.e. amplitude) du cantilever, au moyen d'une détection d'enveloppe, ainsi que l'argument (i.e. phase) entre l'excitation à force constante, assurée par l'électronique, et la réponse du cantilever provenant de la photodiode.

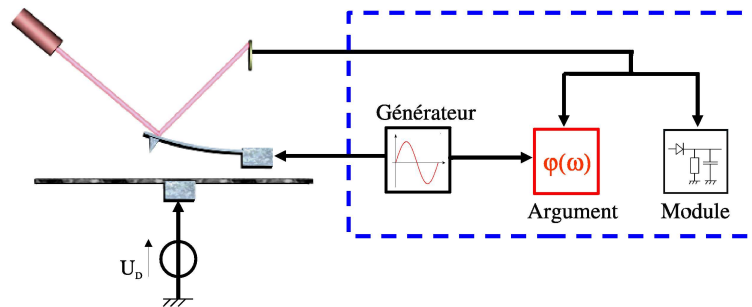


FIG. 5.1 – Système expérimental permettant l'étude de la résonance du cantilever.

A cause du grand facteur de qualité, la constante de temps de convergence de l'oscillateur vers son état de stationnaire, donnée par  $\tau = Q/\pi f_0$ , est de l'ordre de plusieurs dizaines de millisecondes. Ainsi, le temps d'acquisition d'une courbe de résonance sera de l'ordre de 30 secondes afin d'éviter des déviations de l'état stationnaire.

Les forces à longue portée sont caractérisées, en mode Non-Contact, grâce aux courbes d'écart en fréquence  $\Delta f$  fonction de la tension  $U_D$  appliquée entre la pointe et le substrat pour une distance  $D$  fixée. En accord avec la référence [GBL<sup>+</sup>00], la valeur de la tension au maximum de la parabole obtenue par cette méthode, compense les forces électrostatiques à longue portée. Ainsi, cette tension de compensation sera appliquée pour toutes les mesures présentées dans ce chapitre.

## 5.2 Courbes de résonance sur une surface d'alumine

L'échantillon d'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  [Alu] a été préparé et nettoyé *in situ* par les méthodes décrites dans [Ren98] jusqu'à obtenir des images AFM, en mode contact et Non-Contact (figure 5.2), présentant des marches d'environ 1 nm et une rugosité inférieure à  $0.05 \text{ nm}_{\text{rms}}$ . On procède à cette fin à un recuit pendant 3 heures à  $1500^\circ\text{C}$  sous atmosphère de dioxygène. Puis, on le place rapidement dans la chambre ultra vide pour effectuer un recuit de 10 minutes à  $900^\circ\text{C}$ . Ce recuit permet de favoriser l'évacuation des charges de volume de l'isolant. On attend ensuite un refroidissement à température ambiante environ 45 minutes avant d'observer la surface.



FIG. 5.2 – Image AFM Non-Contact (2000x1000) nm<sup>2</sup> de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) utilisée pour l'étude de résonance.  $\Delta f_c = -30$ Hz.

Aucun traitement n'a été effectué sur la pointe avant les expérimentations. Ainsi, la composition chimique de l'apex de la pointe n'est pas connue bien que possédant une couche d'oxyde natif [BWS96,LOW98].

La courbe  $\Delta f(U_D)$  de la figure 5.3 nous permet de trouver la tension pointe-surface de compensation des forces électrostatiques sur ce système.

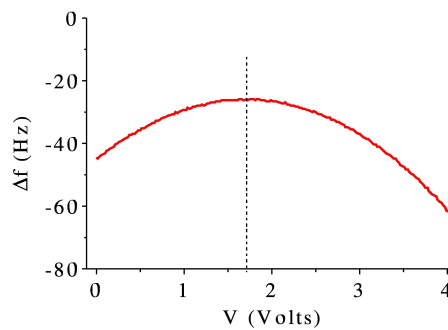


FIG. 5.3 – Courbe  $\Delta f(U_D)$  sur la surface d'alumine de la figure 5.2.

La procédure de mesure des courbes de résonance sur ce système est la suivante : les conditions d'imagerie en mode Non-Contact sont établies pour une consigne en écart en fréquence  $\Delta f_c = -120$ Hz. Nous nommerons  $D_{-120Hz}$  la distance pointe-surface absolue correspondant à ces conditions. Celle-ci est inconnue et sera choisie comme distance de référence pour les prochaines mesures de ce paragraphe. En mode AFM Non-Contact, les asservissements sur l'amplitude (AGC) et la distance (ADC) sont actifs. L'AGC maintient l'amplitude  $A$  d'oscillation du cantilever à une consigne définie par l'utilisateur (voir paragraphe 4.1.3) en ajustant l'amplitude d'excitation  $A_{exc}$  du cantilever. L'ADC maintient l'écart en fréquence  $\Delta f$  par rapport à la fréquence de résonance de l'oscillateur libre à une consigne définie  $\Delta f_c$  par l'utilisateur (voir paragraphe 4.1.5) en ajustant, via un servomécanisme, la distance pointe-surface  $D$ . Pour mesurer les courbes de résonance, ces asservissements sont inactifs et la pointe est rétractée par l'utilisateur, via le servomécanisme en pilotage manuel, d'une distance relative  $\Delta D_{-120Hz} = D - D_{-120Hz}$  connue. Ainsi, le cantilever oscille à la distance  $D$  de la surface avec une amplitude d'excitation  $A_{exc}$  constante, fournie par l'électronique décrite sur la figure 5.1.

Ensuite, les courbes de résonance en amplitude et en phase sont acquises. Dans un premier temps, en opérant un balayage croissant de la fréquence d'excitation. Dans un

deuxième temps, en opérant un balayage décroissant de la fréquence d'excitation. A grande distance  $D$  de la surface, on obtient le type de courbes de la figure 5.4.

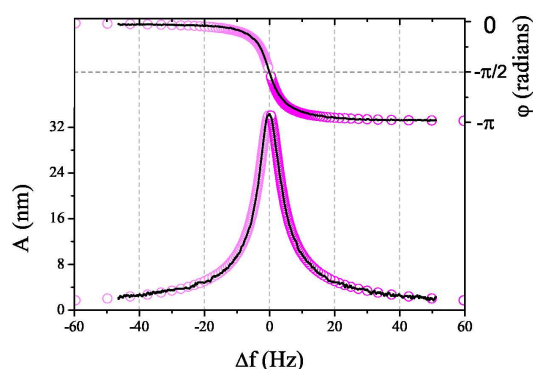


FIG. 5.4 – Courbes de résonance (amplitude et phase) pour une distance relative  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 200\text{nm}$  au-dessus de l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . Les courbes en cercles violets correspondent aux meilleurs ajustements analytiques.

Après cela, on revient en mode AFM Non-Contact, en activant les asservissements AGC et ADC, pour retrouver les conditions d'imagerie avec la consigne  $\Delta f_c = -120\text{Hz}$  avant d'acquérir de nouvelles courbes de résonance à une nouvelle distance  $D$ . Réajuster la distance de référence  $D_{-120\text{Hz}}$  avant chaque nouvelle acquisition permet de minimiser la dérive de la distance pointe-surface.

Ainsi pour plusieurs distances pointe-surface  $D$  on obtient une famille de courbes de résonance, en amplitude et en phase, comme le montre la figure 5.5. Le caractère attractif de l'interaction se traduit par une dérive et une torsion des courbes de résonance vers les basses fréquences.

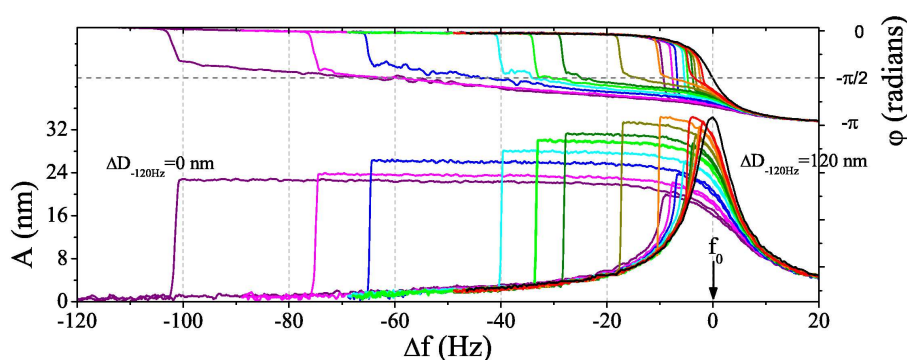


FIG. 5.5 – Spectre de courbes de résonance pour une distance relative  $\Delta D_{-120\text{Hz}}$  allant de 120 nm à 0 nm, au-dessus de l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ .  $f_0$ , égale à 264598.9 Hz, étant la fréquence de résonance du cantilever libre.

Ce panorama représente les branches de courbes correspondant à un balayage décroissant de la fréquence d'excitation (branche positive de l'équation 3.34 page 58) et les branches de courbes correspondant à un balayage croissant de la fréquence d'excitation (branche négative de cette même équation).

**Jérôme Polesel Maris**

### 5.2.1 Exploitation des courbes de résonance

#### Interaction à longue portée

Les courbes de résonance (figure 5.4) acquises à une distance relative  $\Delta D_{-120Hz} = 200\text{nm}$  au-dessus de l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ , avec une amplitude  $A_0 = 34.4\text{nm}$  à la fréquence de résonance  $f_0$ , peuvent être ajustées analytiquement avec les expressions usuelles pour l'amplitude normalisée  $a(u) = A/A_0$  et la phase  $\varphi(u)$  d'un oscillateur harmonique forcé sans interaction avec  $u = f/f_0 = \omega/\omega_0$  tel que :

$$a(u) = \frac{1}{\sqrt{Q_c^2 (1-u^2)^2 + u^2}}$$

$$\varphi(u) = \arctan \left[ \frac{u}{Q_c (u^2 - 1)} \right]$$

On trouve facilement ces expressions à partir des expressions 3.26 et 3.28 avec une interaction nulle et  $A_0 = \frac{Q_c}{k_c} w_0$ . Nous utilisons la méthode d'ajustement analytique des courbes expérimentales Levenberg-Marquardt du logiciel Origin 7 [Ori]. Cette méthode, détaillée dans [PTVF95], a l'avantage de produire une estimation des écarts types des paramètres d'ajustement. Ainsi l'ajustement analytique donne  $f_0 = 264598.9\text{Hz}$  (avec un écart type de 0.1 Hz) et  $Q_c = 44321$  (avec un écart type de 0.2). Ceci montre qu'à grande distance, quelques centaines de nanomètres, l'interaction pointe-surface n'est pas détectable. Ceci constitue aussi un bon test de la linéarité du système électronique de mesure (voir figure 5.1).

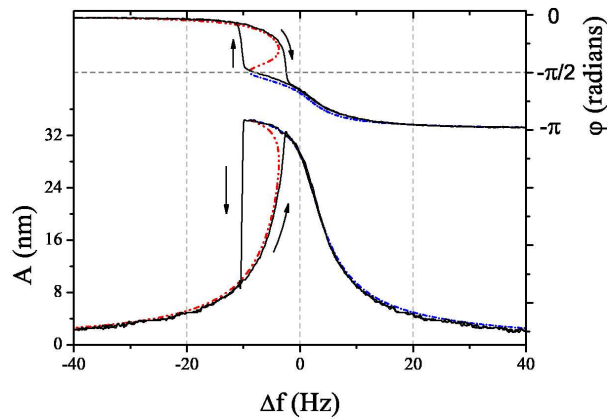


FIG. 5.6 – Courbes de résonance (amplitude et phase), en noir, pour une distance relative  $\Delta D_{-120Hz} = 14\text{nm}$  au-dessus de l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . Les courbes (rouge et bleue) en traits discontinus correspondent aux meilleurs ajustements analytiques.

La figure 5.6 montre le même type de courbes pour  $\Delta D_{-120Hz} = 14\text{nm}$ . Le comportement non linéaire de l'oscillateur sous l'influence de la force pointe-surface saute aux yeux. La torsion du pic de résonance de la courbe d'amplitude Lorentzienne initiale vers les basses fréquences traduit l'attractivité globale de l'interaction. De plus, comme nous

l'avions analysé au paragraphe 3.2.3 page 60, un phénomène de saut, ou d'hystérésis, apparaît : dans la région centrale l'amplitude et la phase ne suivent pas le même chemin si le balayage en fréquence est croissant (branche inférieure) ou décroissant (branche supérieure). Cette région centrale correspond bien aux solutions physiquement inatteignables du système oscillant en interaction.

Nous proposons donc d'ajuster analytiquement les courbes au moyen des expressions 3.34 et 3.35 page 58. Nous utiliserons pour cela un terme de dissipation ne dépendant pas de la distance pointe-surface tel que  $\Xi = 1$  et une interaction conservative de type van der Waals sphère-plan  $F_{int}(D) = -\frac{HR}{6D^2}$  (voir relation 2.17 page 26) avec la constante de Hamaker  $H$ , le rayon effectif de la pointe  $R$  et la distance pointe-surface absolue  $D$ . Nous reprendrons donc l'expression 3.40 avec la résolution 3.25 pour obtenir :

$$\Psi = -\frac{K}{(d^2 - a^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (5.1)$$

Avec  $K = \frac{HR}{3k_c A_0^3}$ , pouvant être interprété comme le rapport entre la raideur de l'interaction et la raideur du cantilever, et  $d = D/A_0$ .

Notons que nous avons utilisé l'intégration 3.40 pour des interactions plus réalistes telle qu'une force de type van der Waals cône-plan, proposée dans [AF96, SJHGB99], pour obtenir :

$$\Psi = -K \left\{ \frac{1}{\left((d-r)^2 - a^2\right)^{\frac{3}{2}}} - \frac{1}{r} \left[ \frac{1}{\left((d-r) + \sqrt{(d-r)^2 - a^2}\right) \sqrt{(d-r)^2 - a^2}} \dots \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{1}{\left((d-r \sin \gamma) + \sqrt{(d-r \sin \gamma)^2 - a^2}\right) \sqrt{(d-r \sin \gamma)^2 - a^2} \cos^2 \gamma} \right] \right\} \quad (5.2)$$

avec  $r = R/A_0$  le rayon du bout arrondi du cône et  $\gamma$  l'angle du cône de la pointe. Mais nous avons montré que cette expression, en plus d'augmenter le nombre de paramètres libres, et donc de compliquer l'ajustement analytique de Levenberg-Marquardt, n'apporte rien de qualitativement différent par rapport aux résultats obtenus au moyen de l'expression 5.1 pour les distances pointes-surfaces où les non linéarités apparaissent ici.

Par conséquent, la courbe d'amplitude de la figure 5.6 a été ajustée avec la fonction inverse de l'équation 3.34 avec  $\Xi = 1$  en considérant l'expression 5.1 pour l'interaction. On a donc deux branches  $a(u^+)$  et  $a(u^-)$  en considérant  $D$  et  $K$  comme paramètres ajustables. La courbe de phase, calculée avec le meilleur ajustement de ces paramètres  $D_{rc}^{fit}$  et  $K_{rc}^{fit}$ , est tracée aussi sur la figure 5.6. Le très bon accord observé démontre la validité des expressions analytiques 3.34, 3.35 et 5.1 pour décrire le comportement de l'oscillateur dans le régime de van der Waals.

On peut noter, dans les limites de notre précision expérimentale, que tous les domaines stables des courbes 5.6 sont accessibles expérimentalement. Le saut sur les branches acquises par un balayage croissant de la fréquence d'excitation apparaît approximativement lorsque la pente de la courbe d'amplitude devient infinie, alors que le saut sur les autres

branches arrive près de la fréquence de résonance c'est à dire quand  $\varphi = -\pi/2$  radians.

La même procédure a été appliquée pour toutes les courbes de résonance de la figure 5.5. Le tableau 5.1 montre ces résultats. La variable  $\chi^2$  [PTVF95, Ori] donne une indication sur la qualité de l'ajustement entre courbes expérimentales et analytiques. Plus cette valeur est petite, meilleur est l'ajustement analytique.

Les courbes correspondant à  $\Delta D_{-120Hz} = 12, 14, 16$  et  $18$  nm peuvent être ajusté de la même manière que les courbes de la figure 5.6, avec des valeurs de  $K_{rc}^{fit}$  et des incréments raisonnables pour la distance  $D_{rc}^{fit}$  d'une courbe à l'autre. Ce résultat indique que, dans cette gamme de distance, les forces de van der Waals sont dominantes et, par conséquent, que la procédure de compensation des forces électrostatiques, introduite par la figure 5.3, est efficace.

$\Delta D_{-120Hz}$ (nm)	$D_{rc}^{fit}$ (nm)	Erreur sur $D_{rc}^{fit}$ (nm)	$K_{rc}^{fit}$	Erreur sur $K_{rc}^{fit}$	$\chi^2$
20	41.25	$5.57 \cdot 10^{-8}$	$3.51 \cdot 10^{-6}$	$2.96 \cdot 10^{-8}$	$1.10 \cdot 10^{-10}$
18	40.45	0.14	$3.98 \cdot 10^{-6}$	$1.24 \cdot 10^{-7}$	$1.40 \cdot 10^{-10}$
16	38.77	0.049	$4.01 \cdot 10^{-6}$	$5.60 \cdot 10^{-8}$	$8.88 \cdot 10^{-11}$
14	36.96	0.048	$4.20 \cdot 10^{-6}$	$9.20 \cdot 10^{-8}$	$1.62 \cdot 10^{-9}$
12	35.17	0.040	$4.04 \cdot 10^{-6}$	$1.33 \cdot 10^{-7}$	$4.46 \cdot 10^{-8}$
10	32.30	0.039	$2.63 \cdot 10^{-6}$	$1.08 \cdot 10^{-7}$	$8.96 \cdot 10^{-8}$
8	31.05	0.033	$2.97 \cdot 10^{-6}$	$9.97 \cdot 10^{-8}$	$8.40 \cdot 10^{-8}$
6	29.25	0.035	$3.68 \cdot 10^{-6}$	$1.25 \cdot 10^{-7}$	$1.81 \cdot 10^{-7}$
4	27.41	0.047	$3.98 \cdot 10^{-6}$	$1.48 \cdot 10^{-7}$	$1.22 \cdot 10^{-7}$
2	24.48	0.028	$2.93 \cdot 10^{-6}$	$1.16 \cdot 10^{-7}$	$1.00 \cdot 10^{-6}$
0	23.44	0.042	$3.15 \cdot 10^{-6}$	$1.56 \cdot 10^{-7}$	$7.54 \cdot 10^{-7}$

TAB. 5.1 – Paramètres d'ajustement des courbes de résonance en amplitude. Le facteur de qualité  $Q_c$  et la résonance  $f_0$  extraits de l'ajustement de la courbe figure 5.4 sont imposés.  $D$  et  $K$  sont des paramètres libres durant l'ajustement. Les incertitudes sont estimées par la méthode de Levenberg-Marquardt.

Notons que  $D_{rc}^{fit}$  donne la valeur de la distance absolue pointe-surface qui est d'habitude difficile à estimer en microscopie à force dynamique. La distance la plus petite entre la pointe et la surface est donnée par  $D_{rc}^{fit} - A_{max}$ , où  $A_{max}$  est l'amplitude maximum de la courbe de résonance. Elle varie de 6.7 à 1.5 nm pour  $\Delta D_{-120Hz} = 20$  à 12 nm comme on le voit sur le tableau 5.2, dans la gamme de distance où les forces de van der Waals contribuent.

La courbe de résonance pour  $\Delta D_{-120Hz} = 20$  nm ne donne pas un bon accord pour la valeur de  $K_{rc}^{fit}$  car le potentiel de surface n'est pas assez fort à une telle distance pour permettre une évaluation précise des paramètres. La torsion du pic de résonance n'est pas assez prononcée.

### Interaction à courte portée

En contraste des résultats précédents, pour des distances relatives  $\Delta D_{-120Hz} = 10$  à 0 nm, les courbes de résonance en amplitude ne peuvent pas être ajustées de façon satisfai-



sante avec la méthode précédente. Le tableau 5.1 montre que la valeur du paramètre  $K_{rc}^{fit}$  varie d'une courbe à l'autre, alors que la variable  $\chi^2$ , caractérisant la qualité de l'ajustement, augmente de façon significative. Comme nous le montrerons plus tard, cela est la conséquence de la contribution des interactions à courte portée. Ce changement de comportement délimite deux domaines. Le premier, que nous appellerons "loin" (F, "Far" en anglais) pour  $\Delta D_{-120Hz} \geq 14$  nm où la pointe n'est jamais en contact proche avec la surface. Nous nommerons le second "proche" (C, "Close" en anglais) où la pointe interagit plus fortement avec la surface.

Les données du tableau 5.2 et la courbe (c) de la figure 5.10 montrent que le domaine F est caractérisé par une amplitude constante  $A_{max} = 34.4$  nm alors que dans le domaine C l'amplitude  $A_{max}$  décroît linéairement à mesure que le cantilever approche de la surface [MON<sup>+</sup>03, OCY<sup>+</sup>03]. Cette limitation de l'amplitude est clairement liée à la proximité de la surface de l'échantillon. La frontière entre ces deux domaines correspond environ à la distance relative  $\Delta D_{-120Hz} = 12$  nm.

$\Delta D_{-120Hz}$ (nm)	$A_{max}$ (nm)	$D_{rc}^{fit}$ (nm)	$D_{rc}^{fit} - A_0$ (nm)	$D_{rc}^{fit} - A_{max}$ (nm)
20	34.6	41.30	6.9	6.7
18	34.4	40.40	6.0	6.0
16	34.4	38.80	4.4	4.4
14	34.4	37.00	2.6	2.6
12	33.7	35.20	0.8	1.5
10	31.2	33.00	-1.4	1.8
8	30.0	31.50	-2.9	1.5
6	28.0	29.50	-4.9	1.5
4	26.1	27.50	-6.9	1.4
2	23.7	25.00	-9.4	1.3
0	22.7	23.90	-10.5	1.2

TAB. 5.2 –  $D_{rc}^{fit}$  et  $A_{max}$  en fonction de  $\Delta D_{-120Hz}$ .  $A_0 = 34.4$  nm.  $D_{rc}^{fit} - A_{max}$  est la distance pointe-surface la plus petite. Le changement de comportement à  $\Delta D_{-120Hz} = 12$  nm est clairement visible sur l'évolution de  $D_{rc}^{fit} - A_0$  et de  $D_{rc}^{fit} - A_{max}$ .

Les figures 5.7 montrent trois courbes de résonance acquises dans le domaine C. Elles sont comparées avec les courbes analytiques ajustées avec une interaction de van der Waals (equation 5.1). Seule la partie basse des courbes d'amplitude a été prise en compte pour la procédure d'ajustement analytique. Les données expérimentales correspondant au 2 nm de la partie haute des courbes d'amplitude n'ont pas été utilisées pour l'ajustement, en considérant cette distance comme la limite supérieure de l'interaction responsable de la déviation d'un comportement dû à une pure interaction de van der Waals. De plus, le paramètre  $K$  est maintenu constant à sa valeur d'ajustement dans le domaine F (obtenu en moyennant les valeurs pour  $\Delta D_{-120Hz} = 12, 14, 16$  et  $18$  nm),  $K_{rc}^{fit} = 4.05 \cdot 10^{-6}$  alors que le paramètre de distance  $D$  est libre de varier. Les meilleurs ajustements  $D_{rc}^{fit}$  de cette distance sont notés dans le tableau 5.2. Les courbes de résonance analytiques, conséquentes à cet ajustement, sont tracées sur les trois figures 5.7. Comme on s'y attend, l'accord entre courbes analytiques et expérimentales est très bon pour la partie basse des

courbes. Dans la partie haute, les courbes analytiques diffèrent des résultats expérimentaux principalement par un écart en fréquence, difficile à visualiser, dû à la faible pente de cette partie de la courbe d'amplitude. La figure 5.8 montre cette différence, notée  $\delta f(A)$ , entre les fréquences expérimentales et analytiques en fonction de l'amplitude des courbes de résonance, pour les domaines C et F. Nous voyons que le désaccord entre les courbes ajustées et les données expérimentales commence à augmenter à partir de la transition domaine F vers C repérée à  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 12$  nm. Les courbes  $\delta f(A)$  reflètent seulement la contribution des interactions à courte portée. Notons aussi que la distance pointe-surface minimale donnée par  $D_{rc}^{fit} - A_{max}$  est plus grande que 2 nm dans le domaine F et plus petite que 2 nm dans le domaine C en accord avec notre évaluation de 2 nm pour la portée des interactions à courte portée.

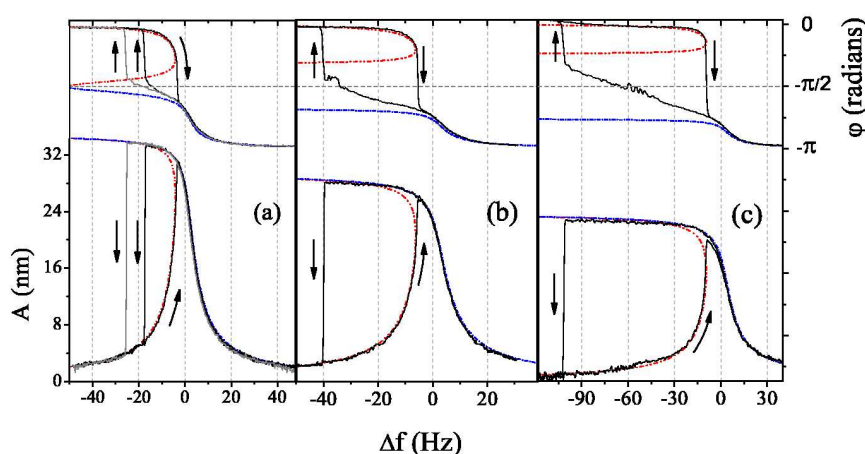


FIG. 5.7 – Courbes de résonance en amplitude et en phase pour (a)  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 12$  nm (deux ensembles de courbes expérimentales), (b)  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 6$  nm et (c)  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 0$  nm. Les courbes en traits discontinus correspondent au meilleur ajustement obtenu à partir des équations 3.34, 3.35 et 5.1 (voir texte).

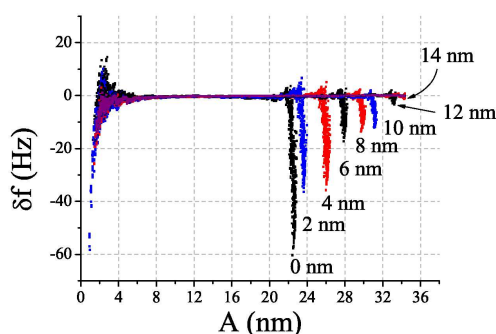


FIG. 5.8 – Contribution des interactions courte portée sur l'écart  $\delta f(A)$  entre les courbes d'amplitude expérimentales et analytiques. Le motif qui apparaît à gauche du graphe est dû à la dégradation du rapport signal sur bruit pour les petites amplitudes. Les déviations par rapport à  $\delta f = 0$  Hz ne sont pas visibles à l'échelle de cette figure pour les distances relatives  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 16, 18$  et 20 nm.

Les courbes de phase calculées avec les meilleures valeurs des paramètres produites par la procédure d'ajustement sont aussi tracées avec les courbes expérimentales sur les figures 5.7. Le changement de comportement entre  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 14$  nm (figure 5.6) et  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 12$  nm (figure 5.7(a)) est clairement visible : la phase à  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 12$  nm dévie de façon marquée du modèle de van der Waals conservatif.

On peut faire plusieurs observations sur les courbes des figures 5.7. En opposition de notre observation dans le domaine F, le saut en amplitude et en phase, sur la branche de balayage en fréquence décroissant apparaît largement après le croisement avec le point  $\varphi = -\pi/2$  radians. Par exemple pour les courbes à  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 0$  nm, le saut est situé à environ 40 Hz au dessous de ce point de croisement. Néanmoins, de larges fluctuations de la phase sont visibles au point  $\varphi = -\pi/2$  radians, et cela spécialement pour les distances  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 0$  et 6 nm.

Deux différents ensembles de courbes expérimentales sont tracés sur la figure 5.7(a). Ils ont été obtenus au cours de la même campagne de mesures, mais à des intervalles de temps d'environ 15 minutes, afin d'évaluer la reproductibilité des mesures. Cette vérification a aussi été faite pour d'autres distances et aucune différence significative n'a été observée. Dans le cas de la figure 5.7(a), les deux courbes sont superposables dans le domaine F, mais différent dans la région où les interactions à courte portée contribuent. Cette observation démontre que la distance pointe-surface est expérimentalement bien contrôlée et qu'il n'y pas d'évolution significative du paramètre  $K$  durant l'expérience. La différence dans la région courte portée serait associée à une évolution de la structure et la composition chimique de l'apex de la pointe dont la contribution à la force de van der Waals est négligeable. Cela n'est pas surprenant si l'on considère que les conditions d'imagerie AFM Non-Contact avec  $\Delta f_c = -120$  Hz, rétablies entre chaque acquisition de courbe, correspondent à une interaction pointe-surface relativement forte, favorisant des modifications de la pointe à l'échelle du nanomètre.

La limitation de l'amplitude d'oscillation dans le domaine C est clairement reliée à la proximité de la surface mais son origine n'est pas établie. Les interactions répulsives pourraient contribuer mais les effets dissipatifs qui n'ont pas été considérés jusqu'à présent devraient jouer un rôle. En effet, on peut mettre en évidence la puissance moyenne dissipée par l'interaction pointe-surface comme la différence entre la puissance moyenne d'entretien de l'oscillation et la puissance moyenne dissipée par l'oscillateur grâce à l'expression donnée par B. Anczykowski et al. [AGF<sup>+</sup>99] :

$$\begin{aligned} \langle P_{tip} \rangle_T &= \langle P_{\text{entretien de l'oscillation}} \rangle_T - \langle P_{\text{dissipée par l'oscillateur}} \rangle_T \\ &= \frac{\pi k_c f}{Q_c} \left( A_0 A \sin \varphi - A^2 \frac{f}{f_0} \right) \end{aligned} \quad (5.3)$$

Ainsi si on introduit les données expérimentales des courbes de résonance en amplitude  $A(f)$  et en phase  $\varphi(f)$  dans cette expression on obtient les graphes de la figure 5.9(a) représentant l'évolution de la puissance moyenne dissipée par le cantilever oscillant en fonction de la fréquence d'excitation  $f$  pour plusieurs distances relatives  $\Delta D_{-120\text{Hz}}$ . Si on trace le maximum de ces courbes en fonction de la distance relative  $\Delta D_{-120\text{Hz}}$  on aboutit à la figure 5.9(b) où on retrouve la frontière entre les domaines F et C à  $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 12$  nm. On constate bel et bien une croissance linéaire de la puissance dissipée par le cantilever

dans le domaine C [AGF<sup>+</sup>99]. Cette remarque montre clairement qu'un terme dissipatif doit être pris en compte dans les expressions analytiques 3.34 et 3.35, page 58, via le dissipateur  $\Xi$  (voir page 59) qui est désormais dépendant de la distance pointe-surface  $D$ . Cela devient nécessaire si l'on veut trouver un ajustement linéaire des données expérimentales dans la région d'interaction à courte portée.

Notons que sur les courbes des figures 5.9, la puissance d'entretien de l'oscillation du cantilever loin de la surface, qui a été soustraite, est égale à  $\langle P_{\text{entretien de l'oscillation}} \rangle_T = \frac{\pi k_c f_0}{Q_c} A_0^2 = 0.6 \text{ pW}$ , soit 14 eV/cycle.

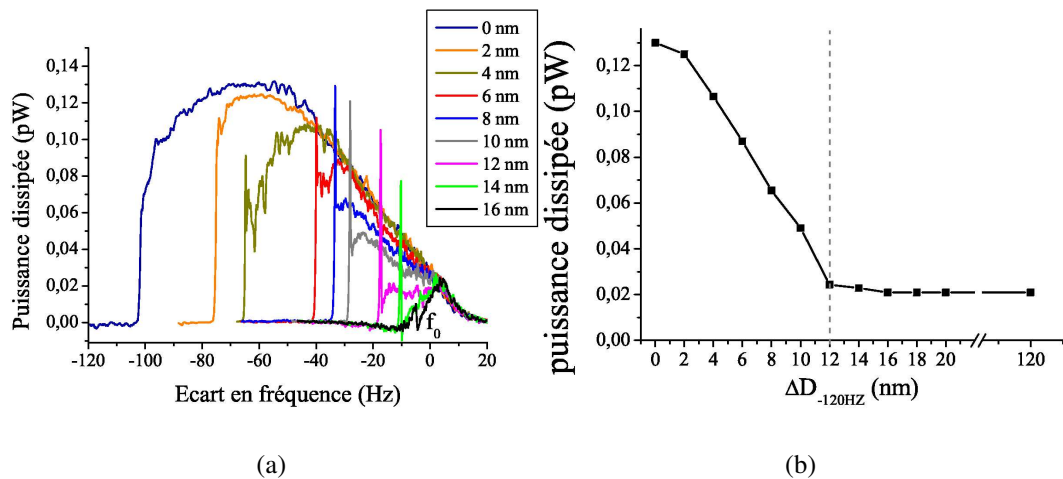


FIG. 5.9 – Evolution de la puissance dissipée par le cantilever en fonction de la distance relative  $\Delta D_{-120\text{Hz}}$ . La puissance d'entretien de l'oscillation du cantilever loin de la surface a été soustraite. Ces courbes montrent que la dissipation minimale mesurable avec cette technique est inférieure à  $5 \cdot 10^{-15}$  Watt soit environ 0.1 eV/cycle.

La distance pointe-surface minimale donnée par  $D_{rc}^{fit} - A_{max}$  dans le tableau 5.2 plonge à une valeur inférieure à 2 nm pour la région où la dissipation liée à la proximité de surface est avérée. Dans leurs expériences de nanomanipulation en AFM dynamique, S. Morita et al. [MWM03, MON<sup>+</sup>03] définissent le contact de la pointe oscillante avec la surface quand l'amplitude maximum à la résonance  $A_{max}$  commence à décroître. Partant de cette hypothèse, on peut donc définir cet écart fixe de  $D_{rc}^{fit} - A_{max} < 2 \text{ nm}$  comme lié à la présence d'une nanopointe sous la pointe. En effet, on ne peut pas révéler celle-ci par la procédure d'ajustement analytique, qui utilise une interaction de van der Waals sphère-plan, car son volume est trop petit pour influencer de façon significative sur cette force macroscopique. En revanche, sa présence est révélée pour des distances de quelques diamètres atomiques de la surface où de nouvelles interactions dissipatives entre en jeu. Cela signifie que l'on peut voir deux contributions de la sonde :

- La *partie macroscopique* que l'on a modélisée sous forme d'une sphère de rayon  $R$ . Cette partie agit sur les interactions à longue portée du type électrostatique, compensée par la tension pointe-surface appliquée, et van der Waals via la constante de Hamaker. C'est le régime conservatif pris en compte dans notre modèle analytique. Cette contribution macroscopique est toujours présente quelle que soit la distance

pointe-surface.

- La *partie microscopique* de la pointe n'agit que dans le régime domaine "proche" (nommé C) c'est à dire quand la pointe est à une distance de quelques rayons atomiques des atomes du substrat. Nous n'avons pas tenu compte de cette contribution à courte portée dans notre modèle analytique expliquant le désaccord de l'ajustement avec les données. Néanmoins, grâce à cette étude de résonance, nous l'avons clairement mise en évidence de façon expérimentale. Cette partie microscopique en bout de pointe, nommée *nanopointe* [Fos00], à la dimension de quelques angströms. Elle interagit avec les atomes de surface sous formes de forces chimiques par créations et destructions de liaisons chimiques ou sous formes de forces de dispersion atomiques (voir chapitre 2 et annexe A). On peut trouver des modélisations de ce genre de forces à courtes portée dans les références [Fos00, BFR<sup>+</sup>01, MWM03] où des potentiels du type Morse, Lennard-Jones sont utilisés. L. Kantorovich et al. expliquent une des origines de la dissipation observée, à la page 372 de [MWM03], par le fait que les allers et retours de la nanopointe empruntent des chemins énergétiques différents en créant un hystéresis d'adhésion à l'échelle atomique. H. J. Hug et al., à la page 416 du même ouvrage, proposent une dissipation liée aux instabilités atomiques des atomes en bout de pointe. Les potentiels attractifs de surface et de la nanopointe créent un double puits de potentiel dont les états stables et la barrière de potentiel changent en fonction de la distance pointe-surface. Ici aussi, l'explication de la dissipation provient d'un hystéresis entre les deux états stables de l'atome de bout de pointe. Une autre origine possible serait liée à des transferts radiatifs en champ proche étudiés par J. Ph. Mulet et al. [MJCG01]. En effet, des effets de résonance du rayonnement thermique sont prévus, à température ambiante, entre une sonde sphérique d'une dizaine de nanomètres de rayon distante de quelques angströms de la surface. Les auteurs prévoient un accroissement de la puissance dissipée en fonction de la distance pointe-surface  $d$  avec des variations allant de  $9 \cdot 10^{-18} \text{ W}$  à  $d = 10 \mu\text{m}$  jusqu'à  $3 \cdot 10^{-10} \text{ W}$  à  $d = 10 \text{ nm}$ . Ces résultats ont été calculés pour des matériaux en carbure de silicium, mais le même type d'effet a lieu pour des surfaces d'oxyde d'après les auteurs.

Expérimentalement, C. Barth et al. expliquent de façon empirique [MWM03] que ces interactions à courte portée favorisent l'obtention de la résolution atomique en AFM dynamique grâce à ces changements erratiques de la nanopointe. Etant donnée sa taille, la nanopointe ne commencera à intervenir que pour des portées d'interaction de l'ordre des distances interatomiques. Ainsi, pour favoriser la résolution atomique en AFM dynamique, on aura donc intérêt à minimiser le rôle des interactions à longue portée en jouant sur la tension de compensation pointe-surface mais aussi en minimisant le rayon effectif  $R$  de la pointe pour réduire le produit  $HR$  de l'interaction de van der Waals. En conséquence, le brouillard des interactions à longue portée sera levé pour permettre aux interactions à courte portée de jouer un rôle plus significatif dans la mesure du signal d'écart en fréquence  $\Delta f$  de l'oscillateur.

### 5.2.2 Courbes d'approche-retrait en mode AM-AFM et calibration de l'amplitude

Le fonctionnement en mode AM-AFM (ou Tapping AFM, ou Contact-Intermittent) est effectué à force constante d'excitation du cantilever pour une fréquence fixe notée  $f_{AM}$ . Cette fréquence est habituellement choisie sur le point d'inflexion (pente maximale) vers les basses fréquences sur la courbe d'amplitude Lorentzienne mesurée loin de la surface (figure 5.4). L'amplitude (a) et la phase (b) à cette fréquence sont tracées sur la figure 5.10 en fonction de la distance relative  $\Delta D_{-120Hz}$  pour l'ensemble des courbes de résonance de la figure 5.5. Ces courbes sont comparables aux courbes expérimentales [NBA99, AKF96, BBO<sup>+</sup>97] et théoriques [AKF96, LHRR02] en AM-AFM trouvables dans la littérature. Comme on s'y attend, ces courbes présentent un comportement à hystéresis et une décroissance linéaire pour les faibles valeurs de  $\Delta D_{-120Hz}$  quand le cantilever approche la surface.

Dans la même figure, l'évolution de l'amplitude (c) maximale  $A_{max}$  des courbes de résonance est tracée en fonction de la distance. Comme nous l'avons constaté précédemment, cette amplitude reste constante dans le domaine F et décroît linéairement dans le domaine C parallèlement à l'augmentation de la dissipation tracée sur la figure 5.9(b). On peut trouver une application de ce genre de courbe à la nanomanipulation d'atomes en AFM dynamique dans la référence [MON<sup>+</sup>03].

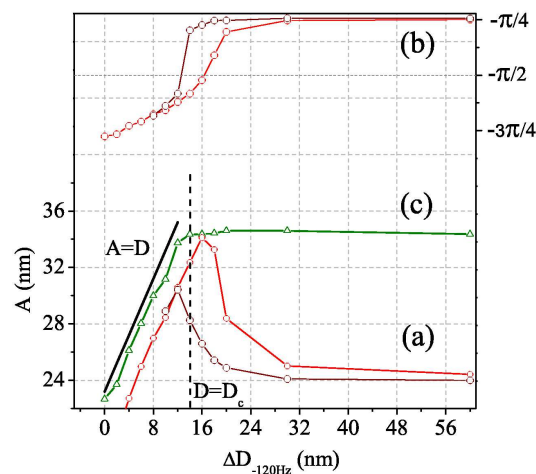


FIG. 5.10 – Courbes ronds ouverts : amplitude (a) et phase (b) prélevées à la fréquence  $f_{AM}$  sur le panorama de courbes de résonance de la figure 5.5. Courbe triangles ouverts : amplitude maximum (c), également prélevées sur le panorama de courbes de résonance de la figure 5.5, en fonction de la distance relative  $\Delta D_{-120Hz}$  au-dessus de l'échantillon d' $Al_2O_3(0001)$ .

Malgré ces similarités, l'origine de la décroissance linéaire de ces deux courbes d'amplitude n'est pas la même. La décroissance de la courbe (a) est déterminée par le comportement de l'oscillateur dans une gamme d'amplitude où seules les forces conservatives de van der Waals sont présentes alors que la décroissance en amplitude de la courbe (c) est reliée à un phénomène dissipatif à proximité de la surface. Notons aussi que la courbe (a) est obtenue à la fréquence fixe  $f_{AM}$  alors que la courbe (c) est obtenue à la fréquence de résonance qui varie en fonction de la distance  $D$ .

**Jérôme Polesel Maris**

Il a été montré [NBA99] que, pour des grands facteurs de qualité  $Q_c$  du cantilever et pour des matériaux durs, la pente de la courbe (a) est très proche de un. Ainsi, la courbe (a) de la figure 5.10 fournit un moyen de calibrage relatif des deux échelles de longueur utiles pour ces expériences : la première est l'échelle de la commande piézoélectrique qui commande la distance pointe-surface, l'autre est l'échelle qui fixe l'amplitude d'oscillation du cantilever. Cette calibration est difficile car dépendante des réglages de l'optique de détection de l'AFM. En ajustant l'échelle en amplitude afin d'obtenir une pente unité sur la courbe (a), on obtient une calibration précise de l'échelle d'amplitude d'oscillation qui a été utilisée durant ces expérimentations.

### 5.2.3 Courbes d'approche en mode AFM Non-Contact

Il est aussi possible d'extraire le paramètre  $K$  de non linéarité en mode AFM Non-Contact grâce à une analyse des courbes  $\Delta f(D)$  et  $A_{exc}(D)$  [GBL<sup>+</sup>00]. La figure 5.11 montre de telles courbes obtenues sur l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  avec le même cantilever utilisé précédemment pour les courbes de résonance. La principale différence avec ces mesures de résonance est que la boucle de régulation en amplitude (page 70) est désormais en fonctionnement. Le signal  $A_{exc}(D)$  traduit donc l'amplitude d'excitation nécessaire pour garder l'amplitude d'oscillation du cantilever à une consigne définie par l'utilisateur. Notons aussi que l'amplitude d'excitation correspond maintenant à une amplitude d'oscillation à la résonance de  $A_0 = 22.8$  nm différente de  $A_0 = 34.4$  nm utilisée pour les courbes de résonance. L'accroissement brusque sur la courbe  $A_{exc}(D)$  autour de  $D_c = 25.7$  nm correspond à une transition entre le domaine F et le domaine C :  $A_{exc}$  croît rapidement pour compenser la réduction d'amplitude induite par la proximité du substrat.

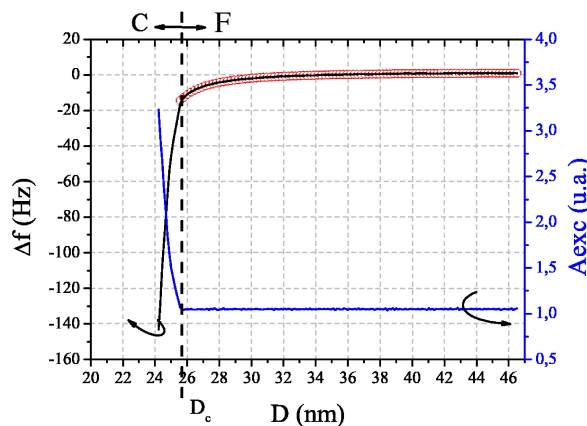


FIG. 5.11 – Courbes  $\Delta f(D)$  et  $A_{exc}(D)$  obtenues sur l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . L'amplitude d'oscillation loin de la surface est  $A_0 = 22.8$  nm. La courbe cercles ouverts correspond au meilleur ajustement obtenu dans le domaine F d'après l'expression 5.4. L'origine de l'échelle horizontale en distance  $D$  a été positionnée grâce aux résultats de l'ajustement analytique. Le trait vertical en traits discontinus à  $D = D_c$  sépare le domaine C du domaine F. Dans le domaine F, la distance pointe-surface la plus petite peut être déduite de  $D$  soustrait de  $A_0 = 22.8$  nm.

Il est possible d'obtenir une expression analytique pour le signal d'écart en fréquence  $\Delta f(D)$  au moyen de l'expression 3.38 page 59. Cette expression nous donne l'évolution

de la fréquence de résonance pour une interaction de van der Waals du type sphère-plan :

$$\frac{f}{f_0} = - \frac{K}{2(d^2 - 1)^{\frac{3}{2}}} \quad (5.4)$$

Une telle expression a été proposée par Aimé et al. [ABNC99].

Un très bon accord est obtenu si l'ajustement analytique de la courbe  $\Delta f(D)$  (figure 5.11) est restreint au domaine F défini précédemment. Cela confirme que l'interaction pointe-surface est dominée par la force conservative de van der Waals dans ce domaine. Le meilleur ajustement nous donne la valeur du paramètre libre  $K$  suivante :  $K_{\Delta f}^{fit} = 1.51 \cdot 10^{-5}$ .

### 5.2.4 Evaluation de la constante de Hamaker

La constante de Hamaker caractérise le couplage dipolaire entre deux milieux dans l'interaction de van der Waals. Nous en trouverons une définition détaillée dans le chapitre 2 et l'annexe A. Comme l'ont remarqué plusieurs auteurs [GBL<sup>+</sup>00, AF96], évaluer séparément la constante de Hamaker  $H$  et le rayon de pointe  $R$  dans l'expression de la force de van der Waals sphere-plan  $F_{int}(D) = -\frac{HR}{6D^2}$  n'est pas possible. Cela serait pourtant utile pour caractériser l'interaction en nous appuyant sur la méthode d'ajustement précédente. En utilisant des potentiels de van der Waals plus réalistes, on peut aboutir à des expression pour  $\Psi$  du type cône-plan comme on le voit dans l'expression 5.2 où la pointe est modélisée par une demi-sphère portée par un cône. Avec cette expression de  $\Psi$ ,  $H$  et  $R$  pourraient être évalués indépendamment. Cette expression 5.2 dévie de façon significative de l'expression 5.1 quand  $D$  devient comparable à  $R$ . Ainsi, une stratégie serait d'étudier les courbes de résonance avec de plus petits rayons de pointe, comme suggéré dans [AF96], ou de regarder à des distances pointe-surface plus grandes. Malheureusement, comme le montre la courbe de résonance acquise à la distance relative  $\Delta D_{-120Hz} = 20$  nm, l'effet non linéaire de déformation des courbes devient trop petit dans ce cas pour permettre une évaluation précise nécessaire pour séparer les contributions de  $H$  et  $R$ .

Une autre possibilité pour mesurer indépendamment  $R$ , développée pour les petites amplitudes d'oscillations dans [OLYR98], relie la mesure de la dépendance de la distance  $D$  en fonction de la tension  $U_D$  appliquée entre la pointe et l'échantillon dans les conditions d'imagerie AFM mode Non-Contact pour la même pointe. Dans l'annexe B, nous avons généralisé cette méthode pour toute amplitude et l'avons appliquée dans le présent cas. Nous obtenons ainsi  $R = 140$  nm. Cette valeur doit être considérée comme une limite supérieure pour le rayon effectif de la pointe étant donnée la plus longue portée de l'interaction électrostatique, utilisée pour déterminer ce rayon  $R$ , par rapport à l'interaction de van der Waals [SJHGB99] exprimée par l'expression 2.17 de la force.

Le produit  $HR$  peut être obtenu à partir de la valeur  $K_{rc}^{fit} = 4.05 \cdot 10^{-6}$  (avec  $A_0 = 34.4$  nm) et  $K_{\Delta f}^{fit} = 1.51 \cdot 10^{-5}$  (avec  $A_0 = 22.8$  nm) obtenus avec, respectivement, la méthode des courbes de résonance (tableau 5.1) et les courbes  $\Delta f(D)$  d'approche en mode AFM Non-Contact. La raideur du cantilever  $k_c = 27 \text{ N.m}^{-1}$  a été calculée à partir de la fréquence de résonance et de la géométrie de la poutre. Nous exposons cette méthode dans l'annexe B. Ainsi, on obtient à partir de  $K = \frac{HR}{3k_c A_0^3}$ , un produit  $HR$  de  $\{HR\}_{rc} = 1.33 \cdot 10^{-26} \text{ J.m}$  avec les courbes de résonances et  $\{HR\}_{\Delta f} = 1.45 \cdot 10^{-26} \text{ J.m}$  avec la courbe d'approche



$\Delta f(D)$  en mode AFM Non-Contact. Cet excellent accord montre que ces deux méthodes de détermination sont cohérentes l'une envers l'autre.

Avec une valeur du rayon  $R = 140$  nm, on obtient les constantes de Hamaker  $H_{rc} = 9.6 \cdot 10^{-20}$  J et  $H_{\Delta f} = 10.4 \cdot 10^{-20}$  J. Ces valeurs, qui constituent une limite inférieure à cause de notre évaluation de  $R$ , sont en bon accord avec la valeur  $H = 16.6 \cdot 10^{-20}$  J obtenue numériquement pour le système *alumine-vide-silicium* dans [FCDC95]. Les principales sources d'erreur dans cette détermination sont l'incertitude dans l'échelle en distance de la commande piézoélectrique du microscope, que nous avons évaluée à  $\pm 10\%$ , et l'incertitude sur le rayon de pointe qui est du même ordre de grandeur [OLYR98].

Ces évaluations permettent d'estimer la sensibilité en force accessible dans ce type d'expériences. La force minimale détectable par l'oscillateur pour  $\Delta D_{-120Hz} = 18$  nm est égale à  $F_{min} = -\frac{\{HR\}_{rc}}{6(D_{rc}^{fit} - A_{max})^2} = -\frac{1.33 \cdot 10^{-26}}{6(6 \cdot 10^{-9})^2} \cong -60$  picoNewtons.

### 5.3 Courbes de résonance sur une surface de cuivre

Nous allons au cours de ce paragraphe utiliser exactement la même méthode d'investigation que précédemment pour l'échantillon d'alumine. Nous allons montrer que des charges piégées sur l'apex de la pointe du cantilever peut donner naissance à des forces électrostatiques à longue portée qui dominent l'interaction de van der Waals sur des substrats métalliques. Ces forces électrostatiques ne peuvent pas être compensées par la procédure usuelle consistant à appliquer une tension constante entre la pointe et l'échantillon. En effet, nous allons voir que la charge piégée ne reste pas constante sur le temps de l'expérimentation à cause d'un phénomène de fuite de charges à travers la couche d'oxyde à l'apex de la pointe. Nous verrons comment enlever cette couche d'oxyde par effet de champ pour résoudre ce problème et permettre d'accéder au régime des forces de van der Waals entre la pointe et le substrat.

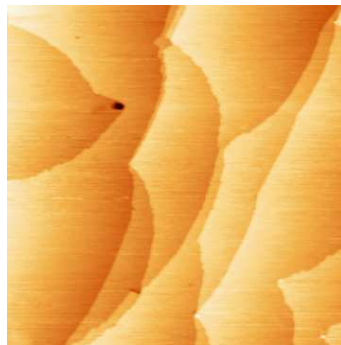
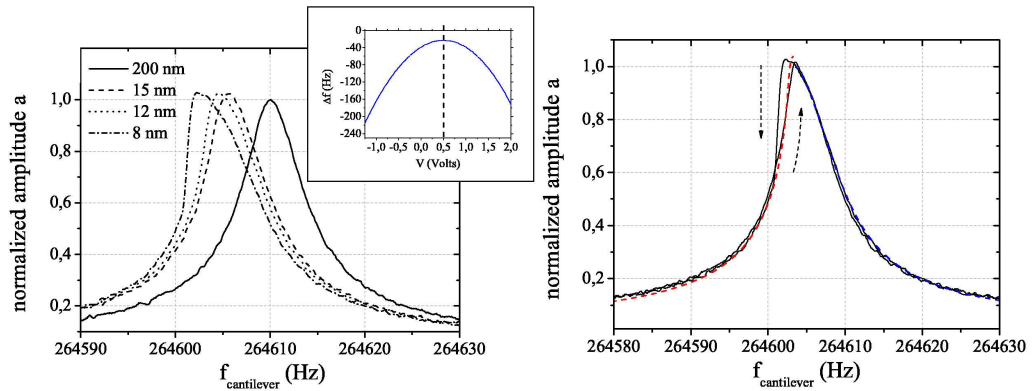


FIG. 5.12 – Image AFM Non-Contact ( $500 \times 500$ ) nm<sup>2</sup> de Cu(100) utilisée pour l'étude de résonance.  $\Delta f_c = -10$  Hz.

La surface métallique utilisée est un substrat de cuivre Cu(100) nettoyée par des cycles de bombardement d'ions argon Ar<sup>+</sup> avec une énergie cinétique de 500 eV et des recuits à 500 °C jusqu'à obtenir des images de la surface montrant de larges terrasses séparées par des marches monoatomiques (figure 5.12).

Nous utilisons toujours une pointe AFM de type standard [Tip] pour cette étude avec des paramètres de sonde du même ordre de grandeur que précédemment. Nous gardons le même protocole avec les mêmes notations pour les distances absolues  $D$ , de référence  $D_{-120Hz}$  et relative  $\Delta D_{-120Hz} = D - D_{-120Hz}$ .

### 5.3.1 Résultats



(a) La sous figure est une courbe  $\Delta f(U_D)$  acquise en 20 millisecondes en mode Non-Contact.

(b)  $\Delta D_{-120Hz} = 8$  nm.

FIG. 5.13 – Courbes de résonance sur la surface Cu(100) pour différentes distances relatives  $\Delta D_{-120Hz}$  (a). La pointe n’a subi aucun traitement. Le temps d’acquisition d’une courbe est de 30 secondes. (b) Les deux branches correspondant à un balayage en fréquence croissant puis décroissant sont indiquées par les flèches. L’ajustement analytique est tracé en traits discontinus.

La figure 5.13(a) présente quelques courbes de résonance acquises sur le substrat Cu(100) avec une amplitude d’oscillation à la résonance de  $A_0 = 36.2$  nm à différentes distances relatives  $\Delta D_{-120Hz}$ . Le sous-graphe de cette figure représente une courbe  $\Delta f(U_D)$  donnant la tension pointe-surface qui est supposée compenser les forces électrostatiques à longue portée (voir explications au paragraphe 5.1). La tension pointe-surface de +0.5 Volt appliquée pour l’acquisition des courbes de résonance correspond au maximum de la parabole  $\Delta f(U_D)$  [GBL<sup>+</sup>00]. Loin de la surface, pour  $\Delta D_{-120Hz} = 200$  nm, on retrouve la courbe Lorentzienne de l’oscillateur harmonique libre. L’ajustement de cette courbe permet de trouver  $f_0 = 264610$  Hz et  $Q_c = 46180$  pour le cantilever. Pour de plus petites distances, on observe la torsion de la courbe de résonance vers les basses fréquences en accord avec une interaction attractive. De plus, une hystérésis apparaît en conséquence de la non linéarité causée par l’interaction : dans la région centrale l’amplitude ne suit pas le même chemin si le balayage en fréquence est croissant ou décroissant comme le montre la figure 5.13(b).

L’ajustement analytique, tracé en pointillé sur la figure 5.13(b), est basé sur le modèle d’interaction van der Waals sphère-plan utilisé sur l’alumine. On obtient un produit  $HR$  égal à  $\{HR\}_{NT} = 2 \cdot 10^{-24}$  J.m. L’ordre de grandeur du rayon  $R$ , obtenu avec la méthode

décrite dans l'annexe B, est de 140 nm. Ainsi, on obtient une constante de Hamaker  $H_{NT} \simeq 90$  eV qui est une valeur anormalement élevée comparée à l'ordre de grandeur de 1 eV attendu [FCDC95, Vis72] pour un système *cuivre-vide-silicium*.

Comme nous allons le montrer, cette observation peut être expliquée par une contribution électrostatique à longue portée, malgré le fait que les courbes de résonance aient été acquises en appliquant la tension de compensation des forces électrostatiques.

La pointe en silicium du cantilever est naturellement oxydée ouvrant la possibilité de charges piégées. Afin de vérifier l'influence de cet oxyde sur les courbes de résonance, une procédure expérimentale, schématisée sur la figure 5.14 (à gauche), pour enlever cet oxyde a été développée. Elle se base sur l'émission de champ électronique [AT98]. La pointe est positionnée dans la chambre Ultra vide en face d'une électrode sphérique de diamètre 1 cm. Une haute tension (HT) négative est appliquée sur la pointe. On augmente la haute tension jusqu'à faire apparaître un courant d'émission de 300 microAmpères. Ensuite, la suppression de l'oxyde est vérifiée en microscopie à effet tunnel (STM) sur la surface de cuivre. On compare les courbes spectroscopiques  $I(V)$  obtenues avec la pointe AFM oxydée (courbe (a) figure 5.14) et les courbes  $I(V)$  obtenues avec la même pointe AFM désoxydée (courbe (b) figure 5.14) après l'émission de champ. On observe un large gap pour la pointe oxydée, correspondant au gap de la silice d'environ 9 eV. Pour la pointe désoxydée, le gap se réduit à 1 eV correspondant au gap du silicium. Ce constat nous indique clairement que l'oxyde a été supprimé, du moins dans la région tunnel de l'apex de la pointe.

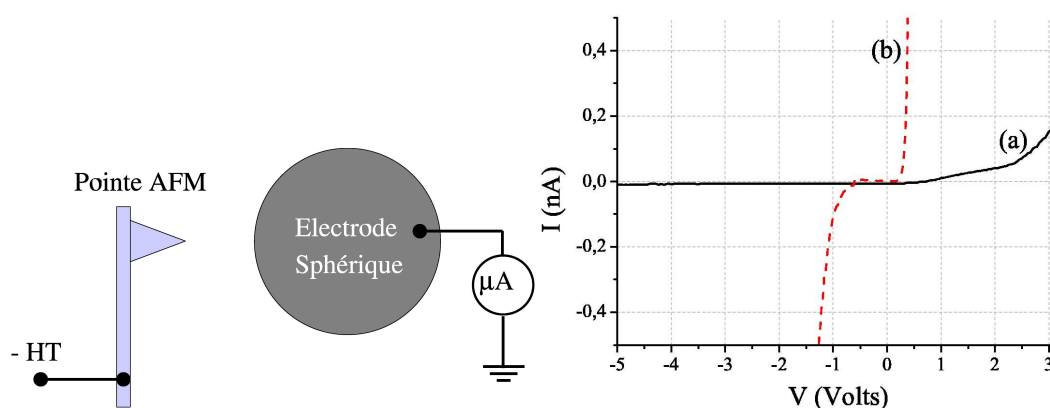


FIG. 5.14 – Courbes  $I(V)$  acquises en mode STM : (a) pour la pointe oxydée (paramètres :  $I_t = 70$  pA,  $V_t = +1.5$  Volt ), (b) pour la pointe désoxydée (paramètres :  $I_t = 90$  pA,  $V_t = +0.7$  Volt ).

Les courbes de résonance obtenues avec cette pointe AFM désoxydée sont tracées sur la figure 5.15. Là aussi, une tension pointe-surface de +0.2 Volt, correspondant au maximum de la courbe  $\Delta f(U_D)$ , est appliquée durant les mesures. Ces courbes montrent une même torsion vers les basses fréquences qu'avant la désoxydation, mais cela affecte seulement la région supérieure de la courbe de résonance. Ce fait montre que l'interaction attractive est de plus courte portée.

Les courbes (c) d'amplitude maximale  $A_{max}$  des figures 5.16(a), pour la pointe oxydée, et 5.16(b), pour la pointe désoxydée, corroborent ce constat (voir explications de ces courbes au paragraphe 5.2.2). On voit que dans le cas pointe oxydée, l'amplitude d'os-

cillation maximale  $A_{max}$  reste constante et égale à  $a = A_{max}/A_0 = 1$ . L'interaction reste toujours dans le domaine F longue portée.

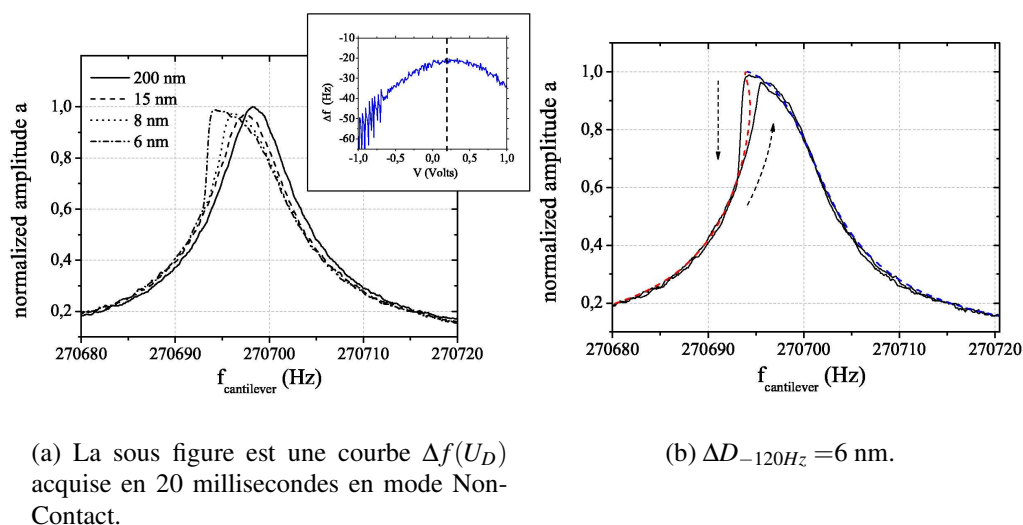


FIG. 5.15 – Courbes de résonance sur la surface Cu(100) pour différentes distances relatives  $\Delta D_{-120Hz}$  (a). La pointe a subi une désoxydation par effet de champ électronique. Le temps d'acquisition d'une courbe est de 30 secondes. (b) Les deux branches correspondant à un balayage en fréquence croissant puis décroissant sont indiquées par les flèches. L'ajustement analytique est tracé en traits discontinus.

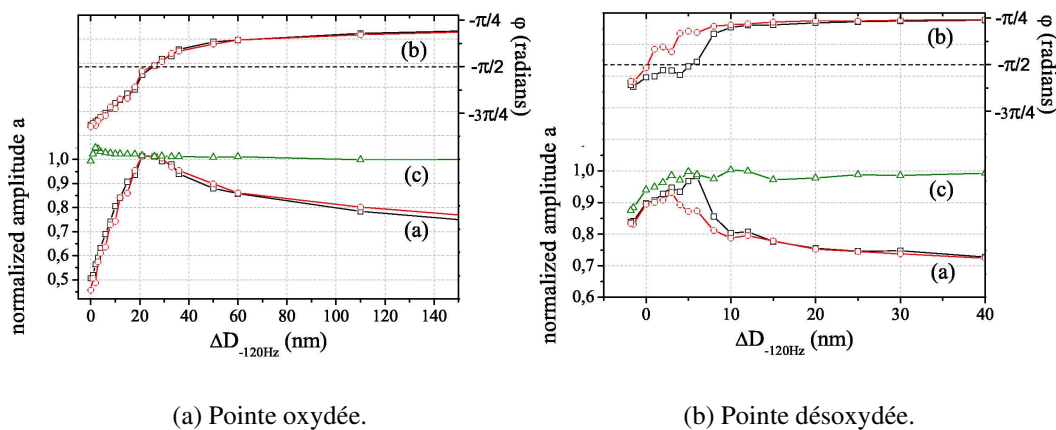


FIG. 5.16 – Courbes ronds ouverts : amplitude (a) et phase (b) prélevées à la fréquence  $f_{AM}$  (voir détails au paragraphe 5.2.2). Courbe triangles ouverts : amplitude maximum (c) prélevées sur les différentes courbes de résonance (voir détails au paragraphe 5.2.2) à la résonance  $f_0$  en fonction de la distance relative  $\Delta D_{-120Hz}$  au-dessus de l'échantillon de cuivre Cu(100).

A contrario, dans le cas pointe désoxydée, l'amplitude d'oscillation maximale  $A_{max}$  diminue à partir de  $\Delta D_{-120Hz} = 4$  nm. Cette réduction d'amplitude est due, comme nous

l'avons vu pour l'alumine, à la proximité de la surface : l'interaction rentre dans le domaine C courte portée. La désoxydation de la pointe a donc permis de minimiser la contribution des forces à longue portée.

Le bon ajustement analytique (voir figure 5.15(b)) des courbes de résonance permet de trouver un produit  $HR$  égal à  $\{HR\}_T = 1.6 \cdot 10^{-26} \text{ J.m}$  et une constante de Hamaker  $H_T \simeq 0.5 \text{ eV}$ , obtenue avec un rayon de pointe estimé à 200 nm. Ce résultat est en bon accord avec les calculs de [FCDC95, Vis72].

La principale conclusion de cette comparaison est que la présence d'oxyde sur l'apex de la pointe est responsable d'un comportement différent des courbes de résonance. Il est étrange que ce phénomène ne semble pas être observable sur les courbes  $\Delta f(U_D)$ , en mode AFM Non-Contact, où on ne voit pas de différence significative entre les deux cas. Un désaccord similaire a été observé par Guggisberg et al. [GBL<sup>+</sup>00] en comparant les courbes  $\Delta f(U_D)$  et  $\Delta f(D)$  en mode AFM Non-Contact. Au prochain paragraphe, nous tenterons de rationaliser ces résultats en analysant un modèle électrostatique (figure 5.17) du système.

### 5.3.2 Le rôle de l'oxyde de pointe

L'effet de l'oxyde sur l'apex de la pointe est de piéger des charges [BCK01, KBL<sup>+</sup>99]. Ces charges piégées vont introduire une force pointe-surface supplémentaire à la force capacitive résultant des charges mobiles des électrodes métalliques. Il est fortement probable que des agrégats de cuivre soient présents sur l'apex de la pointe à cause de contacts accidentels pendant les phases d'imagerie de la surface de cuivre en mode Non-Contact. Ainsi, on considèrera un agrégat métallique adsorbé sur l'oxyde de bout de pointe comme illustré sur le schéma 5.17(a). La façon la plus simple de modéliser cette situation est montrée sur la figure 5.17(b). La jonction *silicium dopé-oxyde-aggrégat métallique* et la jonction *aggrégat métallique-vide-substrat* sont modélisées sous forme de condensateurs plans [SYSB99, KWK00, Kle02]. Cette approximation est justifiée par le large rayon des pointes utilisées dans ces expérimentations.

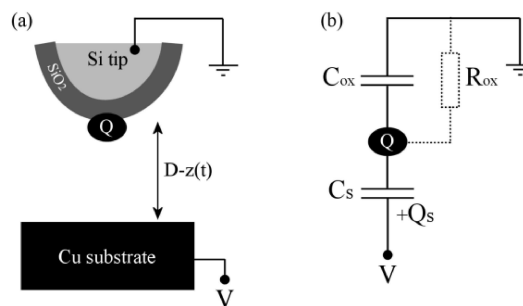


FIG. 5.17 – (a) Modèle du système pointe-surface. (b) Représentation électrique du même système.

La capacité est donnée par  $C_{ox} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_{SiO_2} S}{d_{SiO_2}}$  entre la pointe silicium dopée  $n^+$  [Tip] reliée à la masse électrique et l'agrégat de métal en bout de pointe. Le milieu diélectrique étant l'oxyde  $SiO_2$  natif de la pointe, l'épaisseur est estimée à  $d_{SiO_2} \simeq 2.5 \text{ nm}$  [SYSB99, LOW98]. On notera  $R_{ox}$  la résistance d'oxyde. La capacité, dépendant du temps, entre

l'agrégat métallique et l'échantillon, relié au potentiel  $U_D$ , est donnée par  $C_s(t) = \frac{\epsilon_0 S}{D+z(t)}$  avec l'oscillation du cantilever notée  $z(t)$ . L'agrégat de cuivre contient une charge  $Q$  distribuée sur une surface effective  $S$ .

### Force agissant entre la pointe et l'échantillon : rôle de la charge $Q$

Si la résistance d'oxyde  $R_{ox}$  est très grande, la charge  $Q$  restera constante. Dans ces conditions, les charges de polarisation capacitive suivent les oscillations du cantilever de façon quasi-instantanée. On peut alors faire un calcul statique de la force, en considérant la capacité  $C_s$  comme constante et en introduisant ensuite l'oscillation du cantilever.

$V_s$  et  $V_{ox}$  sont respectivement les tensions aux bornes des capacités  $C_s$  et  $C_{ox}$  avec  $U_D = V_s + V_{ox}$ . L'énergie stockée par les capacités peut être écrite :

$$\mathcal{E}_c = \frac{1}{2} C_{ox} V_{ox}^2 + \frac{1}{2} C_s V_s^2 \quad (5.5)$$

De plus, nous devons prendre en compte le travail fourni par la source de tension quand une charge est transférée à ses bornes [Fey63]. On peut écrire ce terme source :

$$\mathcal{E}_s = -Q_s U_D \quad (5.6)$$

avec  $Q_s$  la charge de polarisation du substrat. On obtient, en utilisant le théorème de superposition :

$$\mathcal{E}_c = \frac{1}{2} C_{ox} \left[ \frac{C_s U_D + Q}{C_s + C_{ox}} \right]^2 + \frac{1}{2} C_s \left[ \frac{C_{ox} U_D - Q}{C_s + C_{ox}} \right]^2 \quad (5.7)$$

et, en utilisant  $Q_s = C_s V_s$  :

$$\mathcal{E}_s = -\frac{C_{ox} C_s}{C_{ox} + C_s} \left( U_D - \frac{Q}{C_{ox}} \right) U_D \quad (5.8)$$

La force agissant sur la pointe  $F_{elec}(z) = -\frac{d(\mathcal{E}_s + \mathcal{E}_c)}{dz} = -\frac{d(\mathcal{E}_s + \mathcal{E}_c)}{dC_s} \frac{dC_s}{dz}$  est donnée par :

$$F_{elec}(z) = -\frac{1}{2} \frac{\epsilon_0 S}{\left( D + \frac{d_{SiO_2}}{\epsilon_{SiO_2}} + z \right)^2} \left( U_D - V_c - \frac{Q}{C_{ox}} \right)^2 \quad (5.9)$$

où la différence de potentiel de contact  $V_c$  a été introduite en remplaçant  $U_D$  par  $U_D - V_c$ . La relation 5.9 montre clairement que la force électrostatique due à la charge  $Q$ , considérée jusqu'à présent fixe, peut être annulée en appliquant une tension pointe-surface  $U_D = V_c + \frac{Q}{C_{ox}}$ , justifiant la procédure de compensation électrostatique mentionnée précédemment. Cette compensation nous permet de révéler d'autres interactions plus faibles comme les forces de van der Waals [GBL<sup>+</sup>00].

L'écart en fréquence  $\Delta f$  provoqué en mode AFM Non-Contact par cette force et la force de van der Waals (relation 5.4) est obtenu en utilisant la relation 3.40 dans la relation 3.38 donnant :

$$\frac{\Delta f(D)}{f_0} = -\frac{1}{2k_c} \frac{\epsilon_0 S}{\left( \left( D + \frac{d_{SiO_2}}{\epsilon_{SiO_2}} \right)^2 - A^2 \right)^{\frac{3}{2}}} \left( U_D - V_c - \frac{Q}{C_{ox}} \right)^2 - \frac{HR}{6k_c} \frac{1}{(D^2 - A^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (5.10)$$

Cette expression reste valide si la tension  $U_D$  varie lentement à l'échelle d'une période d'oscillation du cantilever et peut ainsi être comparée aux courbes expérimentales  $\Delta f(U_D)$  vues au paragraphe 5.3.1. Un ordre de grandeur en limite supérieure du nombre de charges piégées peut être estimé à partir de la position du maximum des courbes expérimentales  $\Delta f(U_D)$  (sous-figures dans figures 5.13(a) et 5.15(a)) en considérant  $V_c = 0$  Volt. A partir du terme quadratique électrostatique de l'expression 5.10, on obtient, par ajustement analytique de type Levenberg-Marquardt [Ori, BWS96],  $Q \simeq 100 |e|$  pour la pointe oxydée et  $Q \simeq 30 |e|$  pour la pointe désoxydée ( $e$  est la charge élémentaire de l'électron). Si l'on considère que la pointe désoxydée permet une évacuation des charges en bout de pointe, alors cette valeur non-nulle de la charge  $Q$  doit son origine à une différence de potentiel de contact  $V_c$  non-nulle entre la pointe et la surface. Parallèlement, la surface effective chargée  $S$  peut être extraite du terme de courbure des courbes  $\Delta f(U_D)$  donnant  $S \simeq 2000 \text{ nm}^2$  pour la pointe oxydée et  $S \simeq 1000 \text{ nm}^2$  pour la pointe désoxydée.

De plus, l'expression 5.10 montre que *la dépendance en distance de la contribution électrostatique est similaire à celle de l'interaction sphère-plan de van der Waals* pour une distance  $D$  plus grande que  $\frac{d_{SiO_2}}{\epsilon_{SiO_2}} \sim \frac{2.5 \text{ nm}}{4} = 0.625 \text{ nm}$ . Ainsi, il n'est pas surprenant qu'un bon ajustement des courbes de résonance soit possible même pour la pointe oxydée. Cependant, la valeur anormalement élevée de la constante de Hamaker  $H$  peut seulement être expliquée par la présence d'une *charge électrique non-compensée sur la pointe* malgré la tension de compensation appliquée. Cette charge non-compensée peut être estimée à environ  $-1300 |e|$  à partir de la valeur de  $H$ . Cette valeur est 13 fois plus importante que celle déduite à partir des courbes  $\Delta f(U_D)$ . Comme nous allons l'étudier au prochain paragraphe, la solution de ce paradoxe est possible si on considère avec attention les temps mis en jeu dans la réorganisation des charges. En effet, la nature figée ou mobile des charges devrait être définie en relation avec les temps caractéristiques des phénomènes considérés.

### Fuite de charges

Pour des temps d'observation suffisamment longs, un phénomène de fuite de charge apparaît dans le corps de la pointe à travers la couche d'oxyde natif [BWS96]. Cela peut être pris en compte dans notre modèle via une résistance d'oxyde  $R_{ox}$  en parallèle avec la capacité d'oxyde  $C_{ox}$  comme indiqué sur la figure 5.17(b). Cette modification introduit une constante de temps qui caractérise le temps de cette fuite de charge :

$$\tau(t) = R_{ox} [C_{ox} + C_s(t)] \quad (5.11)$$

La loi de Kirchoff nous donne  $i_s(t) = i_{C_{ox}}(t) + i_{R_{ox}}(t)$  avec les courants de déplacement des capacités :

$$i_s(t) = C_s(t) \frac{dV_s(t)}{dt} + V_s(t) \frac{dC_s(t)}{dt}$$

et

$$i_{C_{ox}}(t) = C_{ox} \frac{dV_{ox}(t)}{dt}$$

où  $i_{R_{ox}}(t)$  est le courant de fuite de la charge  $Q(t)$  tel que  $i_{R_{ox}}(t) = -\dot{Q}(t) = \frac{V_{ox}(t)}{R_{ox}}$ .

Après quelques calculs, on obtient une équation différentielle du second ordre à coefficients non-constants traduisant la dynamique de la charge  $Q(t)$  sur l'apex de la pointe :

$$\ddot{Q} + \dot{Q}P(t) = -R(t) \quad (5.12)$$

avec :

$$P(t) = \frac{1 + R_{ox}\dot{C}_s(t)}{\tau(t)} \quad \text{et} \quad R(t) = \frac{1}{\tau(t)} \frac{d[C_s(t)U_D(t)]}{dt} \quad (5.13)$$

L'équation 5.12 décrit la compétition entre le terme de relaxation  $\dot{Q}P(t)$  et le terme de forçage  $-R(t)$ . Nous en avons effectué la résolution numérique au moyen de l'algorithme dynamique de Verlet [Ver67] pour deux cas :

- la figure 5.18 montre la résolution numérique dans les conditions expérimentales d'acquisition des courbes de résonance avec un temps réel de simulation de 30 secondes pour le balayage de la fréquence de forçage  $f$  de 269950 Hz à 270050 Hz avec une tension de compensation  $U_D = 0.5$  Volt, et
- la figure 5.19 montre la résolution numérique dans les conditions expérimentales d'acquisition des courbes d'écart en fréquence  $\Delta f(U_D)$  en mode AFM Non-Contact. Le temps réel de simulation est de 20 millisecondes pour un balayage en tension  $U_D$  de -2 Volts à +2 Volts avec une amplitude d'oscillation constante  $A_0 = 30$  nm.

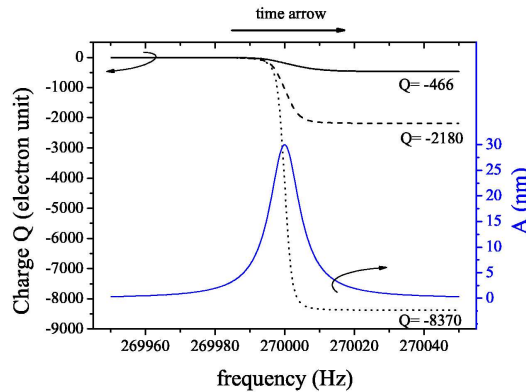


FIG. 5.18 – Evolution de la charge  $Q(t)$  dans les conditions d'acquisition des courbes de résonance avec temps de balayage en fréquence de 30 secondes. Trait plein :  $\tau_{SiO_2} = 1$  seconde. Traits discontinus :  $\tau_{SiO_2} = 100$  millisecondes. Trait pointillé :  $\tau_{SiO_2} = 10$  millisecondes.



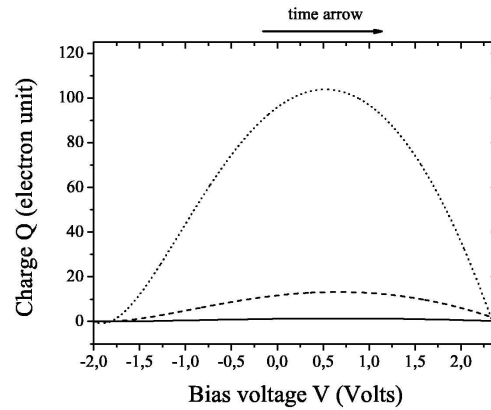


FIG. 5.19 – Evolution de la charge  $Q(t)$  dans les conditions d’acquisition des courbes  $\Delta f(U_D)$  en mode Non-Contact avec temps de balayage en tension de 20 millisecondes. Trait plein :  $\tau_{SiO_2} = 1$  seconde. Traits discontinus :  $\tau_{SiO_2} = 100$  millisecondes. Trait pointillé :  $\tau_{SiO_2} = 10$  millisecondes.

Les paramètres suivants sont communs aux deux cas de simulation : épaisseur d’oxyde  $d_{SiO_2} = 2.44$  nm, surface équivalente chargée  $S = 2000$  nm<sup>2</sup>, distance cantilever-surface constante  $D = 34.4$  nm, fréquence de résonance du cantilever  $f_0 = 270$  kHz et une condition initiale de la charge en bout de pointe  $Q(t = 0) = 0$ .

Pour les deux situations expérimentales la charge n’est pas constante. Mais, comme nous l’avons observé expérimentalement, ses variations sont beaucoup plus prononcées dans le cas des courbes de résonance comme on le voit sur la figure 5.18. Dans ce cas, la charge s’accumule au voisinage de la résonance, quand l’amplitude d’oscillation est maximale. Dans cette situation, l’apex de la pointe est proche du substrat ce qui maximise la capacité  $C_s$ . Dans ce cas, la constante de temps  $\tau$  (voir expression 5.11) est grande, la fuite de charge est minimisée et la charge  $Q(t)$  augmente sous l’influence dominante du terme de forçage dans l’équation de la dynamique de  $Q(t)$ .

Dans le cas des courbes  $\Delta f(U_D)$ , tracé sur la figure 5.19, la variation de charge est reliée à la dépendance en temps du balayage en tension pointe-surface  $U_D$ . Dans tous les cas, l’accroissement de la charge est intimement lié au rapport du temps d’acquisition des courbes sur la constante de temps de l’oxyde  $\tau_{SiO_2} = R_{ox}C_{ox}$ . La charge est plus importante pour les courbes de résonance principalement à cause du temps d’acquisition (30 secondes) beaucoup plus grand que pour les courbes  $\Delta f(U_D)$  (20 millisecondes).

Ces résultats de simulation sont en bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux. Le signe des charges accumulées est négatif dans le cas des courbes de résonance et positif pour les courbes d’écart en fréquence comme attendu. La quantité de charge accumulées est du bon ordre de grandeur pour  $\tau_{SiO_2} = 100$  millisecondes.

L’intention de ce modèle n’est pas de donner une description précise de l’expérience. Il repose sur plusieurs approximations. En particulier, la fuite dans l’oxyde est modélisée par une résistance. Mais il est bien connu que le mécanisme de conduction dominant dans une jonction *silicium dopé-oxyde-métal* est l’effet tunnel pour des barrières d’épaisseur inférieure à 4 nm [BWS96]. Une simulation plus réaliste devrait incorporer une caractéristique *courant-tension*  $I(V)$  non linéaire pour l’oxyde avec un courant de résistance d’oxyde [HYMH94] :

$$i_{R_{ox}}(t) = J(V_{ox}(t))S \quad \text{avec} \quad J(V_{ox}(t)) = J_0 + J_{ox} e^{\gamma V_{ox}(t)}$$

où  $J_0$  est une constante ajustable et  $\gamma$  dépendant de l'épaisseur de la barrière tunnel.

Cela introduit une distribution de temps de fuite qui compliquerait l'analyse. Nous avons vérifié avec des simulations numériques plus approfondies que cela ne change pas de façon significative les principales conclusions du modèle simplifié à une constante de temps présenté précédemment.

Nous avons poursuivi des études similaires sur un substrat de rutile  $\text{TiO}_2(110)$  dans différents états de réduction [Chu70] et les mêmes phénomènes ont été observés, démontrant le caractère général des conclusions précédentes. Sur une surface isolante comme l'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ ,  $C_s$  est la capacité entre le cluster et le support métallique de l'échantillon. Elle est très petite, en raison de la distance *pointe-support d'échantillon* de l'ordre de quelques millimètres, et donne naissance à une contribution électrostatique négligeable.

## Conclusion

L'investigation expérimentale des courbes de résonance en amplitude et en phase d'un cantilever entrete nu par une force constante d'excitation interagissant avec une surface isolante  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  en ultra vide nous a permis d'identifier deux domaines dans l'interaction pointe-surface. Quand l'oscillateur est loin du substrat, l'amplitude à la résonance reste constante, et les courbes de résonance peuvent être comparées quantitativement avec un modèle analytique ne considérant qu'une interaction conservative de van der Waals. La constante de Hamaker obtenue à partir de cette analyse est en bon accord avec la littérature [FCDC95]. Plus proche de la surface, l'amplitude à la résonance n'est plus constante : elle décroît car le système oscillant dissipe de l'énergie. Nous avons donné la méthode pour mesurer cette dissipation de façon fine en fonction de la distance. La compréhension de comportement mériterait la modélisation de l'interaction dissipative contribuant à proximité de la surface. Cela pourrait donc donner lieu à de futures études sur les processus dissipatifs [MWM03, ABNC01, CNBA02, GSAF99, LBP<sup>+</sup>00] que nous n'avons pas pu aborder en profondeur dans le cadre de ce travail de thèse. Néanmoins, on peut clairement mettre en évidence avec cette procédure expérimentale la *nanopointe* qui serait responsable de la résolution atomique en AFM dynamique.

Ensuite, dans le cas des substrats conducteurs, nous avons montré que les forces électrostatiques à longue portée pouvaient être compensées grâce à la tension pointe-surface appliquée seulement si la charge piégée dans la pointe est constante à l'échelle du temps d'acquisition. Cela n'est pas le cas pour les pointes AFM standards [Tip] recouvertes d'un oxyde natif de silice. Cette couche nanométrique d'oxyde induit des dynamiques de charges avec des constantes de temps de l'ordre ou plus petite que la durée de l'expérience. Il est alors crucial d'utiliser des pointes désoxydées pour observer convenablement des surfaces conductrices.



## Chapitre 6

# Etudes expérimentales sur une surface de molybdénite

Une de nos motivations à utiliser l'AFM dynamique est de pouvoir observer sur un isolant des molécules isolées connectées électriquement à des électrodes métalliques. Une autre étape étant la manipulation de ces molécules [OSA<sup>+</sup>05] avec la même machine. Deux problématiques surgissent : comment élaborer un tel système *molécules-électrodes-surface isolante* ? et, comment utiliser au mieux la machine AFM pour observer et manipuler un tel système ?

Au cours du chapitre, la surface utilisée comme support de fabrication du système sera conductrice. En effet, nous pourrons ainsi combiner la microscopie à effet tunnel avec la microscopie à force atomique d'une part, pour trouver les conditions adéquates d'élaboration du système, d'autre part, pour pouvoir tirer les conclusions les plus claires possibles des images obtenues.

Nous verrons que la complexité de la machine AFM provenant des différentes boucles d'asservissement, utilisables de différentes façons, va devenir un avantage irremplaçable afin de croiser différentes informations pour pouvoir interpréter les résultats sur un système physico-chimique complexe lui aussi.

En effet, le système étudié est composé de deux types d'objets sur une surface. Une surface semiconductrice de molybdénite (ou disulfite de molybdène)  $\text{MoS}_2$  recouverte de petits agrégats, que nous nommerons "clusters", d'or sera notre système de départ. Sur ce système mixte, on déposera de petites quantités de molécules de la famille des alcanedithiols ayant une grande affinité avec l'or [Sch00]. La figure 6.1 schématise ce système.

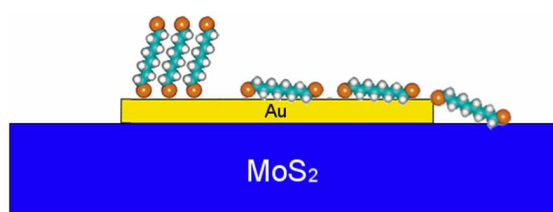


FIG. 6.1 – Schéma "naïf" du système élaboré.

Notons que la disposition des molécules sur ce schéma est tout à fait quelconque et ne

repose sur aucune simulation ou expérience. Dans la littérature, les expérimentations se rapprochant le plus de cette étude sont celles de l'équipe de F. Besenbacher ayant étudié en STM en ultra vide la réaction de catalyse des thiophènes sur une surface d'or couverte d'îlots de disulfite de molybdène [HLL<sup>+</sup>00, LNV<sup>+</sup>03, LNN<sup>+</sup>04].

Dans un premier temps, nous expliquerons l'élaboration de cette configuration physico-chimique dans un milieu ultra vide.

Ensuite, nous utiliserons plusieurs modes de fonctionnement du microscope pour l'analyser. Nous utiliserons les techniques classiques de champ proche que sont la microscopie à effet tunnel statique (annexe D) et la microscopie à force dynamique en mode Non-Contact. Puis, nous utiliserons le courant tunnel en AFM dynamique comme signal de régulation, et ensuite nous asservirons l'AFM dynamique sur les forces dissipatives de l'échantillon. Les informations récoltées dans ces divers modes de fonctionnement de la machine AFM se recouperont.

De plus, nous mettrons en évidence des phénomènes d'évolution de la sonde responsable de la qualité des images et des mesures quantitatives.

## 6.1 Le système

### 6.1.1 La surface de MoS<sub>2</sub>

La molybdénite est couramment utilisée par l'industrie pétrolière [VVMdIPR04, ZCH02, Lam04] pour catalyser des réactions de désulfuration des carburants et huiles dérivés du pétrole. La purification des carburants repose, en partie, sur le filtrage des produits soufrés, comme les thiols, du pétrole. On trouvera des détails sur la désulfuration et l'hydrodésulfuration, sous vapeur saturée de dihydrogène, des huiles sur MoS<sub>2</sub> dans les références [SLSG90, Har88, ZH87, PP03, FSK<sup>+</sup>03].

La molybdénite se trouve à l'état naturel sous forme de feuillet, comme le graphite. C'est un semiconducteur avec un gap d'environ 1.2 eV [LBL<sup>+</sup>04]. Chaque feuillet correspond à une couche d'atome de molybdène Mo pris en sandwich entre deux couches d'atomes de soufre S. Chaque atome Mo est coordonné avec six atomes S dans une cellule primitive. Ainsi le plan de surface est toujours un plan d'atomes de soufre. Chaque plan parallèle (0001) correspond à un réseau hexagonal du groupe d'espace  $P6_3/mmc$  avec les paramètres de maille  $a = 3.15 \text{ \AA}$  et  $c = 12.3 \text{ \AA}$  [LPD00]. Les feuillets sont faiblement liés entre eux par des forces de van der Waals, ce qui explique la très grande facilité pour les détacher.

Ainsi, pour préparer une surface propre de MoS<sub>2</sub>, on procède à un clivage à l'air, pour obtenir le plan basal (0001), et on introduit rapidement l'échantillon dans la chambre ultra vide où il va subir un recuit de 2 heures à 400°C. On observe ensuite la qualité de surface en NCAFM ou en STM. La figure 6.2 montre une telle surface propre observée en NCAFM puis en STM statique, avec la même pointe AFM, avec la résolution atomique où on identifie le paramètre  $a = 3.15 \text{ \AA}$  de la maille hexagonale. Cette surface est extrêmement plate puisqu'elle présente un contraste en topographie d'environ 1 Å sur une échelle de 100 nm. . Notons que toutes les images AFM de ce chapitre ont été acquises avec des pointes AFM standards dopées  $n^+$  [Tip]. Ces pointes n'ont subi aucun traitement particulier à part un chauffage sous ultra vide pendant quelques heures à environ 200°C qui permet, selon [TA99, AT98], d'enlever certains contaminants présents sur la pointe.

Il a été montré [HLL<sup>+</sup>00,ZH87] que le plan basal (0001) de surface MoS<sub>2</sub> étant saturé de soufre est peu réactif. Les défauts de surface, pouvant être des sites préférentiels de chimisorption, sont rares comme le montre [KKH<sup>+</sup>00]. Les risques de contamination de la surface dans un milieu ultra vide (pression d'environ  $5 \cdot 10^{-10}$  Torr) sont donc peu importants.

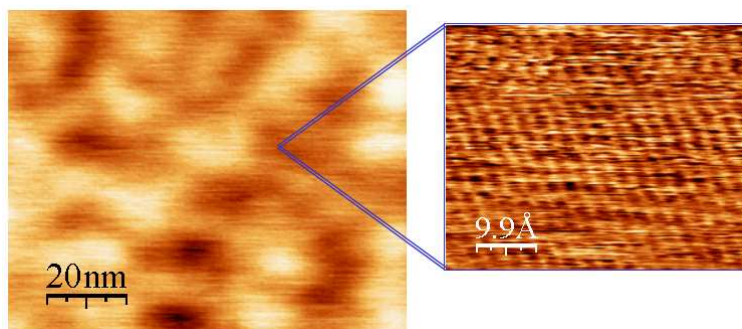


FIG. 6.2 – Image de la surface de MoS<sub>2</sub> nue, après clivage et recuit. Vue générale de gauche : image NCAFM  $\Delta f = -18$  Hz,  $A = 8.4$  nm. Agrandissement STM (statique) de droite (avec la même pointe AFM) :  $I_t = 65$  pA,  $V_t = +1$  Volt.

### 6.1.2 Clusters d'or

Sous vide secondaire, de l'ordre de  $1 \cdot 10^{-8}$  Torr, des atomes d'or chauffés dans un creuset sont évaporés avec une vitesse de dépôt d'environ  $13 \text{ \AA} \cdot \text{min}^{-1}$  pendant 60 secondes. L'échantillon est maintenu à  $400^\circ\text{C}$  durant l'évaporation métallique et après, durant 15 minutes pour assurer la diffusion des atomes Au sur la surface. Puis, on laisse refroidir l'échantillon à température ambiante sous un vide poussé de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-10}$  Torr avant de l'observer en champ proche comme le montre la figure 6.3.

Les clusters d'Au ainsi formés sont relativement homogènes. Ils ont des hauteurs de l'ordre de 4 à 5 nm, pour des diamètres d'environ 5 à 15 nm. Ils présentent des formes triangulaires tronquées ou hexagonales [MCAB03, CCA<sup>+</sup>02, Mau03, Car00] provenant de la symétrie six du plan basal MoS<sub>2</sub> de surface. Les atomes Au venant se loger au dessus des atomes Mo formant ainsi des plans (111) avec une croissance épitaxiale de type Volmer/Weber [WSH<sup>+</sup>01, RBM<sup>+</sup>98]. On obtient ainsi des clusters facettés comme nous l'avons modélisé à la figure 6.22.

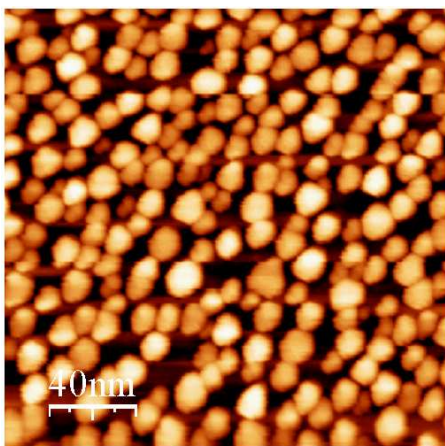


FIG. 6.3 – Surface de MoS<sub>2</sub> après dépôt d'or. NCAFM  $\Delta f = -90$  Hz,  $A = 7.3$  nm, (200x200) nm<sup>2</sup>.

### 6.1.3 Molécules d'octanedithiol

Les alcanethiols et alcanedithiols sont bien connus pour leur affinité avec les métaux nobles. Ce sont des molécules organiques possédant un ou deux groupes thiols SH. En effet, via leur groupe thiol, elles peuvent se greffer sur une surface d'or en perdant leur hydrogène et devenant ainsi des thiolates. On trouvera des détails sur ce sujet à la page 164 de la référence [Sch00].

Pour notre système, nous avons utilisé des octanedithiols (voir figure 6.4). Ceux-ci ont été étudiés en STM sous forme de couches autoassemblées sur un substrat d'or dans [NKMN96, LGL<sup>+</sup>00], sous forme de fil conducteur moléculaire dans [XXT03] et de manière isolé sur une surface d'Ag(111) dans [CBAG99].

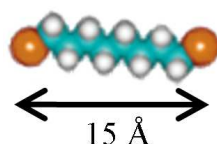


FIG. 6.4 – Molécule d'octanedithiol [ $HS(CH_2)_8SH$ ]. S : orange, C : bleu, H : blanc.

Expérimentalement, nous procédons au dépôt des molécules sur le substrat Au/MoS<sub>2</sub> précédent dans l'enceinte ultra vide à température ambiante via une microfuite réglable. Un tube métallique achemine le flux moléculaire en direction de l'échantillon durant un temps d'environ 30 secondes à une pression d'environ  $5 \cdot 10^{-9}$  Torr.

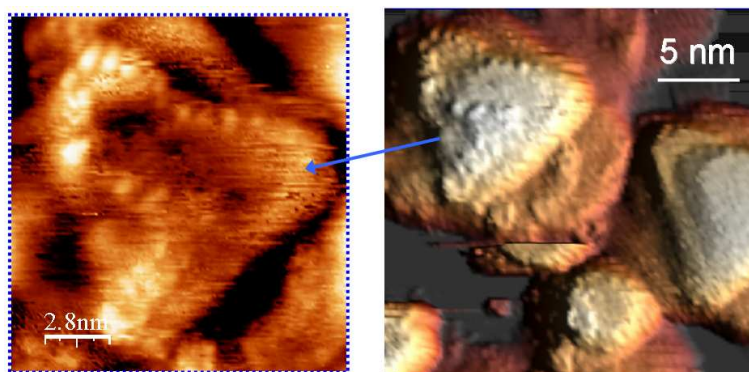


FIG. 6.5 – Image STM (pointe en tungstène) après le dépôt moléculaire sur le système :  $I_t = 20$  pA,  $V_t = +2$  Volts.

La figure 6.5 montre une image STM statique en topographie (voir annexe D) acquise avec une pointe de tungstène préalablement chauffée pour enlever d'éventuelles contaminations et la couche d'oxyde. On reconnaît la forme triangulaire des clusters d'or sur la surface de molybdénite. On remarque sur le bord de certains clusters des chapelets de lobes. Ceux-ci sont mieux discernables sur l'agrandissement de l'image avec une échelle de gris adaptée. La hauteur d'un lobe est inférieure à  $2 \text{ \AA}$ . Si on rapproche cette image STM de l'étude expérimentale faite par M. Cavallini et al. [CBAG99] de molécules d'octanedithiol isolées sur une surface d'Ag(111), on apprend qu'un lobe correspond à l'emplacement d'un atome de soufre lié chimiquement à la surface métallique. Des calculs numériques d'images en courant tunnel, menés par C. Villagomez Ojeda [Vil05], d'un octanedithiol adsorbé sur une surface de cuivre Cu(001) confirme que la conductance est supérieure au-dessus des deux atomes de soufre expliquant ces lobes sur les images topographiques. La liaison chimique du soufre S sur Au s'accompagne d'un bénéfice d'électrons sur l'atome S : il est plus électronégatif. Une molécule correspond donc à deux lobes séparés d'une distance d'environ  $15 \text{ \AA}$  comme le prévoit le modèle de la molécule présenté sur la figure 6.4. On retrouve cette distance "inter-soufres" sur l'image expérimentale. Nous validons ainsi nos conditions d'élaboration du système.

## 6.2 Régulation sur le courant tunnel

### 6.2.1 STM statique

En poursuivant notre investigation en STM statique, avec le même échantillon et la même pointe de tungstène, on trouve des clusters d'or avec des hauteurs de l'ordre de 2 à  $3 \text{ \AA}$ , pour des diamètres d'environ 2 nm dans le plan comme le montre la vue générale de la figure 6.6. On retrouve cette cohabitation de petits clusters d'Or de 2 nm d'une ou deux épaisseurs atomiques avec des gros clusters facettés de 10 nm pour des hauteurs de 3 à 4 nm dans l'étude expérimentale et théorique de U. Becker et al. [BRW<sup>+</sup>03] sur la croissance des métaux nobles sur la molybdénite. Leurs images expérimentales de la croissance d'îlots d'or sur MoS<sub>2</sub> sont similaires aux images présentées dans ce chapitre. On notera dans l'agrandissement d'un de ces petits îlots sur la figure 6.6, la présence de deux molécules d'octanedithiol (ellipses vertes) liées sur les bords de ce cluster. Dans

**Jérôme Polesel Maris**



cette étude, nous avons toujours décelé la présence des alcanedithiols uniquement sur les bords des îlots d'or. En remarquant, sur les images topographiques, des trainées claires sur certains lobes, on peut penser que la pointe perturbe la molécule malgré les faibles consignes en courant tunnel utilisées. L'objectif de connecter une molécule isolée sur une électrode métallique d'une épaisseur atomique est donc atteint.

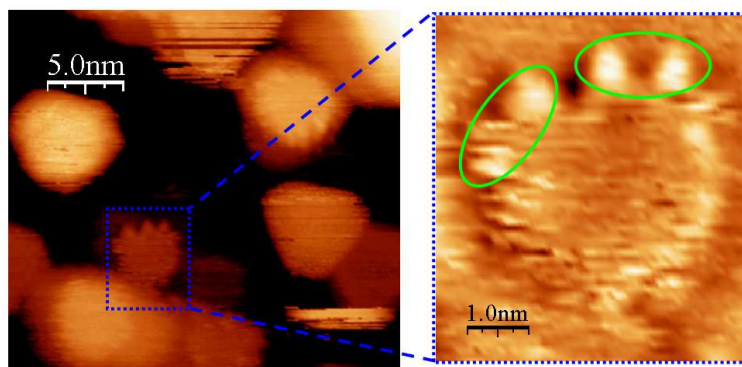


FIG. 6.6 – Image STM (pointe en tungstène) après le dépôt moléculaire sur le système :  $I_t = 25$  pA,  $V_t = +2$  Volts.

Etant donné le caractère conducteur des pointes AFM utilisées ici, nous avons réitéré l'imagerie STM statique (i.e. la pointe n'oscille pas) avec ces pointes sur ce même système. Ainsi, la figure 6.7 nous montre le type d'image obtenue en topographie. L'échelle des gris de l'image a été ajustée pour faire apparaître les petits îlots d'or. Les gros clusters, haut d'environ 4 nm, apparaissent donc en blanc à cause d'un effet de saturation des couleurs. On reconnaît leur forme en triangle tronqué ou hexagonale.

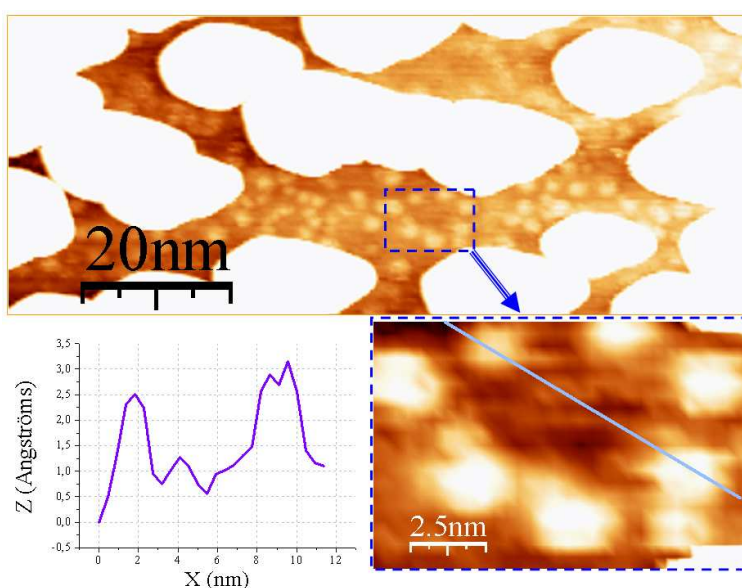


FIG. 6.7 – Image STM (pointe AFM) après le dépôt moléculaire sur le système :  $I_t = 30$  pA,  $V_t = -1$  Volt.

Jérôme Polesel Maris

Un gros plan de cette image nous donne une idée des dimensions de ces petits îlots d'or. On retrouve des dimensions comparables à celles de l'îlot de la figure 6.6. Toujours dans la référence [BRW<sup>+</sup>03], des simulations numériques montrent que la configuration la plus stable de ces petits îlots à une couche atomique, sur la molybdénite, correspond à un agrégat de 37 atomes avec un diamètre de 7 atomes. Soit un diamètre d'environ 1.9 nm sur la surface. Cela explique la distribution uniforme en taille de ces petits îlots sur la surface.

### 6.2.2 STM oscillant

Pour nous rapprocher des conditions d'observations en AFM dynamique souhaitées, nous conservons la régulation sur le courant tunnel avec la pointe AFM en la faisant osciller à sa fréquence de résonance  $f_0 = 261502$  Hz à une amplitude  $A$  fixée par le circuit de régulation d'amplitude (AGC) vue au chapitre 4. Le facteur de qualité  $Q_c$  du résonateur à été mesuré à 39830. Notons que le courant tunnel mesuré par le préamplificateur, étant donné sa faible bande passante, sera une moyenne sur une période d'oscillation. Dans nos conditions expérimentales, les pics de courant tunnel périodique seront environ 25 fois plus importants que la valeur moyennée. La distance bout de pointe-surface minimale est donc beaucoup plus petite que dans la configuration STM statique précédente. On trouvera plus de détails sur ce procédé de microscopie à effet tunnel oscillant dans l'annexe D.

Ainsi, dans ce mode STM oscillant, déjà utilisé par [GBL<sup>+</sup>98, LGP<sup>+</sup>03, OAO03], on obtient, comme on le voit sur les figures 6.8, toujours l'image en topographie (a) avec deux nouvelles informations : une image en écart en fréquence  $\Delta f$  (b), par rapport à la fréquence de résonance libre  $f_0$  du cantilever, mesuré par le démodulateur (voir section 4.1.4 au chapitre 4 page 74), et une image en "dissipation" (c) du signal d'erreur de la boucle de l'AGC pour maintenir l'amplitude d'oscillation  $A$  constante.

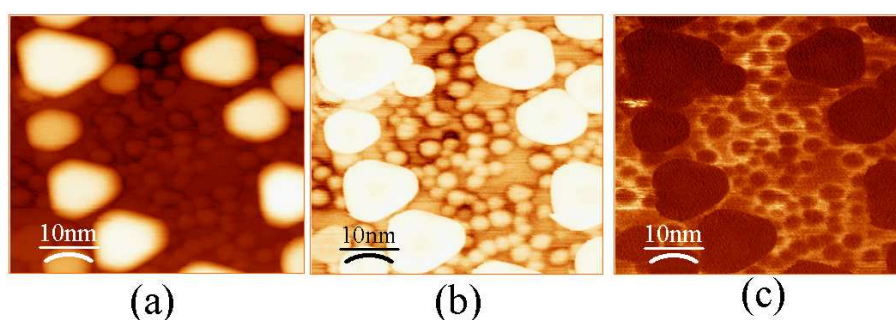


FIG. 6.8 – Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système :  $I_t = 20$  pA,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.5$  nm. (a) image en topographie, (b) image en  $\Delta f$ , (c) image en dissipation.

Les figures 6.9 montrent une autre zone imagée à plus petite échelle avec les mêmes paramètres que les figures 6.8. On retrouve bien les tailles des petits îlots d'or sur les images en topographie (a) avec l'apparition d'une zone noire autour des clusters où la pointe s'approche plus près de la surface pour trouver un courant tunnel correspondant à la consigne. La polarisation de la pointe est négative et la surface à la masse électrique. On peut interpréter ces zones noires comme des zones de déplétion électronique [BRW<sup>+</sup>03].

En effet, il a été montré [Mau03, MCAB03, CCA<sup>+</sup>02] que les îlots d'or posés sur la surface semiconductrice de MoS<sub>2</sub> forment des barrières de Shottky. Les images (b) en écart en fréquence  $\Delta f$ , acquises en parallèle, présentent aussi ces zones noires autour des petits îlots mais cette fois elles correspondent à des forces d'attraction pointe-surface beaucoup plus intenses. En effet, étant donnée la distance pointe-surface plus petite dans les zones de déplétion électronique, la force d'interaction ainsi que le gradient de cette force entre la sonde et la surface en sont d'autant plus grands. Les images en dissipation (c) présentent un contraste inversé autour des petits îlots : le signal d'entretien de l'amplitude d'oscillation est plus intense qu'ailleurs sur l'image. Là aussi la proximité de surface dans les zones de déplétion pourrait en être à l'origine. En effet le signal de dissipation est fortement dépendant de la distance pointe-surface comme nous l'avons montré au chapitre 5.

Notons que ces halos noirs ne sont pas visibles autour des gros îlots d'or. Nous pensons qu'un effet de convolution de pointe, que nous démontrons au cours du paragraphe 6.5, empêche l'exploration de la zone de déplétion électronique pour les gros clusters.

De plus, comme on le voit sur le profil du signal d'entretien de l'oscillation de l'image 6.9(c), pour des distances tunnels que nous pensons équivalentes sur les îlots d'or et sur la surface de MoS<sub>2</sub>, le niveau moyen de dissipation est plus bas sur le métal d'environ 20 meV/cycle.

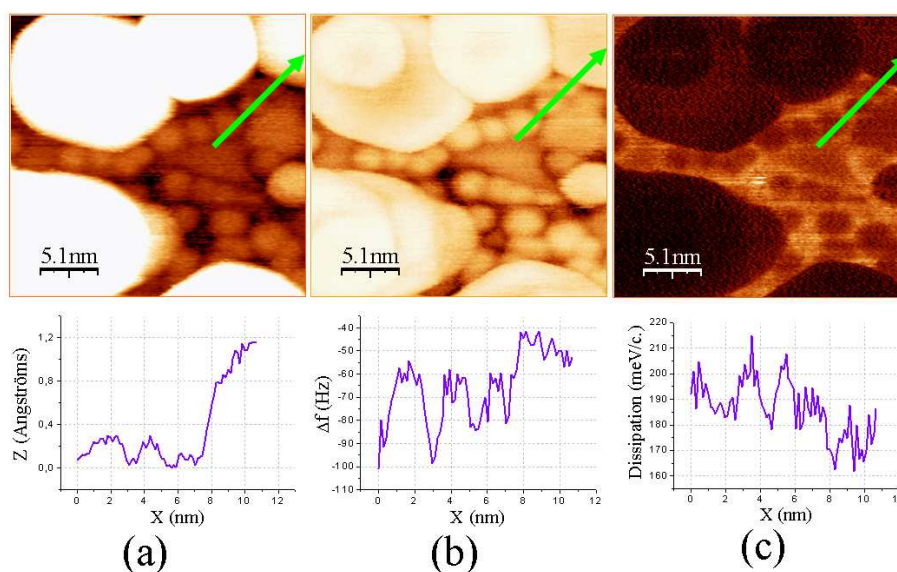


FIG. 6.9 – Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système :  $I_t = 20$  pA,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.5$  nm. (a) image en topographie, (b) image en  $\Delta f$ , (c) image en dissipation.

Un autre effet remarquable apparaît quand on change la tension de polarisation  $V_t$  entre la pointe et la surface. Les figures 6.10, acquises simultanément, montre une disparition, sur les quatre images, des petits îlots d'or quand la polarisation passe de -1 Volt à -2 Volts. La flèche verte indique le changement de polarisation. Cet effet est réversible, il n'est donc pas dû à une instabilité incontrôlée de l'apex de la pointe dont nous montrerons des exemples dans les prochains paragraphes. L'origine de ce phénomène est peut être aussi due à un changement de distance pointe-surface quand on change la tension de



polarisation.

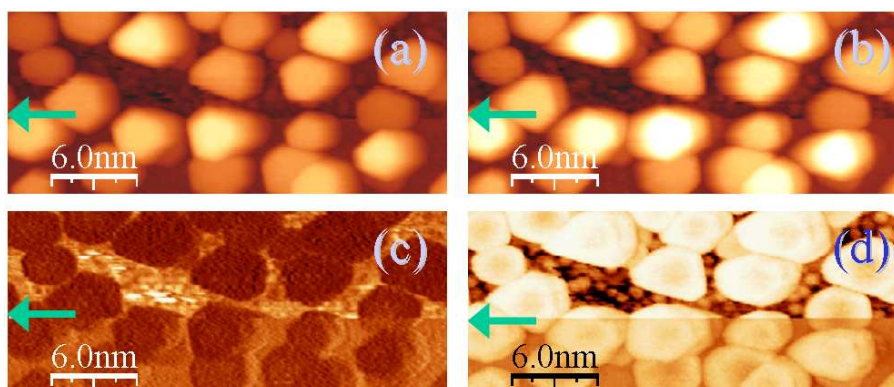


FIG. 6.10 – Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système :  $I_t = 22$  pA,  $V_t = -1$  Volt au dessus de la flèche verte,  $V_t = -2$  Volts au dessous de la flèche verte,  $A = 3.5$  nm. Images en topographie (a) balayage rapide vers la droite (b) balayage rapide vers la gauche, (c) image en dissipation, (d) image en  $\Delta f$

Nous avons pu mettre en évidence, sur les figures 6.11, la présence probable de molécules piégées entre de petits îlots d'or.

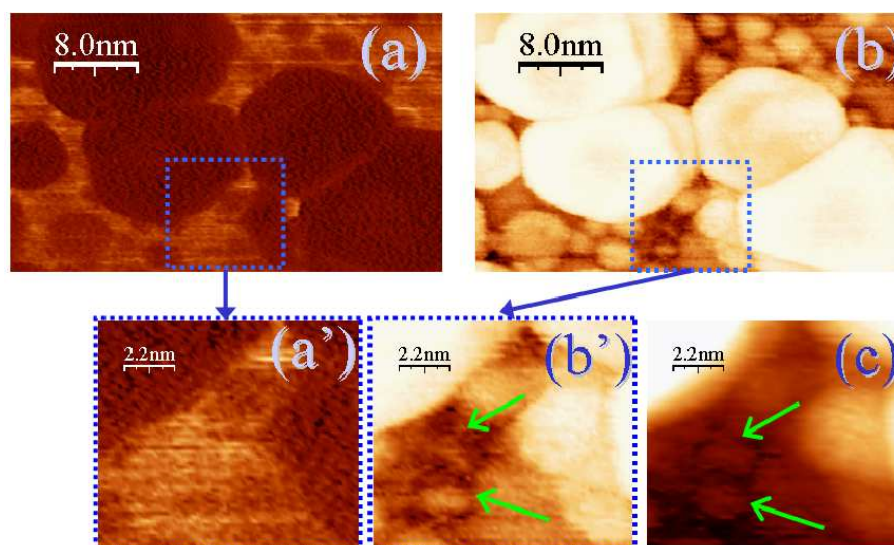


FIG. 6.11 – Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système :  $I_t = 25$  pA,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.5$  nm. (a) image en dissipation avec l'agrandissement (a'), (b) image en  $\Delta f$  avec l'agrandissement (b'), (c) image en topographie. Flèches vertes : localisation de molécules

En effet, leur taille est bien dessous de la configuration stable des petits îlots d'or [BRW<sup>+</sup>03] et s'apparente à celle du modèle de la molécule (figure 6.4) bien que l'on ait du mal à discerner deux lobes comme précédemment. On les distingue (flèches vertes) sur les images (b) et (b') en  $\Delta f$  et en topographie (c). On constate, à contrario des îlots d'or, qu'elles se trouvent dans des zones où le signal de dissipation reste élevé (images (a) et

**Jérôme Polesel Maris**

(a')). Elles créent aussi une zone de déplétion électronique [BS98] comme on peut aussi le constater sur l'agrandissement de la figure 6.6.

### Remarque

Au cours de ces mesures en STM oscillant avec une pointe AFM, nous avons constaté des changements de résolution de l'image incontrôlés. L'image en dissipation 6.12 en montre un exemple.

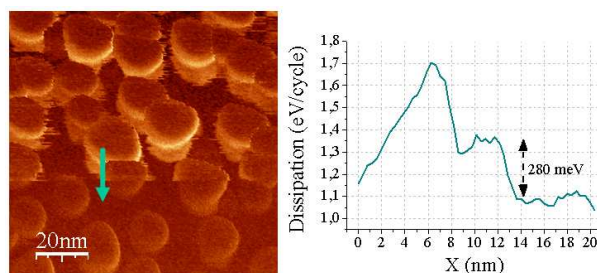


FIG. 6.12 – Image en dissipation en mode STM oscillant :  $I_t = 20$  pA,  $V_t = -1.9$  Volt,  $A = 9.0$  nm. On constate un saut en dissipation vraisemblablement dû à une évolution soudaine de l'apex.

On voit, en milieu d'image, un changement de l'aspect des gros clusters avec un saut dans le signal d'entretien de l'oscillation de l'ordre de 280 meV. Ces évolutions de la résolution sont dues à des instabilités de l'apex de la pointe. C. Barth et al. présentent de telles instabilités de pointe sur les images en dissipation pages 113-120 de [MWM03] sur une surface de  $\text{CaF}_2$ , C. Loppacher et al. [LBP<sup>+</sup>00] montrent de tels phénomènes sur une surface de  $\text{Si}(111) 7 \times 7$ . Des agrégats d'or s'accrochant ou se décrochant de l'apex de la pointe sont soupçonnés de provoquer ces instabilités. Nous verrons au prochain paragraphe que ce phénomène peut avoir un effet bénéfique pour améliorer la résolution des images.

## 6.3 Régulation sur le signal de dissipation

La régulation en distance sur le courant tunnel trouve ses limites dans l'utilisation de substrats conducteurs. Une autre voie possible pour observer notre système ou bien des surfaces isolantes est d'utiliser le signal d'erreur provenant de la boucle de régulation en amplitude (AGC). Ce signal nommé signal d'entretien de l'oscillation, signal de dissipation ou "Damp" ou "Damping" en anglais est directement lié à l'énergie requise par la sonde pour garder son amplitude d'oscillation constante. Nous avons mis en évidence à la page 109 sur une surface d'alumine (isolante) qu'il existe un domaine de distance où les interactions à courte portée entrent en jeu. Ce domaine de distance apparaît à quelques dizaines de rayons atomiques de l'apex de pointe, que nous avons nommée *nanopointe*, et la surface. Ce signal de dissipation est généralement monotone en fonction de la distance [HJP<sup>+</sup>01, AGF<sup>+</sup>99]. On remarque que ce signal de dissipation, présent sur tous les types de surface, montre des caractéristiques similaires au courant tunnel en fonction de la distance sur une surface conductrice. C'est la raison pour laquelle nous avons utilisé ce

signal pour asservir la distance pointe-surface. Ainsi, on ne fait que remplacer le courant tunnel préamplifié en tension par ce signal d'erreur d'entretien de l'oscillation du cantilever sur la carte d'acquisition du microscope [San01]. On définira désormais une consigne en dissipation qu'on nommera "*Damp*". Les images obtenues en mode topographie seront acquises à signal de dissipation constant sous réserve du temps de réaction des boucles de régulation en amplitude et en distance. En parallèle des images en topographie, on continuera à mesurer le signal d'écart en fréquence  $\Delta f$ . Bien qu'encore très peu utilisé à cause des instabilités du signal de dissipation, notons que R. Bennewitz et al., page 105 de [MWM03], ont fait des essais avec ce mode de fonctionnement pour observer des dépôts de NaCl sur une surface de Cu(111).

Les figures 6.13 montrent l'image (a) en  $\Delta f$  et l'image en dissipation (b) acquises dans ce mode de fonctionnement sur le système îlots d'or sur surface de molybdénite avant le dépôt de molécules.

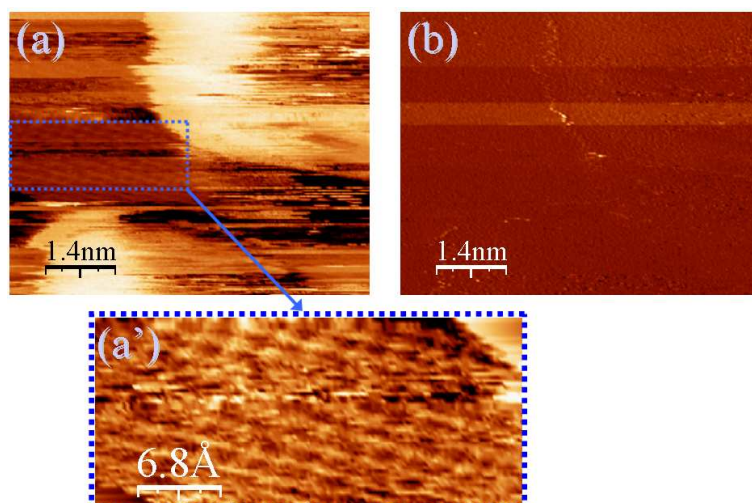


FIG. 6.13 – Régulation en dissipation sur le système :  $Damp = 177$  meV/cycle,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.2$  nm. (a) image en  $\Delta f$  avec l'agrandissement (a') on trouve un contraste de 7.3 Hz entre les extrema de cette image. (b) image en dissipation.

Comme le montre l'image (b), la régulation sur le signal de dissipation fonctionne bien : le signal est à peu près constant sur toute l'image bien que l'on ait sur l'image (a) un contraste en hauteur d'environ 4 nm à cause de la présence de deux gros îlots d'or. La forte dépendance en distance de ce signal de dissipation nous permet d'obtenir la résolution atomique de la maille hexagonale de la surface de MoS<sub>2</sub> (gros plan (a') de l'image (a)).

Après dépôt des molécules d'octanedithiols, on obtient les figures 6.14 où on note la présence d'un gros cluster d'or au bas de l'image. Sur les images (a) et (b), on note la présence de petits clusters. Certains sont assez mal définis quoiqu'ayant des diamètres de 3 à 2 nm. D'autres présentent des sous structures mieux définies avec toujours des hauteurs apparentes de l'ordre de 2 à 3 Å. Pour mieux comprendre la structure et sous-structure de ces petits îlots, nous en avons fait une image à plus petite échelle comme on le voit sur les figures 6.15.



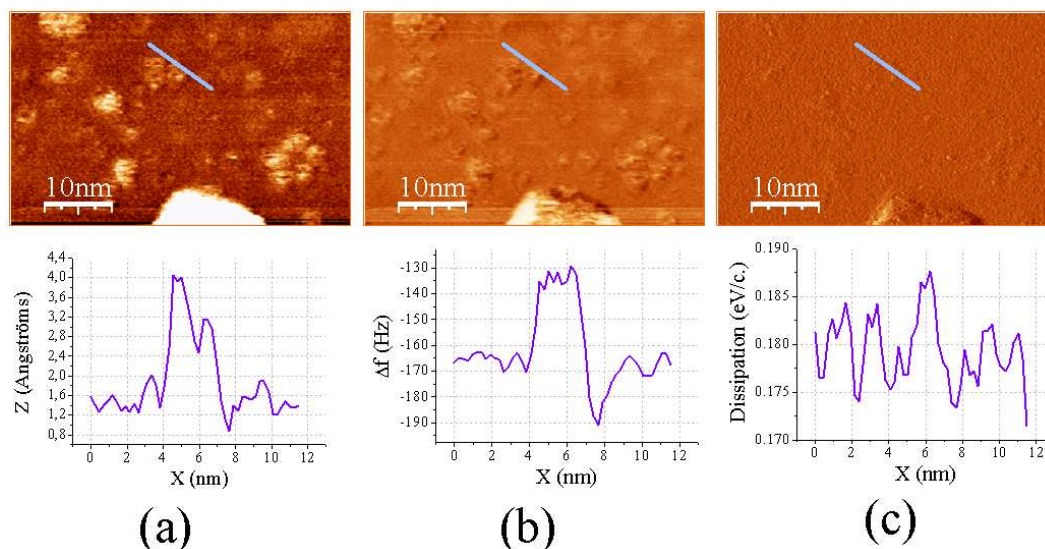


FIG. 6.14 –  $Damp = 177$  meV/cycle,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.5$  nm. (a) image en topographie, (b) image en  $\Delta f$ , (c) image en dissipation.

La consigne en dissipation  $Damp$  est plus grande de 3 meV/cycle par rapport à l'image précédente. Si l'on compare cette valeur au bruit thermique à température ambiante de l'ordre de 26 meV, on note la sensibilité remarquable de la machine due aux effets de filtrage des boucles d'asservissement (voir chapitre 4). L'apex de la pointe est donc plus proche des objets en surface. On commence à distinguer sur ces images (a), (b) et (c) le maillage atomique hexagonal de la surface. Sur l'agrandissement d'un des petits îlots à gauche de l'image en topographie (a), nous avons réhaussé l'échelle des gris de l'image pour mettre en évidence le réseau atomique que l'on devine sur l'image en dissipation (c). Cet îlot est donc un îlot d'or à une couche atomique dans son état le plus stable [BRW<sup>+</sup>03] avec structure hexagonale (111). A droite de l'image, nous discernons deux autres îlots d'or (haut et bas de l'image) entre lesquels on discerne des lobes similaires à ceux observés en imagerie STM (figures 6.5 et 6.6).

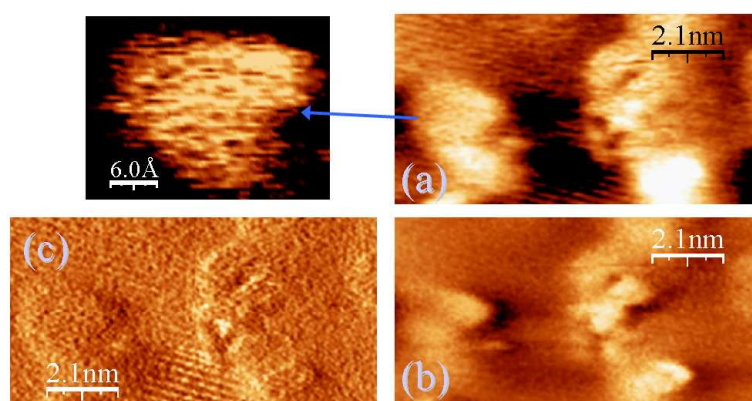


FIG. 6.15 –  $Damp = 180$  meV/cycle,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.5$  nm. (a) image en topographie avec agrandissement du cluster d'or, (b) image en  $\Delta f$ , (c) image en dissipation.

En observant une autre zone, en augmentant une nouvelle fois la consigne en dissipation  $Damp$  de 20 meV/cycle pour rapprocher l'apex de la surface (figure 6.16), la distinction devient nette entre les petits clusters d'or (taches blanches diffuses) et ces lobes apparaissant comme des taches plus contrastées sur les images en topographie (a) et en écart en fréquence (c). Un gros plan de l'image en topographie (a) nous permet de constater que ces lobes sont appairés avec une distance d'écart de l'ordre de 13 à 14 Å. On retrouve donc les dimensions de la molécule d'octanedithiol (figure 6.4). Cette image montre clairement trois ou quatre molécules (ellipses vertes) isolées et piégées entre les petits îlots d'or environnants. La régulation sur le signal de dissipation est donc une méthode adaptée pour observer des molécules sur un substrat isolant.

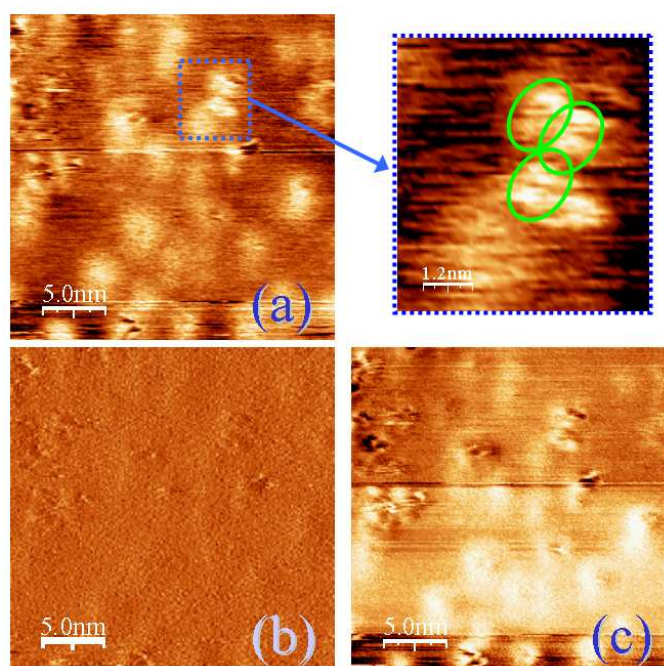


FIG. 6.16 –  $Damp = 200$  meV/cycle,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.5$  nm. (a) image en topographie avec agrandissement d'une zone de molécules, (b) image en dissipation, (c) image en  $\Delta f$ .

Quand on compare cette image des molécules avec celles obtenus en STM, il semble y avoir un lien entre l'électronégativité des atomes de soufre et la dissipation moléculaire. Cette constatation mériterait une étude plus poussée pour comprendre les mécanismes de dissipation à l'échelle de la molécule unique.

### Remarque

L'imagerie à signal de dissipation constant place l'apex de la pointe à quelques angströms des objets observés, comme en régulation sur le courant tunnel. Nous avons noté qu'en augmentant légèrement plus que nécessaire la consigne  $Damp$  du signal d'excitation, la pointe touche les clusters d'or et peut même les déplacer comme on le voit sur la figure 6.17(II). Ce phénomène peut apparemment améliorer, de temps en temps, la résolution d'une pointe ne donnant plus de bons résultats d'imagerie. En effet, les figures 6.17 montrent chronologiquement de l'imagerie en mode AFM Non-Contact régulé sur

**Jérôme Polesel Maris**



l'écart en fréquence (I), de l'imagerie AFM régulé sur le signal de dissipation (II) et à nouveau de l'imagerie en mode AFM Non-Contact régulé sur l'écart en fréquence (III) sur la même zone de l'échantillon pour les trois images. On voit clairement le gain en résolution obtenu en provoquant le contact de la pointe sur un gros îlot d'or. Nous interprétons ce phénomène comme une reconstruction de la *nanopointe* fournissant la résolution en AFM Non-Contact comme nous l'avons mentionné à la page 114.

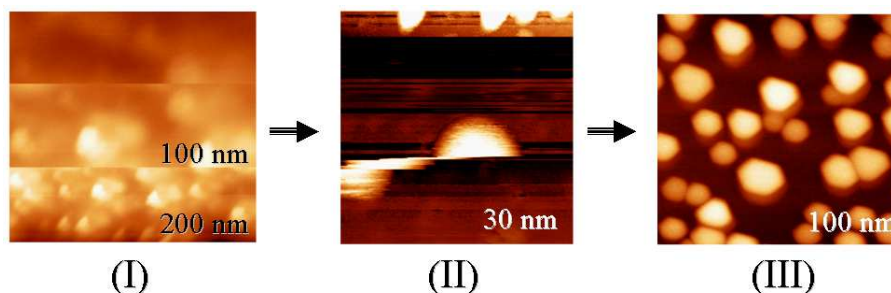


FIG. 6.17 – Amélioration de la résolution en trois étapes. (I) mode NCAFM  $\Delta f_c = -80$  Hz, (II) régulation sur  $Damp = 210$  meV/cycles, (III) mode NCAFM  $\Delta f_c = -120$  Hz.  $V_t = -1$  Volt,  $A = 4.2$  nm.

## 6.4 Régulation sur le signal d'écart en fréquence

Le mode AFM dynamique Non-Contact offre une autre alternative d'imagerie à l'échelle moléculaire et atomique sur les substrats conducteurs [MWM03, LBP<sup>+</sup>00] mais aussi isolants [Gie97, BFR<sup>+</sup>01, BH04]. Au chapitre 4, nous avons vu que la régulation de la distance pointe-surface (ADC) utilise le signal d'écart en fréquence  $\Delta f$  par rapport à la fréquence de résonance  $f_0$  du cantilever libre, mesuré par un démodulateur, pour le maintenir à une consigne  $\Delta f_c$  définie par l'utilisateur. C'est le mode classique de fonctionnement d'un AFM dynamique en ultra vide [AGHR91]. A cause du caractère non-monotone de la variation d'écart en fréquence en fonction de la distance, ce système ne peut fonctionner que dans le régime globalement attractif des forces d'interactions. Il existe des exceptions où on peut faire fonctionner le système seulement dans le régime répulsif mais pour de très petites amplitudes d'oscillations de l'ordre de l'angström [GBHM01].

Les images obtenues en mode topographie seront acquises à signal  $\Delta f$  constant sous réserve du temps de réaction des boucles de régulation en amplitude et en distance. En parallèle des images en topographie, on continuera à mesurer le signal de dissipation ayant un rôle passif dans ce cas.

Les figures 6.18 montrent une image en topographie acquise dans ce mode de fonctionnement sur le système îlots d'or sur la surface de molybdénite avant le dépôt de molécules. En bas à droite de l'image (a), on reconnaît une zone de gros îlots d'or avec des formes de triangle tronqué ou d'hexagone avec une hauteur apparente de 4 à 5 nm. En haut de l'image (a), on voit une zone de petits cluters d'or. L'agrandissement (b) de cette zone montre la même distribution en taille de ces îlots qu'aux paragraphes précédents : une hauteur de l'ordre de 2 à 4 Å pour un diamètre d'encombrement sur la surface de l'ordre de 4 à 2 nm.

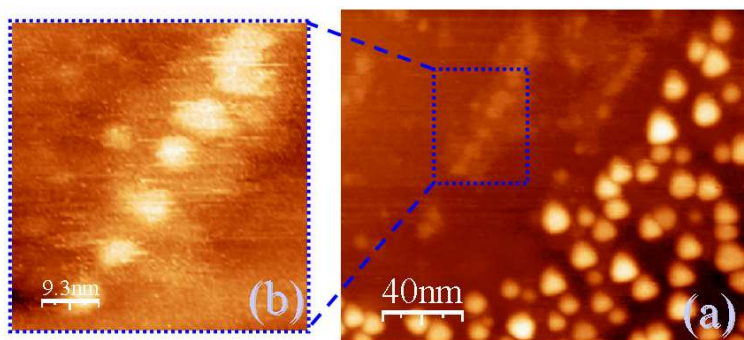


FIG. 6.18 – Image NCAFM avant le dépôt moléculaire :  $\Delta f_c = -40$  Hz,  $V_t = -1.1$  Volt,  $A = 4.3$  nm. (a) image en topographie, avec agrandissement (b), d'une zone de petits clusters d'or.

Après dépôt des molécules d'octanedithiols, on obtient, dans les bonnes conditions d'imagerie, les figures 6.19 où sont présents les petits îlots d'or, un gros clusters d'or au bas de l'image et les lobes, avec l'agrandissement de l'image topographique (a), caractéristiques de la présence de molécules avec des distances de l'ordre de  $15 \text{ \AA}$  entre deux lobes appariés. L'image (c) du signal  $\Delta f$ , relativement uniforme, prouve le bon fonctionnement de la boucle de régulation du microscope.

Comme pour les images régulées sur le signal de dissipation, si on compare cette image des molécules avec celles obtenues en STM (figures 6.5 et 6.6), il semble y avoir un lien entre l'électronégativité des atomes de soufre et l'écart en fréquence au niveau des lobes correspondant à la position des atomes de soufre. Ici aussi une étude plus poussée pour comprendre les mécanismes de gradient de force à l'échelle de la molécule unique serait utile. Nous pouvons avancer l'hypothèse que le nuage électronique plus dense au niveau des atomes de soufre peut créer un couplage dipolaire plus important que le reste de la molécule avec les moments dipolaires, permanents et induits, de l'apex de la pointe. Ainsi les forces attractives de dispersion (voir chapitre 2) sont plus importantes créant un écart en fréquence  $\Delta f$  plus important. Celui-ci est alors maintenu constant à la consigne  $\Delta f_c$  par la boucle d'asservissement en distance donnant les lobes sur l'image en topographie (a).

Notons ici encore un phénomène d'instabilité de pointe visible sur l'image (b) du signal de dissipation. Le profil indiqué par la flèche verte est tracé sur la figure 6.20. On note un saut de  $15 \text{ meV/cycles}$  du signal d'entretien de l'oscillation.

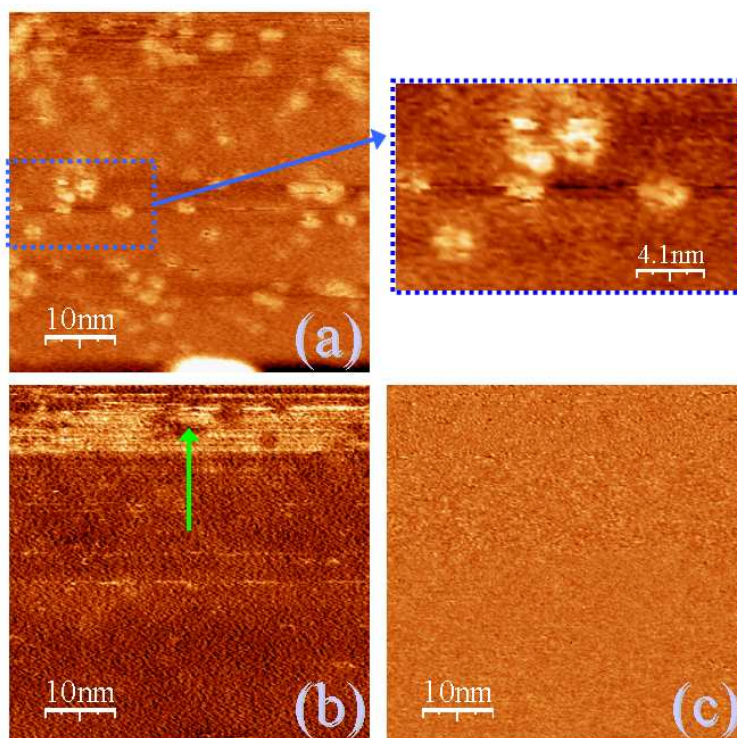


FIG. 6.19 – Image NCAFM après le dépôt moléculaire :  $\Delta f_c = -170$  Hz,  $V_t = -1$  Volt,  $A = 3.5$  nm. (a) image en topographie avec agrandissement d'une zone moléculaire, (b) image en dissipation (le profil indiqué par la flèche verte se trouve sur la figure 6.20), (c) image en  $\Delta f$ .

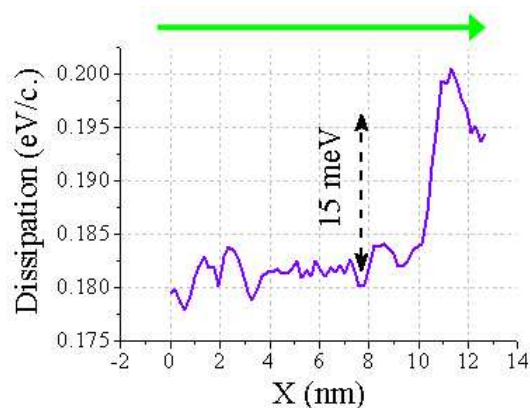


FIG. 6.20 – Profil de l'image en dissipation de la figure 6.19(b).

## 6.5 Phénomènes de gradient d'écart en fréquence sur les clusters d'or

Dans ce paragraphe, nous revenons sur un phénomène constaté lors de l'imagerie de l'échantillon en mode STM oscillant (paragraphe 6.2.2). Les images 6.21 d'écart en

Jérôme Polesel Maris

fréquence  $\Delta f$  montrent un effet de gradient vers les basses fréquences à l'intérieur des gros îlots d'or. Des vues en profil (courbes noires en trait plein) des ces cuvettes sombres montrent des dérives en fréquences de l'ordre de 30 à 40 Hz. Cependant, les profils des images en topographie (courbes bleues en traits discontinus), acquis simultanément, produisent un profil plat au dessus du cluster avec des hauteurs apparentes de l'ordre de 4 nm. Il ne semble donc pas y avoir de corrélation entre ces deux informations. Notons que la tension tunnel appliquée entre la pointe et la surface ne correspond pas ici à la tension de compensation des forces à longue portée, il se peut donc que des forces capacitatives électrostatiques soient présentes. Mais, l'effet de gradient de force apparaissant au centre des îlots est dû à des excursions en distance de la pointe de l'ordre de quelques dizaines d'angströms. Cet effet sera donc dû principalement au forces de dispersion avec une dépendance en distance en  $\frac{1}{d^6}$  devant la faible dépendance en distance des forces capacitatives en  $\frac{1}{d^2}$  (voir chapitre 2 page 17). De plus, les profils en dissipation (non-illustrés sur les figures 6.21) présentent le même aspect plat au-dessus des îlots que les profils en topographie : la dissipation mesurée n'est donc pas liée aux forces à longue portée ressenties par la sonde mais plutôt à la distance tunnel. Cela explique le contraste plus accusé des images en dissipation, sensible uniquement aux interactions à courte portée, par rapport aux images en topographie.

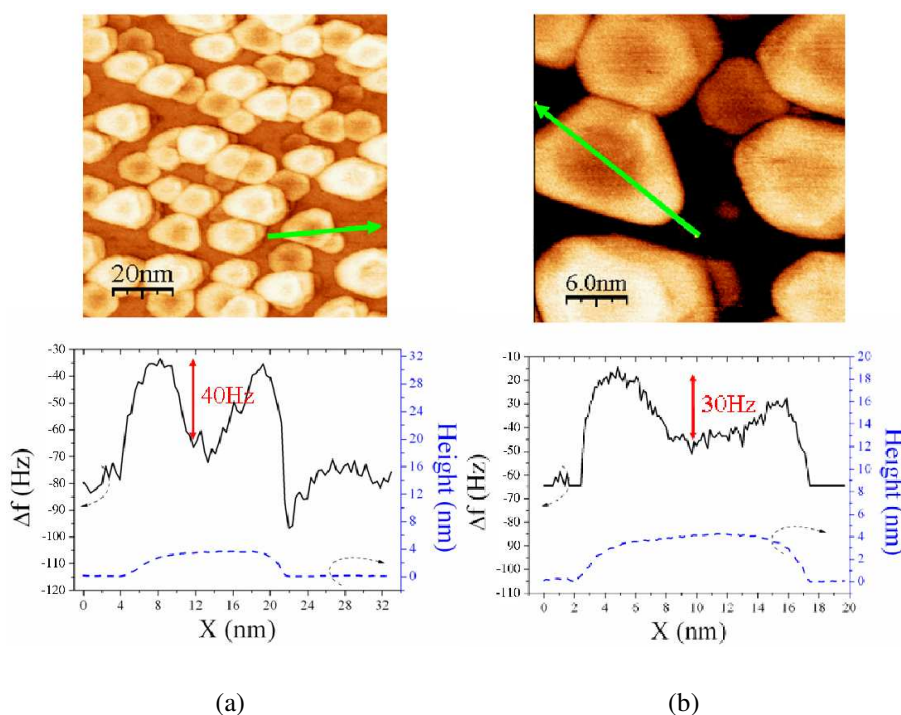


FIG. 6.21 – Image en  $\Delta f$  en mode STM oscillant :  $I_t = 20$  pA,  $V_t = -2$  Volt,  $A = 3.5$  nm.

De façon intuitive, on peut comprendre le phénomène de la façon suivante. La dérive en fréquence de la résonance du cantilever est liée non pas à la force d'interaction mais à aux variations de la force dans l'espace donc à son gradient. Durant une période d'oscillation de la pointe, la variation de la force à longue portée sera plus importante au centre de



l'îlot que sur les bords à distance minimale fixe. En effet, la quantité de matière intégrée dans l'interaction pointe-surface est liée à la position de la sonde en  $z$  mais aussi en  $x$  et  $y$  au-dessus de l'îlot. Le gradient de force est donc maximum au centre du cluster d'or.

Pour comprendre de façon détaillée ce phénomène de dérive en fréquence au dessus des clusters, nous proposons une modélisation simple du système îlots d'or sur une surface de molybdénite.

### 6.5.1 Modélisation

Par une méthode numérique qui sera expliquée au paragraphe suivant, nous avons au préalable discrétisé en éléments finis de volume  $dV_j$  un îlot d'or suivant la figure 6.22. Les facettes cristallographiques proviennent de la croissance épitaxiale de type Volmer/Weber [WSH<sup>+</sup>01, RBM<sup>+</sup>98] de l'or sur le plan basal de la surface de MoS<sub>2</sub>.

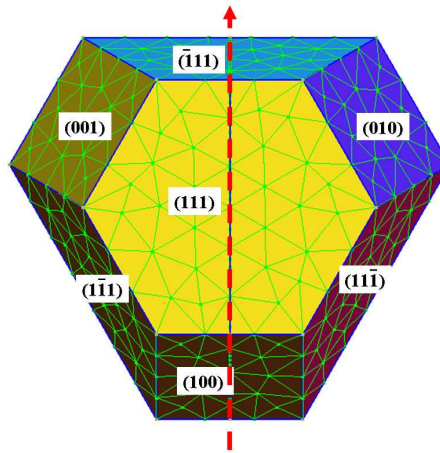


FIG. 6.22 – Modélisation du cluster d'or sous forme de petits tétraèdres (vue de dessus).

Le schéma général 6.23 de la modélisation du système montre que la pointe en silicium du cantilever est modélisée en une boule de rayon  $b_1$ . Ainsi, nous avons utilisé l'énergie d'interaction entre un élément de volume et une boule donnée par H. C. Hamaker [Ham37] et J. Mahanty et al. [MN76], page 10, pour trouver, après un simple mais long calcul analytique, la force entre ces deux objets :

$$F_{ilot} = -\frac{8}{\pi} H_{pointe-dV_j} b_1^3 \sum_j \frac{Z_{boule}}{(R_j^2 - b_1^2)^4} dV_j \quad (6.1)$$

avec la constante de Hamaker  $H_{pointe-dV_j}$ , dans le vide, entre la pointe en silicium et l'élément de volume de l'îlot d'or,  $Z_{boule} = b_1 + h$  étant la distance entre le centre de la boule et la surface,  $R_j$  étant la distance entre le centre de la boule et l'élément de volume  $dV_j$ . Une relation similaire, trouvée avec une méthode différente, a été proposée par C. Girard et al. [GM91]. Notons, dans cette sommation sur l'ensemble des éléments finis, la très forte dépendance en distance en  $\frac{1}{d^8}$  de cette force qui n'aura donc un effet que sur les plus proches voisins du cluster d'or. L'intérieur du volume affectera peu nos prochains résultats de simulation.

**Jérôme Polesel Maris**

Etant donné les distances tunnels, nommées  $h$  dans notre modélisation, de quelques diamètres atomiques entre l'apex de la pointe et la surface, nous traiterons la surface de molybdénite comme infinie. Cette approximation nous permet d'utiliser l'énergie d'attraction complète entre un plan infini et une boule [Ham37, MN76] pour trouver la force d'interaction (voir chapitre 2 page 26) :

$$F_{surface} = -\frac{2}{3} H_{pointe-surface} b_1^3 \frac{1}{(Z_{boule}^2 - b_1^2)^2} \quad (6.2)$$

avec la constante de Hamaker  $H_{pointe-surface}$ , dans le vide, entre la pointe en silicium et la surface. Cette relation peut aussi s'obtenir à partir de la relation 6.1 en utilisant une sommation à l'infini des éléments de volume d'une deuxième boule à la place de l'îlot d'or. En faisant tendre la taille des éléments de volume à zéro et le rayon de la seconde boule vers l'infini, on obtient l'expression 6.2.

Ainsi, dans notre modèle, la force totale ressentie par la pointe s'écrira :

$$F_{totale} = F_{surface} + F_{ilot} \quad (6.3)$$

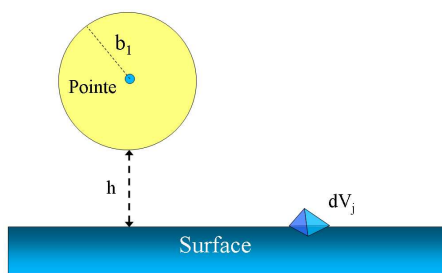


FIG. 6.23 – Modélisation de l'interaction entre la pointe, représentée par une boule de rayon  $b_1$ , et les éléments finis  $dV_j$  composant le cluster. La surface est traitée avec l'interaction de van der Waals sphère-plan [Isr92].

### Remarques

Il faut souligner que nous utilisons ici un traitement de sommation par paires similaire à celui proposé par H. C. Hamaker [Ham37]. Cela signifie que la matière n'est pas traitée de façon atomistique mais sous forme d'éléments du volume qui possèdent, de manière isolée, les mêmes propriétés que tout le volume. Dans cette hypothèse, on peut utiliser la notion de constante de Hamaker pour des objets ayant des volumes de l'ordre de quelques atomes. Ce traitement permet de retrouver les propriétés macroscopiques du volume à partir d'éléments microscopiques qui ont les mêmes propriétés [MN76]. Dans cette hypothèse, la notion de géométrie de l'objet est isolée de la constante de Hamaker qui peut être traitée soit en considérant les densités de matières en présence [Ham37], soit qui peut être trouvée, plus simplement, en considérant les milieux comme continuum avec leur réponse diélectrique aux champs électromagnétiques [LP78].

Un traitement rigoureux, exposé dans l'annexe A, devrait tenir compte de certaines corrections dues aux effets électroniques d'écrantage dans la matière. En d'autres termes, le couplage dipolaire, contenu dans la constante de Hamaker, entre les objets, doit tenir

compte de la géométrie des objets [DGM<sup>+</sup>94, GDM94]. On utilise pour cela des algorithmes numériques de résolution du système basés sur la construction du propagateur électromagnétique des objets interagissant c'est à dire pointe avec îlot d'or, pointe avec surface mais aussi îlot d'or avec surface. Ce propagateur se trouve par une résolution par récurrence de l'équation de Dyson [Col02]. Une étude intéressante serait d'évaluer les écarts au modèle de sommation par paires pour mettre en évidence les effets d'écrantage et les effets géométriques sur le couplage dipolaire dans la matière.

Nonobstant ces corrections, nous allons voir que nous trouvons les bons ordres de grandeur dans nos simulations en utilisant le simple formalisme de sommation par paires. En effet, Lifchitz [Lif56] montre, par une théorie complète des forces de dispersion, que la méthode de sommation par paires reste valable pour deux solides interagissant dans le vide.

### 6.5.2 Méthodes numériques

Au cours de ce travail nous avons développé un outil numérique, nommé *BaryMesh*, permettant de résoudre des systèmes à géométrie quelconque, tant au niveau de la surface que de la pointe, pour estimer les forces et gradients de force ressentis par la pointe du microscope. La première étape de l'outil est de "mailler" les objets en éléments finis. Deuxièmement, celui-ci crée la surface de balayage de la pointe au dessus des objets en surface. Troisièmement, on aboutit au calcul de la force ressentie et de l'écart en fréquence de la sonde oscillante en chaque point de la surface de balayage.

#### Le maillage

Nous avons utilisé le noyau d'un programme de maillage (libre de droits) développé par C. Geuzaine et J. F. Remacle [Geu01, Gms] qui utilise l'algorithme de maillage de Delaunay-Bowyer [Deb04, She03, Tho02] permettant de mailler proprement un objet tri-dimensionnel quelconque à l'aide de tétraèdres. Le barycentre et le volume  $dV_j$  [ZT91] de chaque tétraèdre sont ensuite calculés. Le graphe 6.24 montre la distribution en volume des tétraèdres composant le cluster modélisé de la figure 6.22.

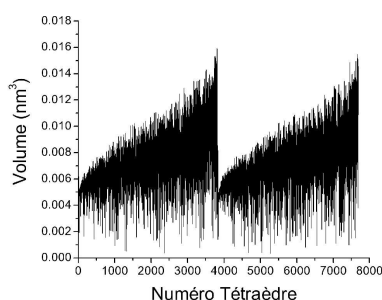


FIG. 6.24 – Distribution en volume des éléments finis composant le cluster d'or de la figure 6.22.

On note, comme nous l'avons souligné en remarques du précédent paragraphe, les tailles sub-nanométriques des éléments finis.

### Surface de balayage

Celle-ci est créée en définissant la distance  $h$  minimale entre le bout de la pointe et l'objet considérée qui est soit la surface soit un élément de volume  $dV_j$ . Cette distance  $h$  équivaut, dans notre modèle, à la distance tunnel mesurée sur les profils des images topographiques expérimentales (voir courbes bleus en traits discontinus des figures 6.21). La construction de cette nappe de balayage de la pointe au dessus des objets et de la surface est simple à comprendre en faisant l'analogie suivante : on lâche une nappe en tissu au dessus d'une table de cuisine comportant des assiettes, des verres et d'autres ustensiles. Cette nappe va donc épouser les formes des objets par gravité. Si on remplace le maillage du tissu de la nappe par les coordonnées tridimensionnelles de l'apex de la pointe, l'épaisseur de la nappe en tissu par la distance rayon+distance tunnel  $b_1 + h$ , la table de cuisine par notre surface et les ustensiles par nos îlots d'or, on obtient l'algorithme de création de la surface de balayage.

### Calcul de l'écart en fréquence $\Delta f$

En chaque point de la nappe de balayage, la pointe oscille à la fréquence  $f_0$  avec une amplitude  $A$ . Ainsi pour une période d'oscillation, divisée en mille pas de temps, le programme calcule la force totale 6.3 ressentie par la pointe. En utilisant ces valeurs de la force en fonction de la distance pointe-surface pour une période d'oscillation, on trouve, pour ce point de la nappe de balayage, l'écart en fréquence  $\Delta f$  grâce aux relations 3.38 et 3.40 à la page 59 donnant :

$$\Delta f(Z_{boule}) = \frac{f_0^2}{k_c A} \int_0^{1/f_0} F_{\text{totale}}[s(t), Z_{boule}] \sin(2\pi f_0 t) dt \quad (6.4)$$

avec l'oscillation de la sonde  $s(t) = A \sin(2\pi f_0 t)$  et  $k_c$  la raideur du cantilever. Dans toutes les simulations suivantes, nous avons utilisés les paramètres communs :  $A = 5$  nm,  $k_c = 30$  N.m<sup>-1</sup> et  $f_0 = 270$  kHz. Ces valeurs sont similaires à nos conditions expérimentales.

### 6.5.3 Résultats

Les paramètres libres dans nos simulations sont la distance tunnel  $h$  que l'on a fixée à 7 Å, la constante de Hamaker qui varie de 1 eV à 2.5 eV, conformément aux ordres de grandeurs que l'on trouve dans [Isr92, FCDC95] (voir annexe A), le rayon  $b_1$  de la pointe et le paramètre  $a$  de taille du cluster. Ce paramètre  $a$  correspond à l'arête du triangle équilatéral unité qui nous a permis de construire le cluster d'or (figure 6.22) par des jeux de symétries six et trois.

Ainsi, on obtient les profils des figures 6.25 dont la localisation est indiquée par la flèche rouge en traits discontinus au dessus de l'îlot sur la figure 6.22.

Les courbes en traits pointillés mauves correspondent à la taille réelle du cluster en fonction de  $a$ , les courbes en traits discontinus bleus correspondent à la nappe de balayage de l'apex de la pointe au dessus de l'îlot, en fonction de  $b_1$  et  $h$ . Les courbes en trait plein correspondent à l'écart en fréquence  $\Delta f$  obtenus : en rouge pour une constante de Hamaker de 1 eV, en noir pour une constante de Hamaker de 2.5 eV. Notons que dans ces simulations numériques, nous avons pris  $H_{\text{pointe-d}V_j}$  égal à  $H_{\text{pointe-surface}}$ .



Si on rapproche ces résultats numériques des profils des images expérimentales 6.21, on constate que l'on obtient bien l'effet de cuvette en écart en fréquence, du même ordre de grandeur, au dessus du cluster bien que le profil en topographie soit plat.

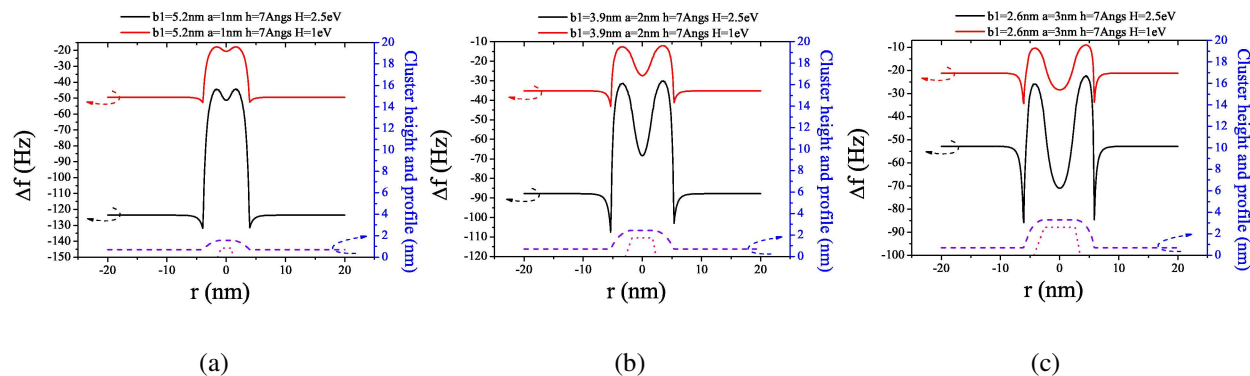


FIG. 6.25 – Résultats de simulation de l'écart en fréquence  $\Delta f$  sur un cluster. Le profil est indiqué par la flèche en traits discontinus rouges sur la figure 6.22.  $f_0 = 270$  kHz,  $A_0 = 5$  nm,  $k_c = 30$  N.m<sup>-1</sup>.

En utilisant les paramètres du profil (b) de la figure 6.25, avec une constante de Hamaker de 2 eV, correspondant le mieux aux cas expérimentaux on peut obtenir, sur la figure 6.26, une image en écart en fréquence complète au dessus d'un îlot d'or. Cet aspect très similaire avec les résultats expérimentaux, nous permet de rendre compte que l'effet de gradient en écart en fréquence est bien dû à un effet géométrique de la force d'interaction entre la pointe et l'objet.

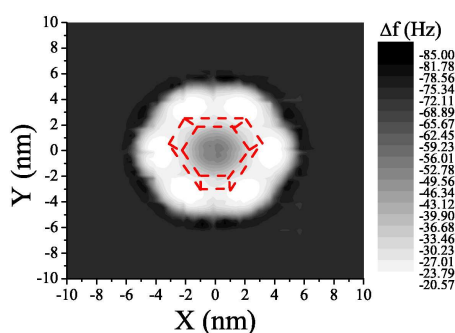


FIG. 6.26 – Résultat de simulation de l'écart en fréquence  $\Delta f$  sur un cluster dont l'étendue spatiale vraie est indiquée en traits discontinus rouges sur la figure. Mêmes paramètres que la figure 6.25 avec  $b_1 = 3.9$  nm,  $h = 7$  nm,  $H = 2$  eV et  $a = 2$  nm.

Nous avons superposé, en traits discontinus rouges, sur cette figure 6.26 la taille réelle de l'îlot d'or. On met donc en évidence un effet de convolution de pointe [SHRG94] lié à son rayon effectif. L'encombrement apparent des clusters sur la surface sur les images expérimentales est surestimé par rapport à leur taille vraie. Cet effet de convolution explique peut être le fait que nous n'avons pas pu obtenir la résolution atomique sur les

bords des gros clusters d'or comme on le voit sur les images du paragraphe 6.3. En effet, l'effet de convolution peut empêcher la *nanopointe*, responsable de la résolution en AFM dynamique [FGA<sup>+</sup>03, GNIR05], d'approcher suffisamment la surface de l'îlot. C. Barth présente cette difficulté à obtenir la résolution sur des îlots d'or déposés sur une surface de KBr(001) [BH04].

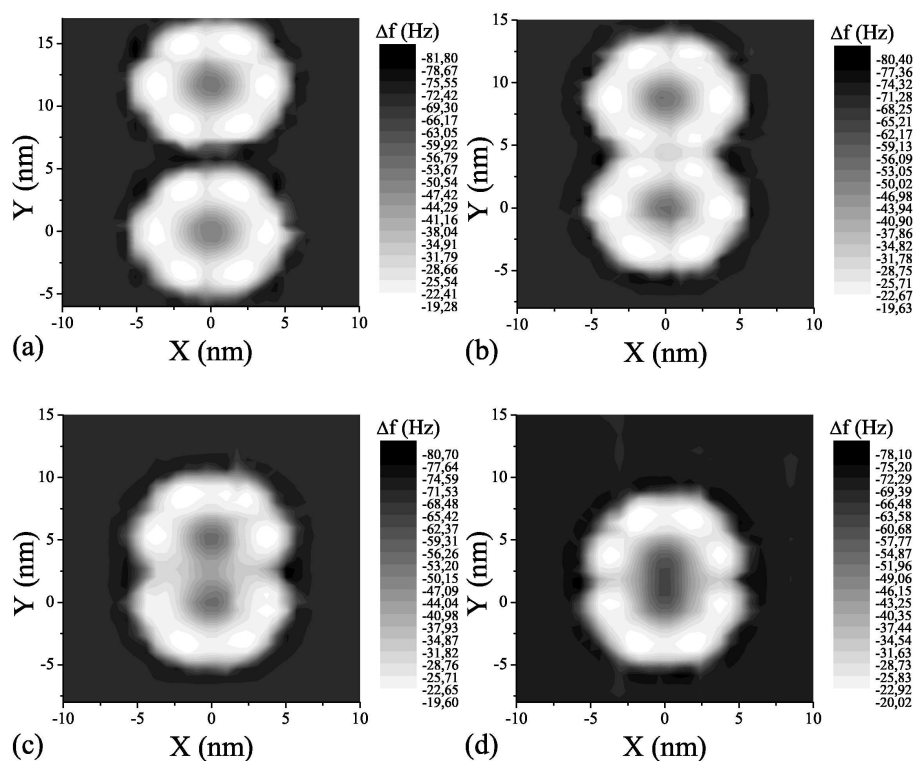


FIG. 6.27 – Résultats de simulation de l'écart en fréquence  $\Delta f$  sur deux clusters pour différentes distances base à base. (a) distance de 6.5 nm, (b) distance de 3.5 nm, (c) les bases des deux clusters se touchent et (d) les clusters ont fusionné. Mêmes paramètres que la figure 6.26.

Certains îlots apparaissent sur la figure 6.21 très proches les uns des autres tout en présentant toujours le même profil en écart en fréquence  $\Delta f$ . Or, on pourrait s'attendre, sur la base des arguments qualitatifs présentés ci-dessus, à ce que l'effet disparaisse au voisinage de la région où deux îlots paraissent en contact. C'est la raison pour laquelle nous avons simulé l'approche de deux îlots, identiques à celui de la figure 6.26, jusqu'au contact et à la coalescence comme on le voit sur les figures 6.27 (a), (b), (c) et (d). En comparant ces quatre simulations avec les images expérimentales 6.21, on constate que la plupart des îlots contigus ne se touchent pas en réalité comme on le voit sur la figure 6.27(b) où les bases des clusters sont distantes de 3.5 nm.

Au contact des deux bases, on obtient la figure 6.27(c) avec les deux cuvettes sombres en écart en fréquence très proches l'une de l'autre mais pas jointes. Nous n'avons pas rencontré ce cas sur les images expérimentales.

Le dernier cas simulé sur la figure 6.27(d), correspond à la coalescence des deux îlots. La tache sombre devient alors commune aux deux agrégats métalliques. Dans les images d'écart en fréquence  $\Delta f$ , cette cuvette sombre à l'intérieur des gros îlots d'or est donc une

bonne signature pour savoir si le contact réel est avéré ou pas.

## Conclusion

Au cours de ce paragraphe, nous avons vu différentes stratégies d'utilisation de la machine AFM. Ces différents systèmes de régulation qui rendent le microscope complexe à comprendre et à régler, comme nous l'avons vu au chapitre 4, font la force de cette machine. Ils laissent à l'utilisateur une grande liberté de moyens pour analyser un système physico-chimique. En combinant différents systèmes de régulation classiques, comme la régulation en écart en fréquence ou sur le courant tunnel statique, ou non communs, comme la régulation sur le signal de dissipation ou sur le courant tunnel oscillant, nous avons pu recouper différentes informations pour aboutir à des conclusions physiques et chimiques sur le système *octanedithiol/Au/MoS<sub>2</sub>*.

La piste de la régulation sur le signal de dissipation semble prometteuse pour obtenir la résolution moléculaire et atomique sur des surfaces conductrices et isolantes. La difficulté provient de l'explication des phénomènes non-conservatifs.

Ces études nous ont aussi permis de mettre le point sur la clé de la résolution en AFM, et en champ proche en général : l'apex de la pointe. Les constatations sur les instabilités de pointe ou les phénomènes de convolution nous ont permis de tirer des conclusions en ce qui concerne la pointe idéale pour obtenir de bonnes images.

En ce qui concerne la manipulation de molécules, nous avons commencé cette étude sur une surface de rutile TiO<sub>2</sub>(110) réduite. La molécule étant un acide carboxylique élaboré par les chimistes du CEMES. Le cahier des charges de cette molécule (modélisée sur la figure 6.28(a)) est le suivant : assez grosse pour être facilement visible en AFM dynamique (groupe 4-[Tris-(3,5-di-tert-butyl-phenyl)-methyl]-phenoxy nommé *R*), posséder une ancre (un groupe carboxylique) pour se chimisorber sur les atomes de titane des rangées de la surface de TiO<sub>2</sub>(110) [OSUI02] en libérant un hydrogène et ainsi limiter la diffusion. On voit la disposition de la molécule isolée sur la surface sur la figure 6.28(b) : l'objectif des rangées de la surface étant de contraindre un mouvement en translation de la molécule.

Nous avons obtenues les images expérimentales 6.28(c) et (d) de la molécule isolée sur le substrat, en STM statique avec une pointe en tungstène. Les quelques tentatives d'observer la molécule isolée en AFM dynamique ont été infructueuses jusqu'à maintenant. Néanmoins, nous avons pu réussir à manipuler, en STM, la molécule le long des rangées dans les directions indiquées par les flèches vertes.

Cette étude mérite donc d'être poursuivie en AFM dynamique pour montrer la faisabilité de nanomanipulation d'une molécule isolée à température ambiante. La dernière étape étant de manipuler la molécule sur un isolant tel que l'alumine  $\alpha\text{Al}_2\text{O}_3$ .

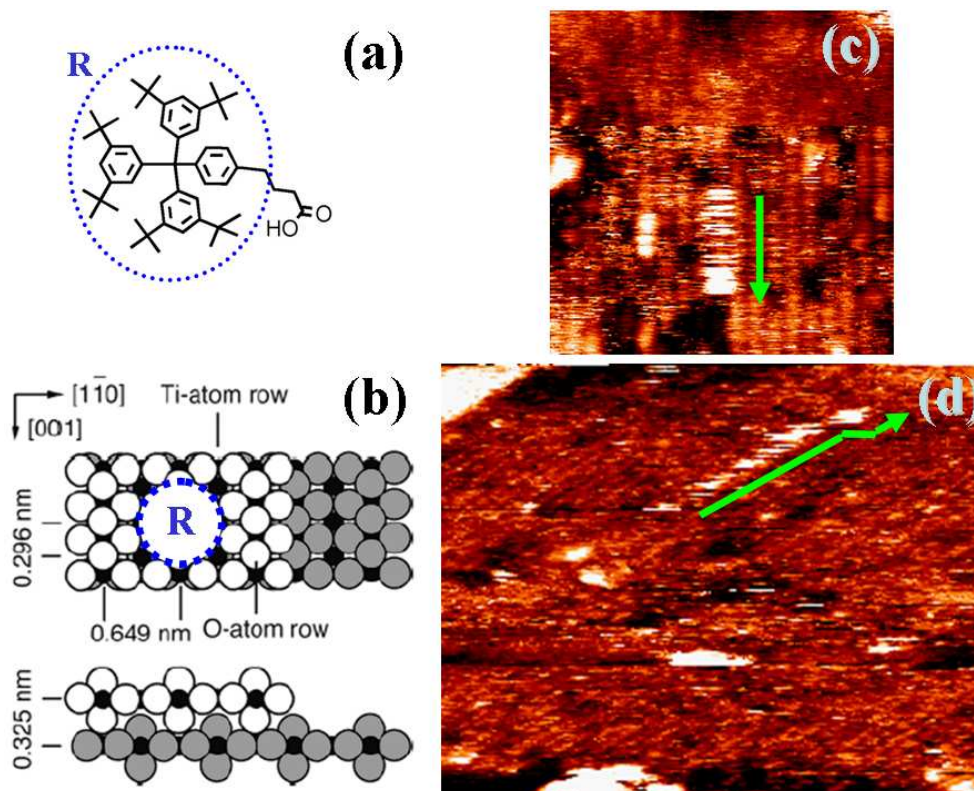


FIG. 6.28 – Manipulations de molécules sur  $\text{TiO}_2(110)$  (réduit) en STM statique. (a) la molécule (A. Gourdon (CEMES-CNRS, Toulouse)), (b) disposition de la molécule sur la surface de  $\text{TiO}_2(110)$ , (c)  $I_t = 20$  pA,  $V_t = +1.2$  Volt,  $(15 \times 15)$  nm<sup>2</sup>, (d) mêmes paramètres  $(25 \times 20)$  nm<sup>2</sup>.



# Chapitre 7

## Conclusion générale

Nous voilà parvenu au terme de ces travaux portant sur la microscopie à force atomique dynamique en ultra vide. A travers différentes études théoriques et expérimentales nous nous sommes efforcés de comprendre la machine et ce pourquoi elle a été développée : sonder les forces de surface. En voulant répondre à ces interrogations, nous avons pu optimiser notre système expérimental pour qu'il puisse désormais être pleinement opérationnel pour de futures études.

Le traitement analytique des différents blocs électroniques du microscope nous a permis de mieux optimiser notre système pour observer dans les meilleures conditions l'échantillon. Le réglage des gains des asservissements doit toujours être adapté par l'expérimentateur afin de résoudre une situation antagoniste : augmenter la sensibilité du système en réduisant les bruits tout en gardant une régulation stable dépourvue de comportements oscillatoires divergents. Il n'existe pas de relations simples pour optimiser ces réglages de façon permanente. Il existe seulement des critères de bon fonctionnement à respecter. Dans ce traitement analytique nous avons pu inclure simplement la physique de l'interaction de surface pour traiter des effets non linéaires sur la sonde oscillante. Les relations obtenues permettent de savoir comment décorrélérer dans nos signaux de mesure la partie conservative et la partie dissipative des forces de surface. Une étape importante a été la validation expérimentale et numérique de ce travail à travers un outil de simulation fonctionnant au plus près de notre système expérimental en tenant compte des bruits de mesure. Cet *AFM virtuel* est actuellement utilisé pour étudier des potentiels de surface conservatifs et non-conservatifs [KPM04]. L'idée étant d'interpréter les signaux de mesure en dissipation. En effet, ce signal de dissipation peut être une véritable signature de mouvements à l'échelle moléculaire. Ainsi, numériquement, différentes stratégies de nanomanipulation dans différents modes de fonctionnement (amplitude constante ou force d'excitation constante) vont être à l'étude sur des champs de force dynamiques.

L'étude expérimentale des effets non linéaires dus à la présence de la surface montre que faire des mesures quantitatives en AFM dynamique, bien que non trivial, est possible avec une procédure simple à mettre en oeuvre. En effet, l'exploitation de ces mesures des changements de propriétés de résonance du cantilever nous a permis de tirer plusieurs conclusions en ce qui concerne les forces ressenties par la pointe. Notre précision en distance de l'ordre du nanomètre sans système de régulation, à température ambiante, a montré clairement la frontière entre le domaine des interactions à longue por-

tée et le domaine des interactions à courte portée. Les interactions à longue portée créent un brouillard de forces électrostatiques et de force de van der Waals à partir de quelques dizaines de nanomètres. En traçant l'énergie dissipée par notre oscillateur, nous avons vu que les interactions à courte portée, responsables de la résolution atomique, apparaissent à une dizaine d'angströms de distance entre la pointe et la surface. Lors du processus d'imagerie, la sonde oscillante moyenne sur une période d'oscillation ces deux contributions. On peut donc minimiser les interactions à longue portée électrostatiques en jouant sur la tension de polarisation entre la pointe et la surface mais cela ne suffit pas si on observe un échantillon conducteur. En effet, à cause de l'oxyde natif de la pointe des charges piégées peuvent apparaître. A cause de la dynamique de ces charges parasites avec des constantes de temps de l'ordre de la seconde, on ne peut pas les compenser avec la polarisation pointe-surface. Pour éviter cela, il faut désoxyder l'apex. La réduction des forces macroscopiques de van der Waals peut s'obtenir en diminuant le rayon effectif de la pointe AFM. Cela sous-entend des géométries ultra fines de sonde présentant peu de matière sur environ une trentaine de nanomètres. Cependant une question reste ouverte concernant les mécanismes de dissipation et de liaisons physico-chimiques quand le bout de la pointe se trouve à des distances atomiques de la surface. En effet, dans ce régime courte portée seuls les quelques atomes de la nanopointe vont interagir chimiquement avec la surface. Or, l'expérimentateur a une méconnaissance des espèces chimiques présentes sur l'apex. A cause de contacts accidentels avec une surface nue, on peut faire l'hypothèse que la nanopointe est composée du même matériau que la surface mais peut-on encore dire cela pour une surface couverte d'objets différents tels que des îlots métalliques ou de molécules ou mêmes de contaminants ?

Les images expérimentales des îlots d'or sur la surface de molybdenite nous ont clairement montré des phénomènes d'instabilités de pointe se traduisant par une évolution des images en topographie ou en dissipation. Parfois ces accidents, pouvant être provoqués par l'expérimentateur, permettent de retrouver une bonne résolution. La maîtrise de l'apex de la pointe est donc indispensable pour rendre reproductibles les expérimentations en AFM dynamique mais aussi pour l'interprétation des images en résolution atomique.

Un des objectifs futurs serait donc la fabrication contrôlée de telles sondes. L'enjeu est tel pour l'avenir de la microscopie à force atomique que de nombreuses équipes travaillent sur le sujet. M. A. Lantz et al. [LOW98] et S. Gritschneider et al. [GNIR05] s'interrogent sur le type de sonde et le traitement adéquat pour obtenir la bonne pointe. Citons les travaux de [EH02, TA99, AT98] qui chauffent et bombardent leur pointe AFM, dans l'enceinte ultra vide, d'une part pour augmenter le facteur de qualité et d'autre part pour supprimer la couche d'oxyde natif et être quasiment sûr d'avoir un apex de silicium. A. R. Champagne et al. [CCKR03] proposent un dispositif de dépôt métallique contrôlé sur le bout de la pointe pour créer un apex connu. Plus récemment, D. Dietzel et al. [DFI<sup>+</sup>05] étudient les propriétés d'une pointe AFM terminée par un nanotube de carbone simple paroi. L'avantage est double : la taille de l'apex de l'ordre de quelques dizaines d'angströms est contrôlé et la sonde est très robuste aux impacts accidentels avec la surface procurant stabilité et reproductibilité des mesures. Dernièrement, K. Akiyama et al. [AEA<sup>+</sup>05] ont collé une pointe en tungstène de microscopie à effet tunnel sur un cantilever d'AFM. L'avantage de la préparation des pointes STM est incomparable. De plus, ce genre de pointe, ayant un rayon effectif de l'ordre de 2 à 5 nm, minimise toutes

les interactions à longue portée.

Au cours des expérimentations sur le système MoS<sub>2</sub>/or/molécules nous avons pu exploiter les modes standards d'imagerie en Non-Contact AFM mais aussi des modes hybrides utilisant la régulation en distance grâce au courant tunnel ou grâce au signal de dissipation. La complexité de la machine s'est révélée être ici une force qui permet à l'utilisateur une grande liberté sur la façon de sonder l'échantillon. En jouant sur les connexions entre les différents blocs de régulation, l'expérimentateur peut recouper plusieurs informations sur le même échantillon. Grâce à cela nous avons pu tirer des conclusions concernant la structure géométrique et physico-chimique des îlots d'or et des molécules couvrant la surface de molybdenite. Les effets de gradient en écart en fréquence, sur les îlots d'or, obtenus en régulation tunnel nous ont permis, en s'appuyant sur des simulations numériques, de mettre en évidence l'effet géométrique intense des forces de dispersion macroscopiques. Permettant par la même occasion de constater l'effet de convolution de la pointe sur les images des îlots.

La régulation en distance sur le signal de dissipation semble être une bonne voie pour observer avec la résolution atomique les surfaces isolantes. En effet, sa dépendance en distance est très similaire à celle du courant tunnel bien que différente par son origine. De plus, elle est monotone contrairement au signal d'écart en fréquence. Cela évite les risques d'écrasement de la pointe vers la surface à cause de la régulation en distance qui tombe dans la seconde distance au contact possible pour une même consigne en fréquence. Dans le futur, ces travaux mériteraient d'être poursuivis avec des surfaces isolantes en tentant de donner une interprétation des origines des processus de dissipation. Cette interrogation sur l'origine des processus de dissipation en AFM dynamique fait encore l'objet d'un vaste débat au sein de la communauté depuis la naissance de cette technique de microscopie il y a maintenant presque quinze ans.

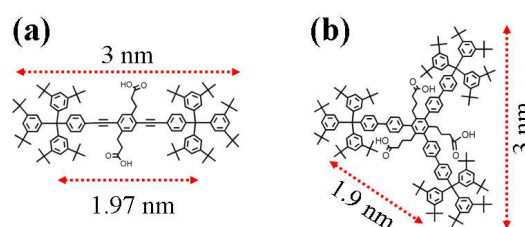


FIG. 7.1 – Projets de molécules (A. Gourdon (CEMES-CNRS, Toulouse)) observables et manipulables en AFM dynamique sur une surface de TiO<sub>2</sub>(110).

L'aboutissement de ce travail serait la poursuite de l'étude de manipulation de molécule isolée en AFM dynamique sur surface isolante. Comme nous l'avons montré en conclusion du chapitre 6, nous avons trouvé les conditions expérimentales de préparation de surface et de dépôt moléculaire pour réussir ce travail en microscopie à effet tunnel. Les quelques essais infructueux en AFM dynamique laissent à penser qu'utiliser des molécules plus grosses favoriserait nos chances d'observer et de manipuler plus facilement la molécule isolée. Les figures 7.1 montrent une nouvelle zoologie de molécules à l'étude au CEMES pour réaliser ce futur travail.

Concernant le mode de fonctionnement à utiliser pour la nanomanipulation en AFM

**Jérôme Polesel Maris**



dynamique, nous avons fait quelques essais sur des îlots d'or déposés sur la surface de molybdénite. Il semble que le mode de fonctionnement à amplitude d'excitation constante réglé en distance par l'écart en fréquence de la résonance du cantilever soit le mieux adapté. Ce mode hybride entre l'AFM *Non-Contact* (FMAFM) et l'AFM *Contact-Intermittent* (AMAFM), utilisé par l'équipe de S. Morita [MON<sup>+</sup>03], permet de détecter le contact avec la surface de façon douce grâce à la réduction de l'amplitude d'oscillation à la résonance.



# Bibliographie

- [ABNC99] J. P. Aimé, R. Boisgard, L. Nony, G. Couturier. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :3388, 1999.
- [ABNC01] J. P. Aimé, R. Boisgard, L. Nony, G. Couturier. *J. Chem. Phys.*, 114 :4945, 2001.
- [AdP04] P. Atkins, J. de Paula. *Atkins' Physical Chemistry, 7th Ed.* Oxford University Press, 2004.
- [AEA<sup>+</sup>05] K. Akiyama, T. Eguchi, T. An, Y. Fujikawa, Y. Yamada-Takamura, T. Sakurai, Y. Hasegawa. *Rev. Sci. Inst.*, 76 :033705–1, 2005.
- [AF96] C. Argento, R. H. French. *J. Appl. Phys.*, 80 :6081, 1996.
- [AGF<sup>+</sup>99] B. Anczykowski, B. Gotsmann, H. Fuchs, J. P. Cleveland, V. B. Elings. *Appl. Surf. Sci.*, 140 :376, 1999.
- [AGHR91] T.R. Albrecht, P. Grütter, D. Horne, D. Rugar. *J. Appl. Phys.*, 69(2) :668, 1991.
- [AKF96] B. Anczykowski, D. Krüger, H. Fuchs. *Phys. Rev. B*, 53 :15485, 1996.
- [Alu] *Surface Preparation Laboratory, The Netherlands.*
- [AS70] M. Abramowitz, I. A. Stegun. *Handbook of Mathematical Functions - 9<sup>th</sup> edition.* DOVER, 1970.
- [ASL<sup>+</sup>02] K. Autumn, M. Sitti, Y. A. Liang, A. M. Peattie, W. R. Hansen, S. Sponberg, T. W. Kenny, R. Fearing, J. N. Israelachvili, R. J. Full. *PNAS*, 99(13) :12252, 2002.
- [ASSW99] W. Allers, U. D. Schwarz, A. Schwarz, R. Wiesendanger. *Europhys. Lett.*, 48 :276, 1999.
- [AT98] T. Arai, M. Tomitori. *Appl. Phys. A*, 66 :319, 1998.
- [AW01] G. B. Arfken, H. J. Weber. *Mathematical Methods for Physicists, Fifth Edition.* Harcourt/Academic Press, San Diego, USA, 2001.
- [Bar61] J. Bardeen. *Phys. Rev. Lett.*, 6 :57, 1961.
- [BBO<sup>+</sup>97] N. A. Burnham, O. P. Behrend, F. Oulevey, G. Gremaud, P. J. Gallo, D. Gourdon, E. Dupas, A. J. Kulik, H. M. Pollock, G. A. D. Briggs. *Nanotech.*, 8 :67, 1997.
- [BCH<sup>+</sup>03] N. A. Burnham, X. Chen, C. S. Hodges, G. A. Matei, E. J. Thoreson, C. J. Roberts, M. C. Davies, S. J. B. Tendler. *Nanotech.*, 14 :1, 2003.
- [BCK01] G. H. Buh, H. J. Chung, Y. Kuk. *Appl. Phys. Lett.*, 79 :2010, 2001.

- [BDOS60] W. Black, J. G. V. DeJongh, J. Th. G. Overbeek, M. J. Sparnay. *Trans. Faraday Soc.*, 56 :1597, 1960.
- [Ber97] L. Bergström. *Adv. Coll. Interf. Sci.*, 70 :125, 1997.
- [Bes90] R.E. Best. *Phase-Locked Loops : Design, simulation and Applications*. McGraw-Hill, New York, 1990. 4ème édition.
- [BF63] C. Bigot, A. Fossard. *Automatisme*, VIII(5) :177, 1963.
- [BFR<sup>+</sup>01] C. Barth, A.S. Foster, M. Reichling, , A.L. Shluger. *J. Phys. Conds.*, 13 :2061, 2001.
- [BGL97] S. Belaidi, P. Girard, G. Leveque. *J. Appl. Phys.*, 81 :1023, 1997.
- [BH04] C. Barth, C. R. Henry. *Nanotech.*, 15 :1, 2004.
- [Bla76] A. Blanchard. *Phaselock Loops*. John Wiley and Sons, New York, 1976.
- [Boi03] L. Boissard. Mesure de faibles courants pour microscope à sonde locale. Rapport de stage de deuxième année élève ingénieur, Ecole Nationale Supérieure d'Electrotechnique, d'Electronique, d'Informatique, d'Hydraulique et de Télécommunications, Toulouse, 2003.
- [Bon58] Z. Bonenn. *I. R. E. Trans. Auto. Control*, PGAC6 :109, 1958.
- [BQG86] G. Binnig, C. F. Quate, Ch. Gerber. *Phys. Rev. Lett.*, 56 :930, 1986.
- [BR85] G. Binnig, H. Rohrer. *Sci. Am.*, 253 :40, 1985.
- [BR87] G. Binnig, H. Rohrer. *Rev. Mod. Phys.*, 59 :615, 1987.
- [BR01] C. Barth, M. Reichling. *Nature (London)*, 414 :54, 2001.
- [BRGW82] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, E. Weibel. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :57, 1982.
- [BRW<sup>+</sup>03] U. Becker, K. M. Rosso, R. Weaver, M. Warren, M. F. Hochella Jr. *Geochimica et Cosmochimica Acta.*, 67 :923, 2003.
- [BS98] M. L. Bocquet, P. Sautet. *Surf. Sci.*, 415 :148, 1998.
- [BWS96] B. Brar, G. D. Wilk, A. C. Seabaugh. *Appl. Phys. Lett.*, 69 :2728, 1996.
- [BZWT95] A.M. Bacon, H.Z. Zhao, L.J. Wang, J.E. Thomas. *Appl. Opt.*, 34(24) :5326, 1995.
- [CAK<sup>+</sup>01] H. B. Chan, V. A. Aksyuk, R. N. Kleiman, D. J. Bishop, F. Capasso. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :211801-1, 2001.
- [Car00] A. Carladou. *Emission photonique dans un microscopie à effet tunnel, application à l'étude de nano-contacts métal/semiconducteur*. Thèse de doctorat, Université Toulouse III, 2000.
- [CASB01] G. Couturier, J.P. Aimé, J. Salardenne, R. Boisgard. *Eur. Phys. J. AP*, 15 :141, 2001.
- [CBAG99] M. Cavallini, M. Bracali, G. Aloisi, R. Guidelli. *Langmuir*, 15 :3003, 1999.
- [CBNA03] G. Couturier, R. Boisgard, L. Nony, J.P. Aimé. *Rev. Sci. Inst.*, 74(5) :2726, may 2003.

- [CCA<sup>+</sup>02] A. Carlados, R. Coratger, F. Ajustron, G. Seine, R. Péchou, J. Beauvillain. *Phys. Rev. B*, 66 :045401–1, 2002.
- [CCKR03] A. R. Champagne, A. J. Couture, F. Kuemmeth, D. C. Ralph. *Appl. Phys. Lett.*, 82 :1111, 2003.
- [Cha72] F. Chauvet. *Contribution à l'étude des systèmes à paramètres périodiquement variables dans le temps destinés à l'amplification continue des signaux de faible amplitude*. Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier de TOULOUSE, 1972.
- [Che93] C. J. Chen. *Introduction to Scanning Tunneling Microscopy*. Oxford University Press, New York, 1993.
- [Chu70] C. W. Chu. *Phys. Rev. B*, 1 :4700, 1970.
- [CNBA02] G. Couturier, L. Nony, R. Boisgard, J.P. Aimé. *Appl. Surf. Sci.*, 188 :341, 2002.
- [Coa57] J.F. Coales. *J. Sci. Inst.*, 34 :41, 1957.
- [Col02] G. Colas des Francs. *Optique sub-longueur d'onde et fluorescence moléculaire perturbée*. Thèse de doctorat, Université Toulouse III, 2002.
- [CP48] H. B. G. Casimir, D. Polder. *Phys. Rev. B*, 73 :360, 1948.
- [CR02] A. N. Cleland, M. L. Roukes. *J. Appl. Phys.*, 92(5) :2758, september 2002.
- [CTDL96] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë. *Mécanique Quantique*, wolumen Tome II. Hermann, 1996.
- [CW51] H. B. Callen, T. A. Welton. *Phys. Rev.*, 83(1) :34, 1951.
- [Deb04] L. Debiane. *Applications de l'adaptation de maillage en mécanique des fluides, combustion et traitement de l'image*. Thèse de doctorat, Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, octobre 2004.
- [DFI<sup>+</sup>05] D. Dietzel, M. Faucher, A. Iaia, J. P. Aimé, S. Marsaudon, A. M. Bonnot and V. Bouchiat, G. Couturier. *Nanotech.*, 16 :S73, 2005.
- [DGM<sup>+</sup>94] A. Dereux, C. Girard, O. J. F. Martin, Ph. Lambin, H. Richter. *J. Chem. Phys.*, 101 :10973, 1994.
- [dL00] Ph. de Larminat. *Automatique*. Hermès Science Publications, Paris, 2000. 2ème édition.
- [DLP61] I. E. Dzyaloshinskii, E. M. Lifchitz, L. P. Pitaevskii. *Adv. Phys.*, 10 :38, 1961.
- [DSB97] U. Dürig, H.R. Steinauer, N. Blanc. *J. Appl. Phys.*, 82(8) :3641, 1997.
- [DSP03] P. Dieska, I. Stich, R. Pérez. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :216401–1, 2003.
- [Dur66] E. Durand. *Electrostatique, tome II, Problèmes généraux*. Masson et Cie., 1966.
- [Dut50] J. Dutilh. *L'Onde Electrique*, 30 :438, 1950.
- [EH02] T. Eguchi, Y. Hasegawa. *Phys. Rev. Lett.*, 89(26) :266105–1, 2002.
- [Enc90] J. Encinas. *Systèmes à verrouillage de phase (P.L.L.)*. Masson, Paris, 1990.

- [EO98] R. Erlandsson, L. Olsson. *Appl. Phys. A*, 66 :S879, 1998.
- [ES90] D. M. Eigler, E. K. Schweizer. *Nature*, 344 :524, 1990.
- [Eti03] M. Etique. Régulation automatique. Tutorial, Ecole d'Ingénieurs du canton de Vaud -Suisse-, Yverdon-les-Bains, 2003.
- [FAF04] S. Fujii, U. Akiba, M. Fujihira. *Nanotech.*, 15 :S19, 2004.
- [FBS<sup>+</sup>02] A. S. Foster, C. Barth, A. L. Shluger, R. M. Nieminen, M. Riechling. *Phys. Rev. B*, 66 :195420–1, 2002.
- [FCDC95] R. H. French, R. M. Cannon, L. K. DeNoyer, Y. M. Chiang. *Solid State Ionics*, 75 :13, 1995.
- [Fey63] R. Feynman. *The Feynman Lectures on Physics, Electromagnetism Vol. II*. Addison-Wesley Publishing Company, 1963.
- [Fey65] R. Feynman. *The Feynman Lectures on Physics, Quantum Mechanics Vol. III*. Addison-Wesley Publishing Company, 1965.
- [FGA<sup>+</sup>03] A. S. Foster, A. Y. Gal, J. M. Airaksinen, O. H. Pakarinen, Y. J. Lee, J. D. Gale, A. L. Shluger, R. M. Nieminen. *Phys. Rev. B*, 68 :195420–1, 2003.
- [FKYM04] T. Fukuma, K. Kobayashi, H. Yamada, K. Matsushige. *J. Appl. Phys.*, 95(9) :4742, 2004.
- [FM66] A. Fukuma, M. Matsubara. *IEEE Trans. (Auto. Control)*, AC11(4) :699, 1966.
- [Fos00] A. Foster. *Theoretical Modelling of Non-Contact Atomic Force Microscopy on Insulators*. Phd thesis, University College of London, 2000.
- [FPG64] A. Fossard, A. Piedplat, M. Gauvrit. *L'Onde Electrique*, XLIV(450) :909, 1964.
- [Fre00] R. H. French. *J. Am. Ceram. Soc.*, 83(9) :2117, 2000.
- [Fre03] C. Fretigny. Quelques éléments de mécanique du contact. La Grande Motte, 2003. Ecole thématique du CNRS.
- [FSK<sup>+</sup>03] H. Farag, K. Sakanishi, M. Kouzu, A. Matsumura, Y. Sugimoto, I. Saito. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 42 :306, 2003.
- [Gan66] F. Gantmacher. *Théorie des matrices*, wolumen tome II. Dunod, 1966.
- [GBHM01] F. J. Giessibl, H. Bielefeldt, S. Hembacher, J. Mannhart. *Ann. Phys. (Leipzig)*, 10(11-12) :887, 2001.
- [GBL<sup>+</sup>98] M. Guggisberg, M. Bammerlin, R. Lüthi, Ch. Loppacher, F. Battiston, J. Lü, A. Baratoff, E. Meyer, H.-J. Güntherodt. *Appl. Phys. A*, 66 :S245, 1998.
- [GBL<sup>+</sup>00] M. Guggisberg, M. Bammerlin, Ch. Loppacher, O. Pfeiffer, A. Abdurixit, V. Barwich, R. Bennewitz, A. Baratoff, E. Meyer, H.-J. Güntherodt. *Phys. Rev. B*, 61 :11151, 2000.
- [GDM94] C. Girard, A. Dereux, O. J. F. Martin. *Phys. Rev. B*, 49 :13872, 1994.
- [GDP88] J.-Ch. Gille, P. Decaulne, M. Pélegrin. *Systèmes asservis non linéaires*. Dunod, Paris, 1988. 5ème édition.

- [GDP92] J.-Ch. Gille, P. Decaulne, M. P elegrin. *Th eorie et calcul des asservissements lin eaires*. Dunod, Paris, 1992. 10 eme  dition.
- [Geu01] C. Geuzaine. *High order hybrid finite element schemes for Maxwell s equations taking thin structures and global quantities into account*. Th ese de doctorat, Universit e de Li ege, octobre 2001.
- [GHH<sup>+</sup>04] F. J. Giessibl, S. Hembacher, M. Herz, Ch. Schiller, J. Mannhart. *Nanotech.*, 15 :S79, 2004.
- [Gie92] F. J. Giessibl. *Phys. Rev. B*, 45 :13815, 1992.
- [Gie95] F. J. Giessibl. *Science*, 267 :68, 1995.
- [Gie97] F.J. Giessibl. *Phys. Rev. B*, 56(24) :16010, 1997.
- [Gie00] F.J. Giessibl. *Progress in Atomic Force Microscopy*. Habilitationsschrift, Augsburg, 2000.
- [Gie03] F.J. Giessibl. *Rev. Mod. Phys.*, 75(3) :949, july 2003.
- [Gir02] C. Girard. Physique du champ proche, cours du DEA de nanophysique. Toulouse, girard@cemes.fr, 2002. Universit e Paul sabatier, INSA.
- [GJG00] C. Girard, C. Joachim, S. Gauthier. *Rep. Prog. Phys.*, 63 :893, 2000.
- [GKB91] P. Gleyzes, P. K. Kuo, A. C. Boccara. *Appl. Phys. Lett.*, 58 :2989, 1991.
- [GM91] C. Girard, S. Maghezzi. *Surf. Sci. Lett.*, 255 :L571, 1991.
- [Gms] Gmsh. 1997-2005, <http://www.geuz.org/gmsh/>.
- [GNIR05] S. Gritschneider, Y. Namai, Y. Iwasawa, M. Reichling. *Nanotech.*, 16 :S41, 2005.
- [Gol47] L. Gol'dfarb. *Avtomatika i Telemekhanika*, 8 :349, 1947.
- [GPA<sup>+</sup>02] M. Gauthier, R. P erez, T. Arai, M. Tomitori, M. Tsukada. *Phys. Rev. Lett.*, 89(14) :146104–1, 2002.
- [GPD56] J.-Ch. Gille, M. P elegrin, P. Decaulne. *Th eorie et Technique des asservissements*. Dunod, Paris, 1956.
- [GSAF99] B. Gotsmann, C. Seidel, B. Anczykowski, H. Fuchs. *Phys. Rev. B*, 60(15) :11051, 1999.
- [Gui49] E. Guillemin. *The Mathematics of Circuit Analysis*. Wiley, 1949.
- [Ham37] H. C. Hamaker. *Physica IV*, 10 :1058, 1937.
- [Har88] S. Harris. *Surf. Sci.*, 199 :320, 1988.
- [HCM00] B. W. Harris, F. Chen, U. Mohideen. *Phys. Rev. A*, 62 :052109, 2000.
- [HFS03] W. A. Hofer, A. S. Foster, A. L. Shluger. *Rev. Mod. Phys.*, 75 :1287, 2003.
- [HJP<sup>+</sup>01] P. M. Hoffmann, S. Jeffery, J. B. Pethica, H. O. Ozer, A. Oral. *Phys. Rev. Lett.*, 87(26) :265502–1, 2001.
- [HL98] A. Hajimiri, Th.H. Lee. *IEEE J. Solid-State Circuits*, 33(2) :179, february 1998.
- [HLL<sup>+</sup>00] S. Helveg, J.V. Lauritsen, E. L ægsgaard, I. Stensgaard, J. K. N orskov, B. S. Clausen, H. Tops oe, F. Besenbacher. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :951, 2000.

- [HSJGB98] S. Hudlet, M. Saint-Jean, C. Guthmann, J. Berger. *Eur. Phys. J. B*, 2 :5, 1998.
- [Hud97] S. Hudlet. *Etude des propriétés électrostatiques de surface par microscopie à force atomique : l'exemple de la triboélectricité*. Thèse de doctorat, Université Paris VI, Juin 1997.
- [HYMH94] M. Hiroshima, T. Yasaka, S. Miyazaki, M. Hirose. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 33 :395, 1994.
- [IFK<sup>+</sup>03] T. Ichii, T. Fukuma, K. Kobayashi, H. Yamada, K. Matsushige. *Appl. Surf. Sci.*, 210 :99, 2003.
- [Isr92] J. Israelachvili. *Intermolecular and Surface Forces, 2nd Edition*. Academic Press, London, 1992.
- [Jac75] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley, New York, 1975.
- [JTC84] X. P. Jiang, F. Toigo, M. W. Cole. *Surf. Sci.*, 145 :281, 1984.
- [Kar00] K. Karrai. Lecture notes on shear and friction force detection with quartz tuning fork. Notes de cours, Ecole thématique du CNRS, La Londe les Maures, 2000.
- [KBL<sup>+</sup>99] C. J. Kang, G. H. Buh, S. Lee, C. K. Kim, K. M. Mang, C. Im, Y. Kuk. *Appl. Phys. Lett.*, 74 :1815, 1999.
- [KF00] L. Kantorovich, A. Foster. Program for calculation of the self consistent image force interaction, scifi v1.0. Manuel scifi, University College of London, London, 2000.
- [KFSS00] L. N. Kantorovich, A. S. Foster, A. L. Shluger, A. M. Stoneham. *Surf. Sci.*, 445 :283, 2000.
- [KKH<sup>+</sup>00] J. G. Kushmerick, S. A. Kandel, P. Han, J. A. Johnson, P. S. Weiss. *J. Phys. Chem. B*, 104 :2980, 2000.
- [Kle02] L. I. Klein. *Single electron tunneling to insulator surfaces detected by electrostatic force microscopy*. Doctor of philosophy, Faculty of The University of Utah, 2002.
- [Koc50a] R. Kochenburger. *Electrical Engineering*, 69 :687, 1950.
- [Koc50b] R. Kochenburger. *Trans. A.I.E.E.*, 69 :270, 1950.
- [Kor63] J. Korobov. *Automatisme*, 8(6) :224, 1963.
- [KP53] K. Klotter, E. Pinney. *J. Appl. Mechanics*, 20 :9, 1953.
- [KPM04] L. Kantorovich, J. Polesel-Maris. Virtual atomic force microscopy machine simulation code, vafm v3.1. Manuel vafm, Toulouse, London, 2004.
- [KSB97] A. Kuhle, A. H. Sorensen, J. Bohr. *J. Appl. Phys.*, 81 :6562, 1997.
- [KWK00] L. J. Klein, C. C. Williams, J. Kim. *Appl. Phys. Lett.*, 77 :3615, 2000.
- [KYI<sup>+</sup>01] K. Kobayashi, H. Yamada, H. Itoh, T. Horiuchi, K. Matsushige. *Rev. Sci. Inst.*, 72(12) :4383, 2001.
- [Lam04] J. Lampert. *J. Pow. Sources*, 131 :27, 2004.



- [LBG<sup>+</sup>99] Ch. Loppacher, M. Bammerlin, M. Guggisberg, F. Battiston, R. Bennewitz, S. Rast, A. Baratoff, E. Meyer, H.-J. Güntherodt. *Appl. Phys. Sci.*, 140 :287, 1999.
- [LBL<sup>+</sup>04] J.V. Lauritsen, M.V. Bollinger, E. Lægsgaard, K.W. Jacobsen, J.K. Nørskov, B.S. Clausen, H. Topsøe, F. Besenbacher. *J. Catal.*, 221 :510, 2004.
- [LBP<sup>+</sup>00] Ch. Loppacher, R. Bennewitz, O. Pfeiffer, M. Guggisberg, M. Bammerlin, S. Schär, V. Barwich, A. Baratoff, E. Meyer. *Phys. Rev. B*, 62(20) :13674, 2000.
- [LGL<sup>+</sup>00] T. Y. B. Leung, M. C. Gerstenberg, D. J. Lavrich, G. Scoles, F. Schreiber, G. E. Poirier. *Langmuir*, 16 :549, 2000.
- [LGP<sup>+</sup>03] Ch. Loppacher, M. Guggisberg, O. Pfeiffer, E. Meyer, M. Bammerlin, R. Lüthi, R. Schlittler, J. K. Gimzewski, H. Tang, Joachim C. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :066107, 2003.
- [LH00] Th.H. Lee, A. Hajimiri. *IEEE J. Solid-State Circuits*, 35(3) :326, march 2000.
- [LHRR02] S. I. Lee, S. W. Howell, A. Raman, R. Reifenberger. *Phys. Rev. B*, 66 :115409, 2002.
- [Lif56] E. M. Lifchitz. *Sov. Phys. JETP*, 2 :73, 1956.
- [LL69a] L. Landau, E. Lifchitz. *Electrodynamique des milieux continus*, wolumen tome VIII. Mir, 1969.
- [LL69b] L. Landau, E. Lifchitz. *Théorie de l'élasticité*, wolumen tome VII. Mir, 1969.
- [LL87] L. Landau, E. Lifchitz. *Mécanique*, wolumen tome I. Mir, 1987.
- [LNN<sup>+</sup>04] J. V. Lauritsen, M. Nyberg, J. K. Nørskov, B. S. Clausen, H. Topsøe, E. Lægsgaard, F. Besenbacher. *J. Catal.*, 224 :94, 2004.
- [LNV<sup>+</sup>03] J. V. Lauritsen, M. Nyberg, R. T. Vang, M. V. Bollinger, B. S. Clausen, H. Topsøe, K. W. Jacobsen, E. Lægsgaard, J. K. Nørskov, F. Besenbacher. *Nanotech.*, 14 :385, 2003.
- [Lon37] F. London. *Trans. Faraday Soc.*, 33 :8, 1937.
- [Lop00] Ch. Loppacher. *Nichtkontaktrasterkraftmikroskopie Mit Digitalem Phasenregelkreis, Inauguraldissertation*. Thesis, Université de Basel -Suisse, 2000.
- [LOW98] M. A. Lantz, S. J. O'Shea, M. E. Welland. *Rev. Sci. Inst.*, 69 :1757, 1998.
- [LP78] E. Lifchitz, L. Pitayevski. *Physique statistique, Deuxième partie*, wolumen tome IX. Mir, 1978.
- [LPD00] Y.-W. Li, X.-Y. Pang, B. Delmon. *J. Phys. Chem. A*, 104 :11375, 2000.
- [Mal02] A.P. Malvino. *Principes d'électroniques*. DUNOD, 2002.
- [Mau03] C. Maurel. *Emission de photons induite par microscopie à effet tunnel sous ultravide, étude de nanojonction Au/MoS<sub>2</sub>*. Thèse de doctorat, Université Toulouse III, 2003.
- [MBH<sup>+</sup>04] J. M. Mativetsky, S. A. Burke, R. Hoffmann, Y. Sun, P. Grutter. *Nanotech.*, 15 :S40, 2004.

- [MCAB03] C. Maurel, R. Coratger, F. Ajustron, J. Beauvillain. *J. Appl. Phys.*, 94 :1979, 2003.
- [McL64] A. D. McLachlan. *Mol. Phys.*, 7 :381, 1964.
- [ME89] F. Manneville, J. Esquieu. *Théorie du signal et composants*. Dunod, Paris, 1989.
- [ME90] F. Manneville, J. Esquieu. *Systèmes bouclés linéaires, de communication et de filtrage*. Dunod, Paris, 1990.
- [Mir90] Ch. Mira. *Systèmes asservis non linéaires*. Hermès, Paris, 1990.
- [MJ99] M. Magoga, C. Joachim. *Phys. Rev. B*, 59 :16 011, 1999.
- [MJCG01] J.Ph. Mulet, K. Joulain, R. Carminati, J. J. Greffet. *Appl. Phys. Lett.*, 78(19) :2931, 2001.
- [MN72] J. Mahanty, B. W. Ninham. *J. Phys. A : Gen. Phys.*, 5 :1447, 1972.
- [MN76] J. Mahanty, B.W. Ninham. *Dispersion Forces*. Academic Press Inc., London, 1976.
- [MON<sup>+</sup>03] S. Morita, N. Oyabu, R. Nishi, K. Okamoto, M. Abe, O. Custance, I. Yi, Y. Seino, Y. Sugawara. *e-J. Surf. Sci. Nanotech.*, 1 :158, 2003.
- [MWM03] S. Morita, R. Wiesendanger, E. Meyer. *Noncontact Atomic Force Microscopy*. Springer-Verlag, Berlin, 2003.
- [MWW87] Y. Martin, C. C. Williams, H. K. Wickramasinghe. *J. Appl. Phys.*, 61(10) :4723, 1987.
- [Nan] *Nanosurf easyPLL, Nanosurf AG, Grammetstrasse 14, CH-8804 Liestal, Switzzeland*.
- [NBA99] L. Nony, R. Boisgard, J.P. Aimé. *J. Chem. Phys.*, 111(4) :1615, 1999.
- [NBP<sup>+</sup>04] L. Nony, R. Bennewitz, O. Pfeiffer, E. Gnecco, A. Baratoff, E. Meyer, T. Eguchi, A. Gourdon, C. Joachim. *Nanotech.*, 15 :S91, 2004.
- [NFI04] Y. Namai, K. Fukui, Y. Iwasawa. *Nanotech.*, 15 :S49, 2004.
- [NGB<sup>+</sup>04] L. Nony, E. Gnecco, A. Baratoff, A. Alkauskas, R. Bennewitz, O. Pfeiffer, S. Maier, A. Wetzel, E. Meyer, Ch. Gerber. *Nano Lett.*, 4(11) :2185, 2004.
- [NKMN96] T. Nakamura, H. Kondoh, M. Matsumoto, H. Nozoye. *Langmuir*, 12 :5977, 1996.
- [Non00] L. Nony. *Analyse de la microscopie de force dynamique : application à l'étude de l'ADN*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux I, Décembre 2000.
- [Non05] L. Nony. Communication privée. janvier 2005.
- [NQH03] G. V. Nazin, X. H. Qiu, W. Ho. *Science*, 302 :77, 2003.
- [Nyq28] H. Nyquist. *Phys. Rev.*, 32 :110, 1928.
- [OAO03] H. O. Ozer, M. Atabak, A. Oral. *Appl. Surf. Sci.*, 210 :12, 2003.
- [OB93] F. Ohnesorge, G. Binnig. *Science*, 260 :1451, 1993.
- [OCY<sup>+</sup>03] N. Oyabu, O. Custance, I. Yi, Y. Sugawara, S. Morita. *Phys. Rev. Lett.*, 90(17) :176102–1, 2003.

- [OD88] R. Ouahes, B. Devallez. *Chimie Générale 4<sup>me</sup> édition*. PubliSud, 1988.
- [OLYR98] L. Olsson, N. Lin, V. Yakimov, Erlandsson R. *J. Appl. Phys.*, 84 :4060, 1998.
- [Omi] *Omicron NanoTechnology GmbH, Taunusstein, Germany.*
- [OR97] A. Ottewill, M. Rahman. Correlation function and power spectrum of non-stationary shot noise. Technical Note LIGO T970085 00 D, CalTech and MIT, Pasadena and Cambridge - USA, 1997.
- [Ori] Origin7. *OriginLab Corporation, Northampton, MA 01060, USA.*
- [OSA<sup>+</sup>05] N. Oyabu, Y. Sugimoto, M. Abe, O. Custance, S. Morita. *Nanotech.*, 16 :S112, 2005.
- [OSUI02] H. Onishi, A. Sasahara, H. Uetsuka, T. Ishibashi. *Appl. Surf. Sci.*, 188 :257, 2002.
- [Pat95] J. Patrin. Atomic resolution of an insulator by noncontact afm, presentation at the 12th international conference on scanning tunneling microscopy. Snowmass, Colorado, USA, 1995.
- [Paw87] J. Pawliszyn. *Rev. Sci. Inst.*, 58(2) :245, 1987.
- [PM98] A. D. Polyanin, A. V. Manzhirov. *Handbook of integral equations*. CRC Press, Boca Raton, Florida, 1998.
- [PMG05] J. Polesel-Mariss, S. Gauthier. *J. Appl. Phys.*, 97 :044902–1, february 2005.
- [PP03] J.-F. Paul, E. Payen. *J. Phys. Chem. B*, 107 :4057, 2003.
- [PS94] L.-H. Pan, T. E. Sullivan. *Appl. Phys. Lett.*, 65 :2151, 1994.
- [PTVF95] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, B. P. Flannery. *Numerical Recipes in FORTRAN 77, The Art of Scientific Computing, Second Edition, Volume 1*. Press Syndicate of the University of Cambridge, Cambridge, 1995.
- [RB99] M. Reichling, C. Barth. *Phys. Rev. Lett.*, 83(4) :768, 1999.
- [RBM<sup>+</sup>98] A. Rettenberger, P. Bruker, M. Metzler, F. Mugele, Th. W. Matthes, M. Böhmisch, J. Boneberg, K. Friemelt, P. Leiderer. *Surf. Sci.*, 402-404 :409, 1998.
- [Ren98] G. Renaud. *Surf. Sci. Rep.*, 32 :1, 1998.
- [RWGM00] S. Rast, C. Wattering, U. Gysin, E. Meyer. *Nanotech.*, 11 :169, 2000.
- [San01] M. Sander. *Omicron Newsletter*, 5(2) :2, 2001.
- [Sar91] D. Sarid. *Scanning Force Microscopy*. Oxford University Press, Oxford, 1991.
- [Sch00] F. Schreiber. *Progr. Surf. Sci.*, 65 :151, 2000.
- [SDB01] G.J. Silva, A. Datta, S.P. Bhattacharyya. *Automatica*, 37 :2025, 2001.
- [She03] J. R. Shewchuk. Constrained delaunay tetrahedralizations and provably good boundary recovery. Public report, University of California at Berkeley, Berkeley, USA, 2003.

- [SHRG94] U. D. Schwarz, H. Haefke, P. Reimann, H.J. Güntherodt. *J. Microsc.*, 173 :183, 1994.
- [SJHGB99] M. Saint-Jean, S. Hudlet, C. Guthmann, J. Berger. *J. Appl. Phys.*, 86(9) :5245, 1999.
- [SLFC99] A. L. Shluger, A. I. Livshits, A. S. Foster, C. R. A. Catlow. *J. Phys. Condens. Matter*, 11 :R295, 1999.
- [SLSG90] A. Sachdev, J. Lindner, J. Schwank, M. A. Villa Garcia. *J. Sol. Stat. Chem.*, 87 :378, 1990.
- [SSW74] J.J. Di Stefano, A.R. Stubberud, I.J. Williams. *Systèmes Asservis*, volume 2. Série Schaum, Paris, 1974.
- [ST99] N. Sasaki, M. Tsukada. *Appl. Surf. Sci.*, 140 :339, 1999.
- [Sug87] Sugihartono. *Caractérisation expérimentale des boucles à verrouillage de phase numériques en présence de bruit*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace - Toulouse -, janvier 1987.
- [SYSB99] M. D. Schaadt, E. T. Yu, S. Sankar, A. E. Berkowitz. *Appl. Phys. Lett.*, 74 :472, 1999.
- [TA99] M. Tomitori, T. Arai. *Appl. Surf. Sci.*, 140 :432, 1999.
- [Tam05] J. Tamayo. *J. Appl. Phys.*, 97 :044903–1, february 2005.
- [TH85] J. Tersoff, D. R. Hamann. *Phys. Rev. B*, 31 :805, 1985.
- [Tho02] K. E. Thompson. *Int. J. Numer. Meth. Eng.*, 55 :1345, 2002.
- [Tip] *ScienTec NANOSENSORS pointprobes Type NCH material : n<sup>+</sup> silicon,  $\rho = 0.01 - 0.025 \Omega.cm$* .
- [TSKM04] S. Tanaka, H. Suzuki, T. Kamikado, S. Mashiko. *Nanotech.*, 15 :S87, 2004.
- [UIK<sup>+</sup>00] T. Uchihashi, T. Ishida, M. Komiyama, M. Ashino, W. Mizutani Y. Sugawara and, K. Yokoyama, S. Morita, H. Tokumoto, M. Ishikawa. *Appl. Surf. Sci.*, 157 :244, 2000.
- [UST<sup>+</sup>97] T. Uchihashi, Y. Sugawara, T. Tsukamoto, M. Ohta, S. Morita, M. Suzuki. *Phys. Rev. B*, 56(15), 1997.
- [VC81a] G. Vidali, M. W. Cole. *Surf. Sci.*, 110 :10, 1981.
- [VC81b] G. Vidali, M. W. Cole. *Surf. Sci. Lett.*, 107 :L374, 1981.
- [Ver67] L. Verlet. *Phys. Rev.*, 159(1) :98, 1967.
- [Vil05] C. Villagomez Ojeda. Forum des microscopie à sondes locales, poster : Experimental stm images and theoretical esqc calculation of isolated octanedithiol molecules on cu(100). Anglet, France, 2005. CNRS.
- [Vis72] J. Visser. *Adv. Coll. Interf. Sci.*, 3 :331, 1972.
- [VVMdlPR04] F.D. Vargas-Villamil, J.O. Marroquín, C. de la Paz, E. Rodríguez. *Chem. Eng. Proc.*, 43 :1309, 2004.
- [WS00] Y.-G. Wang, H.-H. Shao. *Automatica*, 36 :147, 2000.

- [WSH<sup>+</sup>01] N.-J. Wu, S. Shimizu, M.T. Hermie, K. Sakamoto, A. Natori, H. Yasunaga. *Appl. Surf. Sci.*, 169-170 :485, 2001.
- [XXT03] B. Xu, X. Xiao, N. J. Tao. *J. Am. Chem. Soc.*, 125 :16164, 2003.
- [YAMQ98] G.G. Yaralioglu, A. Atalar, S.R. Manalis, C.F. Quate. *J. Appl. Phys.*, 83(12) :7405, 1998.
- [YB01] W. C. Young, R. Budynas. *Roark's Formulas for Stress and Strain, 7<sup>th</sup> edition*. McGraw-Hill Professional, 2001.
- [YFU<sup>+</sup>02] H. Yamada, T. Fukuma, K. Umeda, K. Kobayashi, K. Matsushige. *Appl. Surf. Sci.*, 188 :391, 2002.
- [ZCH02] W. Zhao, D. Chen, S. Hu. *Comp. Chem.*, 26 :141, 2002.
- [ZH87] M. C. Zonnevylle, R. Hoffmann. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 5 :635, 1987.
- [ZT91] O. C. Zienkiewicz, R. L. Taylor. *La méthode des éléments finis, Formulation de base et problèmes linéaires*. Afnor Technique, Paris, 1991.



# **Annexes**

# Annexe A

## Forces de dispersion et constante de Hamaker

### A.1 Traitement général des forces de dispersion

Les forces de van der Waals ne sont généralement pas additives par sommation par paire. La force d'interaction entre deux atomes ou molécules est affectée par les atomes alentour. On ne peut donc pas, en toute rigueur, additionner simplement tous les potentiels par paire de molécules afin d'obtenir l'énergie d'interaction avec d'autres molécules. C'est parce que le champ électrique émanant de n'importe quelle molécule atteint une seconde molécule à la fois directement et par réflexion sur d'autres molécules qui sont aussi polarisées par le champ. En conséquence de cela, l'énergie de van der Waals entre deux atomes dans un milieu est différente de celle calculée en considérant les deux objets seuls. Cet effet sur l'énergie d'interaction est toujours négatif dans le vide et peut être positif dans d'autres milieux. Il est la plupart du temps faible, inférieur à 20%, mais peut être crucial sur les structures cristallines : par exemple, les contributions totales en énergie incluant ces effets à N-corps déterminent la structure cubique face centrée ou hexagonale des solides constitués d'atomes des gaz rares (argon, xenon, ...) [Isr92]. Cette propriété de non-additivité des forces de van der Waals est particulièrement importante pour les interactions entre de gros objets et des surfaces dans un milieu autre que le vide [Lif56].

#### A.1.1 Energie de dispersion : effet de l'écrantage dû à la polarisation induite<sup>1</sup>

En reprenant le modèle à deux dipôles oscillants (page 22), vus comme deux oscillateurs harmoniques, nous allons mettre en évidence l'interaction moléculaire en terme de changement dans l'énergie de point zéro à cause de leur perturbation réciproque. On trouve cette méthode décrite dans [MN76] à la page 26.

Dans un but de simplification, nous raisonnerons en une dimensions en définissant les moments dipolaires des molécules par  $\mu_1 = ex_1$  et  $\mu_2 = ex_2$ . Avec la charge  $e$  et les distances *charge positive-charge négative* induites  $x_1$  et  $x_2$  dépendant du champ électrique

---

<sup>1</sup>Avant de commencer ce paragraphe, soulignons le fait que le traitement analytique qui va suivre est traité dans le système d'unités c.g.s.



environnant, sachant que les deux dipôles sont séparés d'une distance  $d$ . On définit ainsi l'Hamiltonien de ce système :

$$H = \frac{m}{2} (\dot{x}_1^2 + \dot{x}_2^2) + \frac{1}{2} m \omega_0^2 (x_1^2 + x_2^2) - \frac{2e^2}{d^3} x_1 x_2 \quad (\text{A.1})$$

Le dernier terme de cette expression traduit l'énergie potentielle du couplage dipolaire. Le terme d'énergie potentielle totale peut être diagonalisé par le changement de variable  $\xi_1 = (x_1 + x_2)/\sqrt{2}$  et  $\xi_2 = (x_1 - x_2)/\sqrt{2}$  tel que :

$$\frac{1}{2} m \omega_0^2 \left( x_1^2 + x_2^2 - \frac{4e^2}{m \omega_0^2 d^3} x_1 x_2 \right) = \frac{1}{2} m \omega_0^2 \left( 1 - \frac{2e^2}{m \omega_0^2 d^3} \right) \xi_1^2 + \frac{1}{2} m \omega_0^2 \left( 1 + \frac{2e^2}{m \omega_0^2 d^3} \right) \xi_2^2 \quad (\text{A.2})$$

avec l'énergie cinétique  $(m/2) (\dot{\xi}_1^2 + \dot{\xi}_2^2)$ . On obtient ainsi deux nouveaux oscillateurs avec les fréquences effectives :

$$\omega_{\pm} = \omega_0 \sqrt{1 \pm \frac{2e^2}{m \omega_0^2 d^3}} \quad (\text{A.3})$$

Le changement de l'énergie de point zéro des deux oscillateurs est l'énergie d'interaction donnée par :

$$U(d) = \frac{\hbar}{2} (\omega_+ + \omega_- - 2\omega_0) \approx -\frac{e^4 \hbar}{4m^2 \omega_0^3 d^6}$$

avec le développement limité au second ordre des racines carrées. L'énergie d'interaction est donc donnée par la différence entre les modes couplés et les pulsations propres des systèmes isolés. Un traitement similaire peut être fait en trois dimensions avec le terme d'interaction dipolaire  $e^2(x_1 x_2 + y_1 y_2 - z_1 z_2)/d^3$ . Notons la dépendance en distance en  $\frac{1}{d^6}$  de l'énergie d'interaction moléculaire de van der Waals qui apparaît de façon naturelle. J. Mahanty et B. W. Ninham [MN76] ont généralisé cette méthode aux corps macroscopiques vus comme un assemblage d'oscillateurs  $\vec{\mu}_i = e \vec{u}_i$  placés aux coordonnées  $\vec{r}_i$  par rapport à l'origine. L'Hamiltonien généralisé devient :

$$H = \frac{m}{2} \sum_i (\dot{u}_i^2 + \omega_i^2 u_i^2) - \sum_{i,j} \vec{\mu}_i \mathbf{T}_{ij} \vec{\mu}_j \quad (\text{A.4})$$

avec le tenseur  $\mathbf{T}_{ij} = \nabla_i \nabla_j \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|}$  donnant le champ au point  $\vec{r}_i$  dû au dipôle source  $\vec{r}_j$ . Les équations du mouvement des longueurs  $\vec{r}_i$  s'obtient à partir de la relation A.4 grâce à l'équation séculaire :

$$D(\omega) = \text{Det} \left[ (\omega_i^2 - \omega^2) \mathbb{I} - \frac{e^2}{m} \mathbf{T} \right] \quad (\text{A.5})$$

qui est un déterminant de dimension  $3N \times 3N$  (pour  $N$  oscillateurs). Notons que pour  $i = j$ , le tenseur  $\mathbf{T}_{ij}$  a la signification d'un terme d'énergie propre, ou "self-energie", qui diverge dans ce modèle ponctuel des dipôles. Cette singularité peut être effacée en tenant compte de la taille finie des molécules.

En l'absence de couplages dipolaires, l'équation séculaire devient :

$$D_0(\omega) = \prod_i \text{Det} [(\omega_i^2 - \omega^2) \mathbb{I}] \quad (\text{A.6})$$

On obtient donc le changement de l'énergie de point zéro :

$$\begin{aligned} \Delta \mathcal{E} &= \frac{\hbar}{2} \sum [\{\text{Racines de } D(\omega)\} - \{\text{Racines de } D_0(\omega)\}] \\ &= \frac{1}{2\pi i} \oint \left( \frac{\hbar \omega}{2} \right) \frac{d}{d\omega} \ln \left( \frac{D(\omega)}{D_0(\omega)} \right) d\omega \end{aligned}$$

que l'on résout par la méthode des résidus [AW01, Gir02] pour obtenir l'équation universelle des énergies de dispersion, avec  $\omega = i\nu$  :

$$\Delta \mathcal{E} = \frac{\hbar}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \ln [D(i\nu)] d\nu \quad (\text{A.7})$$

avec  $D(i\nu)$  que l'on réécrit :

$$D(i\nu) = \text{Det} [\mathbb{I} - \alpha \cdot \mathbf{T}] \quad (\text{A.8})$$

en posant  $\alpha_i = \frac{e^2}{m(\omega_i^2 - \omega^2)}$  élément diagonal du tenseur polarisabilité  $\alpha$ . Chaque élément de ce tenseur diagonal correspond à la polarisabilité d'une molécule du solide. Soulignons que la relation A.7 est universelle à juste titre car elle tient compte des effets d'écrantage dans la matière ainsi que des effets de retard de la propagation du photon virtuel de l'interaction. Les différentes contributions des forces de dispersion vu au chapitre 2, page 2.12, peuvent s'obtenir comme cas limites de cette expression. Cette relation permet un traitement rigoureux des forces de dispersion [DGM<sup>+</sup>94, GDM94].

### **A.1.2 Exemples d'utilisation de l'équation universelle de dispersion**

Ces exemples s'inspirent du cours de C. Girard [Gir02]. Ils vont nous permettre de trouver les relations de dispersion pour quelques cas simples.

#### **Energie d'interaction entre deux atomes**

Le moment dipolaire d'un atome  $\vec{\mu}(\omega)$  induit par un champ électrique  $\vec{E}(\omega)$  se note  $\vec{\mu}(\omega) = \alpha(\omega) \vec{E}(\omega)$ . La source de ce champ électrique est le dipôle  $\vec{\mu}(\omega)$ , on traduit la propagation de champ par  $\vec{E}(\omega) = \mathbf{T} \cdot \vec{\mu}(\omega)$ . Pour deux atomes (1) et (2) distant de  $\vec{d}$ , on a donc induction réciproque par leur moment dipolaire respectif  $\vec{\mu}_1(\omega)$  et  $\vec{\mu}_2(\omega)$  avec le système couplé :

$$\begin{aligned} \vec{\mu}_1(\omega) &= \alpha_1(\omega) \cdot \vec{E}_{1/2}(\omega) = \alpha_1(\omega) \cdot \mathbf{T}_{12}(-\vec{d}) \cdot \vec{\mu}_2(\omega) \\ \vec{\mu}_2(\omega) &= \alpha_2(\omega) \cdot \vec{E}_{2/1}(\omega) = \alpha_2(\omega) \cdot \mathbf{T}_{21}(\vec{d}) \cdot \vec{\mu}_1(\omega) \end{aligned}$$

Donnant :

$$\begin{pmatrix} \mathbb{I} & -\alpha_1(\omega) \cdot \mathbf{T}_{12}(-\vec{d}) \\ -\alpha_2(\omega) \cdot \mathbf{T}_{21}(\vec{d}) & \mathbb{I} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \vec{\mu}_1 \\ \vec{\mu}_2 \end{pmatrix} = (\mathbb{I} - \mathbf{A}) \cdot \begin{pmatrix} \vec{\mu}_1 \\ \vec{\mu}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

Les modes couplés s'obtiennent donc pour  $D(i\nu) = \text{Det}[\mathbb{I} - \mathbf{A}] = 0$  avec :

$$\mathbf{A} = \begin{pmatrix} 0 & -\alpha_1(\omega) \cdot \mathbf{T}_{12}(-\vec{d}) \\ -\alpha_2(\omega) \cdot \mathbf{T}_{21}(\vec{d}) & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.9})$$

En champ proche, le propagateur  $\mathbf{T}$  s'écrit [Col02] pour un vecteur distance  $\vec{d} = (X, Y, Z)$  :

$$\mathbf{T}(\vec{d}) = \frac{3\vec{d}\vec{d} - \mathbb{I}|\vec{d}|^2}{|\vec{d}|^5} = \frac{1}{(X^2 + Y^2 + Z^2)^{\frac{5}{2}}} \begin{pmatrix} 2X^2 - Y^2 - Z^2 & 3XY & 3XZ \\ 3YX & 2Y^2 - X^2 - Z^2 & 3YZ \\ 3ZX & 3ZY & 2Z^2 - X^2 - Y^2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

pour une distance interatome  $\vec{d} = (0, 0, d)$  on a :

$$\mathbf{T}_{ij}(\vec{d}) = \frac{1}{d^3} \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.11})$$

Pour obtenir l'énergie d'interaction, il faut maintenant résoudre l'intégrale A.7. Pour cela, on utilise le développement limité [Gan66] :

$$\ln[\text{Det}[\mathbb{I} - \mathbf{A}]] = -\text{tr}[\mathbf{A}] - \frac{1}{2} \text{tr}[\mathbf{A} \cdot \mathbf{A}]$$

Or d'après la relation A.9,  $\text{tr}[\mathbf{A}] = 0$ . Ainsi [McL64] :

$$\Delta\mathcal{E}(d) = -\frac{\hbar}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \text{tr}[\alpha_1(i\nu) \cdot \mathbf{T}_{12} \cdot \alpha_2(i\nu) \cdot \mathbf{T}_{21}] d\nu \quad (\text{A.12})$$

qui peut encore s'écrire en utilisant le propagateur A.11 :

$$\Delta\mathcal{E}(d) = -\frac{3\hbar}{2\pi} \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_1(i\nu) \alpha_2(i\nu) d\nu}{d^6} = -\frac{C_6}{d^6} \quad (\text{A.13})$$

où on fait apparaître l'énergie d'interaction de London avec la constante de couplage dipolaire  $C_6$ . En faisant l'hypothèse que les polarisabilités  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$ , considérées dans ce cas isotropiques, suivent des lois Lorentziennes [JTC84, Ber97] de la forme  $\alpha_{1/2}(\omega) = \frac{\alpha_{1/2}^{(0)} \omega_{1/2}^2}{\omega_{1/2}^2 - \omega^2}$  où  $\alpha_{1/2}^{(0)}$  et  $\omega_{1/2}$  sont des constantes dépendant de l'espèce considérée, et en utilisant la relation (avec  $a, b > 0$ ) [PM98],

$$\int_0^{+\infty} \frac{d\nu}{(a^2 + \nu^2)(b^2 + \nu^2)} = \frac{\pi}{2ab(a^2 + b^2)} \quad (\text{A.14})$$

on aboutit à :

$$\Delta\mathcal{E}(d) = -\frac{3\hbar}{4} \frac{\alpha_1^{(0)} \alpha_2^{(0)}}{d^6} \frac{\omega_1 \omega_2}{(\omega_1 + \omega_2)} \quad (\text{A.15})$$

qui n'est autre que la relation 2.10 page 23 au système d'unités près.

Le propagateur complet  $\mathbf{G}$  tenant compte du champ proche mais aussi du champ lointain a une dépendance en fréquence [Col02] :

$$\mathbf{G}(\vec{d}, \omega) = \left[ -k_0^2 \varepsilon(\omega) \frac{\vec{d}\vec{d} - \mathbb{I}|\vec{d}|^2}{|\vec{d}|^3} - ik_0 \varepsilon(\omega) \frac{3\vec{d}\vec{d} - \mathbb{I}|\vec{d}|^2}{|\vec{d}|^4} + \frac{3\vec{d}\vec{d} - \mathbb{I}|\vec{d}|^2}{|\vec{d}|^5} \right] \frac{e^{ik|\vec{d}|}}{\varepsilon(\omega)} \quad (\text{A.16})$$

avec le vecteur d'onde dans le vide  $k_0$  et la constante diélectrique du milieu  $\varepsilon(\omega)$ . En remplaçant  $\mathbf{T}$  par celui-ci, on ne peut donc plus isoler la partie spatiale de la partie fréquentielle dans l'intégrale A.7 de l'énergie de dispersion. Sur le même axe joignant nos deux précédents dipôles tel que  $\vec{d} = (0, 0, d)$ , ce tenseur de polarisation a la forme suivante, dans le vide où  $\varepsilon(\omega) = 1$  :

$$\mathbf{G}_{ij}(\vec{d}, i\nu) = \frac{e^{-\frac{\nu d}{c}}}{d} \begin{pmatrix} \frac{\nu^2}{c^2} + \frac{\nu}{cd} + \frac{1}{d^2} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\nu^2}{c^2} + \frac{\nu}{cd} + \frac{1}{d^2} & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{2\nu}{cd} - \frac{2}{d^2} \end{pmatrix} \quad (\text{A.17})$$

On retrouve cette expression du tenseur à la page 42 de la référence [MN76].

En utilisant ce tenseur dans l'expression A.12 [MN72] à la place du tenseur  $T$ , avec une polarisabilité  $\alpha_j(\omega)$  isotropique, on obtient l'énergie de dispersion :

$$\begin{aligned} \Delta\mathcal{E}(d) &= -\frac{\hbar}{2\pi} \int_0^{+\infty} d\nu \alpha_1(i\nu) \alpha_2(i\nu) \frac{e^{-\frac{2\nu d}{c}}}{d^2} \times \left\{ 2 \left( \frac{\nu^2}{c^2} + \frac{\nu}{cd} + \frac{1}{d^2} \right)^2 + 4 \left( \frac{\nu}{cd} + \frac{1}{d^2} \right)^2 \right\} \\ &= -\frac{\hbar}{\pi d^2} \int_0^{+\infty} d\nu \alpha_1(i\nu) \alpha_2(i\nu) e^{-\frac{2\nu d}{c}} \times \left( \frac{\nu^4}{c^4} + \frac{2\nu^3}{c^3 d} + \frac{5\nu^2}{c^2 d^2} + \frac{6\nu}{cd^3} + \frac{3}{d^4} \right) \quad (\text{A.18}) \end{aligned}$$

La relation A.18 est l'expression complète de l'énergie de dispersion entre deux atomes neutres. Elle tient compte des effets de retard de l'interaction [CP48]. Dans le cas limite où on fait tendre la vitesse  $c$  de transmission de l'onde vers l'infini, on retrouve le régime non-retardé avec une dépendance en distance en  $\frac{1}{d^6}$  [Lon37].

En revanche, si  $d \gg c/\omega_{\text{visible}} = \lambda_{\text{visible}}/(2\pi)$ , on montre que la principale contribution de l'énergie d'interaction sera au voisinage de  $\nu \rightarrow 0$ . On peut donc faire un développement limité des  $\alpha_j(i\nu)$  avec le terme dominant :

$$\begin{aligned}
\Delta\mathcal{E}(d) &= -\frac{\hbar}{\pi d^2} \alpha_1(0) \alpha_2(0) \int_0^{+\infty} dv e^{-\frac{2vd}{c}} \times \left( \frac{v^4}{c^4} + \frac{2v^3}{c^3 d} + \frac{5v^2}{c^2 d^2} + \frac{6v}{c d^3} + \frac{3}{d^4} \right) \\
&= -\frac{\hbar c}{\pi d^7} \alpha_1(0) \alpha_2(0) \int_0^{+\infty} dx e^{-2x} \times (x^4 + 2x^3 + 5x^2 + 6x + 3) \\
&= -\frac{23 \hbar c}{4\pi d^7} \alpha_1(0) \alpha_2(0)
\end{aligned} \tag{A.19}$$

On trouve le cas limite du régime retardé avec une dépendance en distance en  $\frac{1}{d^7}$  des forces de Casimir.

### Energie d'interaction entre un atome et une surface

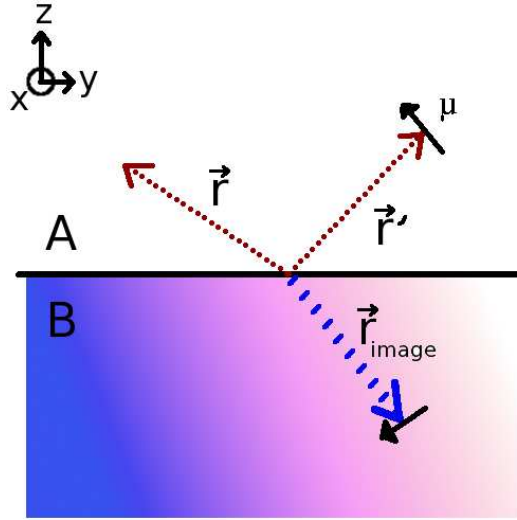


FIG. A.1 – Interaction entre un dipôle dans un milieu A et une surface B.

Le champ électrique subi par une particule au point  $\vec{r}$  est la somme du champ  $\vec{E}_t(\vec{r}, \omega)$  de la surface seule et du champ généré par le dipôle induit  $\vec{\mu}(\vec{r}', \omega) = \alpha_0(\omega) \vec{E}(\vec{r}', \omega)$  pris en compte par le propagateur ou fonction réponse de l'objet  $\mathbf{S}(\vec{r}, \vec{r}')$  avec  $\vec{r}'$  la coordonnée du dipôle source. Ainsi :

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = \vec{E}_t(\vec{r}, \omega) + \mathbf{S}(\vec{r}, \vec{r}') \cdot \vec{\mu}(\vec{r}', \omega) = \vec{E}_t(\vec{r}, \omega) + \mathbf{S}(\vec{r}, \vec{r}') \cdot \alpha_0(\omega) \vec{E}(\vec{r}', \omega) \tag{A.20}$$

qui permet d'exprimer :

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = [\mathbb{I} - \alpha_0(\omega) \mathbf{S}(\vec{r}, \vec{r}')]^{-1} \cdot \vec{E}_t(\vec{r}, \omega) \tag{A.21}$$

De cette relation A.21, on révèle une polarisabilité effective  $\alpha_{eff}$  du moment induit dans la molécule en fonction du champ électrique de la surface tel que :

$$\vec{\mu}(\vec{r}', \omega) = \alpha_0(\omega) \vec{E}(\vec{r}', \omega) = \alpha_0(\omega) [\mathbb{I} - \alpha_0(\omega) \mathbf{S}(\vec{r}, \vec{r}')]^{-1} \cdot \vec{E}_t(\vec{r}, \omega) = \alpha_{eff} \cdot \vec{E}_t(\vec{r}, \omega)$$

L'énergie de dispersion (relation A.7) est donc donnée par :

$$\Delta \mathcal{E} = \frac{\hbar}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \ln [\text{Det} [\mathbb{I} - \alpha_0(\omega) \mathbf{S}(\vec{r}, \vec{r}')] ] d\nu \quad (\text{A.22})$$

On utilise une nouvelle fois le développement limité au premier ordre cette fois :

$$\ln [\text{Det} [\mathbb{I} - \alpha_0(\omega) \mathbf{S}]] = -\text{tr} [\alpha_0(\omega) \mathbf{S}] \text{ avec } \text{tr} [\alpha_0(\omega) \mathbf{S}] \neq 0$$

Le propagateur  $\mathbf{S}(\vec{r}, \vec{r}')$  s'obtient à partir du propagateur dans le vide A.10 en tenant compte des charges images [McL64, Jac75] du dipôle dans la surface. L'interface *vide A-surface B* est pris en compte via les constantes diélectriques des milieux considérés  $\epsilon_A(\omega) = 1$  et  $\epsilon_B(\omega)$  qui donnent le coefficient de correction  $\Delta(\omega) = \frac{\epsilon_B(\omega)-1}{\epsilon_B(\omega)+1}$  des charges images. Ce propagateur s'écrit alors [Col02, GJG00] :

$$\mathbf{S}(\vec{d}) = \frac{\Delta(\omega)}{(X^2 + Y^2 + Z^2)^{\frac{5}{2}}} \begin{pmatrix} Y^2 + Z^2 - 2X^2 & 3XY & 3XZ \\ -3YX & X^2 + Z^2 - 2Y^2 & 3YZ \\ -3ZX & -3ZY & 2Z^2 - X^2 - Y^2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.23})$$

Avec  $\vec{d} = (X = x - x', Y = y - y', Z = z + z')$ . En confondant  $\vec{r}$  avec  $\vec{r}'$ , on a  $\vec{d} = (0, 0, 2d)$  qu'on utilise dans le propagateur précédent pour avoir :

$$\mathbf{S}(d) = \frac{\Delta}{8d^3} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.24})$$

donnant  $-\text{tr} [\alpha_0(\omega) \mathbf{S}] = -\frac{\Delta(\omega)\alpha_0(\omega)}{2d^3}$ . On obtient finalement l'énergie de dispersion entre une molécule et une surface :

$$\Delta \mathcal{E}(d) = -\frac{\frac{\hbar}{8\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_0(i\nu) \frac{\epsilon_B(\omega)-1}{\epsilon_B(\omega)+1} d\nu}{d^3} = -\frac{C_3}{d^3} \quad (\text{A.25})$$

On peut trouver des valeurs de la constante de couplage  $C_3$  dans la référence [VC81b]. Cette énergie de dispersion A.25 est présente à la page 177 de la référence [Isr92] mais calculée par la méthode de sommation par paires de H. C. Hamaker [Ham37].

## A.2 Constante de Hamaker

La constante de Hamaker caractérise de façon macroscopique le couplage dipolaire entre deux solides. E.M. Lifchitz [Lif56, LL69a] a proposé une théorie complète des forces de dispersion permettant de calculer la constante de Hamaker non plus avec les densités des matériaux mais en utilisant les propriétés électromagnétiques des continuum. Dans ce formalisme, la constante d'interaction dépend des constantes diélectriques  $\epsilon(\omega)$ .

On exprime ainsi la constante de Hamaker entre trois milieux (dans notre système *pointe-vide-substrat*) [Isr92] :

$$H = \frac{3}{4}k_B T \left( \frac{\epsilon_{pointe}(0) - 1}{\epsilon_{pointe}(0) + 1} \right) \left( \frac{\epsilon_{substrat}(0) - 1}{\epsilon_{substrat}(0) + 1} \right) + \dots$$

$$\frac{3}{2}\hbar \int_{\nu_1}^{\infty} \left( \frac{\epsilon_{pointe}(iu) - 1}{\epsilon_{pointe}(iu) + 1} \right) \left( \frac{\epsilon_{substrat}(iu) - 1}{\epsilon_{substrat}(iu) + 1} \right) du \quad (\text{A.26})$$

avec la constante de Boltzmann  $k_B$ , la température  $T$ ,  $\nu_1 = \frac{k_B T}{\hbar}$ . Pour les diélectriques, on exprime la constante diélectrique en fonction de l'indice optique  $n$  dans le visible, la fréquence d'absorption électronique  $\nu_e$  (se situant dans le domaine des ultraviolets  $\approx 3 \cdot 10^{15}$  Hz), d'une constante  $C_{rot}$  et de la fréquence de relaxation rotationnelle moléculaire  $\nu_{rot}$  (située dans le domaine des micro-ondes  $< 1 \cdot 10^{12}$  Hz) tel que  $\epsilon(iu) = 1 + \frac{C_{rot}}{1 + \frac{u^2}{\nu_{rot}^2}} + \frac{n^2 - 1}{1 + \frac{u^2}{\nu_e^2}}$  [Ber97]. Pour les métaux, on exprime cette constante en fonction de la fréquence

plasma  $\nu_p = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{N e^2}{m_e \epsilon_0}}$  [Jac75] tel que  $\epsilon(iu) = 1 + \frac{\nu_p^2}{u^2}$ .

Le premier terme de l'expression A.26 contient les termes dipolaires à fréquence nulle de Debye et Keesom (voir page 2.8) qui sont nuls pour les métaux. Le second terme est la contribution dispersive de London, pour tout le reste du spectre en fréquence, due aux dipôles fluctuants dans la matière. On remarque la borne inférieure d'intégration  $\nu_1 \approx 4 \cdot 10^{13}$  Hz à température ambiante. Cela signifie que les contributions fréquentielles débute dans l'infrarouge. On peut dans ce cas poser  $\epsilon(iu) = 1 + \frac{n^2 - 1}{1 + \frac{u^2}{\nu_e^2}}$  et utiliser la relation

A.14 pour trouver l'approximation pratique de Tabor-Winterton [Fre00] de la constante de Hamaker :

– Pour une interaction *diélectrique-diélectrique* à travers le vide :

$$H \approx \frac{3}{4}k_B T \left( \frac{\epsilon_{pointe}(0) - 1}{\epsilon_{pointe}(0) + 1} \right) \left( \frac{\epsilon_{substrat}(0) - 1}{\epsilon_{substrat}(0) + 1} \right) + \dots$$

$$\frac{3h\nu_e}{8\sqrt{2}} \frac{(n_{pointe}^2 - 1)(n_{substrat}^2 - 1)}{\sqrt{(n_{pointe}^2 + 1)(n_{substrat}^2 + 1)} \left[ \sqrt{n_{pointe}^2 + 1} + \sqrt{n_{substrat}^2 + 1} \right]} \quad (\text{A.27})$$

– Pour une interaction *métal-métal* à travers le vide :

$$H \approx \frac{3h\nu_p}{16\sqrt{2}} \quad (\text{A.28})$$

sachant que  $\nu_e \approx \nu_p \approx 3 \cdot 10^{15}$  Hz à  $1 \cdot 10^{16}$  Hz.

Le tableau A.1 indique quelques valeurs des constantes de Hamaker de matériaux utilisés à l'intérieur de notre enceinte ultra vide. Ces valeurs expérimentales et numériques sont données pour un système de deux solides du même matériau prenant en "sandwich" une couche de vide.

Le lecteur désirant plus de détails et de valeurs de cette constante de Hamaker trouvera

ces informations dans les références [FCDC95, Ber97, Fre00, Vis72].

Matériau	Constante de Hamaker	Matériau	Constante de Hamaker
Au	2.84	SiO <sub>2</sub>	0.53
Ag	2.50	Quartz	0.34-2.58
Cu	1.78	Carbone	1.36
Si	1.60	Diamant	1.78
Fe	1.33	PMMA	0.39
$\alpha$ Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.95	KBr(001)	0.35

TAB. A.1 – Exemples de constantes de Hamaker, en électronVolts, dans le vide. D’après [Vis72, Ber97].





## Annexe B

### Dispositifs et détails expérimentaux

Dans cette annexe, nous présentons les différents systèmes électroniques et méthodes expérimentales développés au cours de ce travail de thèse.

#### B.1 Courbes de résonance

Pour obtenir les courbes de résonance du chapitre 5, nous avons élaboré la boîte électronique de la figure B.1 avec le schéma électronique associé B.2. On applique une rampe en fréquence linéaire à amplitude d'excitation constante sur l'entrée  $V_{gbf}$  à l'aide d'un Générateur Basse Fréquence (GBF) externe. La tension de sortie réduite  $V_{excite}$  permet ensuite d'exciter le cantilever du microscope.

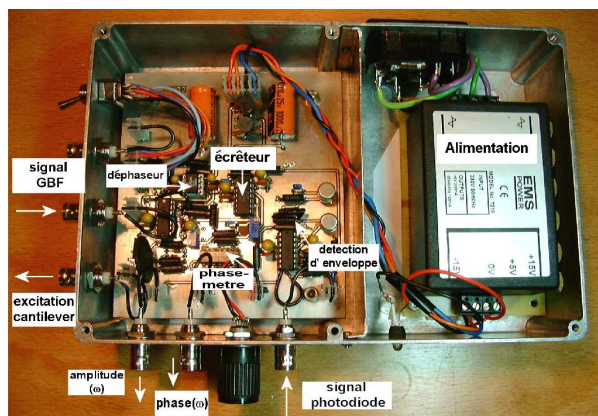


FIG. B.1 – Le montage électronique permettant d'obtenir les courbes de résonance en amplitude et en phase, simultanément, de l'AFM non-contact en Ultra-Vide.

Le cantilever de l'AFM, contenu dans l'enceinte UHV du bâti, vibre donc à la pulsation  $\omega$  imposée par le GBF. La réponse du signal d'oscillation est transmise via la photodiode quatre quadrants (en mode force normale) : il y donc transformation d'un signal mécanique en signal optique, lui-même converti en signal électrique exploitable.

Ce signal de photodiode est connecté à l'entrée  $V_{fn}$  de la carte.

Ainsi l'étage "Détection d'enveloppe" du montage extrait le module du signal de photodiode en fonction de  $\omega$  pour obtenir la courbe de résonance en amplitude (voir exemple

figure B.3) qui permet d’extraire la fréquence de résonance  $f_0$  libre du résonateur et le facteur de qualité  $Q_c$  (de l’ordre de 40000 pour une fréquence d’environ  $f_0 = 300$  kHz en ultra vide à température ambiante).

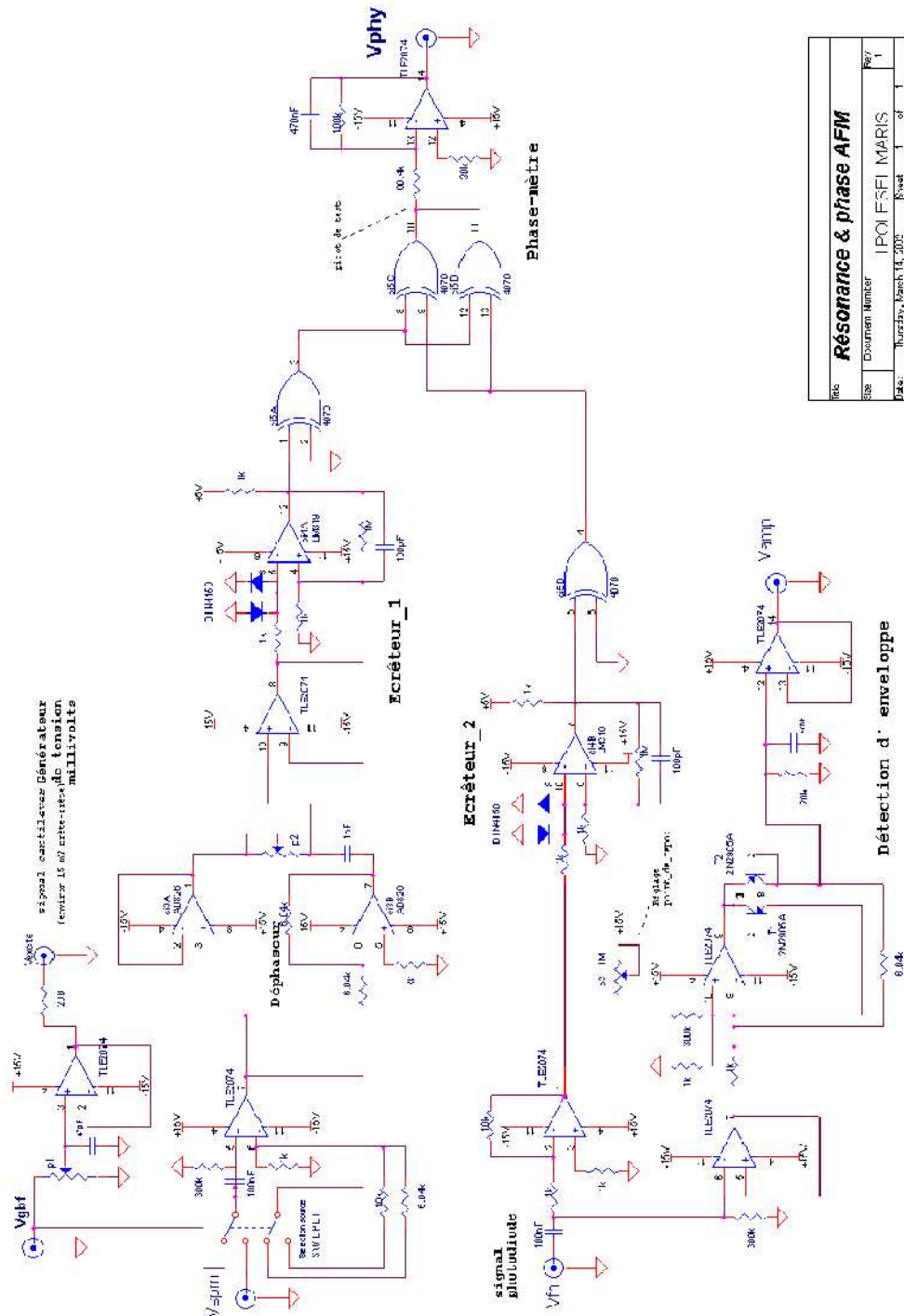


FIG. B.2 – Schéma du montage électronique - On y distingue les différents modules traitant le signal venant de la photodiode quatre quadrants de l’AFM.

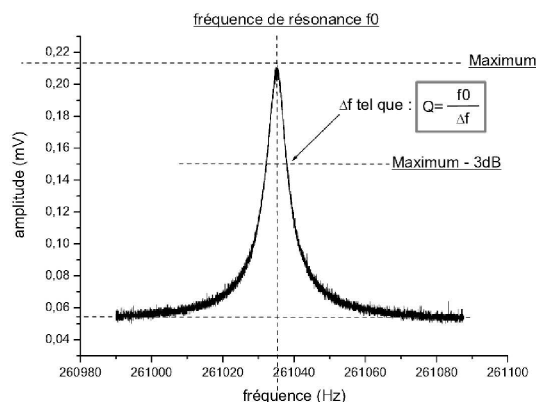


FIG. B.3 – Exemple de courbe de résonance loin de toute interaction avec la surface. On y définit le facteur de qualité à l'amplitude  $A_{max}/\sqrt{2}$ .

Ce même signal de photodiode est multiplié avec le signal d'excitation du GBF dans l'étage "Phase-mètre" à portes logiques XOR de la boîte pour en extraire le déphasage entre le signal d'excitation appliqué sur le cantilever et le signal de réponse venant de la photodiode.

L'étage "Déphaseur" de la carte (Cf. schéma B.2) est utilisé pour étalonner le "Phase-mètre". En effet, le passage du signal de réponse à travers toute une chaîne de conversion opto-électronique entache celui-ci d'un "offset" en phase constant qui n'est pas lié à la physique du phénomène mais aux diverses fonctions de transfert de l'électronique. Grâce à ce "déphaseur" ajustable, on compense celui-ci.

## B.2 Filtre Passe-Bande en sortie de photodiode

Nous avons constaté qu'un filtre passe-bande est souvent présent entre la sortie de la photodiode et la chaîne de mesure du système (Contrôle Automatique de Gain (AGC) et démodulateur de fréquence (PLL)) pour augmenter le rapport signal sur bruit du système [Gie00]. Nous avons donc utilisé un tel filtre représenté sur la figure B.4.

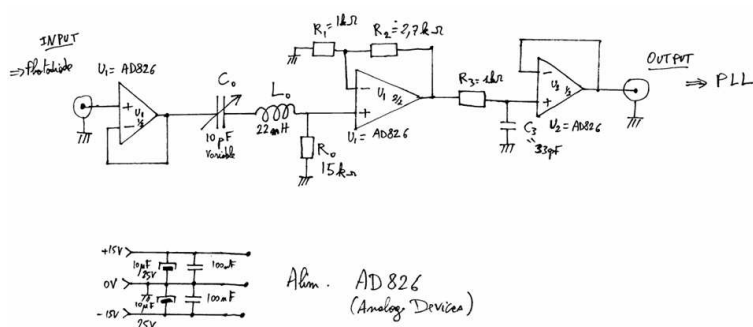


FIG. B.4 – Filtre passe-bande paramétrable.

On règle sa fréquence de résonance sur la résonance du cantilever via la capacité ajustable  $C_0$  et on règle la bande passante du filtre, autour de la résonance, via la résistance

$R_0$ . On veillera aussi à régler la résistance  $R_2$  afin d'avoir un gain unitaire, à la résonance, entre la tension de sortie et la tension d'entrée du montage.

La figure B.5 montre, par une analyse spectrale, l'effet du filtre sur le signal d'oscillation du cantilever provenant de la photodiode. On gagne environ un facteur 4 sur le rapport signal sur bruit ce qui permet à la PLL de se verrouiller sur des signaux de faibles amplitudes d'environ 15 Å.

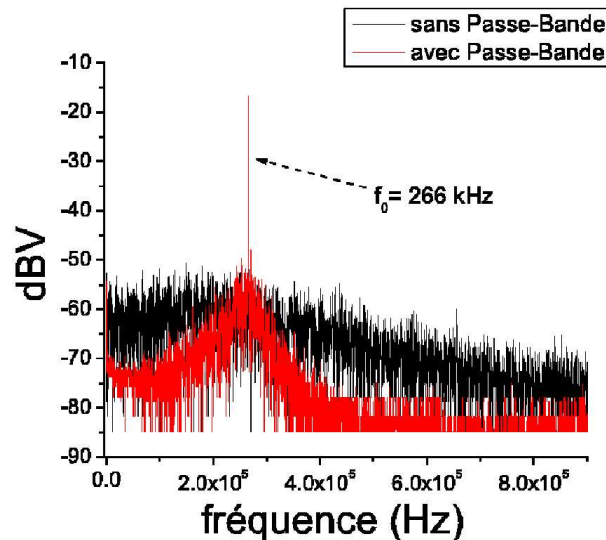


FIG. B.5 – Effet du filtre sur le niveau de bruit.

### B.3 Évaluer le rayon effectif de la pointe

L'apex d'une pointe AFM est loin d'avoir la géométrie d'une sphère mais, dans le régime des interactions à longue portée, qui englobent les forces capacitatives électrostatiques et les forces de van der Waals macroscopique (voir chapitre 2), L. Olsson et al. [OLYR98] ont montré que l'approximation sphère-plan fonctionne très bien en ce qui concerne la détermination du rayon macroscopique de la pointe. En effet, en raison du rapport des volumes de matière, la contribution des forces à longue portée de l'apex est négligeable devant la partie macroscopique de la pointe. Les auteurs s'appuient sur des observations au microscope électronique à balayage de la pointe pour démontrer la validité de la méthode de détermination.

Le principe est le suivant : le microscope opère en mode AFM Non-Contact i.e. la distance pointe surface est régulée sur une consigne en fréquence  $\Delta f_c$  à respecter. Pour une consigne fixée, on fait varier les forces capacitatives entre la pointe et la surface en faisant varier linéairement la différence de potentiel (d.d.p.) en tension appliquée. Etant donnée la variation de la force, le système corrige la distance pointe surface  $D$  pour conserver le même écart en fréquence  $\Delta f_c$ . Suivant la géométrie de la pointe (plane, conique ou sphérique), la variation en distance  $D$  en fonction de la tension de polarisation sera différente comme on le voit sur la figure B.6.

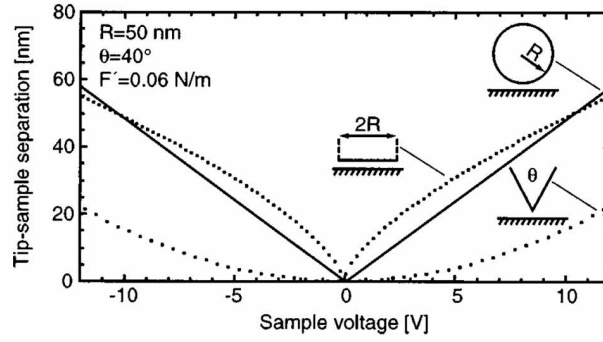


FIG. B.6 – Simulations de courbes  $D$  fonction de la d.d.p. pointe surface pour trois configurations : plan-plan (courbe points serrés), cône-plan (courbe points écartés) ou sphère-plan (courbes trait plein) (d'après [OLYR98]).

### B.3.1 Cas des petites amplitudes d'oscillation

Analytiquement, pour obtenir les courbes de la figure B.6 les auteurs utilisent l'approximation des petites amplitudes d'oscillation pour calculer l'écart en fréquence tel que [GSAF99] :

$$\Delta f = \frac{f_0}{2k_c} \nabla F \quad (\text{B.1})$$

avec  $\nabla F$  le gradient de la force entre la pointe et la surface. Ils utilisent pour la force électrostatique sphère-plan, l'approximation pour un rayon de pointe  $R \gg D$  :  $F = -\frac{\pi\epsilon_0 R V^2}{D}$ . Ils aboutissent ainsi sur l'expression :

$$\Delta f = \frac{\pi\epsilon_0 R f_0}{2k_c} \frac{V^2}{D^2} \quad (\text{B.2})$$

avec  $V$  la d.d.p. entre la pointe et l'échantillon.  $V(D)$  est donc une expression linéaire pour  $\Delta f$  constant.

### B.3.2 Pour une amplitude d'oscillation quelconque

Nous allons proposer une expression qui s'applique à une amplitude  $A$  d'oscillation du cantilever quelconque sans condition sur le rayon de pointe  $R$ . Pour cela, il faut utiliser la relation B.3 que nous avons établi à la page 149 [Gie97] :

$$\Delta f = \frac{f_0^2}{k_c A} \int_0^{1/f_0} F \sin(2\pi f_0 t) dt \quad (\text{B.3})$$

Pour la force sphère-plan capacitive, S. Hudlet et al. [HSJGB98] ont proposé une relation analytique qui s'écarte au maximum de 5% de la sommation exacte proposée par E. Durand [Dur66] (voir chapitre 2) :

$$F = -\pi\epsilon_0 \left( \frac{R^2}{z(t)(z(t)+R)} \right) V^2 \quad (\text{B.4})$$

en tenant compte de l'oscillation du cantilever tel que  $z(t) = D + A \sin(2\pi f_0 t)$ . Ce qui donne, en posant  $d = D/A$  et  $r = R/A$  :

$$\Delta f = -\frac{r f_0 \pi \epsilon_0 V^2}{k_c A} \left\{ \frac{(d+r) \sqrt{\frac{d+r+1}{d+r-1}}}{d+r+1} - \frac{d \sqrt{\frac{d+1}{d-1}}}{d+1} \right\} \quad (\text{B.5})$$

Pour un écart en fréquence  $\Delta f$  constant et égal à la consigne  $\Delta f_c$ , on trace deux branches  $V^+(d)$  et  $V^-(d)$  sur la figure B.7 (courbes en noir) dans le cas d'une amplitude  $A = 30$  nm. Sur cette même figure, avec les mêmes paramètres indiqués sur la figure, on a aussi tracé la relation approchée B.2 (droites en rouge) pour constater les écarts pour les cas des grandes amplitudes d'oscillation du cantilever. Notons qu'il faut tourner la figure de  $90^\circ$  pour retrouver la même configuration que la figure B.6.

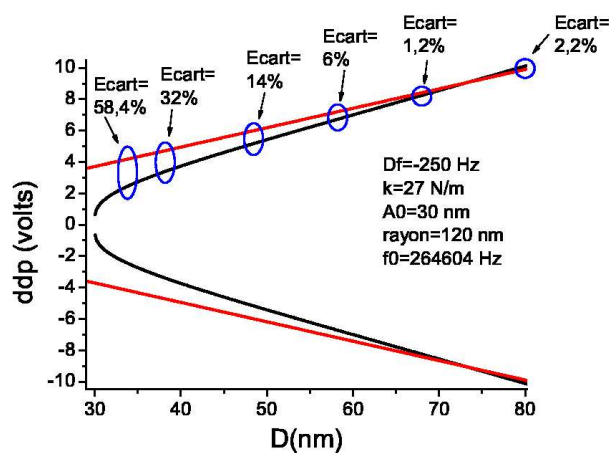


FIG. B.7 – Comparaison entre la relation approchée B.2 et la relation B.5.

### B.3.3 Résultats expérimentaux

Nous avons appliqué expérimentalement la procédure sur des surfaces isolantes (rutile  $\text{TiO}_2$  jaune), semiconductrices (rutile  $\text{TiO}_2$  turquoise) et conductrices ( $\text{Cu}(100)$ ). On note sur les courbes expérimentales (en noir) des figures B.8, le comportement sphere-plan de l'interaction électrostatique si on fait le rapprochement avec les trois cas de la figure B.6. Pour des paramètres d'amplitude  $A$ , de constante de raideur  $k_c$ , d'écart en fréquence  $\Delta f_c$  et de fréquence  $f_0$  fixes, **seul le rayon  $R$  de la pointe intervient sur la pente de la région linéaire** de l'expression complète B.5 ainsi que sur la pente des droites définies par l'expression approchée B.2. Ainsi en ajustant au mieux le coefficient directeur des relations analytiques (courbes rouges et vertes) sur les courbes expérimentales (noires), on extrait le rayon effectif de la pointe intervenant dans les interactions longue portée.

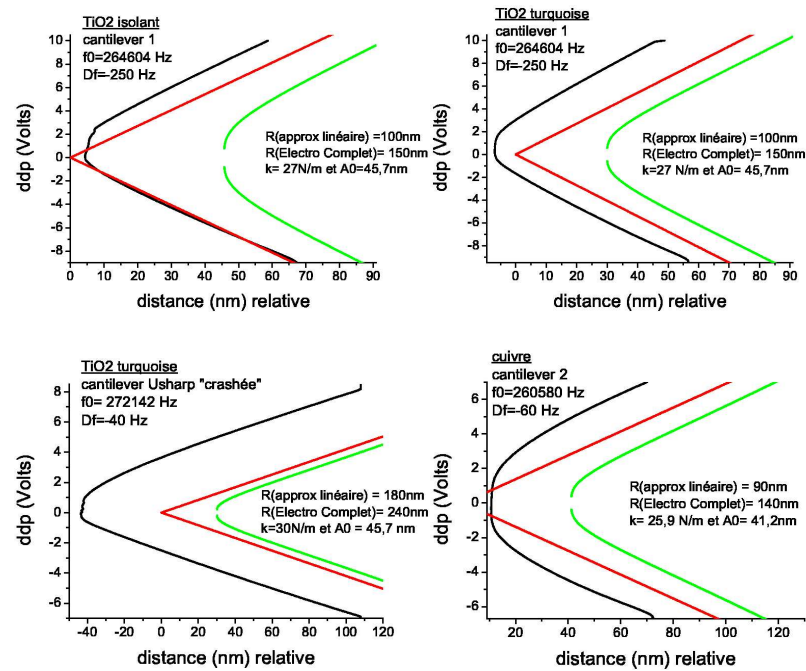


FIG. B.8 – Résultats de mesure du rayon d’apex sur différentes surfaces avec différentes pointes. Courbes noires : résultats expérimentaux, courbes vertes : ajustements de la relation B.5, courbes rouges : ajustements de la relation approximée B.2.

## B.4 Une méthode pour évaluer la raideur du cantilever

Quand on veut faire des expériences quantitatives en microscopie à force atomique, on se confronte tôt ou tard au problème d’évaluation de la constante de raideur  $k_c$  du cantilever. Plusieurs méthodes sont proposées dans la littérature. On pourra en trouver un récapitulatif dans la référence [BCH<sup>+</sup>03]. Hélas, la majorité de ces méthodes ne sont concluantes expérimentalement que pour des poutres ayant de faibles raideurs typiques des cantilevers triangulaires utilisés exclusivement en mode “contact” (de  $0.05$  à  $0.5\text{ N.m}^{-1}$ ).

Les cantilevers rectangulaires utilisés au cours de ce travail de thèse ont des valeurs de l’ordre de  $30\text{ N.m}^{-1}$ . Nous avons alors utilisé une procédure opto-mécanique pour déterminer  $k_c$ .



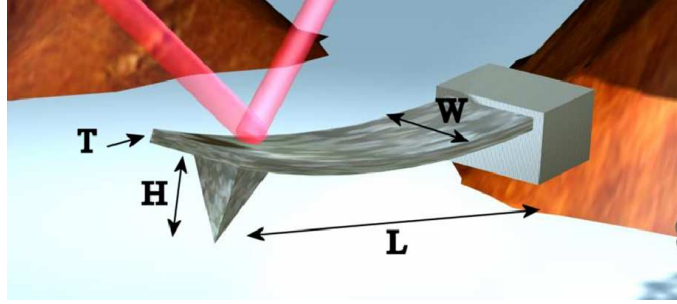


FIG. B.9 – Représentation d'un cantilever rectangulaire avec ses dimensions.

En effet, la fréquence de résonance  $f_0$  d'une poutre fait d'un matériau ayant une densité volumique  $\rho$  avec une pyramide collée à son extrémité, comme le montre la figure B.9, s'exprime [YB01] :

$$f_0 = 0.276 \sqrt{\frac{E W T^3}{\rho (\pi H^3 L^3 + 2.832 W T L^4)}} \quad (\text{B.6})$$

avec le module d'Young  $E$  du matériau. Les dimensions  $L$  (de l'ordre de 100 à 200  $\mu\text{m}$ ),  $W$  (de l'ordre de 30 à 40  $\mu\text{m}$ ) et  $H$  (de l'ordre de 10 à 15  $\mu\text{m}$ ) sont aisément mesurables au microscope optique. On peut réécrire l'expression B.6 :

$$T^3 = T \left[ \left( \frac{f_0}{0.276} \right)^2 \frac{\rho 2.832 L^4}{E} \right] + \left( \frac{f_0}{0.276} \right)^2 \frac{\rho \pi H^3 L^3}{E W}$$

permettant d'obtenir une résolution graphique de l'épaisseur  $T$  de la poutre (de l'ordre de 2 à 4  $\mu\text{m}$ ). On obtient alors la constante de raideur donnée par [YB01, Sar91, Che93] :

$$k_c = \frac{E W T^3}{4 L^3} \quad (\text{B.7})$$

Cette méthode permet de déterminer la constante de raideur  $k_c$  avec une erreur absolue d'environ 10%.

## B.5 Calibration du système de détection optique

Pour calibrer nos amplitudes d'oscillations en AFM dynamique, nous présentons la méthode simple suivante.

Le mode AFM Contact (le cantilever n'oscille pas) permet d'obtenir des courbes d'approche et de retrait comme on le voit sur la figure B.10. Dans le vide et pour des surfaces dures, comme les céramiques, nous n'observons pas ou peu d'effet d'hystérésis. Ces courbes nous donnent la déflexion du cantilever fournie par la photodiode, en Volts, en fonction de la distance pointe-surface en nanomètres. Dans le régime répulsif, la pente négative de cette courbe nous donne le facteur de conversion Volts  $\rightarrow$  nanomètres en fonction de l'intensité  $I_{total}$  de la source lumineuse (laser ou diode électroluminescente (LED)) de la détection optique du microscope. On nomme sensibilité ce facteur de conversion.

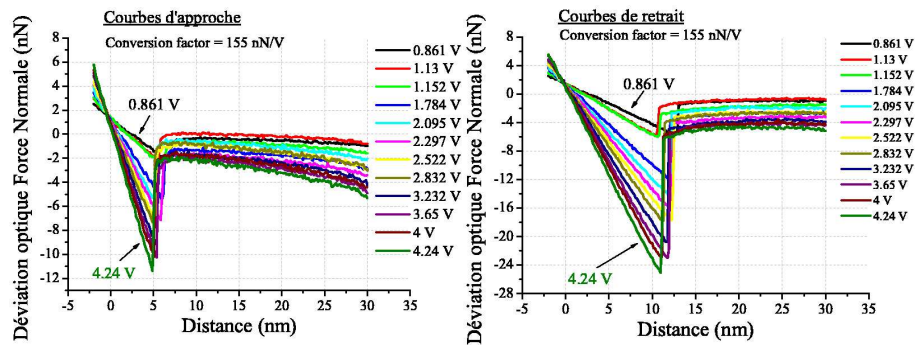


FIG. B.10 – Courbes d’approche et de retrait, pour différentes valeurs de  $I_{total}$ , sur une surface d’alumine (voir figure 5.2) avec une pointe AFM standard [Tip].

On peut alors tracer cette sensibilité en fonction de l’intensité  $I_{total}$  sur la figure B.11. Nous avons réitérer cette procédure pour différents types de pointes sur le même microscope RT-AFM OMICRON™ [Omi]. Pour des pointes standards (courbe en carrés noirs, et en losanges bleus), “Ultra-Sharp” (courbe en ronds rouges) ou métallisées (courbe en carrés noirs, et en ronds rouges) sur le dessus du cantilever et pour des constructeurs différents (NANOSENSORS™, LOT™), on obtient la même évolution de la sensibilité.

En effectuant la même étude sur un autre type de microscope VT-AFM OMICRON™ avec un système de détection optique différent, nous avons utilisé le même type de pointe AFM standard. On obtient alors une évolution de la sensibilité différente (courbe en triangles verts).

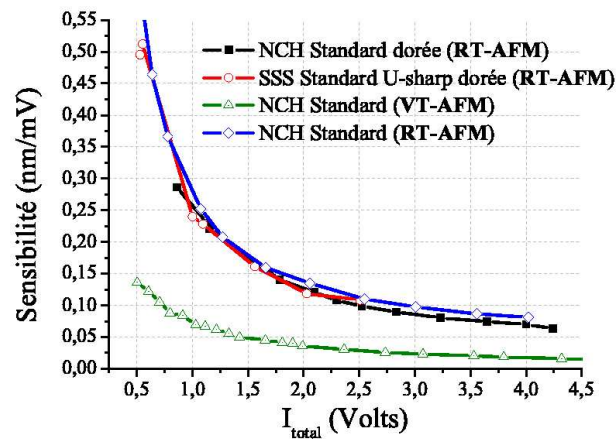


FIG. B.11 – Courbes d’approche retrait sur une surface d’alumine (voir figure 5.2) avec une pointe AFM standard [Tip].

Cette étude montre que le facteur de sensibilité ne dépend que du système de détection optique et pas du type de cantilever malgré les incertitudes de collage de la poutre sur son support. En d’autre terme, pour un microscope donné et pour une intensité de la source lumineuse fixée, on peut appliquer le même facteur de conversion pour différentes campagnes de mesures avec différents cantilevers Non-Contact AFM.



# Annexe C

## L'AFM virtuel : détails

Dans cette annexe, nous présentons les réponses indicielles du système réel (voir photographie 2.4 page 13). Les blocs et constituants du microscope sont analysés de façon indépendante. Ainsi, nous étudions la détection d'enveloppe et le déphaseur du Contrôle Automatique de Gain (AGC) EASYPLL CONTROLLER de NANOSURF™ [Nan]. Ensuite, nous étudions la réponse du démodulateur de fréquence EASYPLL DEMODULATOR de NANOSURF™ [NAN] ainsi que son filtre du second ordre. Nous finissons sur le temps de réponse en boucle ouverte du circuit de commande de la régulation en distance (ADC).

On utilisera les figures 2.6 et 2.7 page 14 et la figure 4.10 page 76 en ce qui concerne la dénomination des signaux d'entrée et de sortie.

Les constantes de temps extraites de cette étude expérimentale sont directement utilisées au chapitre 4, dans les études analytiques et aussi dans l'outil numérique *AFM virtuel* (page 4.3).

Notons qu'aucun schéma électronique n'ayant été fourni par le constructeur [Nan], nous avons fait cette étude en traitant les différents constituants de leurs appareils (PLL et AGC) comme des boîtes noires.

### C.1 La détection d'enveloppe

Ce composant permet d'extraire l'amplitude ou module  $A$  du signal oscillant provenant de la photodiode. Cette amplitude mesurée sera utilisée par la boucle d'asservissement AGC. La plupart du temps, on utilise un convertisseur "RMS-to-DC"<sup>1</sup> pour la détection d'enveloppe. Un convertisseur "RMS-to-DC" utilise un filtre de lissage du premier ordre avec une constante de temps  $\tau_D$ . Le bruit dans la mesure de l'amplitude est donné par  $S_A/\sqrt{\tau_D}$  avec  $S_A$  la densité spectrale de bruit du signal d'entrée [GHH<sup>+</sup>04]. Si  $f_0$  est la fréquence de la porteuse du signal,  $\tau_D$  est de l'ordre de  $10/f_0$  à  $1000/f_0$ . On peut noter que la mesure de l'amplitude  $A$  prends un temps de l'ordre de  $\tau_D$ . Il est donc très important que ce temps d'intégration soit inférieur au temps de stabilisation du cantilever donné par  $\tau_c = Q_c/(\pi f_0)$  [AGHR91] pour prévenir au mieux tout changement de l'amplitude d'oscillation. Les courbes (a) et (b) de la figure C.1 montrent la réponse indicielle expérimentale (courbes bleues) sur notre système avec un signal d'excitation "Sensor In" (courbes noires) AM (i.e. modulé en amplitude) avec une porteuse sinusoïdale à 270 kHz

---

<sup>1</sup>Analog Devices, Norwood, MA USA, [www.analog.com](http://www.analog.com)

modulée par un créneau à 1 Hz avec un taux de modulation de 0.5. La réponse traduit un comportement de circuit du premier ordre avec un temps de réponse  $\tau_D$  de l'ordre de 2 ms. Les courbes (c) et (d) de la figure C.1 proviennent d'une simulation numérique reproduite pour ce bloc dans l'AFM virtuel (voir chapitre 4 à la page 94).

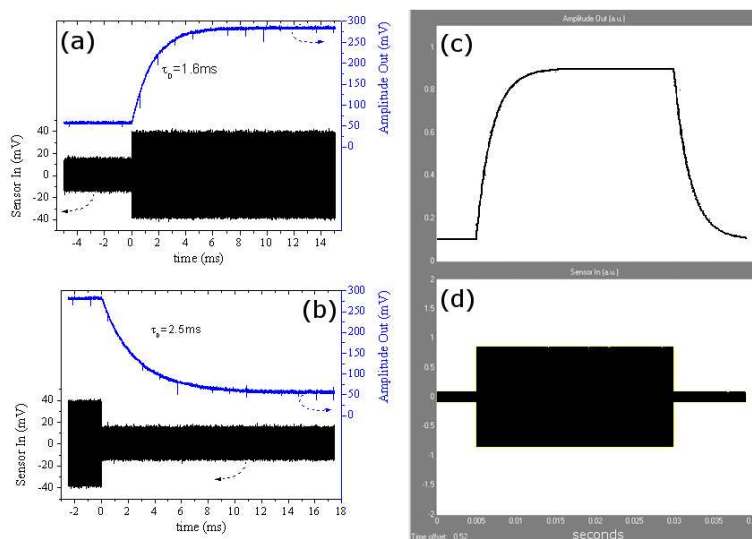


FIG. C.1 – Réponse indicielle de la détection d'enveloppe de l'AGC. Courbes expérimentales : (a) et (b). Simulation numérique : (c) (réponse du système) et (d) (excitation du système).

## C.2 Le déphaseur

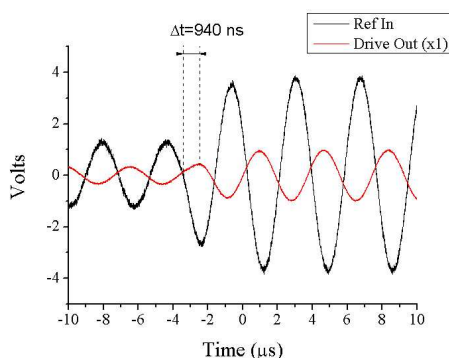


FIG. C.2 – Temps de réponse du déphaseur.

Comme nous l'avons décrit au chapitre 4, celui-ci sert à optimiser l'oscillation du cantilever. L'analyse expérimentale de la figure C.2 est obtenue en mettant à la masse l'entrée "Sensor In". On se place en mode "Constant Drive" de l'AGC. On excite via l'entrée "Ref In" avec un signal AM (courbe noire) avec une porteuse sinusoïdale à 270 kHz modulée par un créneau à 1 Hz avec un taux de modulation de 0.5. La réponse du déphaseur (courbe rouge) est de l'ordre de 940 ns, plus de trois ordres de grandeur en

dessous des temps de réactions des autres blocs de la machine. Nous avons donc négligé ce temps de réaction très petit dans nos simulations numériques.

## C.3 La PLL

Nous avons d’abord analysé ce système bouclé comme un composant isolé du système. Puis nous avons étudié le composant clé de la PLL : le filtre de boucle  $F(p)$  décrit à la page 4.1.4.

### C.3.1 Réponse du démodulateur

#### Réponse en modulation de fréquence (FM)

Pour avoir le temps de réponse du démodulateur on utilise un un signal FM (modulé en fréquence), à amplitude constante, avec une porteuse sinusoïdale à 270 kHz et une déviation  $\Delta f$  de 130 Hz modulée en créneaux de période  $1/(30 \text{ Hz})$ . Ce signal est appliqué sur l’entrée “Input”. Ceci est similaire à de la modulation FSK. On fait de la réponse indicielle en fréquence. Ces réponses, sortie “dF Out”, expérimentales (a) et simulées numériquement (b) sur les figures C.3 sont faites avec le calibre de verrouillage  $K_0 = 183 \text{ Hz.V}^{-1}$ . Le comportement est similaire pour les deux autres calibres disponibles ( $K_0 = 366 \text{ Hz.V}^{-1}$  et  $K_0 = 732 \text{ Hz.V}^{-1}$ ), avec la déviation  $\Delta f$  adaptée au calibre ( respectivement 265 Hz et 475 Hz). Seul le dépassement (“overshoot” en anglais) des courbes de réponse indicielle (a) devient plus fort pour ces calibres.

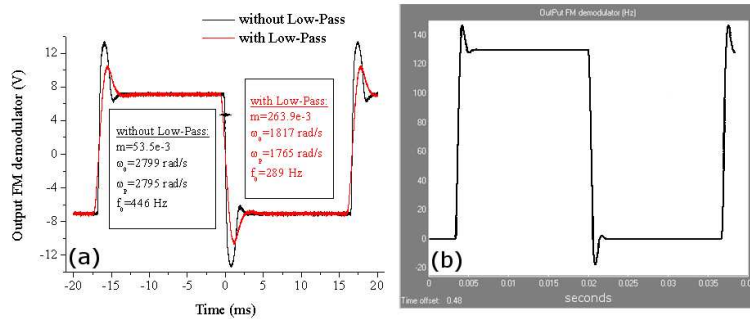


FIG. C.3 – Réponse indicielle en fréquence de la PLL. Courbes expérimentales : (a) et simulation numérique de la réponse du système : (b).

Ces courbes de réponse de la figure C.3(a) mettent en évidence le comportement d’un filtrage du second ordre obéissant à une équation différentielle du type :

$$e(t) = \frac{1}{\omega_0^2} \ddot{s}(t) + \frac{2m}{\omega_0} \dot{s}(t) + s(t) \quad (\text{C.1})$$

Avec la pseudo-pulsation  $\omega_p = \omega_0 \sqrt{1-m^2}$ .

### Réponse en modulation d'amplitude (AM)

De même on peut observer le comportement du démodulateur face à une modulation d'amplitude (figures C.4) pour une fréquence sinusoïdale fixe=270 kHz avec un créneau modulant à 130Hz et un taux de modulation de 0.5.

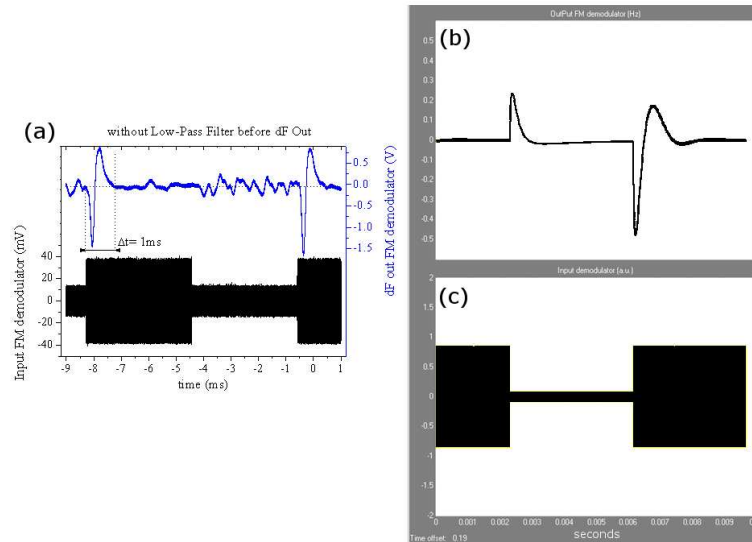


FIG. C.4 – Réponse indicielle en amplitude de la PLL. Courbes expérimentales : (a) et simulation numérique de la réponse du système : (b). (c) étant la simulation numérique de l'excitation du système.

### C.3.2 Réponse du filtre passe-bas du démodulateur

Pour analyser ce filtre  $F(p)$  du démodulateur de fréquence (voir page 196), on injecte une modulation AM avec une porteuse sinusoïdale à 270 kHz modulée par un créneau à 320 Hz avec un taux de modulation de 0.5. On se place dans le mode “Constant Drive” dans le logiciel de contrôle du démodulateur. Numériquement, on reproduit la réponse expérimentale de la figure C.5(a) (courbes bleues) au moyen du filtre défini par l'expression C.1 sur la figure (b) et au moyen du filtre défini à la page 196 :

$$F(p) = \frac{1}{1 + \tau_1 p} \frac{1}{1 + \tau_2 p} = \frac{1}{\tau_2 \tau_1 p^2 + (\tau_2 + \tau_1) p + 1} \quad (\text{C.2})$$

avec les valeurs :  $\tau_1 = 160 \mu\text{s}$  et  $\tau_2 = 55 \mu\text{s}$ . On gardera donc ces valeurs pour reproduire numériquement le comportement de la PLL (voir figures C.3 et C.4 ainsi que le chapitre 4).

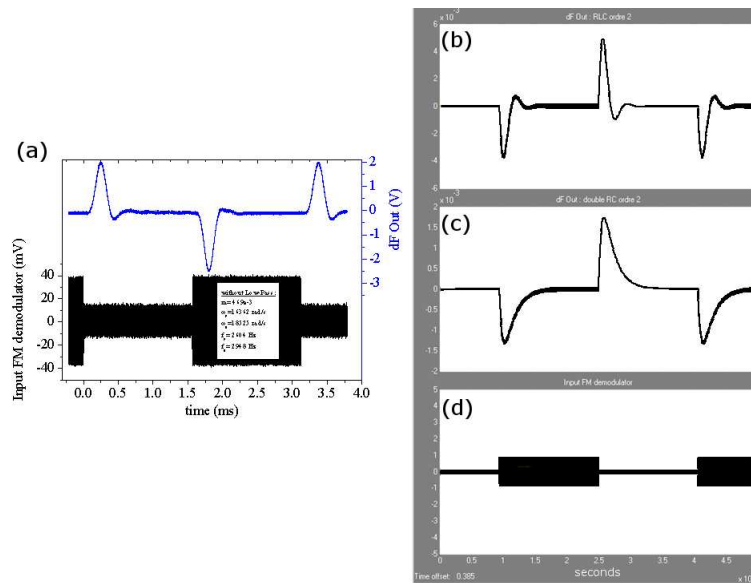


FIG. C.5 – Réponse indicielle en amplitude du filtre de la PLL. Courbes expérimentales : (a) et simulations numériques des réponses du système : (b), (c). (d) étant la simulation numérique de l’excitation du système.

## C.4 Le circuit de commande de la distance pointe-surface

Cette carte électronique fait partie de l’ADC du constructeur du microscope OMI-CRON NANOTECHNOLOGY™ [Omi]. Pour avoir la réponse indicielle de cette carte, on injecte via l’entrée nommée “ $F_{in}$ ” un créneau de fréquence 2Hz. Ce signal joue le rôle du signal d’erreur  $\Delta f - \Delta f_c$  sortant du démodulateur. Il est nommé “Output” par le fabricant. La réponse est obtenue sur le signal “ $Z_{out}$ ” qui commande l’actionneur piézoélectrique de distance pointe-surface. On voit sur la figure C.6 que la constante de temps du système isolé est de l’ordre de quelques dizaines de millisecondes. Mais en boucle fermée, en prenant en compte le gain non-linéaire de l’interaction pointe-surface (page 79), le temps de réponse est de l’ordre de la milliseconde (figures 4.17).

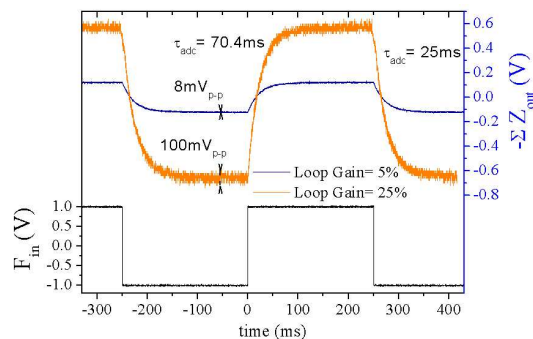


FIG. C.6 – Réponse indicielle du circuit de commande de la distance pointe-surface.





## Annexe D

# La microscopie à effet tunnel

La microscopie à force atomique (AFM) a beaucoup de points communs avec la microscopie à effet tunnel (STM) exceptée la sonde. On trouvera les explications et applications détaillées de ce microscope dans les articles de G. Binnig et H. Rohrer [BR85, BR87] qui ont réalisés le premier système en 1982 et ont reçus le prix Nobel de Physique en 1986. Dans cette annexe, nous expliquerons succinctement son fonctionnement.

### D.1 Principe

Le système est schématisé sur la figure D.1. Une pointe est montée sur un système de balayage appelé *scanner xyz* qui permet un positionnement tridimensionnel de la sonde avec une précision subatomique. La pointe tunnel est généralement un fil métallique (tungstène, platine-iridium) qui a été “nettoyé” et effilé par des méthodes d’électrolyse, d’effet de champ ou simplement en la frottant mécaniquement sur la surface. Une tension de polarisation  $V_t$  est appliquée entre la pointe et la surface conductrice à observer, et quand la distance entre la pointe et l’échantillon est de quelques angströms, un courant tunnel  $I_t$  circule entre la sonde et la surface. Ce courant est utilisé comme signal d’asservissement pour la boucle de régulation en distance pointe-surface  $z$ .

Dans le mode topographique, les images sont créées en balayant la pointe dans le plan  $xy$  et en enregistrant la position  $z$  requise pour garder  $I_t$  égal à une consigne définie par l’utilisateur. Dans le mode hauteur constante, la sonde balaie rapidement afin que l’asservissement en distance  $z$  ne puisse pas suivre les corrugations atomiques de la surface. Les atomes sont alors visibles comme modulations du courant  $I_t$  qui est enregistré en fonction des positions  $x$  et  $y$  de la pointe. Ce balayage de la pointe est habituellement créé en superposant une direction rapide de balayage (avec un signal en dents de scie ou sinusoïdal) et une direction lente de balayage (avec un signal en dents de scie) perpendiculairement. Un ordinateur contrôle les mouvements dans le plan  $xy$  en enregistrant la position  $z$  de la pointe (mode topographique) ou le courant  $I_t$  (mode hauteur constante). Ainsi, une image tridimensionnelle  $z(x, y, I_t = \text{constante})$  ou  $I_t(x, y, z = \text{constante})$  est créée.

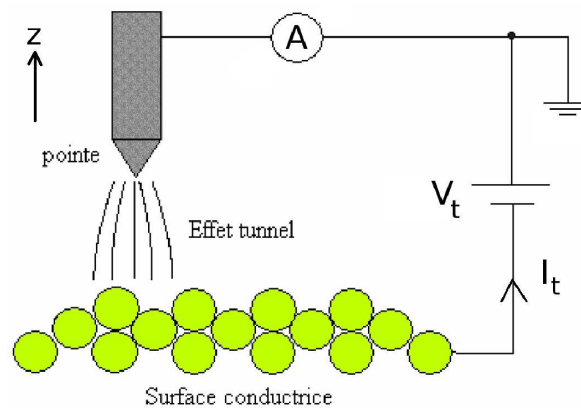


FIG. D.1 – Principe du microscope à effet tunnel (STM)

## D.2 Le courant tunnel

En STM, une pointe effilée est placée à proximité d'une surface conductrice ou semiconductrice avec une tension de polarisation  $V_t$  appliquée entre la pointe et la surface. Quand l'écart en distance est assez petit, un courant  $I_t$  circule entre ces deux électrodes. La distance typique pour obtenir cette condition est de quelques diamètres atomiques, et le transport des électrons apparaît par un effet quantique : l'effet tunnel. Quand  $|V_t|$  est petite comparée au travail de sortie  $\Phi$ , la barrière tunnel est presque rectangulaire avec une largeur correspondant à la distance  $z$  et une hauteur donnée par le travail de sortie  $\Phi$ . En accord avec la mécanique quantique, le courant tunnel est donné par :

$$I_t(z) = I_0 e^{-2\kappa_t z} \quad (\text{D.1})$$

$I_0$  est fonction de la tension de polarisation appliquée et de la densité d'états électroniques dans la pointe et l'échantillon, et :

$$\kappa_t = \frac{\sqrt{2m\Phi}}{\hbar} \quad (\text{D.2})$$

avec  $m$  la masse effective de l'électron et la constante de Planck  $\hbar$ . Pour les métaux  $\Phi \approx 4$  eV, ainsi  $\kappa_t \approx 1 \text{ \AA}^{-1}$ . Quand on augmente  $z$  d'un angström, le courant chute d'un ordre de grandeur. Cette très forte dépendance en distance est la clé de la résolution atomique obtenue en STM. La plus grande partie du courant tunnel est due à l'atome le plus proche de la surface de l'échantillon. Si le substrat est très plat, cet atome reste l'atome le plus près de la surface de l'échantillon durant le processus de balayage en  $x$  et en  $y$ . Cependant, même une pointe "aplatie", à cause d'un choc avec la surface par exemple, peut fournir la résolution atomique de la surface car c'est vraiment le dernier atome de l'apex de la pointe qui est responsable de la majorité du courant tunnel collecté.

De plus, les courants tunnels sont de l'ordre du nanoampère. La mesure de tels courants peut être faite avec un très bon rapport signal sur bruit même avec un système expérimental très simple.

Le courant tunnel étant une fonction monotone en fonction de la distance pointe-surface, il est simple d'établir une boucle d'asservissement qui contrôle cette distance

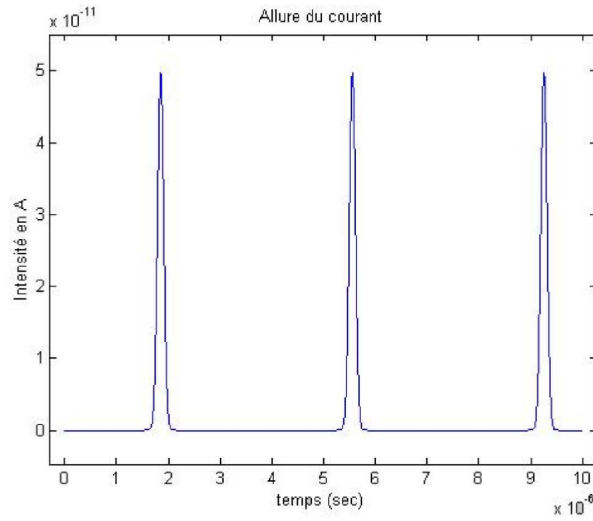


FIG. D.2 – Aspect du courant tunnel mesuré sur un cantilever oscillant à  $f_0 = 270$  kHz au dessus d'une surface métallique, d'après [Boi03]

afin de maintenir le courant constant.

### D.3 Courant tunnel moyen pour une pointe oscillante

En AFM dynamique, quand la pointe du cantilever et l'échantillon sont tous les deux conducteurs, on peut à la fois opérer en mode STM et AFM dynamique [OAO03]. Cela signifie que le courant tunnel  $I_t$  et l'écart en fréquence  $\Delta f$  peuvent être enregistrés simultanément lors du balayage de la surface. On pourra utiliser un de ces deux signaux pour asservir la distance entre la pointe et l'échantillon via le système d'asservissement adéquat. La plupart du temps, la bande passante du préamplificateur de courant tunnel est largement plus petite que la période d'oscillation  $1/f_0$  du cantilever [Gie03]. Le courant tunnel mesuré est donné par la moyenne temporelle sur une période d'oscillation de la sonde. Avec la dépendance en distance du courant donnée par l'expression D.1 et le signal d'oscillation du cantilever  $A \cos(2\pi f_0 t)$  on trouve le courant moyen [Gie03] :

$$\langle I_t(z, A) \rangle = I_0 e^{-2\kappa_t z} M_1^{1/2}(-4\kappa_t A) \quad (\text{D.3})$$

où  $M_b^a(\zeta)$  est la fonction de Kummer [AS70] et  $A$  l'amplitude d'oscillation du cantilever. Pour  $a = 1/2$  et  $b = 1$ , on obtient la fonction de Bessel modifiée d'ordre zéro tel que  $M_1^{1/2}(\zeta) = I_0(2\zeta)$ . Pour  $\kappa_t A \gg 1$ , on a :

$$\langle I_t(z, A) \rangle \cong I_t(z, 0) \frac{1}{\sqrt{4\pi\kappa_t A}} \quad (\text{D.4})$$

Pour  $A = 5$  nm et  $\kappa_t = 1 \text{ \AA}^{-1}$ , le courant tunnel moyen est environ 25 fois plus petit que la valeur du courant maximal. Parce que le bruit des mesures du courant décroît en augmentant le courant tunnel moyen, l'utilisation de petites amplitudes d'oscillation améliorera la qualité des mesures à la fois en STM et en AFM dynamique.

On notera que l'expression D.4 est une limite supérieure. Quand on utilise de grandes amplitudes ( $\kappa_t A \gg 1$ ), le courant tunnel en fonction du temps est une série de fonctions Gaussiennes espacées de la période d'oscillation  $1/f_0$  du cantilever. Plus la fréquence de résonance du cantilever est élevée, plus les variations périodiques du courant tunnel seront rapides. A cause des limitations matérielles du temps de montée et de la bande passante, les préamplificateurs de courant tunnel standards sont incapables de convertir assez rapidement ces variations du courant tunnel en tension de sortie. Ainsi, le courant moyen expérimental peut devenir plus petit que celui donné par la relation D.4.

Une des solutions pour parvenir à réguler sur les pics de courant tunnel périodiques serait de synchroniser le signal d'horloge donnée par l'oscillation du cantilever (en sortie de photodiode) avec l'échantillonnage de ces charges "tunnels" au moyen d'un circuit échantillonneur-bloqueur suivi d'un circuit intégrateur à la place du préamplificateur standard. L'avantage d'un tel système est de pouvoir réguler non plus sur le courant moyenné sur une période d'oscillation mais sur le maximum de ce courant sur une période d'oscillation. Le rapport signal sur bruit est donc augmenté. Un tel circuit est à l'étude au CEMES (voir le rapport de L. Boissard [Boi03]).

## D.4 Le modèle de Tersoff et Hamann

L'équation D.1 représente simplement les phénomènes mis en jeu dans un microscope à effet tunnel. Elle permet une approche quantitative mais ne peut pas, par exemple, servir à interpréter les images STM en résolution atomique. Bien que basé sur de nombreuses approximations, le calcul du courant tunnel développé par Tersoff et Hamann [TH85] permet la compréhension des images obtenues à cette échelle.

La jonction tunnel est tout d'abord modélisée de manière très simplifiée. La pointe est supposée sphérique à son extrémité, de rayon de courbure  $R$ , de centre  $\vec{r}_{tip}$ . La surface est considérée comme une électrode plane située à une distance  $h$  du bout de pointe.

Le courant tunnel est calculé par une approche quantique perturbative. Le formalisme de Bardeen [Bar61] est utilisé comme point de départ : les électrodes sont supposées indépendantes durant les transitions électroniques. Le calcul est réalisé dans la limite des faibles tensions et pour de très basses températures. Tersoff et Hamann modélisent aussi la structure atomique de l'apex de la pointe (extrémité) par un puit de potentiel sphérique. Les fonctions d'onde de la pointe sont de type  $s$  (moment angulaire  $l=0$ ).

Dans ces conditions, Tersoff et Hamann proposent l'expression suivante pour le courant tunnel :

$$I_t = \frac{32\pi^3 \hbar^3 q_e^2}{(2m)^2} R^2 e^{2\kappa_t R} D_p(E_f) V_t \rho(\vec{r}_{tip}, E_f) \quad (D.5)$$

où  $D_p(E_f)$  est la densité totale d'états électroniques au niveau de Fermi de la pointe,  $q_e$  la charge élémentaire et  $\rho(\vec{r}_{tip}, E_f)$  est la densité locale d'états (LDOS) de la surface au point  $\vec{r}_{tip}$  et au niveau de Fermi  $E_f$ .

Le courant tunnel dépend donc des densités d'états électroniques au niveau de Fermi de la surface. Ainsi à courant constant, la pointe suit les courbes d'égale densité d'états électronique au niveau de Fermi de la surface.

**Les états électroniques sondés de la surface dépendent de la tension de polarisation.**

Lorsque la surface est polarisée négativement par rapport à la pointe, les électrons vont des états pleins de la surface (autour du niveau de Fermi) vers les états vides de la pointe. Lorsqu'elle est polarisée positivement par rapport à la pointe, les électrons vont des états occupés de la pointe (autour du niveau de Fermi) vers les états inoccupés de la surface.

Ce résultat est très important pour l'interprétation des images en courant tunnel [Car00]. Une pointe supposée monoatomique à son extrémité peut donner une image de l'arrangement cristallographique de la surface. Les atomes de la surface apparaissent comme des bosses ou des lacunes en fonction de la modification qu'ils imposent à la densité électronique du niveau de Fermi utilisé. Au dessus de l'échelle atomique, les variations locales sont moyennées et seule la topographie de la surface est enregistrée.

Une autre utilisation de ce résultat est l'étude des densités d'états locales de la surface par spectroscopie tunnel. La pointe étant maintenue à une position fixe au dessus de la surface, les variations du courant tunnel lorsque la tension de polarisation varie sont enregistrées. Ainsi, le signal  $\frac{dI_t}{dV_t}$  est directement proportionnel aux densités d'états électroniques locales.

# Table des matières

<b>Déclaration</b>	<b>ii</b>
<b>Remerciements</b>	<b>iii</b>
<b>1 Introduction générale</b>	<b>2</b>
<b>2 Présentation du microscope</b>	<b>9</b>
2.1 Le microscope : dispositif expérimental et schémas de blocs . . . . .	9
2.1.1 Dispositif expérimental . . . . .	9
2.1.2 Système de contrôle du microscope AFM . . . . .	11
2.1.3 Schéma de blocs . . . . .	13
2.2 Les forces de surface . . . . .	16
2.2.1 Forces électrostatiques . . . . .	18
2.2.2 Forces de dispersion . . . . .	21
2.2.3 Forces chimiques . . . . .	27
2.2.4 Forces répulsives . . . . .	28
<b>3 Eléments d'Automatique</b>	<b>32</b>
3.1 Automatique linéaire . . . . .	32
3.1.1 Cas général . . . . .	33
3.1.2 Un exemple pédagogique : le circuit RLC . . . . .	36
3.2 Automatique non linéaire . . . . .	49
3.2.1 Conventions et méthode . . . . .	50
3.2.2 Cas pratique : Interaction sonde-surface . . . . .	52
3.2.3 Stabilité, phénomène du saut . . . . .	60
<b>4 Automatique du microscope</b>	<b>65</b>
4.1 La machine AFM dynamique du point de vue automatique . . . . .	65
4.1.1 Considérations fréquentielles . . . . .	66
4.1.2 Evolution de la fréquence de résonance en fonction du réglage du déphaseur . . . . .	68
4.1.3 Le Contrôle Automatique de Gain (AGC) . . . . .	70
4.1.4 La Boucle à Verrouillage de Phase (PLL) : entretien de l'oscillation, mesure de la fréquence . . . . .	74
4.1.5 Le Contrôle Automatique de Distance (ADC) . . . . .	79
4.2 Les Bruits . . . . .	84
4.2.1 Sources de bruits . . . . .	84

4.2.2	Bruits dans le Contrôle Automatique de Gain (AGC) . . . . .	86
4.2.3	Bruit en sortie du démodulateur de fréquence . . . . .	91
4.2.4	Bruit en distance dans le Contrôle Automatique de Distance (ADC) . . . . .	93
4.3	L'AFM virtuel . . . . .	94
4.3.1	Validation de l'outil numérique . . . . .	95
4.3.2	Calcul d'images en Non-Contact AFM . . . . .	98
<b>5</b>	<b>Etudes expérimentales de l'effet non linéaire de l'interaction de surface</b>	<b>103</b>
5.1	Système expérimental . . . . .	103
5.2	Courbes de résonance sur une surface d'alumine . . . . .	104
5.2.1	Exploitation des courbes de résonance . . . . .	107
5.2.2	Courbes d'approche-retrait en mode AM-AFM et calibration de l'amplitude . . . . .	115
5.2.3	Courbes d'approche en mode AFM Non-Contact . . . . .	116
5.2.4	Evaluation de la constante de Hamaker . . . . .	117
5.3	Courbes de résonance sur une surface de cuivre . . . . .	118
5.3.1	Résultats . . . . .	119
5.3.2	Le rôle de l'oxyde de pointe . . . . .	122
<b>6</b>	<b>Etudes expérimentales sur une surface de molybdénite</b>	<b>129</b>
6.1	Le système . . . . .	130
6.1.1	La surface de MoS <sub>2</sub> . . . . .	130
6.1.2	Clusters d'or . . . . .	131
6.1.3	Molécules d'octanedithiol . . . . .	132
6.2	Régulation sur le courant tunnel . . . . .	133
6.2.1	STM statique . . . . .	133
6.2.2	STM oscillant . . . . .	135
6.3	Régulation sur le signal de dissipation . . . . .	138
6.4	Régulation sur le signal d'écart en fréquence . . . . .	142
6.5	Phénomènes de gradient d'écart en fréquence sur les clusters d'or . . . . .	144
6.5.1	Modélisation . . . . .	146
6.5.2	Méthodes numériques . . . . .	148
6.5.3	Résultats . . . . .	149
<b>7</b>	<b>Conclusion générale</b>	<b>155</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>159</b>
	<b>Annexes</b>	<b>173</b>
<b>A</b>	<b>Forces de dispersion et constante de Hamaker</b>	<b>173</b>
A.1	Traitement général des forces de dispersion . . . . .	173
A.1.1	Energie de dispersion : effet de l'écrantage dû à la polarisation induite . . . . .	173
A.1.2	Exemples d'utilisation de l'équation universelle de dispersion . . . . .	175
A.2	Constante de Hamaker . . . . .	179



<b>B</b>	<b>Dispositifs et détails expérimentaux</b>	<b>183</b>
B.1	Courbes de résonance . . . . .	183
B.2	Filtre Passe-Bande en sortie de photodiode . . . . .	185
B.3	Évaluer le rayon effectif de la pointe . . . . .	186
B.3.1	Cas des petites amplitudes d'oscillation . . . . .	187
B.3.2	Pour une amplitude d'oscillation quelconque . . . . .	187
B.3.3	Résultats expérimentaux . . . . .	188
B.4	Une méthode pour évaluer la raideur du cantilever . . . . .	189
B.5	Calibration du système de détection optique . . . . .	190
<b>C</b>	<b>L'AFM virtuel : détails</b>	<b>193</b>
C.1	La détection d'enveloppe . . . . .	193
C.2	Le déphaseur . . . . .	194
C.3	La PLL . . . . .	195
C.3.1	Réponse du démodulateur . . . . .	195
C.3.2	Réponse du filtre passe-bas du démodulateur . . . . .	196
C.4	Le circuit de commande de la distance pointe-surface . . . . .	197
<b>D</b>	<b>La microscopie à effet tunnel</b>	<b>199</b>
D.1	Principe . . . . .	199
D.2	Le courant tunnel . . . . .	200
D.3	Courant tunnel moyen pour une pointe oscillante . . . . .	201
D.4	Le modèle de Tersoff et Hamann . . . . .	202
	<b>Résumé</b>	<b>216</b>
	<b>Abstract</b>	<b>217</b>
	<b>Curriculum Vitae</b>	<b>219</b>

# Table des figures

1.1	Première image de résolution atomique en AFM Non-Contact. Les dimensions de cette image en topographie sont $(27 \times 19.5) \text{ nm}^2$ . Les paramètres de la sonde oscillante sont : $f_0 = 114.224 \text{ kHz}$ , $\Delta f_c = -70 \text{ Hz}$ , $k_c = 17 \text{ N.m}^{-1}$ , $A = 34 \text{ nm}$ . Cette image en topographie montre la reconstruction $7 \times 7$ du Silicium(111). D'après [Gie95]. . . . .	4
1.2	Manipulation d'adatoms Sn (en surbrillance) en AFM Non-Contact sur une surface de Ge(111) – c(2x8) à température ambiante. Le motif atomique créé représente les lettres du symbole chimique de l'adatome. Les dimensions de cette image en topographie sont $(7.7 \times 7.7) \text{ nm}^2$ . Les paramètres de la sonde oscillante sont : $f_0 = 160.45 \text{ kHz}$ , $\Delta f_c = -4.6 \text{ Hz}$ , $k_c = 29.5 \text{ N.m}^{-1}$ , $A = 15.7 \text{ nm}$ . D'après [OSA <sup>+</sup> 05]. . . . .	5
2.1	Le bâti ultra vide permettant de préparer et d'observer les échantillons. . . . .	9
2.2	. . . . .	10
2.3	Schéma général du système régulé. La photodiode est utilisée en mode "Force normale". . . . .	13
2.4	Blocs électroniques de contrôle du microscope. Nous utilisons l'AGC et la PLL de la société NANOSURF <sup>TM</sup> [Nan]. . . . .	13
2.5	Schéma de blocs du système en configuration AFM mode Non-Contact. . . . .	14
2.6	Schéma de blocs du Contrôle Automatique de Gain (AGC). . . . .	14
2.7	Schéma de blocs du Contrôle Automatique de Distance(ADC). . . . .	15
2.8	Schéma non exhaustif des interactions pointes-surfaces en fonction de la distance. . . . .	17
2.9	Résolution atomique sur KBr(001) en mode Non-Contact. $f_0 = 277.8 \text{ kHz}$ , $V_t = 0$ Volt, $A = 8 \text{ nm}$ . L'échantillon a été clivé à l'air, puis recuit pendant 2 heures à $150^\circ\text{C}$ sous ultra vide avant d'être observé. . . . .	17
2.10	Pointe AFM et son modèle équivalent électrostatique sphère + ligne chargée. . . . .	19
2.11	Le modèle équivalent ligne chargée dans la théorie des forces images. . . . .	20
2.12	Le gecko du désert utilise la forte densité des poils micrométriques de ses pattes afin de maximiser les forces de dispersion pour vaincre la pesanteur. D'après [ASL <sup>+</sup> 02]. . . . .	21
2.13	Interaction entre un molécule et une boule. . . . .	25
2.14	Modèles de Hamaker. . . . .	26
2.15	Modèles de contact macroscopiques. . . . .	28
3.1	Fonction linéaire $L$ représentant le système. . . . .	33
3.2	Système bouclé à rétroaction à gain unitaire. . . . .	34
3.3	Système bouclé à rétroaction avec un gain $R$ . . . . .	35
3.4	Système bouclé équivalent au schéma fonctionnel 3.2. . . . .	35

3.5	Le système $L$ : un circuit RLC avec un gain d'entrée $A$ . . . . .	36
3.6	Evolution temporelle du gain d'entrée $A$ , du circuit de la figure 3.5, due à un échauffement des composants de l'étage d'entrée. . . . .	37
3.7	Schéma de blocs du circuit RLC en boucle ouverte. Sur ce schéma SIMULINK la pulsation $\omega_0$ est notée $w_0$ . . . . .	39
3.8	Commande (en trait plein noir) et réponse (en trait plein rouge) du système $L$ en boucle ouverte. . . . .	39
3.9	Schéma de blocs du circuit RLC en boucle fermée avec un gain Proportionnel. . . . .	40
3.10	Réponses indicielles du système en boucle ouverte (trait plein rouge) et en boucle fermée avec deux valeurs différentes pour le gain $K_P$ (trait pointillé bleu et trait ligne vert). . . . .	41
3.11	Schéma de blocs du circuit RLC en boucle fermée avec un gain Proportionnel et Intégrateur. . . . .	42
3.12	Réponses indicielles du système boucle fermée avec trois valeurs différentes pour le gain $K_I$ en gardant constant le gain $K_P = 3$ . . . . .	42
3.13	Réponses indicielles du système boucle fermée avec un gain $K_I$ constant. $K_P$ est non nul sur la courbe rouge pointillée. $K_P$ est nul sur la courbe bleue en traits. . . . .	43
3.14	Vérification numérique de la relation 3.15 pour $K_P = 3$ . . . . .	45
3.15	Vérification numérique de la relation 3.15 pour $K_P$ nul. . . . .	45
3.16	Exemple de diagramme de Nyquist. . . . .	47
3.17	Diagramme de Nyquist de la fonction de transfert harmonique $R(j\omega)L(j\omega)$ du système de la figure 3.11. $K_P$ est constant et égal à 3. Les quatre lieux correspondent à quatre valeurs du gain Intégrateur $K_I$ . . . . .	48
3.18	Comportement du système face à une perturbation du gain $A$ (Cf. figure 3.6) d'entrée du circuit RLC. La consigne désirée est en traits rouges. Le système en boucle ouverte est en traits verts. Le système asservi avec le bloc de commande $R = \left(K_P + \frac{K_I}{p}\right)$ est en trait plein bleu. . . . .	49
3.19	Les blocs linéaires. . . . .	50
3.20	Les blocs non linéaires. . . . .	50
3.21	Système asservi comportant un bloc non linéaire noté $N$ . . . . .	51
3.22	Cantilever d'AFM en interaction avec une surface. . . . .	52
3.23	Schéma fonctionnel du cantilever d'AFM en interaction avec une surface. . . . .	53
3.24	Argument $\varphi(\omega)$ de la fonction harmonique 3.26 pour trois distances $D$ pointe-surface. $s_1=5\text{nm}$ , $H=1\text{eV}$ , $R=10\text{nm}$ , $k_c=30\text{N/m}$ , $Q=40000$ . . . . .	55
3.25	Evolution de la courbe de résonance (a) et de phase (b) pour trois différentes distances pointe-surface. $A_0=5\text{nm}$ , $H=1\text{eV}$ , $R=10\text{nm}$ , $k_c=30\text{N/m}$ , $Q=40000$ . . . . .	56
3.26	L'effet de retard de l'interaction entre l'excitation $s(t)$ et la réponse $nl(t)$ induit un effet d'hystérésis. . . . .	57
3.27	Courbe de résonance extraite de la figure 3.25(a). Les deux points de saut $J_1$ et $J_2$ apparaissent aux fréquences $f_{J_1}$ et $f_{J_2}$ . . . . .	60
3.28	Evolution de l'amplitude $s_1$ de l'oscillation du cantilever en fonction de l'amplitude de forçage $w_0$ pour deux fréquences $f$ constante d'excitation : (a) $f = f_0 = 270\text{kHz}$ qui est la fréquence de résonance de l'oscillateur libre, (b) $f = f_0 - 12\text{Hz}$ . . . . .	61
3.29	Diagramme de Nyquist du lieu $\frac{1}{C}$ . Ce lieu traverse les contours $\Gamma_1$ et $\Gamma_2$ . Cela prouve l'existence du phénomène de saut d'amplitude. . . . .	62

4.1	Diagramme fréquentiel des constantes de temps de la machine AFM. . . . .	66
4.2	Rajout d'un déphaseur sur la sonde. $N$ représente toujours l'interaction de surface avec le cantilever. . . . .	67
4.3	Boucles d'asservissement en amplitude et d'oscillation auto-entretenu. . . . .	67
4.4	Fréquence de résonance du système sans interaction de surface ( $\Psi = 0$ et $\Xi = 1$ ) en fonction du déphasage $\theta$ . Paramètres : $\omega_0 = 2\pi 60400 \text{ rad.s}^{-1}$ , $Q_c = 10000$ . . . . .	69
4.5	Diagrammes de Nyquist du système en fonction du déphasage $\theta$ . Paramètres : $\omega_0 = 2\pi 60400 \text{ rad.s}^{-1}$ , $Q_c = 10000$ , $k_c = 6 \text{ N.m}^{-1}$ . . . . .	69
4.6	Modélisation du Contrôle Automatique de Gain (AGC). . . . .	70
4.7	Fonction harmonique $\frac{w_l}{e_0} = \frac{G_{AGC}}{1+G_{AGC}L}$ (Le signal d'entretien d'oscillation est parfois appelé "Damping"). Mêmes paramètres que la figure 4.5 avec $\tau_D = 2 \text{ ms}$ . . . . .	72
4.8	Diagramme de Nyquist de la fonction harmonique boucle ouverte $G_{AGC}(j\Omega)L(j\Omega)$ . Mêmes paramètres que la figure 4.5 avec $\tau_D = 2 \text{ ms}$ et $K_P = 0.1 \text{ N.m}^{-1}$ . La direction des fréquences croissantes est indiquée sur les trois courbes. . . . .	74
4.9	Boucles d'asservissement en amplitude et d'oscillation forcée avec système PLL. . . . .	75
4.10	Schéma fonctionnel d'une boucle à verrouillage de phase. . . . .	76
4.11	Modèles linéaires équivalents : (a) d'une Boucle à verrouillage de Phase, (b) d'une Boucle à verrouillage de Fréquence. . . . .	76
4.12	Modèle linéaire simplifié de la Boucle à verrouillage de Fréquence 4.11(b). . . . .	78
4.13	Diagrammes de Bode (a) et réponses indicielles (b) de la fonction harmonique boucle fermée $H_{BF}(\omega)$ de la PLL. . . . .	79
4.14	Boucle d'asservissement en distance. . . . .	80
4.15	Modélisation du Contrôle Automatique de Distance (ADC). . . . .	80
4.16	Domaines de stabilité de l'asservissement en Distance en fonction de $K_P$ , $K_I$ , $K_v$ (voir relation 4.19) et de la distance $D$ cantilever-surface. . . . .	82
4.17	Réponses indicielles de l'asservissement en Distance en fonction de $\Delta f_c$ . . . . .	83
4.18	Schématization des bruits de force $w_p$ et d'amplitude $s_p$ du circuit de régulation d'amplitude. . . . .	87
4.19	Bruits de force dus : (a) au bruit thermique de force $w_p$ du cantilever ( $T = 300\text{K}$ ) et (b) aux bruits d'amplitude $s_p$ pour $K_I$ nul (courbes noires) et $K_I = 10 \text{ N.m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ (courbes en traits discontinus rouges). Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$ et $0.4 \text{ N.m}^{-1}$ . . . . .	88
4.20	Bruits de force dus au bruit thermique de force $w_p$ du cantilever ( $T = 300\text{K}$ ) (courbes en traits discontinus bleus) et aux bruits d'amplitude $s_p$ (courbes noires) pour $K_I = 1 \text{ N.m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ . Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$ et $0.4 \text{ N.m}^{-1}$ . . . . .	88
4.21	Mesure expérimentale du spectre de bruits de force sur le signal d'erreur ("Damping Signal") de l'AGC (Nanosurf <sup>TM</sup> ) pour différentes valeurs de $K_P$ à température ambiante. $K_I$ étant défini a une valeur fixe par le constructeur et non-connue par l'utilisateur. Les paramètres expérimentaux de la sonde sont : $f_c = 260 \text{ kHz}$ , $Q_c = 39600$ , $k_c = 37 \text{ N.m}^{-1}$ . . . . .	89
4.22	Bruit d'amplitude dû au seul bruit thermique de force $w_p$ du cantilever pour $K_I$ nul (courbes noires) et $K_I = 10 \text{ N.m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ (courbes en traits discontinus rouges). Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$ et $0.4 \text{ N.m}^{-1}$ . . . . .	90

4.23	Bruits d'amplitude dus au bruit thermique de force $w_p$ du cantilever ( $T = 300\text{K}$ ) (courbes bleues) et aux bruits d'amplitude $s_p$ (ligne en traits discontinus rouges) pour $K_I = 1\text{N.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ . Les courbes (I), (II), (III), (IV) et (V) correspondent respectivement aux valeurs de $K_P = 0.01, 0.1, 0.2, 0.3$ et $0.4\text{N.m}^{-1}$ . . . . .	90
4.24	Diagramme tournant dans l'espace $\omega_0$ quand la PLL est verrouillée (voir figure 4.11(a)). . . . .	92
4.25	Schématisation du bruit de phase (ou de fréquence) $\phi_P$ sur le circuit de régulation de distance. . . . .	93
4.26	Module de la fonction harmonique $\sqrt{\frac{S_D}{\phi_{\delta f}}}$ de l'ADC pour quatre distances $D$ pointe-cantilever. (a) Distance infinie : pas d'interaction pointe-surface, (b) $D = 5\text{nm}$ , (c) $D = 2\text{nm}$ et (d) $D = 0.5\text{nm}$ . Paramètres de l'ADC : $K_P = 7.10^{-11}\text{m.s}$ , $K_I = 50.10^{-9}\text{m}$ , $\tau_{Piezo} = 70\text{ms}$ . Paramètres de l'interaction : interaction de van der Waals (relation 3.22) avec un rayon de $20\text{nm}$ , une amplitude $s_1 = 5\text{nm}$ et $H = 1\text{eV}$ . $K_V = 4200\text{rad.s}^{-1}$ pour la PLL. . . . .	94
4.27	Réponses (a) expérimentales et (b) numériques de l'AFM en mode Non-Contact. (a) Gain de boucle = 20 % (traits discontinus rouges) et gain de boucle = 2 % (trait plein noir). (b) $K_P = 7.10^{-11}\text{m.s}$ et $K_I = 50.10^{-9}\text{m}$ (traits discontinus rouges), $K_P = 7.10^{-11}\text{m.s}$ et $K_I = 5.10^{-9}\text{m}$ (trait plein noir). Les forces électrostatiques sont compensées suivant la référence [GBL <sup>+</sup> 00]. . . . .	96
4.28	Image calculée à hauteur constante sur une surface de $\text{CaF}_2(111)$ . Vitesse de balayage $V_{scan} = 10\text{nm.s}^{-1}$ . . . . .	97
4.29	Profil à hauteur constante sur $\text{CaF}_2(111)$ : (a) flèche en pointillés sur la figure 4.28, (b) calculé en utilisant l'approximation statique. . . . .	97
4.30	Images calculées avec le champ de force $\text{CaF}_2(111)$ en régulation en distance t.q. $\Delta f = -84\text{Hz}$ . (a) Image en topographie $D$ , (b) image en écart en fréquence $ \Delta f $ . Les flèches en traits discontinus indiquent la direction de balayage rapide. Les motifs de symétrie trois surperposés sur les sites atomiques sont la conséquence de singularités non-physique dans le champ de force $\text{CaF}_2(111)$ [BFR <sup>+</sup> 01]. . . . .	98
4.31	(a) Image en topographie $D$ , (b) image en écart en fréquence $ \Delta f $ , avec tous les bruits. $T = 300\text{K}$ . . . . .	99
4.32	Image expérimentale en écart en fréquence $ \Delta f $ . $\Delta f = -146\text{Hz}$ et $A = 35\text{nm}$ . La flèche indique la direction de balayage rapide. D'après [FBS <sup>+</sup> 02] . . . . .	100
5.1	Système expérimental permettant l'étude de la résonance du cantilever. . . . .	104
5.2	Image AFM Non-Contact ( $2000 \times 1000$ ) $\text{nm}^2$ de $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ utilisée pour l'étude de résonance. $\Delta f_c = -30\text{Hz}$ . . . . .	105
5.3	Courbe $\Delta f(U_D)$ sur la surface d'alumine de la figure 5.2. . . . .	105
5.4	Courbes de résonance (amplitude et phase) pour une distance relative $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 200\text{nm}$ au-dessus de l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . Les courbes en cercles violets correspondent aux meilleurs ajustements analytiques. . . . .	106
5.5	Spectre de courbes de résonance pour une distance relative $\Delta D_{-120\text{Hz}}$ allant de $120\text{nm}$ à $0\text{nm}$ , au-dessus de l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . $f_0$ , égale à $264598.9\text{Hz}$ , étant la fréquence de résonance du cantilever libre. . . . .	106
5.6	Courbes de résonance (amplitude et phase), en noir, pour une distance relative $\Delta D_{-120\text{Hz}} = 14\text{nm}$ au-dessus de l'échantillon d' $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . Les courbes (rouge et bleue) en traits discontinus correspondent aux meilleurs ajustements analytiques. . . . .	107

5.7	Courbes de résonance en amplitude et en phase pour (a) $\Delta D_{-120Hz} = 12$ nm (deux ensembles de courbes expérimentales), (b) $\Delta D_{-120Hz} = 6$ nm et (c) $\Delta D_{-120Hz} = 0$ nm. Les courbes en traits discontinus correspondent au meilleur ajustement obtenu à partir des équations 3.34, 3.35 et 5.1 (voir texte). . . . .	111
5.8	Contribution des interactions courte portée sur l'écart $\delta f(A)$ entre les courbes d'amplitude expérimentales et analytiques. Le motif qui apparaît à gauche du graphe est dû à la dégradation du rapport signal sur bruit pour les petites amplitudes. Les déviations par rapport à $\delta f = 0$ Hz ne sont pas visibles à l'échelle de cette figure pour les distances relatives $\Delta D_{-120Hz} = 16, 18$ et $20$ nm. . . . .	111
5.9	Evolution de la puissance dissipée par le cantilever en fonction de la distance relative $\Delta D_{-120Hz}$ . La puissance d'entretien de l'oscillation du cantilever loin de la surface a été soustraite. Ces courbes montrent que la dissipation minimale mesurable avec cette technique est inférieure à $5 \cdot 10^{-15}$ Watt soit environ $0.1$ eV/cycle. . . . .	113
5.10	Courbes ronds ouverts : amplitude (a) et phase (b) prélevées à la fréquence $f_{AM}$ sur le panorama de courbes de résonance de la figure 5.5. Courbe triangles ouverts : amplitude maximum (c), également prélevées sur le panorama de courbes de résonance de la figure 5.5, en fonction de la distance relative $\Delta D_{-120Hz}$ au-dessus de l'échantillon d' $Al_2O_3(0001)$ . . . . .	115
5.11	Courbes $\Delta f(D)$ et $A_{exc}(D)$ obtenues sur l'échantillon d' $Al_2O_3(0001)$ . L'amplitude d'oscillation loin de la surface est $A_0 = 22.8$ nm. La courbe cercles ouverts correspond au meilleur ajustement obtenu dans le domaine F d'après l'expression 5.4. L'origine de l'échelle horizontale en distance $D$ a été positionnée grâce aux résultats de l'ajustement analytique. Le trait vertical en traits discontinus à $D = D_c$ sépare le domaine C du domaine F. Dans le domaine F, la distance pointe-surface la plus petite peut être déduite de $D$ soustrait de $A_0 = 22.8$ nm. . . . .	116
5.12	Image AFM Non-Contact ( $500 \times 500$ ) nm <sup>2</sup> de Cu(100) utilisée pour l'étude de résonance. $\Delta f_c = -10$ Hz. . . . .	118
5.13	Courbes de résonance sur la surface Cu(100) pour différentes distances relatives $\Delta D_{-120Hz}$ (a). La pointe n'a subi aucun traitement. Le temps d'acquisition d'une courbe est de 30 secondes. (b) Les deux branches correspondant à un balayage en fréquence croissant puis décroissant sont indiquées par les flèches. L'ajustement analytique est tracé en traits discontinus. . . . .	119
5.14	Courbes I(V) acquises en mode STM : (a) pour la pointe oxydée (paramètres : $I_t = 70$ pA, $V_t = +1.5$ Volt ), (b) pour la pointe désoxydée (paramètres : $I_t = 90$ pA, $V_t = +0.7$ Volt ). . . . .	120
5.15	Courbes de résonance sur la surface Cu(100) pour différentes distances relatives $\Delta D_{-120Hz}$ (a) . La pointe a subi une désoxydation par effet de champ électronique. Le temps d'acquisition d'une courbe est de 30 secondes. (b) Les deux branches correspondant à un balayage en fréquence croissant puis décroissant sont indiquées par les flèches. L'ajustement analytique est tracé en traits discontinus. . . . .	121

5.16	Courbes ronds ouverts : amplitude (a) et phase (b) prélevées à la fréquence $f_{AM}$ (voir détails au paragraphe 5.2.2) . Courbe triangles ouverts : amplitude maximum (c) prélevées sur les différentes courbes de résonance (voir détails au paragraphe 5.2.2) à la résonance $f_0$ en fonction de la distance relative $\Delta D_{-120Hz}$ au-dessus de l'échantillon de cuivre Cu(100). . . . .	121
5.17	(a) Modèle du système pointe-surface. (b) Représentation électrique du même système. . . . .	122
5.18	Evolution de la charge $Q(t)$ dans les conditions d'acquisition des courbes de résonance avec temps de balayage en fréquence de 30 secondes. Trait plein : $\tau_{SiO_2} = 1$ seconde. Traits discontinus : $\tau_{SiO_2} = 100$ millisecondes. Trait pointillé : $\tau_{SiO_2} = 10$ millisecondes. . . . .	125
5.19	Evolution de la charge $Q(t)$ dans les conditions d'acquisition des courbes $\Delta f(U_D)$ en mode Non-Contact avec temps de balayage en tension de 20 millisecondes. Trait plein : $\tau_{SiO_2} = 1$ seconde. Traits discontinus : $\tau_{SiO_2} = 100$ millisecondes. Trait pointillé : $\tau_{SiO_2} = 10$ millisecondes. . . . .	126
6.1	Schéma "naïf" du système élaboré. . . . .	129
6.2	Image de la surface de MoS <sub>2</sub> nue, après clivage et recuit. Vue générale de gauche : image NCAFM $\Delta f = -18$ Hz, $A = 8.4$ nm. Agrandissement STM (statique) de droite (avec la même pointe AFM) : $I_t = 65$ pA, $V_t = +1$ Volt. . . . .	131
6.3	Surface de MoS <sub>2</sub> après dépôt d'or. NCAFM $\Delta f = -90$ Hz, $A = 7.3$ nm, (200x200) nm <sup>2</sup> . . . . .	132
6.4	Molécule d'octanedithiol [ $HS(CH_2)_8SH$ ]. S : orange, C : bleu, H : blanc. . . . .	132
6.5	Image STM (pointe en tungstène) après le dépôt moléculaire sur le système : $I_t = 20$ pA, $V_t = +2$ Volts. . . . .	133
6.6	Image STM (pointe en tungstène) après le dépôt moléculaire sur le système : $I_t = 25$ pA, $V_t = +2$ Volts. . . . .	134
6.7	Image STM (pointe AFM) après le dépôt moléculaire sur le système : $I_t = 30$ pA, $V_t = -1$ Volt. . . . .	134
6.8	Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système : $I_t = 20$ pA, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.5$ nm. (a) image en topographie, (b) image en $\Delta f$ , (c) image en dissipation. . . . .	135
6.9	Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système : $I_t = 20$ pA, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.5$ nm. (a) image en topographie, (b) image en $\Delta f$ , (c) image en dissipation. . . . .	136
6.10	Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système : $I_t = 22$ pA, $V_t = -1$ Volt au dessus de la flèche verte, $V_t = -2$ Volts au dessous de la flèche verte, $A = 3.5$ nm. Images en topographie (a) balayage rapide vers la droite (b) balayage rapide vers la gauche, (c) image en dissipation, (d) image en $\Delta f$ . . . . .	137
6.11	Image STM oscillant après le dépôt moléculaire sur le système : $I_t = 25$ pA, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.5$ nm. (a) image en dissipation avec l'agrandissement (a'), (b) image en $\Delta f$ avec l'agrandissement (b'), (c) image en topographie. Flèches vertes : localisation de molécules . . . . .	137
6.12	Image en dissipation en mode STM oscillant : $I_t = 20$ pA, $V_t = -1.9$ Volt, $A = 9.0$ nm. On constate un saut en dissipation vraisemblablement dû à une évolution soudaine de l'apex. . . . .	138

6.13	Régulation en dissipation sur le système : $Damp = 177$ meV/cycle, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.2$ nm. (a) image en $\Delta f$ avec l'agrandissement (a') on trouve un contraste de 7.3 Hz entre les extrema de cette image. (b) image en dissipation. . . . .	139
6.14	$Damp = 177$ meV/cycle, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.5$ nm. (a) image en topographie, (b) image en $\Delta f$ , (c) image en dissipation. . . . .	140
6.15	$Damp = 180$ meV/cycle, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.5$ nm. (a) image en topographie avec agrandissement du cluster d'or, (b) image en $\Delta f$ , (c) image en dissipation. . . . .	140
6.16	$Damp = 200$ meV/cycle, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.5$ nm. (a) image en topographie avec agrandissement d'une zone de molécules, (b) image en dissipation, (c) image en $\Delta f$ . . . . .	141
6.17	Amélioration de la résolution en trois étapes. (I) mode NCAFM $\Delta f_c = -80$ Hz, (II) régulation sur $Damp = 210$ meV/cycles, (III) mode NCAFM $\Delta f_c = -120$ Hz. $V_t = -1$ Volt, $A = 4.2$ nm. . . . .	142
6.18	Image NCAFM avant le dépôt moléculaire : $\Delta f_c = -40$ Hz, $V_t = -1.1$ Volt, $A = 4.3$ nm. (a) image en topographie, avec agrandissement (b), d'une zone de petits clusters d'or. . . . .	143
6.19	Image NCAFM après le dépôt moléculaire : $\Delta f_c = -170$ Hz, $V_t = -1$ Volt, $A = 3.5$ nm. (a) image en topographie avec agrandissement d'une zone moléculaire, (b) image en dissipation (le profil indiqué par la flèche verte se trouve sur la figure 6.20), (c) image en $\Delta f$ . . . . .	144
6.20	Profil de l'image en dissipation de la figure 6.19(b). . . . .	144
6.21	Image en $\Delta f$ en mode STM oscillant : $I_t = 20$ pA, $V_t = -2$ Volt, $A = 3.5$ nm. . . . .	145
6.22	Modélisation du cluster d'or sous forme de petits tétraèdres (vue de dessus). . . . .	146
6.23	Modélisation de l'interaction entre la pointe, représentée par une boule de rayon $b_1$ , et les éléments finis $dV_j$ composant le cluster . La surface est traitée avec l'interaction de van der Waals sphère-plan [Isr92]. . . . .	147
6.24	Distribution en volume des éléments finis composant le cluster d'or de la figure 6.22. . . . .	148
6.25	Résultats de simulation de l'écart en fréquence $\Delta f$ sur un cluster. Le profil est indiqué par la flèche en traits discontinus rouges sur la figure 6.22. $f_0 = 270$ kHz, $A_0 = 5$ nm, $k_c = 30$ N.m <sup>-1</sup> . . . . .	150
6.26	Résultat de simulation de l'écart en fréquence $\Delta f$ sur un cluster dont l'étendue spatiale vraie est indiquée en traits discontinus rouges sur la figure. Mêmes paramètres que la figure 6.25 avec $b_1 = 3.9$ nm, $h = 7$ nm, $H = 2$ eV et $a = 2$ nm. . . . .	150
6.27	Résultats de simulation de l'écart en fréquence $\Delta f$ sur deux clusters pour différentes distances base à base. (a) distance de 6.5 nm, (b) distance de 3.5 nm, (c) les bases des deux clusters se touchent et (d) les clusters ont fusionné. Mêmes paramètres que la figure 6.26. . . . .	151
6.28	Manipulations de molécules sur TiO <sub>2</sub> (110) (réduit) en STM statique. (a) la molécule (A. Gourdon (CEMES-CNRS, Toulouse)), (b) disposition de la molécule sur la surface de TiO <sub>2</sub> (110), (c) $I_t = 20$ pA, $V_t = +1.2$ Volt, (15x15) nm <sup>2</sup> , (c) mêmes paramètres (25x20) nm <sup>2</sup> . . . . .	153
7.1	Projets de molécules (A. Gourdon (CEMES-CNRS, Toulouse)) observables et manipulables en AFM dynamique sur une surface de TiO <sub>2</sub> (110). . . . .	157
A.1	Interaction entre un dipôle dans un milieu A et une surface B. . . . .	178



B.1	Le montage électronique permettant d'obtenir les courbes de résonance en amplitude et en phase, simultanément, de l'AFM non-contact en Ultra-Vide. . . . .	183
B.2	Schéma du montage électronique - On y distingue les différents modules traitant le signal venant de la photodiode quatre quadrants de l'AFM. . . . .	184
B.3	Exemple de courbe de résonance loin de toute interaction avec la surface. On y définit le facteur de qualité à l'amplitude $A_{max}/\sqrt{2}$ . . . . .	185
B.4	Filtre passe-bande paramétrable. . . . .	185
B.5	Effet du filtre sur le niveau de bruit. . . . .	186
B.6	Simulations de courbes $D$ fonction de la d.d.p. pointe surface pour trois configurations : plan-plan (courbe points serrés), cône-plan (courbe points écartés) ou sphère-plan (courbes trait plein) (d'après [OLYR98]). . . . .	187
B.7	Comparaison entre la relation approchée B.2 et la relation B.5. . . . .	188
B.8	Résultats de mesure du rayon d'apex sur différentes surfaces avec différentes pointes. Courbes noires : résultats expérimentaux, courbes vertes : ajustements de la relation B.5, courbes rouges : ajustements de la relation approximée B.2. . . . .	189
B.9	Représentation d'un cantilever rectangulaire avec ses dimensions. . . . .	190
B.10	Courbes d'approche et de retrait, pour différentes valeurs de $I_{total}$ , sur une surface d'alumine (voir figure 5.2) avec une pointe AFM standard [Tip]. . . . .	191
B.11	Courbes d'approche retrait sur une surface d'alumine (voir figure 5.2) avec une pointe AFM standard [Tip]. . . . .	191
C.1	Réponse indicielle de la détection d'enveloppe de l'AGC. Courbes expérimentales : (a) et (b). Simulation numérique : (c) (réponse du système) et (d) (excitation du système). . . . .	194
C.2	Temps de réponse du déphaseur. . . . .	194
C.3	Réponse indicielle en fréquence de la PLL. Courbes expérimentales : (a) et simulation numérique de la réponse du système : (b). . . . .	195
C.4	Réponse indicielle en amplitude de la PLL. Courbes expérimentales : (a) et simulation numérique de la réponse du système : (b). (c) étant la simulation numérique de l'excitation du système. . . . .	196
C.5	Réponse indicielle en amplitude du filtre de la PLL. Courbes expérimentales : (a) et simulations numériques des réponses du système : (b), (c). (d) étant la simulation numérique de l'excitation du système. . . . .	197
C.6	Réponse indicielle du circuit de commande de la distance pointe-surface. . . . .	197
D.1	Principe du microscope à effet tunnel (STM) . . . . .	200
D.2	Aspect du courant tunnel mesuré sur un cantilever oscillant à $f_0 = 270$ kHz au dessus d'une surface métallique, d'après [Boi03] . . . . .	201

# Liste des tableaux

3.1	Tableau de Routh. . . . .	44
3.2	Tableau de Routh du système asservi. . . . .	44
5.1	Paramètres d’ajustement des courbes de résonance en amplitude. Le facteur de qualité $Q_c$ et la résonance $f_0$ extraits de l’ajustement de la courbe figure 5.4 sont imposés. $D$ et $K$ sont des paramètres libres durant l’ajustement. Les incertitudes sont estimées par la méthode de Levenberg-Marquardt. . . . .	109
5.2	$D_{rc}^{fit}$ et $A_{max}$ en fonction de $\Delta D_{-120Hz}$ . $A_0 = 34.4$ nm. $D_{rc}^{fit} - A_{max}$ est la distance pointe-surface la plus petite. Le changement de comportement à $\Delta D_{-120Hz} = 12$ nm est clairement visible sur l’évolution de $D_{rc}^{fit} - A_0$ et de $D_{rc}^{fit} - A_{max}$ . . . . .	110
A.1	Exemples de constantes de Hamaker, en électronVolts, dans le vide. D’après [Vis72, Ber97]. . . . .	181

# Modélisations et Expérimentations en Microscopie à Force Atomique Dynamique en Ultra vide

Jérôme Polesel Maris

## Résumé

La microscopie à force atomique (AFM) dynamique est née il y a maintenant presque quinze ans (Albrecht, 1991). Depuis la première image en résolution atomique (F. J. Giessibl, 1995), les avancées de cette technique de champ proche permettent aujourd'hui de manipuler des atomes à température ambiante (Oyabu, 2005) sur des surfaces conductrices ou isolantes. La compréhension du fonctionnement de cette machine complexe et l'optimisation des réglages des nombreux asservissements est un des objectifs de ce travail de thèse. A cette fin, un formalisme analytique provenant des méthodes de l'Automatique non linéaire (J. Ch. Gille, 1956) sera introduit pour traiter de façon naturelle les blocs de régulation de la machine mais aussi pour traiter l'interaction pointe-surface comme une fonction de transfert. Un outil numérique de simulation confirmera notre approche théorique. Dans un deuxième temps, le rôle capital de la sonde et sa caractérisation seront traités à travers une méthode expérimentale simple et originale. Cette méthode se base sur l'étude des changements des propriétés de résonance de la sonde oscillante sur des surfaces isolantes et conductrices. Les forces conservatives à longue portée du type électrostatique et van der Waals seront quantifiées. Les forces à courte portée essentiellement chimiques seront mises en évidence en mesurant la dissipation de la sonde oscillante en fonction de sa distance avec la surface. Nous finirons cette étude en montrant expérimentalement, sur un système  $\text{MoS}_2$ /îlots d'or/molécules d'octanedithiol, la grande versatilité de ce microscope. En effet, cet appareil d'observation par sa complexité apparente laisse beaucoup de degrés de liberté à l'utilisateur pour aborder l'étude d'un tel système physico-chimique. Des perspectives seront données pour améliorer la stabilité et le pouvoir de résolution des pointes qui permettraient de rendre pérenne cette technique de champ proche.

**Mots clés :** microscopie à force atomique, AFM dynamique, champ proche, ultra vide, Automatique, non linéarité, forces de dispersion, forces électrostatiques, constante de Hamaker, molybdenite, îlots d'or, octanedithiol

# Modeling and Experiments in Dynamic Force Microscopy in Ultra High Vacuum

## Abstract

It was almost fifteen years since the Dynamic force microscopy (DFM or Dynamic AFM) was born (Albrecht, 1991). Since the first atomic resolution image (F. J. Giessibl, 1995), progress in this near field technique allows nowadays to manipulate atoms at room temperature (Oyabu, 2005) on metallic or insulator surfaces. Understanding the behavior of this complex machine and improving the settings of the many control blocks is one of the objective of this thesis work. For this purpose, an analytical formalism coming from the non linear Automatism methods (J. Ch. Gille, 1956) will be introduce to treat in an natural way the feedback loops of the machine and also to treat the tip-surface interaction as a transfert function. A powerful numerical tool will validate our theoretical approach. In a second step, the essential role of the probe and its characterization will be treat through a simple experimental original method. This method is based on the study of the changes of the resonance properties of the oscillating probe above insulator and metallic surfaces. The conservative forces at long range like electrostatic or van der Waals forces will be measured. The short range forces essentially chemical interactions will be showed by the measurement of the dissipated energy by the oscillating probe against the tip-surface distance. We will finish this study by showing experimentally on a  $\text{MoS}_2$ /*gold clusters/octanedithiol molecules* system the large versatility of the microscope. Indeed, this near field system thanks to its apparent complexity keeps a lot of degrees of freedom to the user to investigate a such physical and chemical device. Outlooks will be proposed to improve the stability and the capability of resolution of the tip which would allow to make perennial this near field technique.

**Keywords :** atomic force microscopy, Non-Contact AFM, Tapping AFM, near field, ultra high vacuum, Automatism, non linearities, dispersion forces, electrostatic forces, Hamaker constant, molybdenite, gold clusters, octanedithiol



# **Curriculum Vitae**