



HAL
open science

AFM à contact résonant : développement et modélisation

Fabrice Mege

► **To cite this version:**

Fabrice Mege. AFM à contact résonant : développement et modélisation. Autre. Université de Grenoble, 2011. Français. NNT : 2011GRENI030 . tel-00618676

HAL Id: tel-00618676

<https://theses.hal.science/tel-00618676>

Submitted on 2 Sep 2011

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Fabrice MEGE

Thèse dirigée par **Fabien VOLPI** et
codirigée par **Marc VERDIER**

préparée au sein du **SIMaP**
dans l'**École Doctorale I-MEP2**

AFM à contact résonant : Développement et Modélisation

Thèse soutenue publiquement le **20 mai 2011**,
devant le jury composé de :

M. Christophe COUPEAU

Professeur à l'Université de Poitiers, Rapporteur

M. Patrick DELOBELLE

Ingénieur de recherche CNRS au FEMTO-ST à Besançon, Rapporteur

M. Rafael ESTEVEZ

Professeur à l'université Joseph Fourier, Membre

M. Richard ARINERO

Maître de conférences à l'Université de Montpellier 2, Membre

M. Fabien VOLPI

Maître de conférences à Grenoble-INP, Directeur de thèse

M. Marc VERDIER

Chargé de recherche CNRS au SIMaP, Co-directeur

M. Guillaume PARRY

Maître de conférences à Grenoble-INP, Invité



Contact resonant AFM : Development and Modeling

The reduction of feature size in integrated circuits has raised an increasing need for characterization tools displaying small-scale resolution. Reliability issues taking place in these structures with dimensions below 100 nm require the development of innovative instruments. This thesis has first focused on the development of near field apparatus displaying sensitivity to surface mechanical properties. Afterwards analytical and numerical modelings have been developed to analyze the obtained experimental data.

Known as contact resonance atomic force microscope (CR-AFM), this apparatus is sensitive to the effective stiffness of thin film on substrate, allowing the mapping of the mechanical stiffness.

A significant work on the apparatus setting-up and procedure has been done to obtain repeatable and reliable experimental data, which is a prerequisite for quantitative analysis. Then CR-AFM experiments have been done on various samples: model stacks (silica thin films on silicon with varying silica thickness), silica films with tuned porosity, Damascene copper interconnect structures,... The mapping of elastic stiffness of such samples has been built-up.

In order to quantify these contrasts, our experimental results have been analyzed through different models (analytical and numerical). Finite element simulations were also performed to support these results.

Keywords : Atomic force microscope, contact resonant, CR-AFM, elastic modulus, nanostructures, thin films

AFM à contact résonnant : Développement et Modélisation

Avec l'intégration de circuits intégrés de plus en plus denses, le besoin d'outils de caractérisation adaptés à ces échelles se fait ressentir. Identifier et analyser les problèmes de fiabilité survenant dans ces structures à des dimensions inférieures à 100 nm demande la mise au point d'instruments innovants. Ce travail de thèse a consisté dans un premier temps à développer un appareil à champs proches sensible aux propriétés mécaniques de surface, et dans un second temps à analyser les résultats expérimentaux en s'appuyant sur des approches analytiques et/ou numériques.

Désigné sous le nom de microscope à force atomique à résonance de contact (CR-AFM), cet appareil est sensible à la rigidité effective de films minces sur substrat, ce qui lui permet de cartographier la rigidité mécanique de films minces.

Nous avons mené un important travail de développement instrumental afin d'obtenir des résultats expérimentaux répétables et fiables, condition indispensable à une analyse quantitative. Puis nous avons utilisé le CR-AFM sur divers échantillons : empilements modèles (films de silice sur silicium, avec épaisseurs variables de silice), films de silice avec porosité variable, structures damascènes d'interconnexion cuivre,... Des images traduisant les variations d'élasticité de surface ont ainsi pu être construites.

Pour quantifier ces variations, nous avons analysé nos résultats à l'aide de différents modèles (approches analytiques et numériques). Des simulations par éléments finis ont été réalisées pour étayer ces résultats.

Mots clés : Microscope à force atomique, résonance en contact, CR-AFM, module d'élasticité, nanostructures, films minces.

Remerciements

Le travail retracé dans ce manuscrit s'est effectué au sein du laboratoire SIMaP basé sur le campus grenoblois (Science et ingénierie des matériaux et des procédés) et a été financé par le cluster Micro-Nano de la région Rhône Alpes. J'aimerais avant d'entamer la présentation des travaux, remercier toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de cette thèse. Si ces trois années ont été si captivantes et enrichissantes, scientifiquement et humainement, c'est grâce à elles.

En premier lieu, j'aimerais remercier mes trois encadrants sans lesquels ce manuscrit n'aurait pu voir le jour. J'ai vraiment apprécié de travailler avec chacun d'entre vous. Merci à Fabien Volpi pour ses conseils avisés et son regard critique. J'ai beaucoup appris à son contact, et cela m'a permis de présenter des travaux plus rigoureux et de meilleure qualité. Merci à Marc Verdier, physicien d'une grande culture scientifique, qui m'a fait partager ses nombreuses idées. Face aux difficultés expérimentales, il m'a sorti plus d'une fois d'impasses et m'a transmis son enthousiasme. Enfin, je voulais remercier Guillaume Parry, guitariste à ses heures, spécialiste de la modélisation par la méthode des éléments finis. Il m'a initié à la représentation de micro structures mécaniques sous ABAQUS, et s'est largement impliqué dans l'amélioration des modèles développés.

J'exprime mes plus sincères remerciements aux membres du jury pour le temps et l'intérêt qu'ils ont accordés à mon travail. Je remercie en particulier les deux rapporteurs, Christophe Coupeau et Patrick Delobelle pour l'intérêt qu'ils ont manifesté pour mon travail. Je remercie également, Rafael Estevez pour avoir accepté de présider le jury, ainsi que Richard Arinero, venu de Montpellier pour l'occasion.

Merci aux membres du CEA LETI avec qui nous avons collaboré, en particulier, Denis Mariolle pour son expertise sur certaines de nos problématiques, et David Mercier qui a débuté une thèse et m'a généreusement transmis des échantillons à étudier.

Merci à Vincent Arnal et Alexis Farcy, de STMicroelectronics, pour l'attention qu'ils ont portée à mes travaux ainsi que pour la fourniture de structures de tests récentes.

Merci à mes stagiaires, en particulier Maxime Dupraz Linda Boatemaa dont les travaux ont contribué significativement à l'avancement de la thèse. J'ai vraiment apprécié de travailler avec vous.

Je remercie ensuite, les membres du groupe PM (physique du métal) avec lesquels j'ai partagé une bonne partie de mon temps. Tout d'abord Sinh Vu Huong, le maître d'ABAQUS, pour ses

conseils précieux et sa bonne humeur. J'ai eu plaisir à travailler à tes côtés et je te souhaite une bonne fin de thèse. Je remercie également Bruno Gilles, pour ses avis éclairés ainsi que pour les discussions que j'ai eu plaisir à partager avec lui. Merci également à Jean Louis-Chemin pour son aide décisive au niveau expérimental, en particulier lors de la réalisation de nos montages électroniques. De façon générale, je remercie l'ensemble des personnes résidant dans le bâtiment thermodynamique avec qui j'ai eu plaisir à travailler telles que Marie-Claude Cheynet, Patricia Donnadiou, Guillaume Beutier, Mireille Maret, Frédéric Livet, Céline Pascal, Frédéric Charlot, Murielle Bracini, et Sanie Claraz, pour n'en citer que quelques uns, et j'en oublie certainement. Bonne chance à Benjamin, « Néo », pour la suite de sa thèse.

Je remercie ensuite, l'équipe du groupe TOP (Thermodynamique, Modélisation et Optimisation des procédés), avec qui j'ai partagé nombre de mes repas et des fameux goûters le jeudi après midi. En premier lieu, j'aimerais remercier Laurent Artaud, le maître de CATIA, et Ioana Nuta pour l'aide qu'ils m'ont apportée. J'ai apprécié nos expéditions aux différents RU du campus, ainsi que nos discussions où nous refaisons le monde. Merci également à Hervé Colat et à Alain Domeyne pour leur soutien technique ainsi qu'à Grégory Berthomé pour ses conseils sur des sujets d'importance. Merci à tous ceux qui ont contribué à la bonne ambiance qui règne au premier étage du bâtiment recherche et cela représente beaucoup de personnes. Pèle mèle, je citerai, Evelyne Fischer, Christian Chatillon, Valérie Parry, Colin Parlier, Noel Jakse, Magali Morais, et là encore j'oublie encore certainement beaucoup de personnes.

Je remercie également Augustine Alessio et l'ensemble du collège doctoral pour l'aide qu'ils fournissent pour faciliter la transition vers une carrière académique ou en entreprise, cela m'a bien été utile. Merci à Michel Pons, directeur du laboratoire, pour assurer son développement tout en restant accessible. Je remercie l'ensemble de l'équipe administrative, en particulier, Nadine Thieblemont, Jacqueline Cuoq, Liliane Di-Giacomo, Nourhane Grira, Magalie Botella, Fabienne Fonseca et Brunot Maillard, qui se sont montrés avec moi toujours disponibles et affables.

Merci à Francis Baillet et à Yves Wouters qui ont continué après mon master à s'intéresser à mon devenir.

Enfin, je salue l'ensemble de mes collègues thésards et post doctorants de l'étage. Tout d'abord Abdel El-Kharbachi, voisin de bureau et ami, Denis Monnier, le « chef du bureau », qui m'a légué son « héritage », Thuy Nguyen pour sa gentillesse, Viviana Cristiglio pour son enthousiasme tout italien, et Thomas Nogaret à qui il incombe désormais la « direction » du bureau. Merci à Maya Gospodinova et à Claire Holtzinger pour leur bonne humeur.

Merci à Mélyan Gouello, l'exilée, dont les éclats de rire illuminaient le labo, bonne chance pour ta soutenance prochaine et ne te fais pas dévorer par les sangliers de Cadarache; à Fatima-Zahra Roki, toujours avec le sourire; à Gabriele Honstein et à Perrine Violet avec qui j'ai partagé les pauses cafés en début de thèse; à Abdellatif El Bakkali pour ses conseils pour l'après thèse. A Moustafa Aljerf, et sa passion du japon, *Ganbatte !*

Enfin, je remercie toute ma famille et mes amis extérieurs au travail qui m'ont soutenu et conseillé. Merci à mon père Claude, qui a relu attentivement ces écrits, à ma mère Monique et à ma sœur Karen pour leurs encouragements. Merci à mes amis Yvan, Benoit, Olivier, Christophe, Sylvain et tous ceux et toutes celles qui ont traversé ces trois années d'existence. Vous avez contribué à la réussite de ces travaux.

Merci à vous lecteur pour consulter ce manuscrit et éviter ainsi qu'il ne prenne la poussière.

Bonne lecture.

Table des matières

Remerciements

Introduction	1
I Des microscopes à champ proche CR-AFM	5
I.1. De la microscopie à force atomique aux microscopes à force atomique à résonance de contact (CR-AFM)	6
I.1.1. Généralités	6
I.1.2. Le microscope à force atomique (AFM)	8
I.1.2.1. <i>Les forces mises en jeux</i>	10
I.1.2.2. <i>Détail du fonctionnement de l'AFM</i>	14
I.1.3. Les différents modes de microscopes acoustiques à champ proche.....	17
I.1.3.1. <i>Le mode ultrasonique (UFM)</i>	18
I.1.3.2. <i>Le mode hétérodyne (HFM)</i>	19
I.1.3.3. <i>Le mode contact résonant (CR-AFM) : l'AFAM et l'UAFM</i>	20
I.2. Les bases théoriques du mode contact résonant	22
I.2.1. Première approche de la modélisation du mouvement d'un cantilever oscillant.....	22
I.2.1.1. <i>Le modèle masse-point</i>	23
I.2.1.2. <i>La poutre à section rectangulaire</i>	24
I.2.2. Un modèle plus proche du système réel.....	29
I.3. Vers une quantification du module élastique local	31
I.3.1. Le modèle de Hertz	31
I.3.2. Le modèle de Derjaguin-Muller-Toporov (DMT).....	36
I.3.3. Le modèle de Johnson-Kendall-Roberts (JKR)	37
I.3.4. Quel modèle est pertinent pour notre mode contact résonant ?	38
I.3.5. Le module élastique dans le cas d'empilements modèles.....	41
I.4. Résumé du chapitre.....	44

II Développement du montage CR-AFM	45
II.1. Mise en œuvre expérimentale : développement instrumental du mode contact résonant sur notre AFM.....	46
II.1.1. Premier montage incluant une détection synchrone.....	47
II.1.1.1. Mesures statiques.....	48
II.1.1.2. Image en mode contact résonant à fréquence f_{exc} fixée	51
II.1.2. Second montage utilisant une acquisition numérique.....	52
II.1.2.1. Version initiale	52
II.1.2.2. Version avec table PI.....	58
II.1.3. Elaboration d'une nouvelle procédure d'acquisition.....	60
II.2. Choix du système de génération d'ondes acoustiques	64
II.2.1. L'excitation CR-AFM via le transducteur intégré dans la pointe.....	64
II.2.2. L'excitation CR-AFM via un transducteur indépendant.....	66
II.2.3. Le système électrostatique	68
II.3. Optimisation des conditions expérimentales	71
II.3.1. Intérêt et mise en place d'un environnement contrôlé.....	71
II.3.2. Un enjeu majeur : le phénomène d'usure des pointes AFM	73
II.3.2.1. Observation du phénomène.....	73
II.3.2.2. Calibration de la pointe AFM grâce à des échantillons industriels dédiés	74
II.3.2.3. Calibration de la pointe AFM grâce à des mesures au microscope électronique à balayage	76
II.3.2.4. Conséquence sur le choix des leviers.....	77
II.4. Détermination de force imposée via une connaissance précise de la constante de raideur du cantilever.....	80
II.4.1. Solutions proposées dans la littérature	80
II.4.2. Une méthode originale : le couplage AFM-nanoindenteur	85
II.5. Résumé du chapitre.....	90
III Quelques résultats expérimentaux	91
III.1. Caractérisation de films de silice d'épaisseur croissante.....	92
III.1.1. Description des échantillons.....	92
III.1.2. Spectrométrie CR-AFM.....	93
III.1.2.1. Analyse des échantillons à l'aide du levier doté d'une pointe recouverte de diamant.....	94
III.1.2.2. Analyse avec la pointe en diamant massif nanocristallin	98
III.1.2.3. Comparaisons des résultats obtenus en CR-AFM avec ceux obtenus par nanoindentation....	99

III.2. Caractérisation de films d'alumine nanométriques	102
III.2.1. Description des échantillons	102
III.2.2. Spectrométrie CR-AFM	102
III.3. Caractérisation de films de silice nanoporeuse	105
III.3.1. Spectrométrie CR-AFM	106
III.3.2. Cartographie.....	107
III.3.2.1. Echantillon « Hiérarchisé »	107
III.3.2.2. Echantillon « macro ».....	110
III.4. Caractérisation de cuivre polycristallin	111
III.4.1. Spectrométrie CR-AFM	112
III.4.2. Cartographie.....	113
III.5. Caractérisation d'interconnexions Cuivre/Silice	114
III.5.1. Interconnexions non-capées	115
III.5.1.1. Spectrométrie CR-AFM.....	116
III.5.1.2. Cartographie.....	117
III.5.1.3. Remarque instrumentation.....	118
III.5.2. Structures d'interconnexions Cuivre/Silice low-k capées par un film de SiCN.....	119
III.5.2.1. Spectrométrie CR-AFM.....	120
III.5.2.2. Cartographie.....	121
III.6. Résumé du chapitre.....	122
IV Modélisation du système levier-échantillon	123
IV.1. Modélisation analytique simple du système poutre – échantillon.....	124
IV.1.1. Description du modèle.....	124
IV.1.2. Mise en place et méthodologie.....	126
IV.1.2.1. Etape 1 : Extraction du k^*/k_c	126
IV.1.2.2. Etape 2 : Passage du rapport k^*/k_c au module élastique local	128
IV.1.3. Exploitation des résultats expérimentaux par cette modélisation	130
IV.1.3.1. Premiers essais.....	130
IV.1.3.2. Optimisation unique des dimensions du cantilever	133
IV.1.3.3. Validité du modèle	135
IV.1.3.4. Extraction des modules apparents par la méthode des échantillons de référence	137
IV.1.3.5. Même approche avec le 1e pic.....	138

IV.1.4.	Comparaison avec les résultats obtenus pour un modèle élastique « film sur substrat »	140
IV.1.5.	Bilan	142
IV.2.	Modélisation analytique complète du système poutre-échantillon	142
IV.2.1.	Implémentation du modèle	142
IV.2.2.	Optimisation à partir des données expérimentales	147
IV.2.2.1.	<i>Cas 1 : La rigidité latérale klat est considérée nulle</i>	147
IV.2.2.2.	<i>Cas 2 : La rigidité latérale klat est variable</i>	148
IV.2.3.	Bilan	150
IV.3.	Modélisation par la méthode des éléments finis (FEM)	151
IV.3.1.	Etude bibliographique	151
IV.3.2.	Implémentation du modèle FEM	153
IV.3.2.1.	<i>Description du modèle</i>	153
IV.3.2.2.	<i>Adaptation du modèle à un levier spécifique</i>	155
IV.3.2.3.	<i>Optimisation du modèle FEM pour un levier en contact</i>	157
IV.3.3.	Modèle FEM tridimensionnel levier-échantillon	159
IV.3.4.	Modèle FEM de poutre 1D – pointe 3D	163
IV.3.5.	Limites des modèles de poutre	165
IV.4.	Résumé du chapitre	169
Conclusion		171
Annexes		177
Bibliographie		181

Introduction

Davantage présente à chaque moment de notre vie, la microélectronique a envahi notre quotidien en devenant à la fois plus compacte et plus performante. Cet essor a stimulé le développement de circuits intégrés de plus en plus denses, et par la même occasion, le besoin d'outils de caractérisation adaptés à ces échelles. Notre intérêt se porte en particulier sur l'identification et l'analyse des problèmes de fiabilité qui surviennent dans ces structures aux dimensions désormais inférieures à 100 nm. Cette recherche requiert la mise au point d'instruments innovants capables de dépasser les limitations habituelles. C'est donc dans ce cadre que nous présentons ces travaux de thèse où nous nous sommes attachés à développer un appareil à champ proche sensible aux propriétés mécaniques de surface, le microscope à force atomique à contact résonant ou CR-AFM.

Combinant à la fois la résolution nanométrique de l'AFM et la capacité de la spectrométrie mécanique à réaliser des mesures non destructives des propriétés mécaniques d'un matériau donné, cet outil de caractérisation semble très prometteur. Sa mise en œuvre s'avère, elle, plus complexe en raison de la très grande sensibilité de l'instrument à de faibles variations des conditions expérimentales. De plus, les dimensions réduites du contact (quelques nanomètres) compliquent l'interprétation des résultats, et nécessitent une approche mécanique adaptée. C'est en suivant ces deux axes, l'un expérimental et l'autre plutôt orienté modélisation, que nous avons mené les travaux présentés dans ce mémoire avec pour objectif la réalisation d'un instrument fonctionnel et capable de livrer des informations mécaniques locales quantitatives. L'ensemble de ces travaux a eu lieu au sein du laboratoire SIMaP (Science et Ingénierie des Matériaux et Procédés) sous la direction de Fabien Volpi, Maître de Conférence à l'école Grenoble – INP et Marc Verdier, Chargé de recherche au CNRS.

Ce mémoire est constitué de quatre chapitres reprenant l'ensemble de la démarche président à notre développement. Le premier chapitre est une étude bibliographique débutant par l'émergence de la microscopie acoustique puis des instruments à champ proche. Leurs différents avantages et limites sont abordés jusqu'à l'introduction de montages combinant leurs performances. Nous présenterons les forces d'interaction entre la pointe du microscope à force atomique (AFM) et une surface. En effet, de l'évaluation de celles-ci dépendra une partie de la précision de notre montage. Puis nous verrons les différents modes acoustiques qui ont été adaptés sur l'AFM, leurs principes pour aboutir au montage qui nous intéresse, le microscope CR-AFM. Nous aborderons d'ailleurs quelques uns des travaux qui ont été effectués à l'aide de ce microscope.

Après cette première approche plus globale, la cinématique d'un levier nous sera présentée afin de permettre de faire le lien entre les vibrations que nous détectons et la rigidité du contact

entre la pointe CR-AFM et les matériaux étudiés. A cette occasion, nous partirons de modèles de comportements excessivement simples, afin de se familiariser avec les modélisations que nous avons dû développer par la suite. Enfin, les dernières parties de ce chapitre entreprennent de poser les bases de la théorie du contact élastique nécessaires pour relier la rigidité du contact aux propriétés mécaniques des matériaux. La pertinence des différentes approches dans le cadre de la microscopie CR-AFM sera évoquée, tout comme les aspects théoriques qui apparaissent lors de l'étude des empilements modèles qui vont constituer l'essentiel des échantillons que nous allons étudier. L'ensemble nous permet de disposer des outils théoriques suffisants pour la compréhension de la suite de nos travaux.

Le deuxième chapitre est consacré à la conception et à l'optimisation des dispositifs expérimentaux qui nous permet la mise au point du mode contact résonant sur l'AFM du SIMaP. Deux montages différents seront ainsi décrits. Les raisons de ce double développement seront explicitées, l'un se destine ainsi aux mesures statiques tandis que le second vise à la réalisation d'images acoustiques exploitables quantitativement. La procédure expérimentale et les derniers développements sont également abordés. La suite de cette partie évoque les différentes optimisations que nous avons réalisées sur notre dispositif afin d'obtenir des mesures les plus précises et répétables possibles. Pour ce faire, nous avons étudié différents systèmes de génération d'onde acoustique, de façon à limiter l'apparition de pics de résonance parasites. Afin de diminuer les forces d'adhérence affectant de manière négative nos mesures, nous avons conçu et réalisé une enceinte permettant un meilleur contrôle des conditions environnementales, puis pour augmenter la reproductibilité de nos mesures, l'importance de la résistance à l'usure dans le choix des leviers AFM sera explicitée. Nos expérimentations se déroulant à différentes forces, une connaissance précise de celles-ci s'avèrent essentiel, c'est pourquoi nous présentons différentes méthodes ainsi qu'un dispositif innovant de détermination de la rigidité des leviers.

Le troisième chapitre s'intéresse aux résultats obtenus grâce au CR-AFM sur divers échantillons : empilements modèles (films de silice sur silicium, avec épaisseurs variables de silice), films de silice avec porosité variable, structures damascènes d'interconnexion cuivre,... Nous analyserons les résultats bruts, en particulier la spectroscopie CR-AFM mais aussi les cartographies que nous avons pu réaliser. Plusieurs enseignements en seront retirés pour la suite des manipulations qui seront effectués avec ce dispositif.

Enfin, le quatrième et dernier chapitre cherchera à l'aide de modélisations du système poutre-échantillons à faire le lien entre les résultats expérimentaux et les propriétés mécaniques des matériaux. La mise au point d'un modèle suffisamment fiable pour allouer une exploitation des données obtenues sur nos films de silice a été, à cette occasion, notre principal objectif. Raison pour laquelle, nous avons étudié à la fois des modèles analytiques mais aussi par éléments finis. En partant des travaux effectués dans la littérature, nous avons ainsi cherché à rapprocher ces modèles de nos données expérimentales à l'aide de scripts d'optimisation. Puis, nous avons voulu déterminer leurs limites et proposer des solutions plus pertinentes.

En conclusion, une synthèse des différentes avancées que nous avons obtenues à partir de l'ensemble des travaux que nous avons menés sera présentée. Nous finirons par les perspectives que nous avons ouvertes et qui feront l'objet de nouveaux projets de recherche ou de développements instrumentaux.

Chapitre I : Des microscopes à champ proche CR-AFM

Avec les progrès de la miniaturisation, le développement de nouveaux matériaux nanostructurés est devenu une préoccupation majeure de l'industrie micro-électronique. L'intégration de ces matériaux au sein des récentes architectures damascènes induit des contraintes mécaniques ainsi que divers défauts pouvant mener à des défaillances. Ces problèmes de fiabilité entraînent des besoins croissants au niveau de la caractérisation locale, en particulier des propriétés mécaniques. Un mode prometteur de microscopie en champs proche semble répondre à ces exigences, la microscopie à force atomique à résonance de contact. Ce type d'instrument permet de déterminer le module élastique d'une surface avec une résolution allant jusqu'à moins d'une dizaine de nanomètres.

Ce chapitre vise à présenter cette méthode de caractérisation encore peu répandue qui constitue la pierre angulaire de nos travaux, avec, dans un premier temps, une description du microscope à force atomique. Cet instrument et ses évolutions forment en effet l'ossature de la technique mise en œuvre que nous détaillons dans un deuxième temps. Puis nous nous intéressons plus spécifiquement aux théories du contact dont la compréhension est fondamentale pour exploiter pleinement les informations fournies par le mode contact résonant. Enfin, nous nous intéresserons aux solutions proposées dans la littérature sur ce thème, et pour finir, nous parlerons des objectifs que nous nous sommes fixés avec cette technique.

I.1. De la microscopie à force atomique aux microscopes à force atomique à résonance de contact (CR-AFM)

I.1.1. Généralités

Avec la découverte de la piézoélectricité ^[Curie 1881], le début du XXe siècle a vu l'émergence de systèmes basés sur la génération et la réception d'onde ultrasonore. Ainsi, en 1918, le premier sonar développé dans le cadre de la lutte anti-sous marine fut mis au point par le français Paul Langevin. Cet appareil allait ensuite être adapté dans de nombreux autres domaines allant de la géologie à la médecine ^[Wade2000]. L'utilisation des ondes acoustiques fut également une avancée majeure dans le domaine de la caractérisation des matériaux, en particulier pour ausculter des pièces mécaniques dans le cadre du contrôle qualité ^[Grosse2008]. En effet, en utilisant des ondes acoustiques qui sont transmises et réfléchies au sein de pièces étudiées, ce type de système permet de repérer des inhomogénéités telles que des vides ou des défauts (fig. 1.1). Il devient également possible de caractériser de manière non destructive certaines propriétés mécaniques des matériaux sondés comme le module élastique ^[Briggs2009].

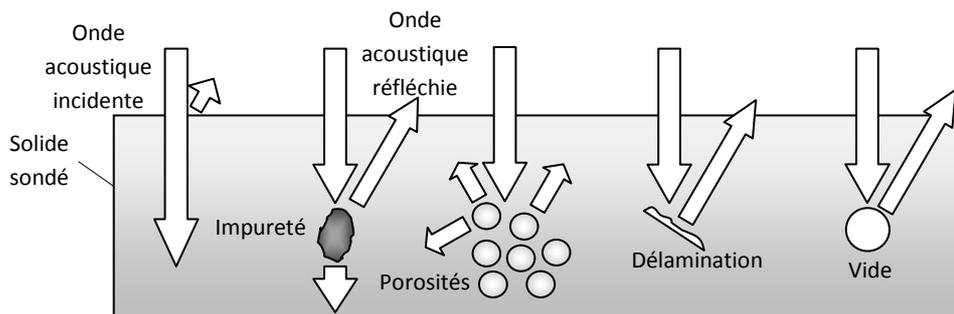


Fig. 1.1 : Sensibilité des ondes acoustiques aux défauts subsurface

Dans les décennies suivantes de nombreuses améliorations ont été apportées aux instruments de caractérisation acoustique, en particulier au niveau de la résolution accessible. Conceptualisé en 1936 par Sokolov ^{[Sokolov1936] [Sokolov1949]}, le microscope acoustique a été développé dans la seconde moitié du XXe siècle ^[Dunn1959] principalement par des équipes menées par A. Korpel, L.W. Kessler ^{[Korpel1971] [Kessler1979]} et par C.F. Quate ^[Lemons1974]. Ces recherches ont abouti à la commercialisation d'instruments que nous pouvons regrouper sous le nom de microscopes acoustiques à balayage (SAM). Ces systèmes utilisent un faisceau ultrasonore focalisé par une lentille en saphir confocale et un liquide de couplage (typiquement de l'eau), pour sonder la surface d'un matériau (fig 1.2). La réflexion de l'onde acoustique par le solide retourne ensuite vers le microscope où elle sera enregistrée et analysée.

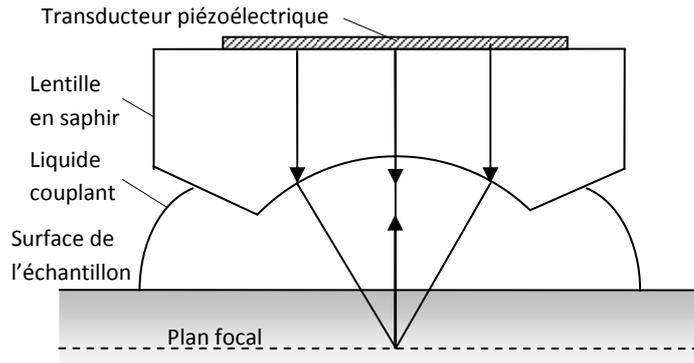


Fig. 1.2 : Représentation schématique d'un microscope acoustique

Le transducteur piézoélectrique situé en haut du montage émet des ondes acoustiques ayant des fréquences situées entre 100 MHz et 2 GHz ce qui permet au final de mesurer les propriétés élastiques de films d'une épaisseur de quelques centaines de nanomètres à une dizaine de microns. La profondeur de pénétration est généralement considérée comme étant du même ordre de grandeur que la longueur d'onde du rayon ultrasonore ^[Yu1995]. Quant à la résolution spatiale, celle-ci dépend principalement de la limite de diffraction, les aberrations des lentilles devenant négligeables sur les appareils récents ^[Parker2010].

Ainsi, si nous considérons une onde plane diffractant à travers une ouverture circulaire de diamètre D (la lentille), le champ de pression dans le plan focal varie selon la position radiale suivant l'équation suivante :

$$p(r) = p_0 \frac{J_1\left(\frac{\pi D r}{F \lambda}\right)}{\frac{\pi D r}{F \lambda}} \quad (1.1)$$

Avec $J_1(x)$ la fonction de Bessel au premier ordre et F la distance focale.

Le premier nœud de cette distribution de pression se situe à la position :

$$d = 1,22 \times \frac{F \lambda}{D} \quad (1.2)$$

Et selon le critère de Rayleigh, deux objets sont dissociables sur une image à condition que la distance les séparant soit égale à cette valeur d . La résolution est donc améliorée lorsque la fréquence augmente et lorsque la distance focale diminue ce qui dépend à la fois de la lentille en saphir et du liquide de couplage.

Le premier microscope acoustique à balayage mis au point par Lemon et Quate ^[Lemon1974] avait une résolution de 10 μm , et au cours des décennies suivantes celle-ci a été améliorée ^[Hadimioglu1983] pour atteindre la précision record de 15 nanomètres ^[Muha1990]. Mais dans ce dernier cas, il a fallu se placer dans un environnement cryogénique d'hélium superfluide, ce qui en limite sérieusement l'utilisation. Typiquement, à température ambiante et en utilisant l'eau comme liquide de couplage, la résolution

de ce type d'appareil se situe plutôt entre plusieurs centaines de nanomètres ^[Yu1995] et quelques microns ^[Parker2010].

A température ambiante, il est donc impossible d'accéder à une résolution de l'ordre de la dizaine de nanomètres avec cet instrument. Cette précision serait pourtant bien utile pour l'étude des matériaux nanostructurés qui sont élaborés de nos jours. Pour cela, plusieurs voies ont été explorées ^[Quate1994] ^[Guenther1989] ^[Giessibl1998] mais il a fallu attendre la mise au point de la microscopie à force atomique (AFM) en 1986 par Binnig, Quate et Gerber pour répondre à cette attente ^[Binnig1986] ^[Binnig1987].

A partir du début des années 90, de nombreux instruments couplant à la fois la microscopie en champs proche et les ondes acoustiques ont ainsi vu le jour. La raison en est simple : l'AFM possède une capacité inédite à imager une surface avec une précision de 10 à 100 nm dans des conditions courantes. Il utilise pour cela une sonde adaptée, un levier ou « cantilever », dont la pointe nanométrique va palper la surface d'un échantillon. En y intégrant un générateur d'onde acoustique, cet appareil permet de réaliser des cartographies ultrasonores et des analyses sur les propriétés mécaniques. Suivant la méthode de génération d'onde acoustique, plusieurs montages ont été proposés tel l'UAFM ^[Yamanaka1999] ou l'AFAM ^[Rabe2000] comme nous le verrons plus loin ; partageant de nombreux points communs, nous les désignerons par la suite sous le nom de microscope contact résonant à champ proche.

Nos travaux s'appuient sur ce type d'instrument, et pour en comprendre mieux le fonctionnement nous allons nous intéresser tout d'abord à la base de ce système, c'est-à-dire au microscope à force atomique.

I.1.2. Le microscope à force atomique (AFM)

Désignant une famille d'instruments utilisés pour imager et mesurer les propriétés de surfaces, les microscopes à champs proche balayent la surface plane d'un matériau avec une sonde effilée tout en suivant l'évolution des interactions entre cette pointe et l'échantillon étudié. Ils permettent ainsi d'obtenir par construction une image d'une grande précision ^[Blanchard1996].

Le premier instrument de ce type fut développé en 1982 au centre IBM de Zurich par Binnig, Rohrer et leur équipe sous le nom de microscope à effet tunnel (STM) ^[Binnig1982]. Quatre ans plus tard, ils reçurent le prix Nobel pour leur invention. La même année, ils conçurent un autre instrument en champ proche, le microscope à force atomique (AFM) ^[Binnig1986]. Cet appareil va s'affranchir de la restriction aux échantillons conducteurs inhérente au courant tunnel. Cette habilité à sonder tout type de matériau indépendamment de sa conductivité constitue un des bénéfices majeur de la technique et le distingue nettement du microscope électronique à balayage (SEM) très utilisé dans le domaine des matériaux ^[Goldstein2003].

Mais ce n'est pas son seul atout, et nous pouvons ainsi citer la capacité de l'AFM à réaliser des mesures précises en trois dimensions (x, y, z). Il est ainsi capable de discerner des variations topographiques d'une taille de 0.1 à 1.0 nm sur le plan x-y et de 0.01 nm dans la direction z. Enfin, il ne nécessite ni vide, ni préparation d'échantillon fastidieuse et peut être employé aussi bien à l'air ambiant que dans un milieu liquide. Avec ces avantages, l'AFM s'est imposé comme un outil majeur pour les sciences des matériaux, la chimie, la biologie, la physique ^[Blanchard1996].

Pour accomplir ses mesures, le microscope à force atomique s'appuie sur le suivi des forces d'interaction entre sa pointe effilée et la surface d'un échantillon, comme l'illustre la figure 1.3.

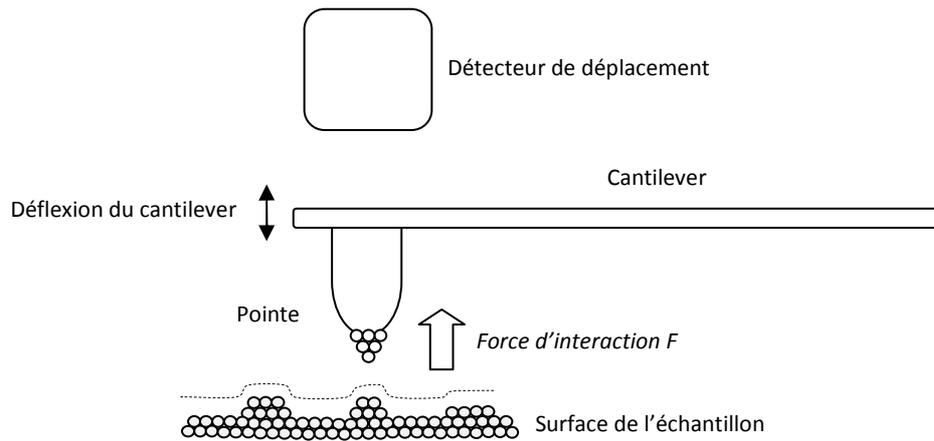


Fig. 1.3 : Représentation schématique du microscope à force atomique

Le levier ou « cantilever », (nous utiliserons les deux termes indifféremment), constitue le cœur de l'instrument, car c'est lui qui va affecter de façon déterminante la résolution spatiale de l'AFM. En effet, plus la pointe du cantilever sera effilée, plus la zone d'interaction entre celle-ci et la surface de l'échantillon sera réduite et donc meilleure sera la résolution de l'image. Constitué généralement de silicium monocristallin ou de nitrure de silicium, ces microleviers sont sensibles à la moindre variation de la force d'interaction atomique provoquant ainsi leur déformation. Le système de mesure du déplacement du cantilever est basé sur le suivi d'un spot laser, va suivre cette déflexion en évaluant la pente de la courbe avec une sensibilité de l'ordre du dixième de nanomètre.

Ces déformations Δz du cantilever (avec une constante de raideur k_c) peuvent se relier si nous nous plaçons en régime élastique à une mesure directe de la force F exercée sur le microlevier par la loi de Hooke :

$$F = k_c \times \Delta z \quad (1.3)$$

Avec des cantilevers aux constantes de raideur adaptée (typiquement 0.1 à 10 N/m), il est ainsi possible de mesurer des forces très faibles, d'une fraction de nano Newton.

Trois méthodes d'imagerie AFM sont aujourd'hui utilisées de façon courante : les modes contact, « tapping », et non-contact. En mode contact, la pointe de cantilever est plaquée sur la surface de

l'échantillon, et la topographie des structures de surface est obtenue grâce au suivi à force constante de la déflexion du cantilever. Le mode tapping quant à lui, maintient le cantilever en oscillation constante de façon à ce qu'il entre en contact périodique avec la surface de l'échantillon. Les informations sur les structures en surface sont obtenues ici par le changement de l'amplitude ou de la phase de l'oscillation du cantilever ^[Hansma1994]. Dans le mode non-contact, la pointe n'est jamais en contact avec la surface, et la topographie est obtenue à partir des changements dans les valeurs des fréquences de résonances ou dans l'amplitude des vibrations du cantilever en oscillations forcées ^{[Martin1987] [Zhong1993a]}. De façon générale, le mode contact est moins employé en raison des risques importants d'abrasion de la pointe ou de la surface sous l'effet des forces de répulsions agissant sur le cantilever et l'échantillon. Les modes « tapping » ou non-contact sont donc habituellement préférés pour la topographie. Ainsi en employant un système AFM non-contact utilisant à la modulation de fréquence, il est possible d'imager des surfaces avec une résolution atomique sous ultravide ^[Giessibl1995].

Pour mieux concevoir le fonctionnement d'un microscope à force atomique, nous allons désormais nous intéresser plus en détail à l'interaction entre le cantilever et la surface d'un matériau.

1.1.2.1. Les forces mises en jeu

Afin de saisir de façon simple les principes physiques sous jacents à l'interaction pointe-échantillon, considérons une courbe typique d'approche du cantilever vers la surface (fig. 1.4).

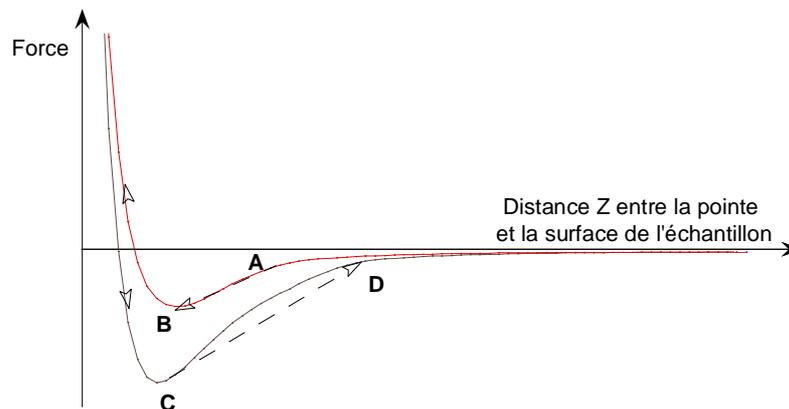


Fig. 1.4 : Courbe d'approche en fonction de la distance entre la pointe AFM et la surface de l'échantillon.

Ce graphe nous décrit simplement l'influence des différentes forces agissant sur le cantilever en fonction de la distance le séparant de la surface d'un matériau. Ces forces sont contrebalancées par la force de retour du cantilever qui tel un ressort tend à reprendre sa position initiale.

Lorsque le cantilever s'approche de la surface, nous constatons que l'influence de ces forces sur celui-ci commence à devenir visible. Ainsi, deux domaines émergent : un à moyenne distance où les

forces attractives sont prépondérantes (quelques nanomètres), et un autre à courte distance où ce sont les forces de répulsion qui s'imposent. Entre les deux se situe un point d'inflexion où les forces attractives et répulsives sont en équilibre (le point C).

Pendant la phase d'approche, le cantilever va suivre la courbe décrite par la figure 1.4, de droite à gauche jusqu'à ce que le point A soit atteint. A ce niveau, si la pente de la courbe devient supérieure à la constante de raideur du cantilever, ce dernier va soudainement passer directement au point B. Ce phénomène d'instabilité mécanique est désigné fréquemment sous le terme anglais « jump to contact ».

De manière semblable, lors du retrait, le cantilever va atteindre son minimum d'énergie locale au point C, et si la pente due aux forces d'adhésion excède celle de la raideur du cantilever, la pointe va sauter du point C à D. Mathématiquement, ces instabilités mécaniques se produisent donc dès que le gradient des forces vaut :

$$\left. \frac{\partial F_t}{\partial z} \right|_z < -k_c \quad (1.4)$$

Avec F_t la résultante des forces d'adhésion et de répulsion et k_c la constante de raideur du cantilever. Une meilleure connaissance des forces s'exerçant sur la pointe du levier s'avère donc parfois nécessaire pour des études où ce phénomène doit être limité ^[Schirmeisen2003].

A l'air libre, les forces d'attraction se décomposent en plusieurs sous-groupes dont les contributions varient en fonction de la distance. Parmi toutes ces forces, citons :

- *Les forces chimiques :*

Forces à très courte portée (jusqu'à 0.1 nm), elles ont pour origine la possibilité qu'ont les atomes de la pointe et ceux de la surface d'échanger des électrons pour former des liaisons chimiques (liaison hydrogène, liaison métallique..).^[Schirmeisen2003] Une description qualitative de ces forces peut être réalisée à l'aide du potentiel de Morse :

$$V_{Morse} = -E_{liaison} (2e^{-a(z-\sigma)} - e^{-2a(z-\sigma)}) \quad (1.5)$$

Avec $E_{liaison}$, l'énergie de liaison, σ la distance d'équilibre de la liaison et $a = \sqrt{k_e / 2E_{liaison}}$ où k_e est

la constante de force au minimum du potentiel. Nous pouvons illustrer ces forces à courte portée par le schéma 1.5, où nous nous plaçons à l'échelle atomique au niveau du contact entre une pointe et un échantillon.

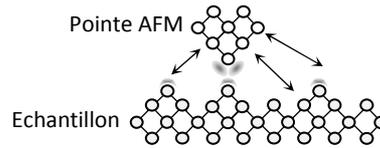


Fig. 1.5 : Schéma d'une pointe AFM proche d'une surface à l'échelle atomique. Des forces à courte (zones grisées adjacentes) et à longue portée (flèches) apparaissent.

Les forces chimiques agissent lorsque les orbitales électroniques des atomes de la pointe et du matériau se rejoignent (zones grisées) tandis que les forces à plus longue portée (flèches) proviennent des interactions entre la pointe (volume et surface) et l'échantillon. ^[Giessibl2003]

- *Les forces de Van der Waals :*

A plus longue portée, les forces de Van der Waals exercent leur influence en attirant le cantilever. Ces forces sont causées à la fois par les fluctuations dans le moment dipolaire électrique des atomes ainsi que dans leur polarisation mutuelle. Pour deux atomes séparés par une distance z , l'énergie due à l'interaction de Van der Waals va varier en $1/z^6$ ^[Feinberg1970]. En négligeant l'aspect discret de la matière pour éviter de prendre en compte les atomes un à un, il est possible d'intégrer sur un volume les interactions de Van der Waals entre deux solides macroscopiques par l'approche de Hamaker ^[Hamaker1937]. Cependant cette modélisation n'est valable que pour une distance limitée à quelques dizaines de nanomètres. Ainsi pour une pointe sphère faisant face à un solide plan, le potentiel de Van der Waals est donné par ^[Israelachvili1991]:

$$V_{vdW} = -\frac{A_H R}{6z} \quad (1.6)$$

Avec A_H la constante de Hamaker qui dépend du type de matériau (densité et polarisabilité atomique), R le rayon de courbure de la pointe et z la distance entre la pointe et l'échantillon. Pour la plupart des interactions A_H est d'environ 1eV, donc puisque le rayon de courbure d'une pointe standard est de l'ordre de 50nm, en nous plaçant à 0.5nm, nous trouvons une énergie de -17eV, et donc une force de Van der Waals d'environ - 5 nN ce qui est l'ordre de grandeurs des plus faibles forces imposées par l'instrument pour maintenir le contact. Ce sont donc des forces qui ont une influence importante dans le comportement du microscope à force atomique.

- *Les forces de capillarité :*

En dehors d'un environnement sous vide, il est pratiquement inévitable qu'un ménisque d'eau se forme entre la pointe et la surface du solide comme le montre le schéma suivant (fig 1.6). La force produite par cette condensation va s'exercer en particulier lors du retrait de la pointe et devient généralement suffisamment importante pour modifier grandement la courbe d'approche du cantilever. En mode contact résonant, ce phénomène aura pour effet d'ajouter de l'amortissement aux vibrations acoustiques ce qui diminue de manière dommageable le facteur qualité des pics de résonances acoustiques comme l'illustre chapitre 2.

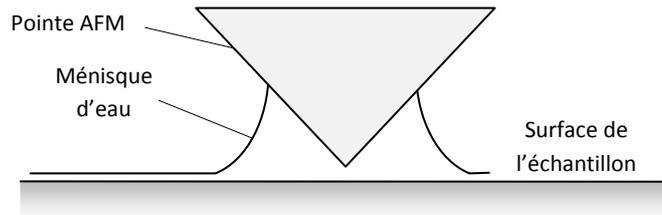


Fig.1.6 : Schéma du ménisque d'eau se formant autour de la pointe AFM

- Les forces électrostatiques :

Lorsque le cantilever et l'échantillon sont tous les deux conducteurs et que la différence du potentiel électrostatique n'est pas nulle, il devient nécessaire de prendre en compte les forces électrostatiques. Ainsi, pour une pointe sphérique, il est possible de modéliser la force électrostatique ^[Law2002a] :

$$F_{\text{électrostatique}}(z) = -\frac{\pi\epsilon_0 R U^2}{z} \quad (1.7)$$

Avec U la différence de potentiel, R le rayon de courbure de la pointe, z la distance entre la pointe et l'échantillon et ϵ_0 la permittivité du vide. Pour U = 1V , R = 50 nm, z = 0.5 nm, nous trouvons $F_{\text{elec}} \approx - 2.5\text{nN}$ ce qui montre l'influence de cette force qui va demeurer importante même à longue portée.

- Les forces magnétiques :

Forces à longue portée, elles sont présentes uniquement lorsque le matériau possède des propriétés magnétiques et donc un champ extérieur démagnétisant (« stray field »). Lorsqu'elles sont présentes, les forces magnétiques entre la pointe et la surface s'expriment ainsi :

$$\vec{F} = \mu_0(\vec{m} \cdot \nabla)\vec{H} \quad (1.8)$$

Cette équation se compose du moment magnétique de la pointe \vec{m} , de \vec{H} , le champ magnétique provenant de la surface du matériau, et μ_0 la perméabilité du vide. La mesure de ces forces a abouti à la mise au point d'un mode de microscopie spécifique dérivé de l'AFM, le microscope à force magnétique ^[Martin1987a].

La force de répulsion quant à elle ne devient majoritaire qu'à courte portée (de l'ordre de grandeur des rayons atomiques). D'origine électrostatique, elle prend naissance lorsque les nuages électroniques des atomes entrent en contact. Ainsi lorsque la distance diminue, les électrons périphériques portés par les atomes de la pointe et de la surface se repoussent. En effet, même si l'espace occupé par un atome est pratiquement vide, avec la mécanique quantique nous savons que les trajectoires d'électrons d'atomes voisins ne peuvent pas s'imbriquer. Les électrons ne peuvent

occuper qu'un certain nombre d'orbitales définies et chaque orbitale ne peut accepter qu'un nombre fini d'électrons (principe d'exclusion de Pauli). Pour déterminer la valeur de la force de répulsion, il faut reprendre l'équation Coulombienne et se placer dans le cadre d'une force répulsive.

Il est à noter qu'en mode contact, l'asservissement de l'AFM maintient le cantilever suffisamment défléchi pour que ce dernier reste dans le domaine répulsif. En effet, les variations de la réponse du levier dans ce domaine restent linéaires, condition sine qua none pour réaliser des mesures quantitatives. D'autre part, si la force maintenant le contact est trop faible, le cantilever peut facilement décrocher de la surface en sortant du domaine répulsif.

Le nombre important de forces pouvant être mise en jeu entre une pointe AFM et une surface ouvre un large champ d'application dans le domaine de la caractérisation des propriétés des matériaux (viscoélastique, électrostatique, magnétique, chimique).

1.1.2.2. Détail du fonctionnement de l'AFM

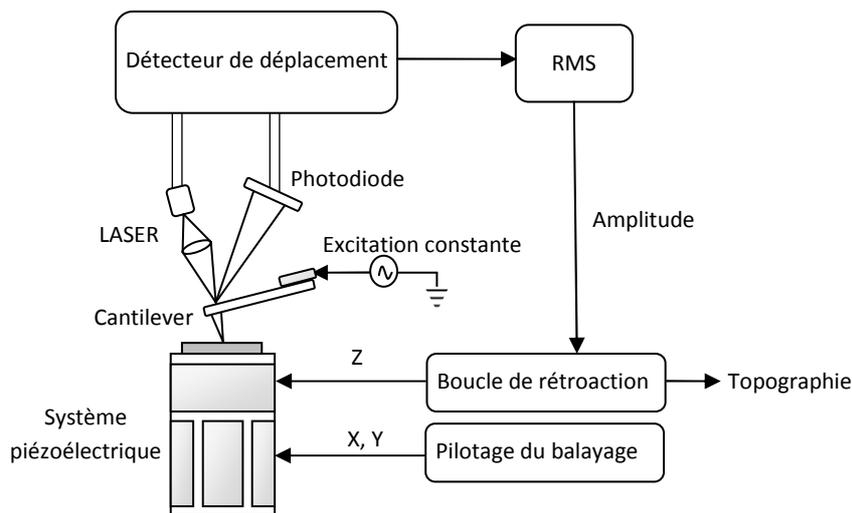


Fig. 1.7 : Schéma d'un microscope à force atomique en mode « tapping »

La figure 1.7 présente un schéma condensé d'un microscope à force atomique, dans le mode oscillant « tapping ». Cette représentation va nous permettre de nous éloigner de l'étude minutieuse des interactions pointe-échantillon, pour nous intéresser de plus près à l'architecture du microscope.

Élément central de la microscopie en champ proche, le système piézoélectrique contenant des transducteurs en céramique permet d'assurer le balayage en surface de l'échantillon (plan x, y) avec une précision nanométrique tout en contrôlant finement la position verticale du cantilever (hauteur z). Cependant, les transducteurs présentent des défauts d'hystérèse qui, s'ils ne sont pas pris en compte, entament la précision de positionnement. Des solutions ont été développées pour y remédier comme, dans notre cas, l'adoption d'une table piézoélectrique PI 733 intégrant un système de jauge capacitive permettant une recalibration constante (boucle fermée). Mais de base, le microscope que nous avons utilisé, un Veeco Dimension 3100, en est dépourvu ; si son tube

piézoélectrique permet de balayer une aire de $100 \mu\text{m}^2$ avec des variations maximales de hauteur de $7\mu\text{m}$, il est incapable de revenir précisément sur une position donnée.

Le cantilever constitue l'autre composant clé de ce type de microscope, comme nous l'avons déjà vu, car c'est ce dernier qui se déforme sous l'effet des interactions entre sa pointe et la surface d'un matériau. Pour cela, les leviers se doivent d'être souples verticalement et rigides suivant les deux autres axes, ce qui explique leur forme particulière, avec une épaisseur très fine (fig. 1.8).

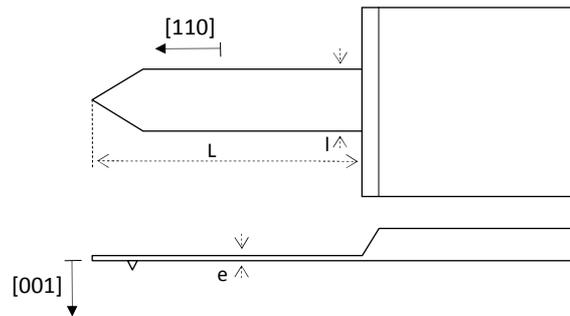


Fig. 1.8 : Vue du dessus et de profil d'un cantilever typique en silicium.

Suivant la constante de raideur du cantilever, une gamme de forces plus ou moins intenses allant du dixième de nano-Newton à plusieurs micro-Newtons sera mesurable. Le mode d'utilisation est ainsi déterminant dans le choix des cantilevers. Un levier utilisé en mode contact doit ainsi avoir une rigidité inférieure à la constante de raideur interatomique d'atomes dans un solide, soit moins que 10 N/m ^[Rugar1990], sans quoi les mesures ne seront pas correctes. En mode oscillant, il est au contraire possible d'utiliser des cantilevers beaucoup plus rigides afin de réduire le bruit et d'augmenter la stabilité ^[Giessibl1999]. La constante de raideur des cantilevers est donc une grandeur d'importance pour la microscopie AFM. Elle est généralement fournie par le fabricant mais il est également possible de la calculer de manière approchée pour un levier rectangulaire de dimension (L, l, e) et du module d'Young connu grâce à la formule suivante ^[Thundat1993] :

$$k_c = \frac{E l e^3}{4 L^3} \quad (1.9)$$

La fréquence de résonance fondamentale en flexion peut également être déterminée de façon semblable en connaissant la densité ρ du matériau composant le cantilever ^[Chen1993] :

$$f_0 = 0.162 \frac{e}{L^2} \sqrt{\frac{E}{\rho}} \quad (1.10)$$

En plus de la rigidité k_c , et de fréquence propre f_0 , un cantilever possède d'autres caractéristiques notables comme la composition chimique et géométrique de la pointe ou le facteur qualité. Ce dernier dépend fortement des mécanismes d'amortissement qui s'exercent sur le cantilever et en particulier de son environnement. A l'air ambiant, il est ainsi courant d'obtenir des facteurs de qualité allant d'une dizaine à quelques centaines, tandis que sous vide, il est possible d'atteindre des centaines de milliers ^[Giessibl2003].

Des premiers cantilevers constitués d'un diamant monté sur un levier en or ^[Binnig1986] aux leviers que nous connaissons, de nombreux matériaux et architectures différentes ont été mis au point. Le silicium s'est malgré tout imposé ^[Akamine1990] rapidement comme matériau de référence en raison de l'importante dynamique industrielle dont il bénéficie (lithographie...). Les technologies telles que les micromachines ont ainsi permis la mécanisation de la production de cantilever sans pour autant perdre en précision.

Principalement employés pour le mode tapping, les cantilevers en silicium sont aujourd'hui généralement fabriqués suivant le même plan ^[Wolter1991] : rectangulaires avec une pointe orientée suivant le plan cristallographique [001]. L'autre grande famille de cantilevers, constitués de nitrure de silicium voire de diamant, est connue pour son aspect en V caractéristique (fig. 1.9). Ces leviers aux constantes de raideur faibles souvent inférieures à 1N/m sont principalement utilisés pour le mode contact où la sensibilité aux faibles forces devient capitale.

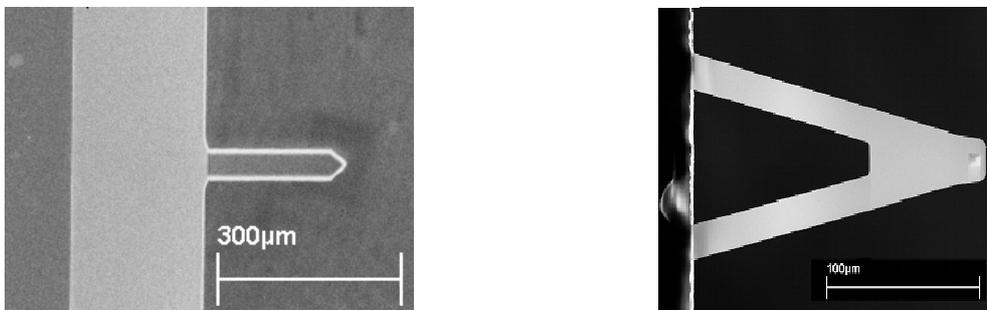


Fig. 1.9 : Image MEB d'un cantilever en silicium (gauche) et en diamant (droite)

Enfin, pour terminer cette description du microscope à force atomique, nous nous intéressons au système assurant la détection de la déflexion du cantilever. Comme pour ces derniers, différentes solutions ont été proposées. La première combinait ainsi l'AFM à un microscope à effet tunnel qui suivait la variation du champ électrique grâce à sa pointe STM positionnée à la verticale du cantilever ^[Binnig 1986]. Ce montage assez laborieux a rapidement remplacé différents appareils de mesure comme l'interféromètre ou le capacimètre, mais c'est finalement un autre système qui s'est imposé : celui utilisant la réflexion d'un faisceau LASER (figure 1.10) ^[Marti1999].

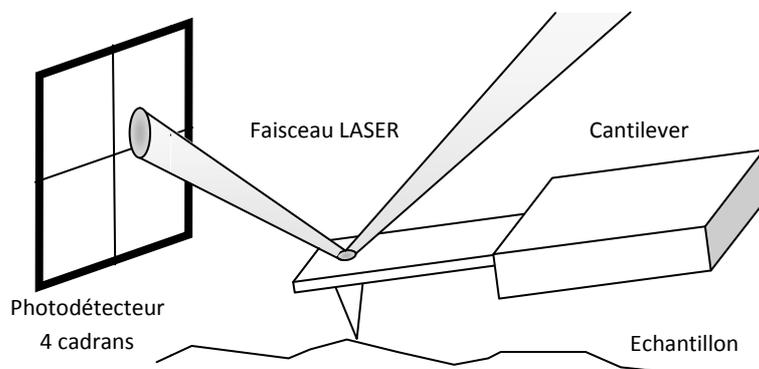


Fig. 1.10 : Représentation d'un montage AFM utilisant la méthode de détection de la déflexion du cantilever par LASER.

Dans ce cas, le rayon LASER est focalisé sur le dos du cantilever et le faisceau réfléchi est ensuite détecté par une photodiode. Ce photodétecteur est séparé en quatre parties indépendantes ou « cadrans » qui génèrent un courant proportionnel à l'intensité du faisceau incident. A l'équilibre, la tâche LASER est ajustée pour se situer au centre de la photodiode de façon à ce que les quatre sections mesurent la même intensité. En revanche, lorsque le cantilever se défléchi verticalement, le faisceau incident va se décaler et affecter davantage certains cadrans. C'est cette différence de signal entre les cadrans du haut et ceux du bas qui va nous permettre de suivre les variations de déflexion du cantilever. La présence de quatre sections permet même de mesurer à la fois les mouvements de flexion verticale mais aussi de torsion latérale. Il est à noter qu'en fin de compte, ce que la photodiode mesure, c'est la pente du cantilever au niveau du spot LASER réfléchi. La déflexion réelle du cantilever dépend donc du positionnement du faisceau incident sur le levier, c'est pourquoi l'opérateur de l'AFM cherche toujours à le placer à l'aplomb de la position de la pointe. Il y aura donc toujours une légère incertitude sur la position en Z du cantilever, ce qui ne sera réellement dommageable que pour des mesures spécifiques à forces fixées, comme nous le constaterons par la suite.

En définitif, le microscope à force atomique apparaît comme un instrument scientifique remarquable permettant d'obtenir des images tridimensionnelles à l'échelle nanométrique. Pour imager des matériaux aussi divers que des polymères, des diélectriques ou même des cellules vivantes, il ne nécessite aucun traitement destructif des échantillons ; et il peut fonctionner à l'air ambiant ou en milieu liquide. Comme pour tout microscope, il présente également des limitations, et nous pouvons citer sa vitesse d'acquisition, la taille de la zone accessible une fois la pointe engagée, l'hystérèse des piézoélectriques ou l'apparition d'artéfacts dus à la pointe. Malgré ces quelques défauts, l'AFM demeure une technique de caractérisation majeure qui a ouvert la voie à d'innombrables développements qui sont toujours actuellement en pleine effervescence. Le mode contact résonant est l'une de ces évolutions, et comme nous allons le découvrir, son essor lors des dernières décennies est ininterrompu ^[Veeco2004].

I.1.3. Les différents modes de microscopes acoustiques à champ proche

Rapidement après la mise au point du microscope à force atomique est venue l'idée de tirer parti de son extraordinaire pouvoir séparateur dans le cadre de la spectrométrie acoustique. Accéder à des résolutions inférieures au micromètre pour des images acoustiques est alors devenu envisageable. Plusieurs voies ont été explorées par différentes équipes dans le monde, et nous en verrons les principales dans les paragraphes qui suivent.

1.1.3.1. Le mode ultrasonique (UFM)

Premier microscope acoustique à champ proche à avoir été mis au point en 1993 ^[Kolosov1993] ^[Yamanaka1994], il associe un transducteur piézoélectrique au microscope à force atomique (fig. 1.11). Ce dernier ne subit aucune modification, et se place simplement en contact avec la surface de l'échantillon lors de la mesure. Placé sous l'échantillon, le transducteur est alimenté par un générateur de fonction. L'onde acoustique générée a une fréquence d'excitation très grande, de l'ordre du mégahertz voire même du gigahertz. L'idée est de travailler à des fréquences très supérieures à celle de résonance fondamentale du cantilever et de détecter la non linéarité de l'interaction pointe surface. Il s'agit simplement du fait que suivant la force qui est imposée sur le cantilever en contact, ce dernier travaillera dans le domaine attractif ou répulsif. Rapidement, il apparut que ce type de microscope était à même d'être sensible aux propriétés élastiques de surfaces et de détecter également des défauts en subsurface ^[Yamanaka1994] ^[Kolosov1996].

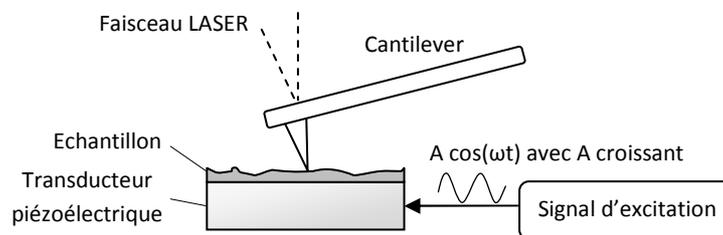


Fig. 1.11 : Schéma de principe de l'UFM (Ultrasonic Force Microscope)

Dans cette configuration comme pour les suivantes, la distance entre la pointe et la surface de l'échantillon est maintenue de façon à rester dans le domaine répulsif. Le circuit d'asservissement de l'AFM assure cette tâche en modifiant la hauteur du piézoélectrique en z de façon à garder la déflexion verticale du cantilever constante. Les données traduisant les déplacements du cantilever verticalement comme latéralement sont enregistrées.

L'UFM va appliquer une excitation acoustique à fréquence fixée et d'amplitude croissante. La réponse à la fréquence du cantilever va être négligeable et ne va dépendre que de l'amplitude de l'oscillation imposée (fig. 1.12). Dans un premier temps, les oscillations produites maintiennent le cantilever dans le domaine répulsif (voir la courbe force-distance précédemment), la force moyenne exercée sur le contact va donc varier au cours du temps. Puis à une certaine valeur de l'amplitude, cette force supplémentaire va provoquer la sortie du domaine répulsif, et un saut du cantilever qui va le décrocher de la surface (« jump force »). La valeur critique pour laquelle l'amplitude d'excitation va provoquer ce saut dans la réponse dépend des forces d'adhésion, de la friction et des propriétés mécaniques de l'échantillon. ^[Dinelli2000]

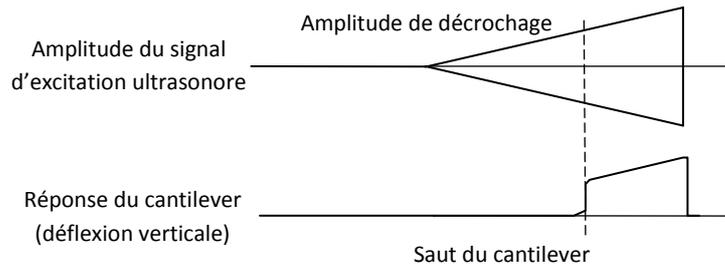


Fig. 1.12 : Amplitude d'excitation de l'UFM et réponse du cantilever

L'image topographique classique est enregistrée conjointement à l'image ultrasonore qui provient de l'amplitude de la première harmonique de la réponse du levier. Son contraste dépend des paramètres cités précédemment, dont les contributions sont difficiles à dissocier. ^[Dupas2000]

1.1.3.2. Le mode hétérodyne (HFM)

Evolution du mode précédent par la même équipe d'Oxford ^[Cuberes2000], ce microscope reprend le montage précédent avec un transducteur placé sous l'échantillon mais y ajoute un transducteur à la base du levier (fig. 1.13). Deux ondes acoustiques sont donc envoyées sur le contact, de fréquence élevée, analogues à celles utilisés pour l'UFM (du MHz au GHz). Leur amplitude est suffisamment forte pour couvrir le domaine non linéaire de l'interaction pointe-échantillon. Cependant, la différence de fréquence entre les deux ondes doit être faible, de l'ordre de quelques kilohertz, ce qui est très en deçà de la fréquence de résonance du cantilever. Ceci produit un phénomène de battement, c'est à dire que le cantilever va vibrer en fonction de la différence des fréquences d'excitation. Ces oscillations, situées dans les limites de détection de la photodiode, peuvent être enregistré (phase et amplitude) et traité par un détecteur synchrone.

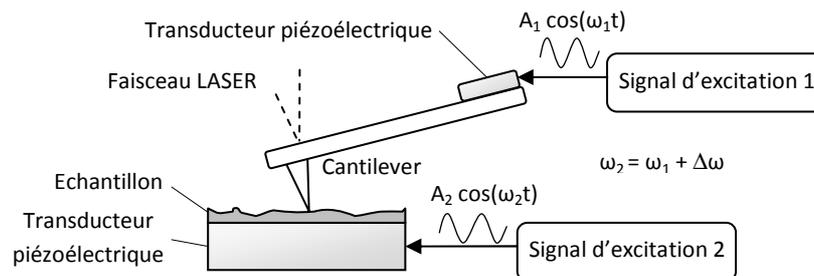


Fig. 1.13 : Schéma de principe de l'HFM (Ultrasonic Force Microscope)

Lorsqu'une image acoustique est réalisée avec ce système, les contrastes observés dépendent des variations du module élastique et des propriétés d'adhésion comme dans le cas de l'UFM. Il est par contre possible avec cette technique, de suivre l'évolution du différentiel de phase entre les vibrations transmises via la pointe et via l'échantillon avec une très grande précision temporelle. Ainsi la moindre variation des propriétés de surface vont entrainer une nette fluctuation de l'écart entre les deux phases. Il est ainsi possible de suivre la dynamique d'un processus de relaxation d'une section de solide avec une précision temporelle de l'ordre de la nanoseconde ^[Shekhawat2005].

Ce microscope a fait l'objet de développements récents, sous le nom de RDF – AFM, ou microscope AFM à différence de fréquences résonantes ^[Cantrell2007] ^[Cantrell2008]. Sous ce nom abscon, nous retrouvons en réalité le montage précédent à ceci près que dans ce dernier, la différence entre les deux fréquences d'excitation est ajustée pour être de l'ordre de la fréquence de résonance du cantilever employé. La réponse obtenue sera alors amplifiée, ce qui permettra de détecter des variations plus faibles.

1.1.3.3. Le mode contact résonant (CR-AFM) : l'AFAM et l'UAFM

La dernière famille de mode acoustique que nous allons voir, a pour point commun d'être des microscopes AFM utilisant les fréquences de résonance en contact (CR – AFM), désignation reprise par les derniers travaux publiés sur le sujet par le NIST ^[Stan2008] ^[Stan2009].

Le microscope acoustique à force atomique (AFAM) est ainsi l'un des premiers instruments de ce type, mis au point en 1994 à Saarbruecken ^[Rabe1994] ^[Rabe1996]. A l'instar de l'UFM, il utilise un transducteur piézoélectrique placé sous l'échantillon pour générer une onde acoustique longitudinale (fig. 14). Cependant, il ne module pas l'amplitude de l'excitation, mais plutôt maintient celle-ci fixée et suffisamment réduite pour que les interactions entre la pointe et la surface de l'échantillon demeurent linéaires. Dans le même dessein, la force maintenant le contact dans le domaine répulsif est fixée pour excéder les forces d'adhésion sans pour autant provoquer une déformation plastique du contact.

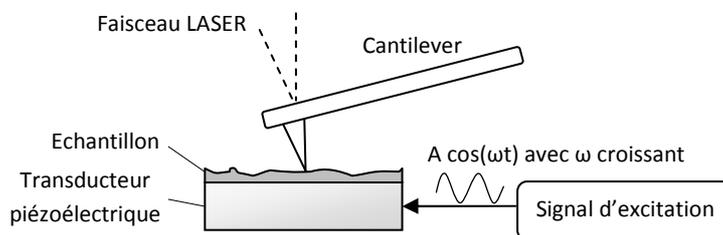


Fig. 1.14 : Schéma de principe de l'AFAM et de (Microscope Acoustique à Force Atomique)

En revanche, le signal d'excitation va être modulé en fréquence pour couvrir une plage allant de quelques kilohertz à plusieurs MHz. Le signal de sortie est analysé par un détecteur synchrone qui va isoler la réponse du cantilever permettant ainsi la construction d'un spectre reportant l'évolution de l'amplitude de la réponse en fonction de la fréquence de l'excitation (fig. 1.15). A certaines fréquences, le cantilever en contact va entrer en résonance augmentant drastiquement l'amplitude de sa réponse. La plage choisie pour le balayage en fréquence assure généralement de relever les positions en fréquence d'au moins deux pics de résonance en flexion qui peuvent être reliés de manière quantitative au module élastique de la surface étudiée ^[Hurley2007].

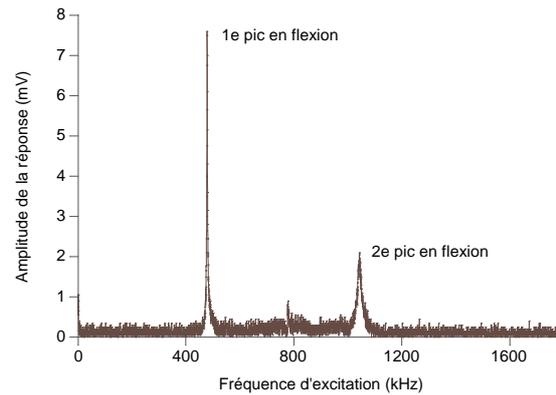


Fig. 1.15 : Spectre de la réponse fréquentielle AFAM pour un dépôt de 27nm de silice sur du silicium (voir chapitre III)

Réaliser une image acoustique ou image en mode contact résonant nécessite généralement d'imposer au système une fréquence d'excitation fixée. Pendant que la surface de l'échantillon est scannée, une sortie du détecteur synchrone est injectée sur une entrée auxiliaire du microscope AFM, digitalisée et affichée sous la forme d'une image avec une échelle de couleur ^[Rabe2000]. L'image topographique classique est recueillie simultanément avec l'image acoustique comme l'illustre les images ci-dessous réalisées pour une étude sur des échantillons de chêne ^[Clair2003]. Les contrastes présents sur l'image acoustique à droite délimitent clairement les différentes zones présentes dans les cellules du bois (fig. 1.16).

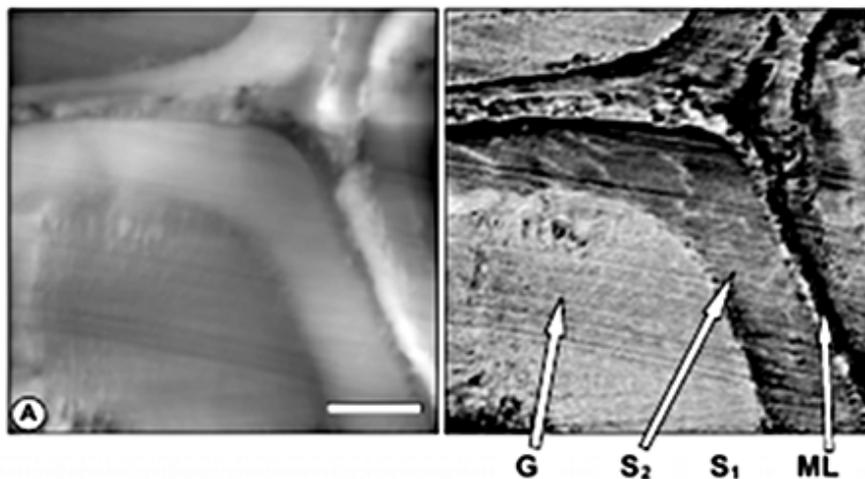


Fig. 1.16 : Membranes cellulaires d'un échantillon de bois (chêne). Echelle = 2 μ m. A gauche, l'image topographique, et à droite, l'image en mode contact résonant pour une fréquence d'excitation de 620 kHz.

De façon analogue, une équipe japonaise a conçu en 1996 un microscope reposant sur un principe semblable : le microscope ultrasonore à force atomique (UAFM) comme l'illustre la figure suivante (fig. 1.17).

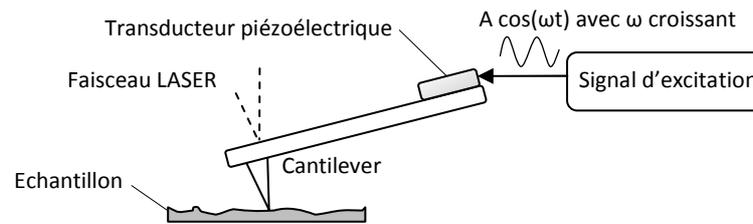


Fig. 1.17 : Schéma de principe de l'UAFM (Microscope Ultrasonore à Force Atomique)

Il reprend le principe du balayage en fréquence utilisé pour l'AFAM, mais au lieu d'exciter le contact pointe-surface via un transducteur placé sous l'échantillon, il utilise le transducteur piézoélectrique intégré à la porte pointe. Ce dernier va transmettre des oscillations sur une plage de fréquence de 0.1 à 10 MHz, directement au cantilever et ainsi relever plusieurs pics de résonance d'harmonique élevés. L'amplitude de vibration reste très faible ($< 0.1\text{nm}$), ce qui permet de maintenir constamment la force de contact à une valeur très faible ($< 0.1\text{nN}$). La multiplication du nombre de mode de résonance extrait par cette technique permet d'améliorer la précision sur les valeurs calculées du module élastique, mais nécessite une photodiode et une électronique adaptées, capables de supporter ces hautes fréquences ^[Yamanaka1996].

Au final, cette famille d'instruments s'avère l'une des plus prometteuses pour la microscopie acoustique en champ proche de par ses possibilités et ses développements récents. Constituant la base de nos propres montages, nous allons l'étudier plus en avant, et tout d'abord, au niveau du comportement mécanique.

1.2. Les bases théoriques du mode contact résonant

La mode contact résonant en champ proche utilise la propagation d'une onde sinusoïdale au niveau du contact cantilever - solide pour obtenir des informations sur les propriétés mécaniques locales de la surface étudiée. Pour cela, les différents systèmes enregistrent la réponse en amplitude du cantilever (et la phase) qui va osciller plus ou moins sous l'effet de la vibration excitatrice. Ces variations sont relevées par la photodiode et ensuite traitées, généralement par détection synchrone.

Pour notre part, suite au choix pour nos montages de microscopes CR-AFM, nous nous intéressons aux fréquences des pics de résonance du cantilever en contact afin de relier ceux-ci au module élastique du matériau étudié. Pour cela, nous avons besoin d'étudier la cinématique des cantilevers.

1.2.1. Première approche de la modélisation du mouvement d'un cantilever oscillant

Depuis la mise au point des premiers microscopes à résonance de contact, de nombreux modèles ont été développés afin de relier le comportement du cantilever aux données physiques qui nous

préoccupe. Nous présenterons ici les plus basiques et verrons les raisons qui ont conduit à les améliorer ^[Rabe2006].

1.2.1.1. Le modèle masse-point

Pour décrire le plus simplement possible les modes de flexion d'un cantilever libre, il est trivial d'assimiler ce dernier est à un oscillateur harmonique (fig. 1.18).

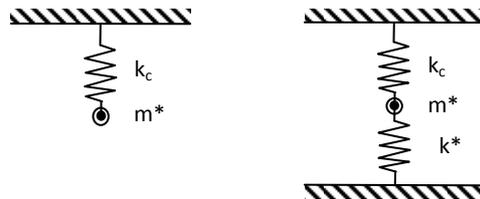


Fig. 1.18 : Modèle masse point : cas libre (gauche) et en contact (droite)

En se plaçant donc dans le cadre d'un modèle masse-point, il est possible d'en ajuster les paramètres physiques de façon à ce que la fréquence de résonance de l'oscillateur harmonique considéré (f_0) soit la même que la première fréquence de résonance de la poutre ($f_{1,libre}$) :

$$f_{1,libre} = \sqrt{\frac{k_c}{m^*}} = f_0 \quad (1.11)$$

Pour déterminer la constante de raideur du cantilever k_c nous reprenons l'équation que nous avons établie pour un cantilever rectangulaire de longueur L , tandis que la masse effective m^* est approchée ainsi ^[Rabe1996] :

$$m^* = \frac{k_c}{f_{1,libre}^2} \approx \frac{1}{4} m \quad (1.12)$$

Avec m la masse réelle du cantilever. Le mouvement du levier encastré d'un côté et libre de l'autre ($x=L$) peut être décrit par l'équation du mouvement d'un système masse-point m^* :

$$m^* \ddot{y}(L, t) + k_c y(L, t) = 0 \quad (1.13)$$

Les interactions entre la pointe du cantilever et la surface de l'échantillon localisé en $x = L$ peuvent s'assimiler à un nouveau ressort de constante de raideur k^* qui va modifier la fréquence de résonance du système ainsi ^[Burnham1996] :

$$f_{masse-point} = \sqrt{\frac{k^* + k_c}{m^*}} = f_0 \sqrt{1 + \frac{k^*}{k_c}} \quad (1.14)$$

Ce modèle constitue une première approche pour prévoir le comportement d'un microscope à force atomique à résonance de contact. Néanmoins il a été démontré qu'il s'avère incapable de réaliser des prévisions correctes quantitatives des fréquences et des amplitudes de résonance lorsque la constante de raideur du contact était égale ou supérieure à celle du cantilever [Truner1997]. D'autre part, il ne peut déterminer que la position de la première résonance. Pour toutes ces raisons, nous allons nous intéresser à des modèles plus complets.

1.2.1.2. La poutre à section rectangulaire

Rechercher des modèles plus réalistes induit de la complexité qui rend parfois le passage à des simulations par éléments finis obligatoire comme dans le cas des cantilevers triangulaires [Louarn2008]. Or, dans notre cas, il est tout à fait possible de garder une approche analytique relativement simple, basé sur des poutres élastiques à section rectangulaire uniforme.

- La poutre encastrée d'un côté, libre de l'autre :

Pour un tel cas, la littérature nous fournit de nombreuses références aussi bien dans le domaine de l'acoustique [Stokey1976] que de la microscopie à force atomique [Sarid1991] (fig. 1.19).

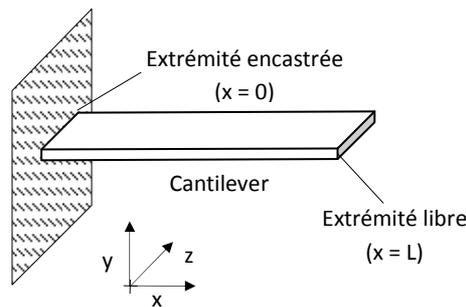


Fig. 1.19 : Modèle de la poutre encastrée : cas libre

L'équation du mouvement pour des vibrations en flexion d'une poutre rectangulaire, encastrée d'un côté et libre de l'autre, est :

$$EI \frac{\partial^4 y}{\partial x^4} + \rho A \frac{\partial^2 y}{\partial t^2} = 0 \quad (1.15)$$

Où E est le module d'élasticité du levier, ρ sa densité, A l'aire de sa section transversale et I est le moment d'inertie de la poutre. Il est à noter qu'ici nous négligeons tout amortissement, en particulier celui dû à l'air. D'autre part, le levier est considéré ici comme encastré d'un côté, donc fixé par une liaison infiniment rigide, alors qu'en réalité, il est tenu par le système de porte pointe, ce qui s'assimile à une liaison ressort.

Si nous voulons aller plus loin, il nous faut préciser quelques termes. Ainsi, l'aire de la section étant assimilé à un rectangle homogène, il s'agit simplement du produit de la largeur (l) et de l'épaisseur

(e) du levier. Le moment d'inertie I de cette même section est $I = \frac{le^3}{12}$ et x est la coordonnée longitudinale du cantilever dont la direction est indiquée sur la figure. A la position x , nous avons : $y(x)$ correspond à la position du levier à cet endroit, $\frac{\partial y}{\partial x}$ la déflexion, $EI \frac{\partial^2 y}{\partial x^2}$ le moment de torsion, et $EI \frac{\partial^3 y}{\partial x^3}$ la force de cisaillement.

La solution générale à l'équation est du type :

$$y(x, t) = (a_1 e^{\alpha x} + a_2 e^{-\alpha x} + a_3 e^{i\alpha x} + a_4 e^{-i\alpha x}) e^{i\omega t} \quad (1.16)$$

Si nous prenons le nombre d'onde $\alpha = 2\pi/\lambda$, et la fréquence angulaire $\omega = 2\pi f$ et que nous insérons l'équation (1.16) dans l'équation (1.15), nous obtenons la relation de dispersion suivante :

$$EI\alpha^4 - \rho A\omega^2 = 0 \quad (1.17)$$

Avec a_i ($i = 1,2,3,4$) des constantes.

D'autre part, puisque le cantilever est de longueur finie L , les conditions aux limites doivent être vérifiées par les solutions de l'équation (1.17). Dans notre cas, il s'agit d'un levier encastré d'un côté et libre de l'autre, la déflexion et la pente doivent être nulles à l'extrémité encastrée ($x = 0$) tandis qu'à l'autre ($x = L$), libre, il ne peut y avoir ni moment, ni force de torsion :

$$x = 0 \rightarrow \begin{cases} y = 0 \\ \frac{\partial y}{\partial x} = 0 \end{cases} \quad \text{et} \quad x = L \rightarrow \begin{cases} \frac{\partial^2 y}{\partial x^2} = 0 \\ \frac{\partial^3 y}{\partial x^3} = 0 \end{cases} \quad (1.18)$$

Les solutions générales et leurs dérivées sont insérées dans cette équation. Les quatre équations résultantes peuvent être résolues pour des coefficients a_i , seulement si l'équation caractéristique suivante est respectée :

$$\cos \alpha_n L \cosh \alpha_n L + 1 = 0 \quad (1.19)$$

Les solutions $\{\alpha_n L, n = 1,2,\dots\}$ de cette équation nous donne les nombres d'ondes α_n pour un nombre infini de modes de vibrations en flexion, où n nous donne le numéro désignant le mode. Avec un script rudimentaire, il d'ailleurs possible de calculer numériquement ces racines, ce que nous avons fait sous Scilab ^[script simulation libres] pour les premières :

$$(\alpha_n L)_{\text{libre}} \rightarrow \begin{cases} \alpha_{1,l} L = 1.87510 \\ \alpha_{2,l} L = 4.69409 \\ \alpha_{3,l} L = 7.85476 \end{cases} \quad (1.20)$$

A partir de ces résultats, il est possible en reprenant l'équation de dispersion (1.17) de calculer la fréquence de résonance f_n correspondant au nombre d'onde α_n :

$$f_n = \frac{(\alpha_n L)^2}{2\pi} \frac{1}{L^2} \sqrt{\frac{EI}{\rho A}} \quad (1.21)$$

Il est alors possible de déterminer des rapports entre les différentes fréquences, ce qui peut être précieux lorsque nous cherchons à identifier des pics expérimentaux libres. Ainsi nous déterminons que :

$$\frac{f_n}{f_{1,libre}} = \frac{(\alpha_n L)^2}{(\alpha_{n,l} L)^2} \rightarrow \begin{cases} \frac{f_{2,l}}{f_{1,l}} = 6.27 \\ \frac{f_{3,l}}{f_{1,l}} = 17.55 \end{cases} \quad (1.22)$$

Enfin, la déflexion de chaque mode peut être décrite par l'équation suivante sachant que y_0 correspond à l'amplitude de la vibration :

$$y_n(x) = y_0 \left((\cos \alpha_n x - \cosh \alpha_n x) - \frac{\cos \alpha_n L + \cosh \alpha_n L}{\sin \alpha_n L + \sinh \alpha_n L} (\sin \alpha_n x - \sinh \alpha_n x) \right) \quad (1.23)$$

Ce modèle pour une poutre libre permet d'obtenir déjà des informations pertinentes pour la CR-AFM, comme la position relative des fréquences de résonance qui se retrouve plutôt bien expérimentalement ^[Rabe1996]. Pour poursuivre, nous allons désormais placer ce modèle dans des situations en contact.

- *La poutre encadrée d'un côté, en contact de l'autre :*

La prise en compte du contact revient à rajouter de nouvelles conditions limites au système précédent, et nous nous placerons dans deux situations : le cas d'un contact via un ressort et celui d'un contact via une pointe rigide (fig. 1.20).

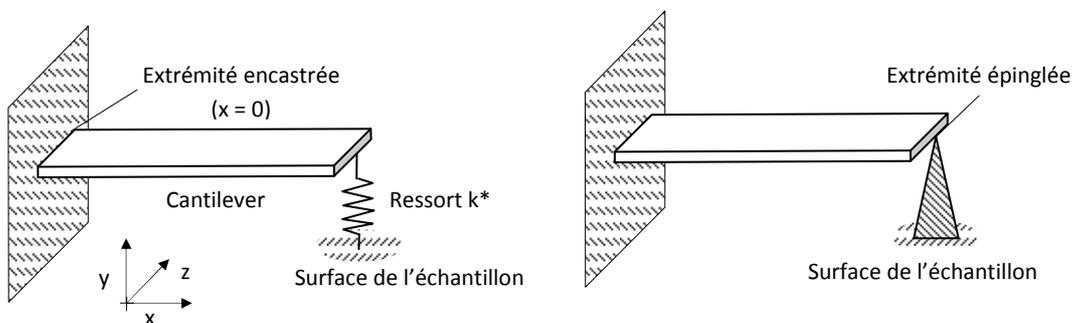


Fig. 1.20 : Modèle de la poutre encadrée en contact : contact via un ressort (gauche) ou une pointe (droite)

Plaçons nous d'abord dans le premier cas. Bien que les forces d'interactions entre le cantilever et la surface soient nettement non linéaires, il est possible d'assimiler ce contact à un ressort à condition que l'amplitude des vibrations du cantilever reste faible et que ce dernier reste proche de sa position d'équilibre. Dans ce cas, la force d'interaction F peut être linéarisée et exprimée sous la forme d'un ressort de raideur k^* (où k^* est la dérivée négative des forces cantilever-échantillon à la position d'équilibre ^[Rabe1994]).

$$k^* = - \left. \frac{\partial F(\xi)}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_e} \quad (1.24)$$

Avec ξ est la distance cantilever-échantillon, $F(\xi)$ la force d'interaction cantilever-échantillon, et ξ_e la position d'équilibre. Les forces qui s'exercent sur ce ressort sont répulsives lorsque le cantilever approche de la surface et attractives lorsqu'il s'en éloigne. Dans ce modèle, le cantilever est parallèle à la surface de l'échantillon, ce qui implique que les oscillations (flexion) sont normales à la surface, dans la direction ξ . Les forces agissant sur le cantilever sont considérées comme ponctuelles, et le cantilever reste parallèle dans sa position d'équilibre.

A partir de ce modèle simplifié, il est possible de reprendre l'équation (1.15) en y ajoutant en $x = L$ la condition limite correspondant au ressort symbolisant la rigidité du contact. Comme dans le cas libre, le ressort ne peut transférer aucun moment. Cependant, la déflexion y , elle, génère une force $-k^*y$ qui s'ajoute à la force de cisaillement $EI \frac{\partial^3 y}{\partial x^3}$:

$$EI \frac{\partial^3 y}{\partial x^3} - k^* y = 0 \quad (1.25)$$

Les conditions aux limites à $x = 0$ étant inchangées, celles à $x = L$ sont donc :

$$\frac{\partial^2 y}{\partial x^2} = 0, \quad \frac{\partial^3 y}{\partial x^3} = \frac{k^*}{EI} y = \frac{3k^*}{k_c L^3} y \quad (1.26)$$

Incorporons ces paramètres à l'équation (1.16) que nous écrivons sous une forme plus commode lorsque nous nous intéressons uniquement à l'amplitude locale (nous omettons la dépendance au temps) :

$$y(x) = A_1(\cos ax + \cosh ax) + A_2(\cos ax - \cosh ax) + A_3(\sin ax + \sinh ax) + A_4(\sin ax - \sinh ax) \quad (1.27)$$

Avec A_1, A_2, A_3, A_4 des constantes.

Maintenant si nous calculons l'équation caractéristique de la même façon que le cas libre, nous obtenons :

$$\sinh \alpha_n L \cos \alpha_n L - \sin \alpha_n L \cosh \alpha_n L = \frac{(\alpha_n L)^3 k_c}{3k^*} (1 + \cos \alpha_n L \cosh \alpha_n L) \quad (1.28)$$

Cette équation se réduit à l'équation 5 lorsque le ressort est infiniment rigide, alors que dans le cas opposé, lorsque $k^* = \infty$ qui correspond au cas du contact via une pointe, nous avons :

$$\sinh \alpha_n L \cos \alpha_n L - \sin \alpha_n L \cosh \alpha_n L = 0 \quad (1.29)$$

A partir de ces équations il est possible de calculer le rapport des fréquences de résonance en reprenant la formule utilisée pour le libre ^[Rabe2006] :

$$\frac{f_n}{f_0} = \frac{(\alpha_n L)^2}{(\alpha_{1,l} L)^2} \quad (1.30)$$

A l'aide d'un script Scilab ^[script courbes modèles], nous avons ensuite établi un graphique (fig. 1.21) nous montrant l'évolution des fréquences de résonance normalisées $\frac{f_{res}}{f_0}$ en fonction du rapport $\frac{k^*}{k_c}$ pour les deux modèles que nous avons présentés (le masse-point et celui basé sur une poutre rectangulaire élastique).

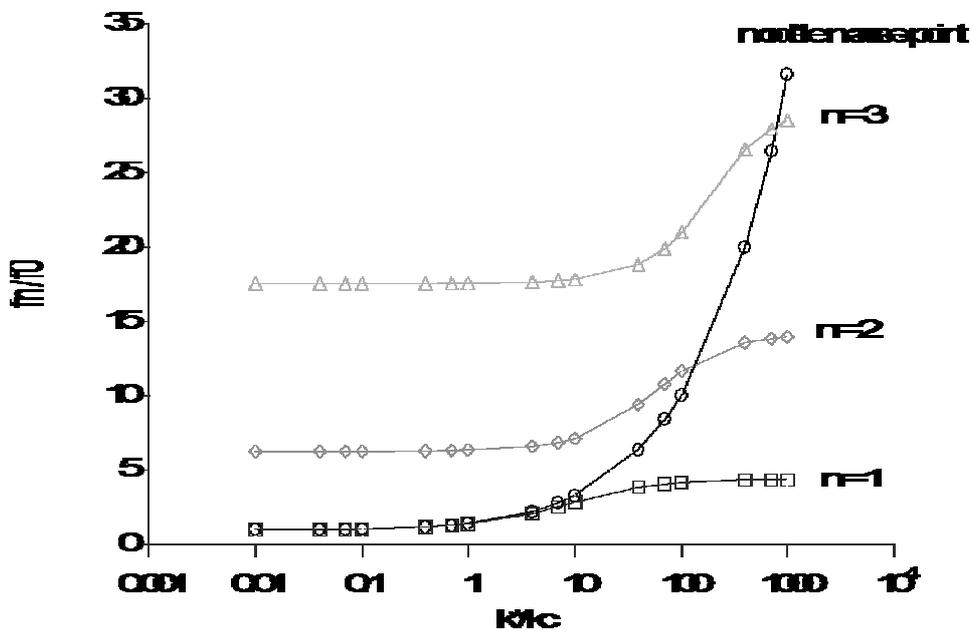


Fig. 1.21 : Comparaison des différents rapports de fréquences obtenus suivant la valeur de k^*/k_c pour le modèle masse point et le modèle de la poutre rectangulaire avec pour ce dernier f_1/f_0 , f_2/f_0 et f_3/f_0

Au final, il apparait que si la constante de raideur entre le cantilever et l'échantillon est moins importante que celle du cantilever, soit $k^* < k_c$ alors le modèle masse point et le modèle de la poutre

élastique sont corrélés. Cependant lorsque $k^* > k_c$, k_c devient négligeable par rapport à k^* dans le modèle masse-point, et l'équation de la fréquence devient alors :

$$f_{m-p} \approx \sqrt{\frac{k^*}{m^*}} \quad (1.31)$$

Le système masse-point se comporte alors comme une simple masse ponctuelle m^* attachée à un ressort de rigidité k^* . Par contre, la poutre élastique, elle, continue de vibrer même quand elle est fixée par ses deux extrémités. Comme mentionné précédemment le modèle masse point est donc dépassé lorsque $k^* > k_c$.

Le modèle de la poutre à section rectangulaire s'approche de manière plus pertinente des résultats expérimentaux ^[Rabe 1996], mais cependant, même sous cette forme, il néglige de nombreux paramètres parmi lesquels nous pouvons citer le fait que la pointe du cantilever n'est pas située à son extrémité, que le cantilever forme un angle de 12° par rapport à la surface, ou que des phénomènes d'amortissement qui interviennent en réalité. Des modèles prenant en compte tous ces paramètres ont été également développés, nous parlerons brièvement de l'un d'entre eux que nous avons été amené à utiliser.

1.2.2. Un modèle plus proche du système réel

Le modèle présenté ici succinctement est une évolution du précédent basé sur une poutre rectangulaire élastique. Synthèse de plusieurs modèles, il prend en compte un maximum de paramètres tout en présentant l'avantage de rester analytique (fig. 1.22). En contrepartie, et comme nous allons le voir, il faut pour l'appliquer connaître précisément de nombreuses valeurs physiques et en particulier les dimensions du cantilever. ^[Dupas2000]

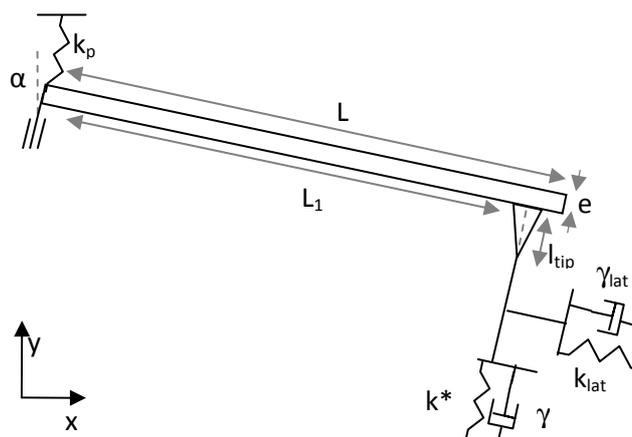


Fig. 1.22 : *Modèle évolué d'une poutre élastique rectangulaire en contact. Dans ce modèle est pris en compte l'inclinaison du cantilever, la position de la pointe ainsi que l'amortissement.*

Le cantilever est ici décrit comme une poutre rectangulaire de dimension connue (longueur L , largeur l , épaisseur e) et de masse donnée. La pointe est modélisée comme une pyramide de hauteur l_{tip} et

de masse m_{tip} . Le centre de masse de la pointe est à une distance L_1 , tandis que la pointe en elle-même est fixée rigidement à la poutre à une distance βL de l'origine. Enfin, la poutre est reliée à son origine au bâti via un ressort de raideur k_p , ce qui correspond à l'effet que produit le transducteur intégré du porte-pointe de l'AFM. Un guidage assure que cette vibration reste normale à l'origine du cantilever. L'ensemble fait un angle α avec la surface.

L'interaction entre la pointe et la surface est décomposé en deux sous ensembles ressorts-amortissements, l'un pour caractériser l'interaction à la verticale de la pointe (k^* , γ), l'autre pour la latérale (k_{lat} , γ_{lat}). En effet, suivant la méthode d'excitation (par exemple en UAFM), la pointe n'a pas un mouvement uniquement vertical. Il est à noter que nous ne prenons pas en compte ici l'amortissement dû à l'air considéré comme négligeable.

Afin de simplifier les calculs, le cantilever a été divisé en deux parties, l'une allant de l'origine ($x = 0$) à $x = \beta L$, et l'autre allant du bout de la poutre ($x=L$) à $x = \beta L$. Nous reprenons l'équation du mouvement d'une poutre encastree pour chacun des sous-systèmes, qui reprendra donc cette forme déjà vue pour la dépendance spatiale :

$$y(x) = A_1(\cos \alpha x + \cosh \alpha x) + A_2(\cos \alpha x - \cosh \alpha x) + A_3(\sin \alpha x + \sinh \alpha x) + A_4(\sin \alpha x - \sinh \alpha x) \quad (1.27)$$

Chaque sous système possède ses propres coefficients (A_1, A_2, A_3, A_4 pour l'un et A_1', A_2', A_3', A_4' pour l'autre), mais tous deux vérifient les mêmes conditions de bord. Nous ne les développerons pas ici dans un souci de concision et de clarté. ^[Dupas2000]

Au final, la résolution des différentes équations générées engendre un système qui se réduit à 4 équations à 4 inconnues dont la résolution se réduit à cette égalité :

$$\bar{\bar{M}} \begin{pmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_1' \\ A_3' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \end{pmatrix} \quad (1.32)$$

Avec $\bar{\bar{M}}$ la matrice de coefficients, que nous devons annuler afin de trouver les fréquences de résonance des différents modes soit :

$$\det(\bar{\bar{M}}) = 0 \quad (1.33)$$

Enfin, la déformée du cantilever pourra être déterminée, en injectant les coefficients A_i dans l'équation 1.33. La résolution de ces différentes équations se fait via un script C ^[script v4] qui intègre les multiples variables pour construire à partir des données expérimentales l'évolution en fréquence des pics de résonance en fonction de la rigidité de contact k^* . Ces données ont été ensuite traitées pour composer un graphique nous montrant l'évolution des fréquences normalisées en fonction du rapport k^*/k_c (fig. 1.23).

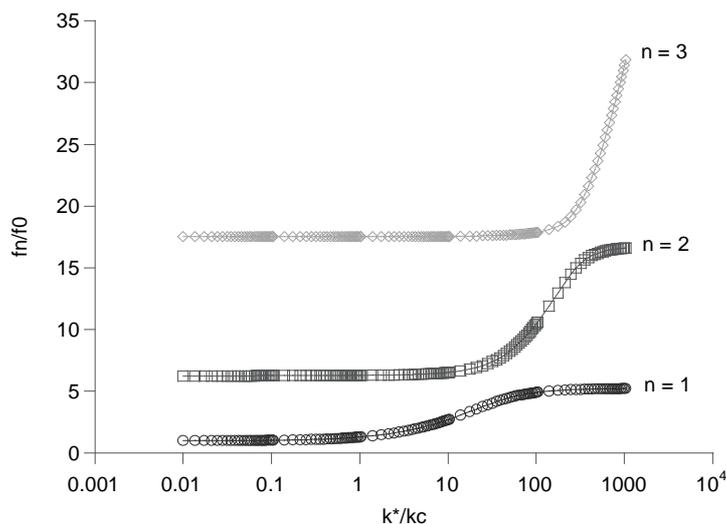


Fig. 1.23 : Evolution des fréquences de résonance normalisées ($f_1/f_0, f_2/f_0, f_3/f_0$) en fonction du rapport k^*/kc avec ce modèle (B2-FMR) pour un cantilever en silicium couvert de diamant de la société Nanotools

Nous avons présenté ce modèle brièvement car celui-ci est expliqué en détails dans les travaux de Dupas^[Dupas2001]. De plus, nous reviendrons dessus dans le chapitre 4, et nous verrons à cette occasion les modifications que nous lui avons apportées.

Dans cette partie, nous avons vu quelques éléments théoriques permettant de créer un lien entre la position en fréquence des pics de résonance du cantilever et les caractéristiques physiques du contact (ressort de raideur k^*). Il s'agit maintenant de relier ces grandeurs aux propriétés élastiques des surfaces que nous cherchons à étudier. Pour cela, nous allons exposer plusieurs théories du contact élastique.

I.3. Vers une quantification du module élastique local

La première théorie du contact élastique a été développée à la fin du XIXe siècle par Hertz suite à ses études sur les figures d'interférence en optique. C'est le modèle le plus simple qui sert de base à ses successeurs, c'est pourquoi nous le verrons en premier. Nous discuterons au final sur le choix de la théorie la plus pertinente pour caractériser le contact pointe-échantillon lorsque nous réalisons des acquisitions en configuration contact résonant. Les passages suivants seront assez largement inspirés de l'ouvrage de référence sur le sujet, « Contact Mechanic » de Johnson^[Johnson1987].

I.3.1. Le modèle de Hertz

Pour construire son modèle, Hertz^[Hertz1881] utilise plusieurs hypothèses simplificatrices qui malgré leurs contraintes n'empêchent pas l'obtention de résultats intéressants pour beaucoup de situations. Ainsi il considère deux solides élastiques topographiquement lisses aussi bien au niveau macroscopique que microscopique (fig. 1.24).

Pour appliquer la théorie hertzienne, il faut que les surfaces entre les solides soient continues et non-conformes, ce qui impose que le rayon de contact soit bien plus faible que le rayon de courbure des solides. La force P qui impose aux deux solides de demeurer en contact doit rester suffisamment faible afin de rester dans un domaine purement élastique. Chaque solide est considéré comme un demi-espace élastique ce qui implique pour ces derniers des dimensions très supérieures à celle de la zone de contact. Et enfin, aucune force de friction entre les surfaces n'est prise en compte.

Dans notre situation où nous approchons une pointe AFM d'une surface, ces hypothèses peuvent être considérées comme vérifiées. Il existe toutefois un point critique, c'est lorsque le module élastique de l'échantillon étudié est très faible par rapport à celui de la pointe du cantilever, car dans ce cas, des déformations importantes vont résulter de la moindre sollicitation, nous faisant sortir des conditions fixées par Hertz (rayon de $a \ll R$).

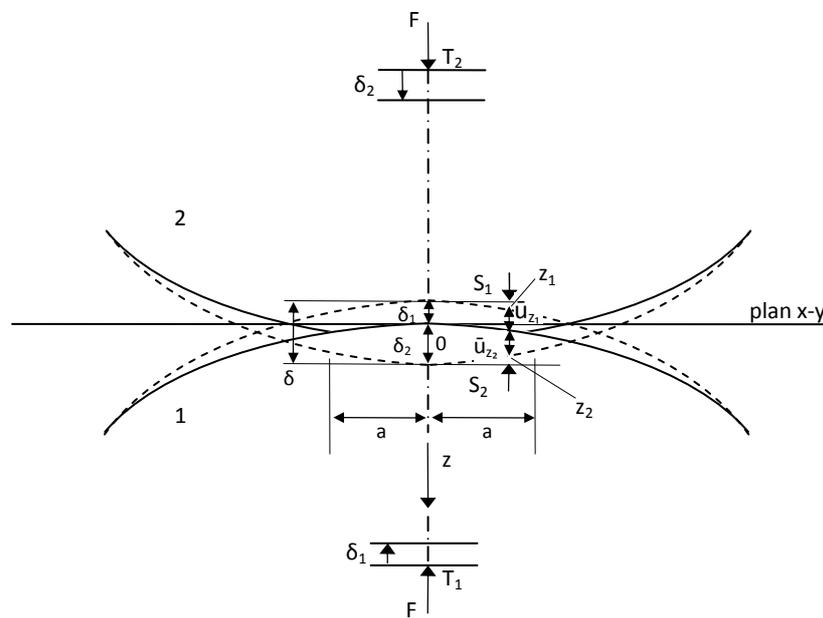


Fig. 1.24 : Schématisation d'un contact Hertzien purement élastique

Ceci vu, développons désormais un peu la théorie. Sur le schéma, le solide du bas (1) correspond à la surface de l'échantillon étudié tandis que celui du haut (2) se rapporte à la pointe du cantilever. Ces deux corps sont donc mis en contact. Puisque localement il n'y a pas d'irrégularité, cela signifie qu'il n'y a pas de discontinuité de contact ni de fortes variations dans la force de contact. Il est donc possible de décrire le profil de chaque solide sous la forme suivante :

$$z_1 = A_1x^2 + B_1y^2 + C_1xy + \dots \quad (1.34)$$

Où les termes x et y d'ordre plus important sont négligés. De plus en choisissant de manière judicieuse les axes, il est alors possible de faire disparaître le terme en xy .

Nous pouvons aussi décrire la surface du solide en utilisant les rayons de courbure de la surface à l'origine R_1' et R_1'' ou suivant les coordonnées cartésiennes (R_{1x}', R_{1y}') . Ils correspondent aux valeurs maximales et minimales des rayons de courbure parmi toutes celles décrivant le profil de la surface.

$$z_1 = \frac{1}{2R_1'} x_1^2 + \frac{1}{2R_1''} y_1^2 \quad (1.35)$$

De la même façon, nous pouvons écrire pour la deuxième surface que :

$$z_2 = -\left(\frac{1}{2R_2'} x_2^2 + \frac{1}{2R_2''} y_2^2\right) \quad (1.36)$$

La séparation entre les deux surfaces en tout point est donnée par :

$$h = z_1 - z_2 \quad (1.37)$$

Nous transposons cette équation avec les précédentes au sein d'un système d'axe x et y commun et nous obtenons:

$$h = Ax^2 + By^2 + Cxy \quad (1.38)$$

Puis en utilisant un système d'axes adaptés, nous pouvons annuler la constante C et aboutir à :

$$h = Ax^2 + By^2 = \frac{1}{2R_2'} x_2^2 + \frac{1}{2R_2''} y_2^2 \quad (1.39)$$

Où A et B sont des constantes positives et R' , R'' sont définis comme les rayons de courbure relatifs de chacun des solides.

Considérons désormais la déformation que subissent les deux solides en contact lorsqu'une charge normale P leur est appliquée. Nous repérons les deux points T_1 et T_2 situés sur l'axe du contact appartenant respectivement à l'un et à l'autre solide, et nous faisons de même avec les points S_1 et S_2 situés sur un même axe mais cette fois ci à la surface des solides (voir la figure 1.23).

Sous l'effet de la charge F, T_1 et T_2 se rapprochent l'un de l'autre en suivant z, par les déplacements respectifs δ_1 et δ_2 . De manière analogue, les points S_1 et S_2 vont se déplacer d'une quantité \bar{u}_{z1} , \bar{u}_{z2} sous l'effet de la compression P qui va déformer les deux solides.

Si après la déformation nous trouvons que les points S_1 et S_2 coïncident à l'intérieur de la surface de contact, nous pouvons relier les différents déplacements par l'équation suivante :

$$\bar{u}_{z1} + \bar{u}_{z2} + h = \delta_1 + \delta_2 \quad (1.40)$$

Si nous nous écrivons $\delta = \delta_1 + \delta_2$ et remplaçons h par son expression (1.39), nous trouvons l'expression suivante des déplacements élastiques :

$$\bar{u}_{z1} + \bar{u}_{z2} = \delta - Ax^2 - By^2 \quad (1.41)$$

Où x et y sont les coordonnées communes de S_1 et S_2 projetées sur le plan x - y . Si S_1 et S_2 sont situés à l'extérieur de la zone de contact et donc ne se touchent pas alors il en ressort que :

$$\bar{u}_{z1} + \bar{u}_{z2} > \delta - Ax^2 - By^2 \quad (1.42)$$

Pour résoudre ce problème, il nous faut trouver la distribution de pression transmise entre les deux corps, au niveau de leur surface de contact, de sorte que les déplacements élastiques perpendiculaires à la surface satisfassent à l'équation dans la zone de contact (1.41) et à (1.42) à l'extérieur.

Pour cela, nous allons effectuer la simplification suivante en considérant que la pointe AFM et la surface de l'échantillon s'assimilent à deux solides de révolution de rayon R_1 et R_2 (soit $R_1 = R'_1 = R''_1$). Dans ce cas, à partir des équations précédentes (1.39) et (1.41), il vient :

$$A = B = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (1.43)$$

Les conditions aux limites pour les déplacements à l'intérieur du contact peuvent donc être exprimées sous la forme suivante :

$$\bar{u}_{z1} + \bar{u}_{z2} = \delta - \frac{1}{2R} r^2 \quad \text{avec} \quad \frac{1}{R} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}, \delta = \delta_1 + \delta_2, r^2 = x^2 + y^2 \quad (1.44)$$

Par ailleurs, puisqu'il s'agit d'étudier la distribution de pression générant de tel déplacement, Hertz reprend la formulation d'une pression exercée par une région circulaire sur une autre et en propose cette expression ^[Johnson1987] :

$$p(r) = p_0 \left(1 - \left(\frac{r}{a} \right)^2 \right)^{\frac{1}{2}}, \quad r \leq a \quad (1.45)$$

Dans cette expression, a correspond au rayon de la zone de contact entre les deux solides (voir figure), p_0 la pression à l'origine.

La pression agissant sur le second corps est égale à la pression agissant sur le premier, donc en substituant les expressions pour \bar{u}_{z1} et \bar{u}_{z2} dans l'équation générale, nous obtenons :

$$\frac{\pi p_0}{4aE^*} (2a^2 - r^2) = \delta - \frac{1}{2R} r^2 \quad (1.46)$$

Avec E^* le module d'Young réduit défini par :

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1 - \nu_1^2}{E_1} + \frac{1 - \nu_2^2}{E_2} \quad (1.47)$$

Or la force appliquée F , qui oblige les deux solides à entrer en contact est apparentée à la pression via cette expression :

$$F = \int_0^a p(r) 2\pi dr = \frac{2}{3} p_0 \pi a^2 \quad (1.48)$$

A partir de là, nous pouvons exprimer différentes grandeurs importantes en fonction de la force appliquée qui est paramètre connu expérimentalement. Ainsi il est possible d'écrire la valeur du rayon de contact a :

$$a = \left(\frac{3FR}{4E^*} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1.49)$$

Le déplacement δ entre les points distants des deux solides que nous pouvons assimiler à de l'indentation est donné par :

$$\delta = \left(\frac{9F^2}{16RE^*} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1.50)$$

Et p_0 la pression à l'origine :

$$p_0 = \left(\frac{6FE^{*2}}{\pi^3 R^2} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1.51)$$

Au final, le modèle d'Hertz s'avère très efficace pour décrire des déformations élastiques à des échelles macroscopiques. Lorsque cette échelle se réduit, il devient difficile de satisfaire à toutes les hypothèses de départ, en particulier celle de planéité, d'absence de force d'adhésion ou de friction. Des surfaces millimétriques peuvent être considérées comme lisses à ces échelles et ne plus l'être lorsque nous nous plaçons à l'échelle du micron, tout comme les forces d'adhésion qui sont souvent difficilement négligeables ^[Dupas2000]. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés aussi à des modèles plus complets qui prennent notamment en compte l'effet des interactions aux petites échelles, situation dans laquelle le mode contact résonant de notre microscope nous place.

I.3.2. Le modèle de Derjaguin-Muller-Toporov (DMT)

Evolution du modèle d'Hertz, la théorie DMT rajoute une hypothèse traduisant le fait qu'à faible distance, les forces de surfaces sont prédominantes (voir la partie concernant les forces auquel est sensible l'AFM). Pour cela, il considère qu'il existe des forces de surfaces à longue distance, mais qui n'agissent qu'à l'extérieur du contact (fig. 1.24). La zone de contact se comporte toujours selon la mécanique Hertzienne ^{[Derjaguin1975] [Tabor1977]}.

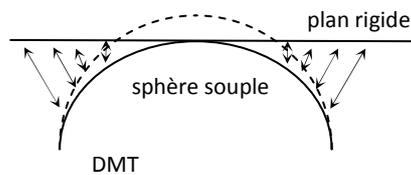


Fig. 1.24 : Modèle du contact mécanique DMT (complètement élastique avec prise en compte des forces d'adhésion)

Il ajoute donc une contribution attractive dans la modélisation qui n'agirait qu'à l'extérieur du cercle de rayon a_0 correspondant à la zone de contact. Cela a pour conséquence l'apparition dans les calculs d'un rayon de contact non-nul à force appliquée nulle.

Pour séparer les deux surfaces, il est nécessaire d'appliquer une force F_0 dépendant du rayon de courbure réduit R et de l'énergie de surface ω des matériaux composant les deux solides :

$$F_0 = 2\pi R\omega \quad (1.52)$$

En combinant cette équation à celle du rayon de contact hertzien, c'est-à-dire en remplaçant P par $P+F_0$, nous aboutissons à une nouvelle formulation du rayon de contact a :

$$a = \left(\frac{3\pi R^2 \omega}{2E^*} \right)^{1/3} \quad (1.53)$$

Ce modèle assure une prise en compte partielle de l'effet des forces de surface, ce qui est une évolution par rapport au modèle d'Hertz, mais il néglige la déformation de la surface de contact produite par ces mêmes forces. Du coup, le rayon de contact calculé par cette approche est en général inférieur au rayon de contact réel ^[Dupas2000].

1.3.3. Le modèle de Johnson-Kendall-Roberts (JKR)

Ce modèle prend le parti opposé au précédent puisqu'il considère que les forces de surface n'agissent qu'à courte distance et uniquement dans la surface de contact même. La géométrie des solides dans cette zone ne suivra pas le modèle de Hertz puisqu'il y a une modification dans les forces appliquées. Globalement cela se traduit par une surface de contact évaluée comme plus étendue par rapport au même cas dans le cadre de la théorie du contact hertzien (fig. 1.25). ^[Tabor1977]
[Johnson1987]

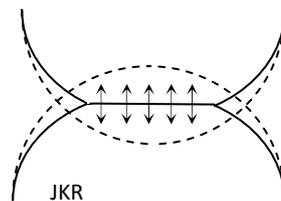


Fig. 1.25 : *Modèle du contact mécanique JKR (complètement élastique avec prise en compte des forces d'adhésion dans la zone de contact)*

Ainsi, les forces prises en compte à l'intérieur de la zone de contact ne sont pas uniquement répulsives comme l'indiquait Hertz, mais plutôt constituées d'un anneau en tension entourant une zone centrale en compression. Le résultat donne un équilibre global dans au niveau du contact entre les forces attractives et répulsives.

Sous l'effet de ces forces, la sphère représentant notre pointe se déforme de manière discontinue en particulier au niveau de la bordure de la zone de contact, phénomène purement théorique qui n'existe pas en réalité où la géométrie de la déformation est beaucoup plus douce.

Le rayon de contact en l'absence de force appliquée devient dans ce cadre :

$$a = \left(\frac{9\pi R^2 \omega}{E^*} \right)^{1/3} \quad (1.54)$$

Ce qui correspond au double du rayon de contact DMT, et donc ce modèle a tendance à surévaluer ce rayon de contact. Il semble donc qu'en réalité, il faille emprunter à la fois à la théorie du contact DMT et JKR afin d'obtenir une description réaliste du contact. C'est ce que fait un modèle, celui de Maugis qui est en fait une combinaison des deux précédents, mais au prix d'une complexité grandissante ^[Dupas2000].

I.3.4. Quel modèle est pertinent pour notre mode contact résonant ?

Si nous suivons la démarche que nous avons entamée ici sur les différentes théories du contact élastique, nous pourrions continuer à exposer des théories de plus en plus proches de la réalité du contact. Cependant, celles-ci seront toujours limitées, en l'occurrence à des contacts purement élastiques, et demanderont de plus en plus de paramètres. Il semble donc pertinent de prendre un peu de recul pour revenir à l'objectif affiché au début de cette partie, à savoir faire le lien entre la rigidité de contact et le module élastique d'une surface et de s'appliquer à voir quelle théorie du contact semble nécessaire pour obtenir des résultats cohérents pour un microscope AFM en mode contact résonant.

Replaçons-nous dans le cadre de la théorie du contact hertzien avec la topologie suivante décrivant le contact entre une pointe AFM au bout sphérique avec la surface plane d'un échantillon (fig. 1.26) :

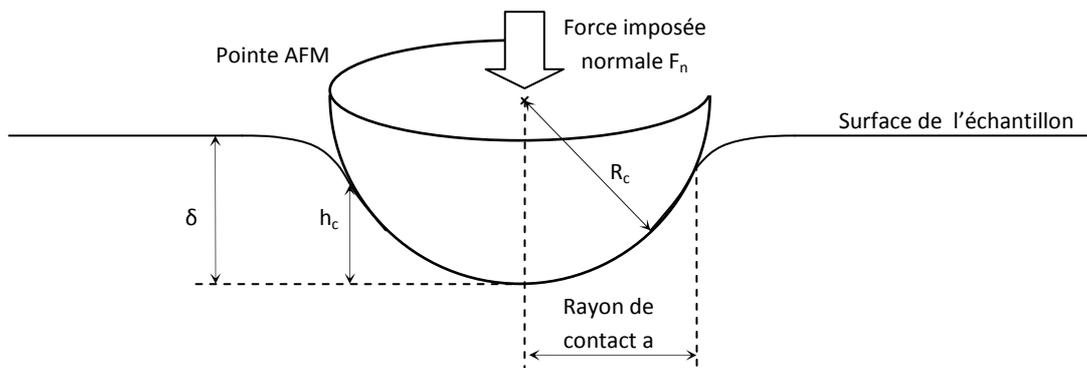


Fig. 1.26 : Description du contact mécanique hertzien entre une pointe AFM et une surface

Si nous reprenons les équations obtenues avec la théorie du contact hertzien appliqué pour une demi-sphère en contact forcé avec une surface, nous avons une expression du rayon de l'aire de contact suivante en fonction de la force normale F_n imposée sur la pointe, de R_c le rayon de courbure de l'extrémité de la pointe, et E^* leur module d'Young réduit ^[Rabes1996] :

$$a = \left(\frac{3F_n R_c}{4E^*} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1.55)$$

Il apparait par ailleurs que dans ce cas, le rayon de l'aire de contact vérifie également ^[Hertz1885] :

$$a = \sqrt{\delta R_c} \quad (1.56)$$

Où δ correspond à la profondeur d'indentation, et R_c au rayon de courbure de l'extrémité de la pointe.

Il est alors possible d'exprimer une relation entre la force imposée et la profondeur d'indentation h :

$$F_n = \frac{4}{3} E^* \sqrt{R_c} \delta^{\frac{3}{2}} \quad (1.57)$$

Il est alors possible de déterminer la rigidité S du contact levier-échantillon en dérivant l'équation précédente en fonction de δ . Avec une force normale, cette rigidité est aussi noté k^* [Johnson1985] :

$$S = k^* = \frac{dF_n}{d\delta} = 2E^* \sqrt{R_c} \delta \quad (1.58)$$

Ce qui en remplaçant δ par les équations précédentes, nous permet d'aboutir à l'équation caractéristique :

$$k^* = (6E^{*2} F_n R_c)^{\frac{1}{3}} \quad (1.59)$$

A partir de cette expression, il est possible d'extraire le module élastique de notre échantillon grâce à l'équation (1.47) à condition de bien connaître les caractéristiques physique et mécanique de la pointe en contact [Vlassak1993].

Dans le modèle hertzien, les forces d'adhésion sont négligées, ce qui est valide lorsque celles-ci sont suffisamment faibles. Expérimentalement, la force normale F_n nous est donnée par la déflexion statique du cantilever multipliée par sa constante de raideur k_c . La mesure de cette déflexion dépend de la position du spot laser sur le cantilever laquelle est ajustée de façon à être la plus proche de la position de la pointe située sous la poutre. Il y aura donc à ce niveau une légère incertitude qui s'ajoute à celle entourant la détermination de k_c , ce que nous développerons dans le chapitre suivant.

La prise en compte des forces d'adhésion dans le cadre des théories élastiques JKR et DMT entraîne l'apparition d'un terme supplémentaire dans l'équation du k^* [Stan2009], basé sur le rapport ξ des forces d'adhésion et de la force normale appliquée F_n soit $\xi = \frac{F_{ad}}{F_n}$.

D'où la correction suivante pour le modèle JKR :

$$k^* = (6E^{*2} F_n R_c)^{\frac{1}{3}} \frac{(\sqrt{\xi} + \sqrt{1 + \xi})^{\frac{2}{3}}}{1 + \frac{2}{3} \sqrt{\frac{\xi}{1 + \xi}}} \quad (1.60)$$

Et pour le modèle DMT :

$$k^* = (6E^{*2}F_n R_c)^{\frac{1}{3}}(1 + \xi)^{\frac{1}{3}} \quad (1.61)$$

Suivant les conditions expérimentales, et en particulier l'influence constatée des forces d'adhésion, la prise en compte ou non de ces termes correctifs s'avèrent pertinente ^[Stan2009].

La forme de la courbe constitue également un point important dans la façon dont nous appliquons ces modèles puisqu'en effet, nous n'avons pour le moment considéré qu'une pointe purement sphérique, or d'après la littérature ^[Kopycinska-Mueller2006a] et nos propres études, cette forme peut parfois s'approcher plus d'un poinçon plat ou d'un cône (fig. 1.27).

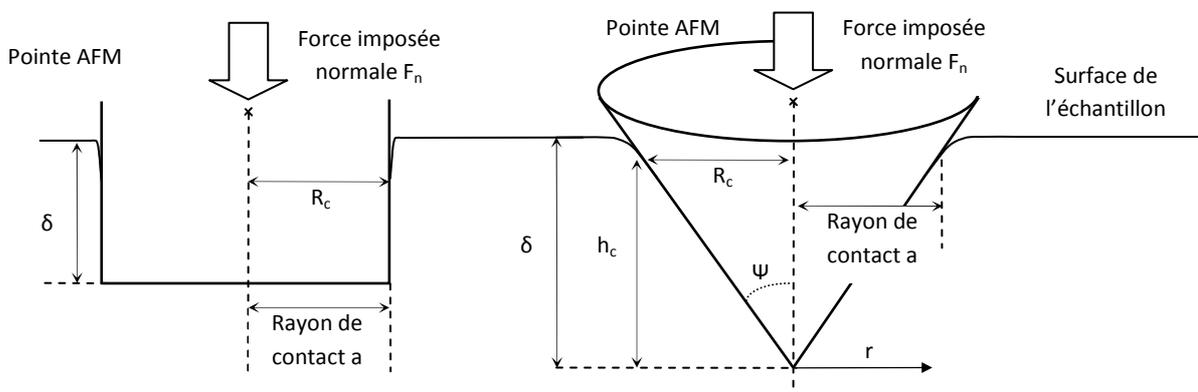


Fig. 1.27 : Description du contact mécanique entre un poinçon plat (gauche) ou conique (droite) et un milieu élastique semi-infini.

De façon générale, depuis les travaux de Ian Sneddon ^[Sneddon1965], nous connaissons une solution générale pour la rigidité du contact S entre un milieu élastique semi infini et un poinçon asymétrique de forme quelconque.

$$S = 2E^*a \quad (1.62)$$

A partir de là, déduire l'expression de la raideur de contact dans le cas d'un poinçon plat devient trivial, puisque son aire de contact reste toujours constante (fig 1.27). Il apparait donc que :

$$k_{plat}^* = 2E^*R_c \quad (1.63)$$

L'expression analytique du contact entre un cône rigide et un milieu élastique semi-infini a été, quant à elle, déterminée par le mathématicien Augustus Love ^[Love1939]. L'approche permettant son établissement est assez différente de celle de Hertz, avec une distribution de la charge imposée très différente (courbe parabolique) :

$$p(r) = \frac{E^*}{2} \cot \Psi \cosh^{-1} \Psi \left(\frac{R_c}{r} \right) \quad (1.64)$$

De là, nous déduisons l'expression de la force imposée F_n :

$$F_n = \frac{2}{\pi} E^* \tan \Psi \times \delta^2 \quad (1.65)$$

Et ainsi nous pouvons calculer k^* :

$$k_{c\hat{o}nne}^* = \frac{4}{\pi} E^* \tan \Psi \times \delta \quad (1.66)$$

Ainsi, nous sommes capables de déterminer la rigidité de contact purement élastique pour des pointes dont la forme est non sphérique. Retenons surtout que dans le cas d'un poinçon plat, la rigidité n'augmente pas en fonction de la force, ce que nous avons pu observer avec des leviers usagés lors de nos expérimentations.

1.3.5. Le module élastique dans le cas d'empilements modèles

Dans le cadre de nos travaux, nous avons voulu analyser grâce au microscope CR-AFM, des films minces micro- et nano-structurés. Or, pour de tels empilements, le module élastique n'est ni homogène, ni isotrope comme les théories précédentes le supposent. Le module élastique que nous déterminerons dans de tels cas, sera un module élastique équivalent E_{eq} et dépendra de la combinaison des modules élastiques des films E_{film} et du substrat $E_{substrat}$ ^[Bartel2004]. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés aux travaux réalisés sur ce sujet dans le cadre de la nanoindentation ^[Oliver1992] où se pose également cette problématique sur ce type d'échantillon (fig 1.28) ^[Jung2004].

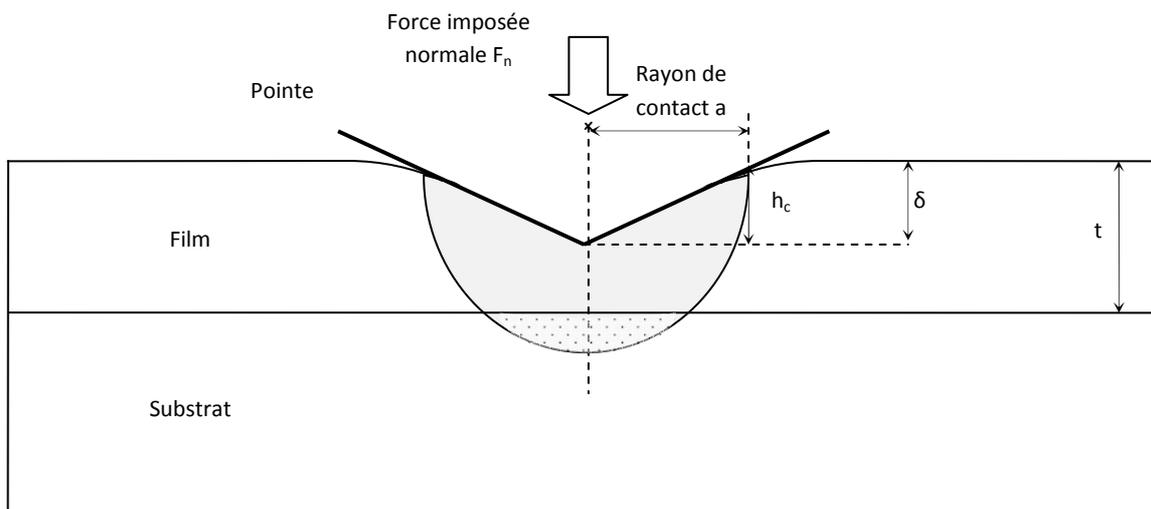


Fig. 1.28 : Illustration d'un profil de nanoindentation sur un système film-substrat. La l'hémisphère grisé correspond à la

zone soumise au champ de déformation.

Suivant le volume d'influence des champs de déformations élastiques et plastiques, le poids relatif de chaque matériau dans le module élastique résultant va varier.

Plusieurs modèles ont été proposés, tous basés sur la structure empirique suivante ^[Barthel2004]:

$$E_{eq} = E_{substrat} + (E_{film} - E_{substrat})\Phi(x) \quad (1.67)$$

Où x est le ratio du rayon de contact a , et où la profondeur de contact h_c par rapport à l'épaisseur t du film, et Φ est la fonction calculant le poids relatif des matériaux (soit 1 quand $x = 0$ et 0 quand x est infini).

Ces modèles ont fait l'objet d'articles dans la littérature ^{[Mencik1997] [Chen2001]}, et permettent d'évaluer dans une certaine mesure le comportement du module élastique équivalent lors qu'une indentation. Suivant la rigidité du substrat, celui-ci présente deux allures caractéristiques comme nous l'indiquons sur la figure 1.29 :

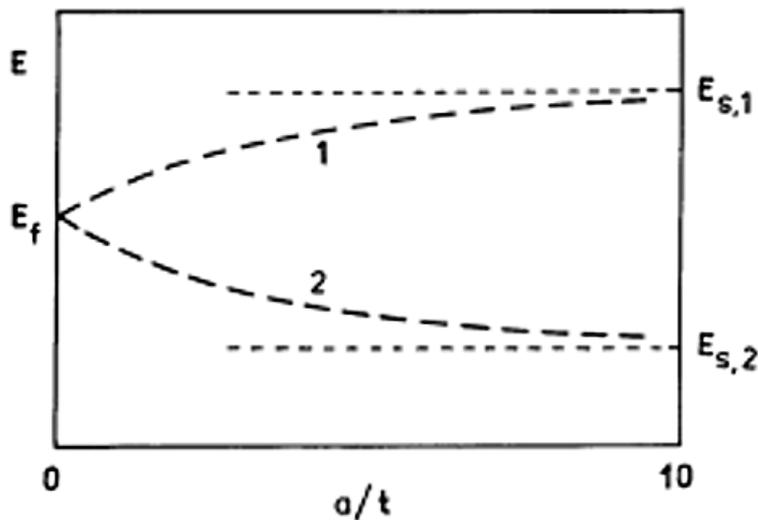


Fig. 1.29 : Evolution du module élastique apparent d'un échantillon film sur substrat en fonction de la profondeur de pénétration relative. E_f correspond au module élastique du film, tandis que $E_{s,1,2}$ correspond à ceux du substrat. Deux situations sont envisagées, la cas d'un substrat plus rigide $E_{s,1} > E_f$ (courbe 1) et le cas opposé $E_{s,1} < E_f$ (courbe 2) ^[Mencik1997]

Dans cette situation, la méthode d'Oliver et Pharr ^[Oliver1992] très utilisée pour exploiter les résultats d'indentation n'est pas valable. Pour rappel, elle utilise les deux relations de base suivante :

$$M = \frac{\sqrt{\pi}S}{2\beta\sqrt{A}} \quad (1.68)$$

$$h_c = \delta - \varepsilon \frac{P}{S} \quad (1.69)$$

Où P est la force imposée, S est la rigidité de contact, A l'aire de contact, h_c la profondeur du contact, β et ϵ sont des paramètres dépendant de la forme de la pointe (sphérique $\beta = 1$ et $\epsilon=0.75$).

M est le module d'indentation et se définit relativement au module élastique et au coefficient de Poisson de chaque matériau :

$$M = \frac{1 - \nu^2}{E} \quad (1.70)$$

Pour le cas d'un film mince sur substrat, il apparait que la profondeur d'indentation δ n'a plus une évolution linéaire tout comme $\frac{P}{S}$ [Barthel2004]. Sans correction, les résultats de nanoindentation utilisant l'équation h_c sont donc affectés d'une erreur.

Ces informations sont transposables à la situation à laquelle notre montage CR-AFM devra faire face, à ceci près qu'une pointe d'indenteur a un rayon de courbure d'environ 150 nm, beaucoup plus grand que celui d'une pointe AFM généralement situé entre 10 et 50 nm. Cela constitue d'ailleurs un avantage pour notre technique car les mesures de films d'une épaisseur inférieure à plusieurs dizaines de nanomètres lui seront accessibles. Affecté par les irrégularités dans la forme de son pointe, sa rugosité et par le bruit, le nanoindenteur n'est pas vraiment capable de fournir des résultats précis à ces échelles [Mencik1997].

Au fur et à mesure des études, de nombreux modèles ont été développés (empirique, analytique). Nous verrons d'ailleurs qu'à l'occasion de nos travaux de modélisation, nous avons été amenés à en utiliser un (voir chapitre 4). Pour une évaluation rapide du module équivalent, nous nous proposons d'employer celui-ci issu de l'expérience [Gao1992] [Bartel2004] :

$$M_{eq} \left(\frac{a}{t} \right) = M_1 + \frac{(M_0 - M_1)}{1 + \left(\frac{tx_0}{a} \right)^n} \quad (1.71)$$

Avec M le module d'indentation des différents matériaux (avec l'indice 1 pour le film et 0 pour le substrat), t l'épaisseur du film, a son rayon de contact, et n un variable ajustable.

Quant à x_0 , il s'agit d'une autre variable ajustable caractérisant position de la transition où :

$$M_{eq} = \frac{(M_0 + M_1)}{2} \quad (1.72)$$

Ainsi, nous disposons désormais d'une première approche de la détermination du module élastique sur des films minces ce qui nous servira lors de l'exploitation des données récupérées par notre montage microscopes à force atomique à résonance de contact et termine cette partie.

I.4. Résumé du chapitre

La microscopie à force atomique à résonance de contact constitue une technique de caractérisation attrayante de par sa sensibilité aux propriétés mécaniques des matériaux. Ainsi, dans notre étude, nous avons souhaité examiner son aptitude à sonder des empilements modèles de films minces sur substrat à des échelles inférieures à la centaine de nanomètres.

Pour cela nous avons posé dans ce chapitre l'essentiel du corpus théorique nécessaire à la compréhension des développements instrumentaux que nous avons menés. C'est la raison pour laquelle nous nous sommes attachés à décrire de façon exhaustive, le fonctionnement du microscope à force atomique et ses différents modes acoustiques d'où est issu le CR-AFM.

Puis pour comprendre le lien entre les vibrations d'un cantilever en mode contact résonant et la détermination du module élastique des matériaux, nous avons exposé une première approche des modélisations décrivant les mouvements du levier de l'AFM. Nous avons ensuite abordé plusieurs théories du contact élastique que nous avons replacé dans la situation qui nous intéresse : celle d'une pointe en contact avec un empilement modèle.

La suite de nos travaux retrouve cette séparation en deux axes, puisque nous nous sommes d'abord attachés à développer notre propre montage CR-AFM. Une fois les premiers résultats obtenus, nous avons voulu les relier quand c'était possible au module élastique apparent des échantillons que nous examinons.

Ce travail ne s'est pas fait sans écueils, et c'est pourquoi nous décrivons les moyens que nous avons mis en œuvre pour surmonter ces difficultés dans les chapitres suivants.

Chapitre II : Développement du montage CR-AFM

Précédemment, nous avons vu qu'un microscope à force atomique en résonance de contact pouvait permettre de remonter aux propriétés mécaniques des matériaux. Nous allons voir dans ce chapitre que l'obtention d'un montage suffisamment performant pour permettre de réaliser des mesures quantitative ne se fait pas sans difficultés et nécessite un long processus de développement.

Dans ce cadre, nous présenterons puis nous comparerons les différents montages CR-AFM que nous avons mis au point. Nous verrons que chaque dispositif a nécessité à la fois la programmation d'un système d'acquisition mais aussi de programmes de traitement de données. Face aux limites du matériel, il a fallu également opérer des choix que nous expliciterons.

Pour parvenir à traiter nos résultats, et satisfaire nos exigences de précision, nous avons dû identifier puis améliorer les différents points critiques du système CR-AFM. Ainsi, nous avons passé en revue les moyens que nous pouvions utiliser pour générer des ondes acoustiques dont nous verrons l'influence sur la quantité et la qualité des modes de résonance enregistrés.

Nous discuterons ensuite des optimisations que nous avons apportées à l'enceinte de notre microscope afin de mieux contrôler l'environnement où se réalisent nos mesures et ainsi diminuer l'effet des forces d'adhésion qui impactent nos résultats. Nous verrons également les critères qui nous ont poussés à préférer certains types de leviers.

Enfin, pour estimer correctement les forces mises en œuvre lors de nos expérimentations, nous avons suivi plusieurs approches afin d'évaluer la constante de raideur des différents cantilevers. A cette occasion, un nouveau montage a été élaboré et fournit une solution innovante à l'estimation de cette rigidité.

L'ensemble de ces développements nous permettront de générer des résultats interprétables, ce que nous ferons au cours des chapitres suivants.

II.1. Mise en œuvre expérimentale : développement instrumental du mode contact résonant sur notre AFM

Au début du développement instrumental du CR-AFM sur le microscope à force atomique du laboratoire, nous avons plusieurs objectifs. Le premier était d'atteindre une sensibilité suffisante afin de détecter convenablement les modes de résonance des leviers (fig. 2.1) tout en restant dans les limites d'acquisition du matériel (dépassement de mémoire).

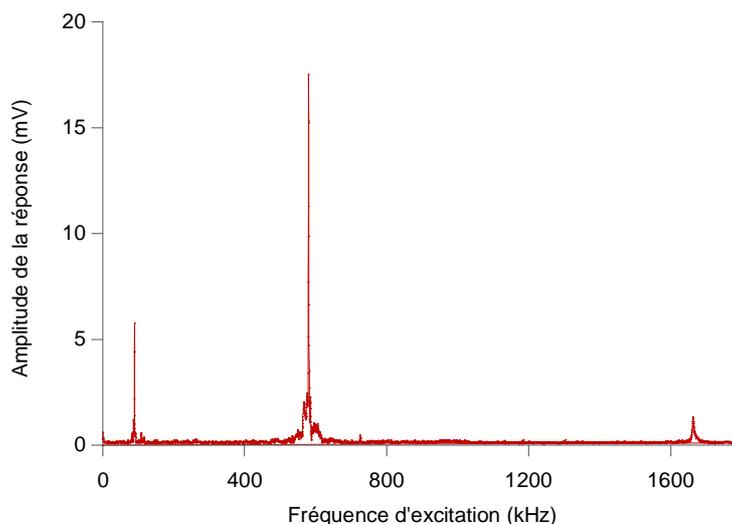


Fig. 2.1 : *Spectre de la réponse d'un levier en silicium à une vibration*

Le second était de permettre de scanner, dans un temps raisonnable, la surface d'un échantillon en mode contact résonant, et réaliser ainsi des cartographies CR-AFM quantitatives. Une telle image enregistre l'évolution de la position du ou des premiers modes de résonance, et relie les variations de contraste de l'image aux propriétés mécaniques des matériaux sondés.

Au départ, nous sommes partis des descriptions de montage CR-AFM présents dans la littérature ^{[Rabe2002] [Dupas2001] [Hurley2006]}. Puis, par rapport aux instruments dont nous disposions à ce moment là, et des contraintes fixées, nous avons envisagé deux montages différents.

L'un, destiné aux mesures statiques, nous autorise à réaliser des spectrométries en fréquence très précises grâce à un détecteur synchrone (7280 de Signal Recovery). L'acquisition d'un spectre prenant plusieurs secondes, ce montage est performant pour des mesures ponctuelles mais ne peut être utilisé pour faire des cartographies en mode contact résonant quantitatives. Cependant, il est capable de réaliser des images à fréquence d'excitation fixée qualitatives.

L'autre montage a lui été conçu spécialement pour acquérir des cartographies CR-AFM. Organisé autour d'une carte d'acquisition numérique (DAQmx de National Instrument), il relève pour chaque point scanné la réponse du levier à une rampe d'excitation en fréquence localisée autour des modes de résonance. Mais pour parvenir à ce résultat, il a fallu acheter de nouveaux instruments et

développer un programme sous Labview capable de gérer l'acquisition et le traitement de l'ensemble des données enregistrées.

Nous allons donc exposer ces montages, avec leurs avantages et leurs limites, puis nous terminerons en évoquant la procédure d'acquisition mise en place pour l'ensemble de nos mesures.

II.1.1. Premier montage incluant une détection synchrone

Premier montage CR-AFM que nous avons mis au point, il a été construit relativement rapidement en raison de la disponibilité des différents appareils dont nous avons fait la liste ici :

- 1 microscope AFM Dimension 3100 (Veeco)
- 1 électronique Nanoscope IIIa (Veeco)
- 1 SAM box 210C (Veeco) et un boîtier « extenseur » permettant de récupérer le signal brut de la photodiode
- 1 ordinateur gérant l'AFM (approche en contact du levier, taille et vitesse du scan, acquisition des images topographique)
- 1 détecteur synchrone, 7280 (Signal Recovery)
- 1 système d'excitation acoustique
- 1 ordinateur sous Labview contrôlant ce détecteur synchrone (gestion de l'acquisition, de l'excitation et traitement des résultats)

L'ensemble est agencé autour du microscope AFM, ici le Veeco Dimension 3100. Nous avons placé sous son cantilever un système d'excitation acoustique dont nous verrons le détail dans la partie II.2.

Un signal sinusoïdal d'excitation est appliqué aux échantillons et suit une rampe en fréquence grâce au générateur interne contenu dans le détecteur synchrone Signal Recovery 7280. Cet appareil va en même temps récupérer et traiter le signal électrique émis par la photodiode. Puis, il va comparer ce signal avec celui qu'il émet, et déterminer la réponse en amplitude du levier à la fréquence d'excitation. L'accès à ces différents signaux se fait grâce à un boîtier nommé SAM box qui s'intercale entre l'AFM et le reste de son électronique (Nanoscope IIIa). Enfin, deux ordinateurs de contrôle gèrent les différents instruments. Le premier commande la partie AFM avec l'approche et la force imposée sur le cantilever en contact. Le second lui gère le détecteur synchrone et récupère les spectres en fréquence enregistrés dans sa mémoire.

II.1.1.1. Mesures statiques

Le montage peut être représenté par le schéma suivant (fig. 2.2).

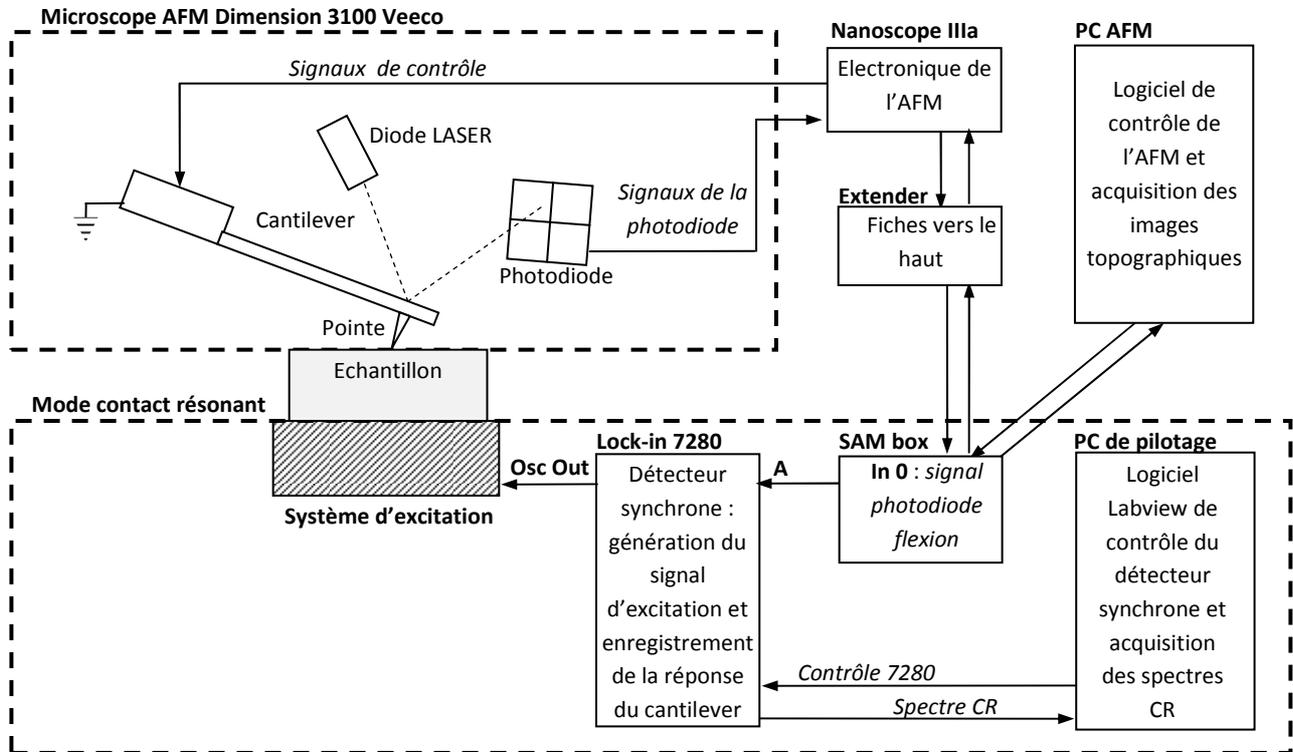


Fig. 2.2 : Schéma de notre montage CR-AFM statique incluant une détection synchrone (7280 de Signal Recovery) et piloté par des scripts Labview.

Dans ce montage, le microscope AFM doit donner accès au signal non-filtré de la photodiode jusqu'à des hautes fréquences. Dans notre cas, le Dimension 3100 permet via la SAM box de relever les variations verticales et latérales de la tension émise par la photodiode et ceci jusqu'à 2 MHz sans subir de filtrage de la part de l'électronique. Pour certaines générations de microscope Veeco plus récente, il s'est avéré que le signal était filtré au-delà de 800 kHz.

Pour la génération du signal sinusoïdal, nous avons préféré utiliser le générateur interne de la détection synchrone 7280 de Signal Recovery ^[Bandwidth2005]. D'une part, cela permet à son électronique de se caler plus rapidement sur la fréquence d'excitation, et ensuite il s'agit de la solution la plus naturelle aussi bien au niveau de la synchronisation que de l'asservissement informatique.

Le détecteur synchrone change de fréquence toute les millisecondes et peut monter jusqu'à une fréquence d'excitation de 2MHz avec une amplitude maximum de 2.96 Vcc. Au premier abord, cela peut sembler limité comparé à la capacité d'un générateur de fonction du type Agilent 33220, plus rapide et balayant une plus large gamme (jusqu'à 20 Mhz), mais dans le cas d'une analyse statique cela s'avère suffisant. ^[Hurley2009]

Le traitement du signal est assuré par cette même détection synchrone à l'aide de son système de détection de phase (PSD). Cette électronique va permettre d'enregistrer sur la mémoire interne de l'appareil, la réponse en amplitude du cantilever (mode flexion) en fonction de la fréquence d'excitation. [Bandwidth2005] Le spectre en fréquence est ensuite reconstruit sur l'ordinateur, à partir de ces points, ce qui permet le repérage des modes de résonance. Une méthode alternative serait de suivre en temps réel les pics de résonance, mais la bande passante de l'appareil ne le permet pas sans subir de décrochages.

Enfin, l'asservissement informatique et la récupération des données sont gérés par une application développée par nos soins sous Labview (National Instrument). Cette automatisation est possible en raison des instruments utilisés compatibles avec cette application, ce qui nous permet ici d'automatiser et surtout de synchroniser l'ensemble de la chaîne de mesure. Notre programme assure ainsi le paramétrage de l'excitation en fréquence, puis la récupération et le traitement des données reçues (fig. 2.3).

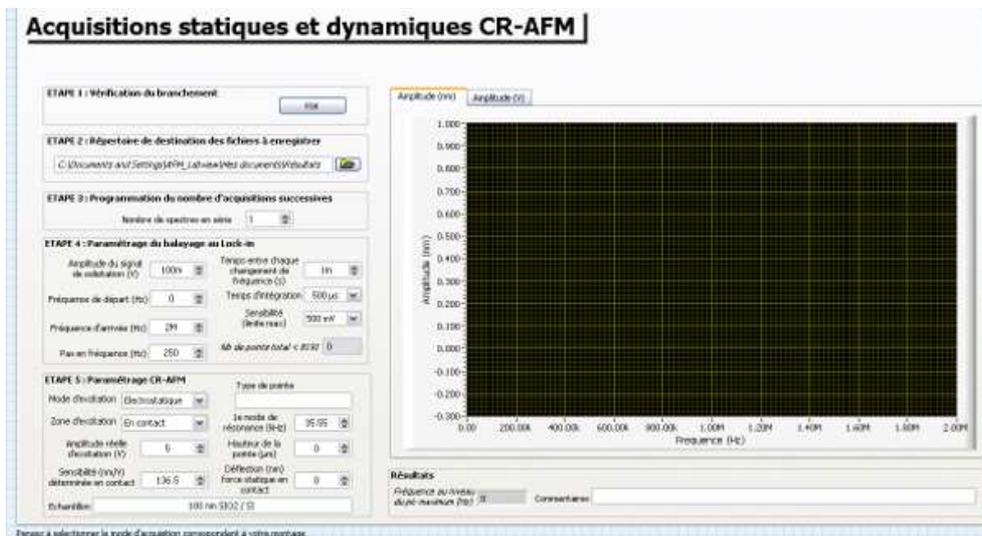


Fig. 2.3 : Interface de contrôle du système CR-AFM statique (commande et traitement des résultats)

L'ensemble des scripts nécessaires a été regroupé dans le même programme « *acquisitions statiques et dynamiques CR-AFM* » (fig. 2.4).

Les spectres ainsi que les paramètres de mesure sont enregistrés en format « txt » sous forme de colonnes alphanumériques qui seront ensuite exploitées grâce au logiciel tableur Kaleidagraph de Synergie Software, à même de gérer l'importante quantité de données reçues.

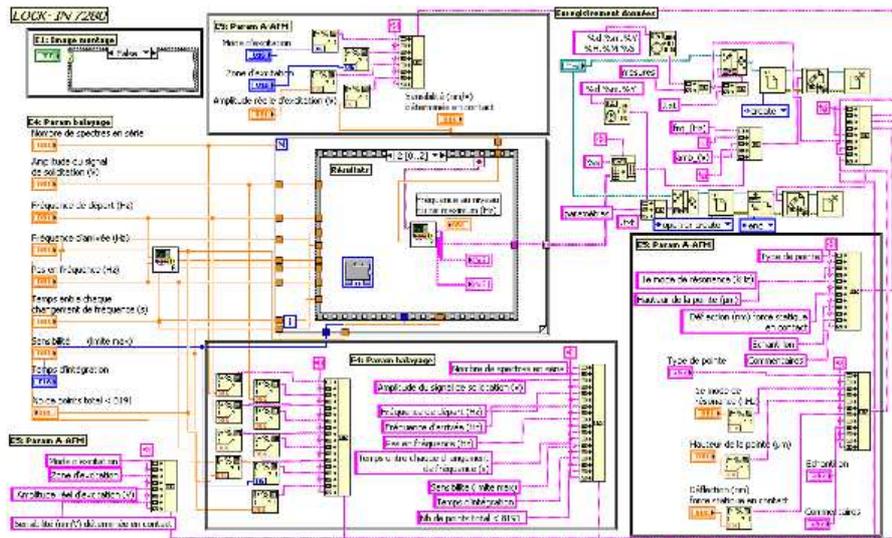


Fig. 2.4 : Modules Labview du système CR-AFM statique

Nous obtenons au final, des spectres retraçant l'évolution de l'amplitude de la réponse en flexion en fonction de la fréquence d'excitation appliquée. L'étude de ces graphiques permet ensuite d'identifier et de répertorier les différents pics de résonance (fig. 2.5), puis de permettre une exploitation de ces données par des modèles afin de remonter aux propriétés mécaniques des matériaux sondés.

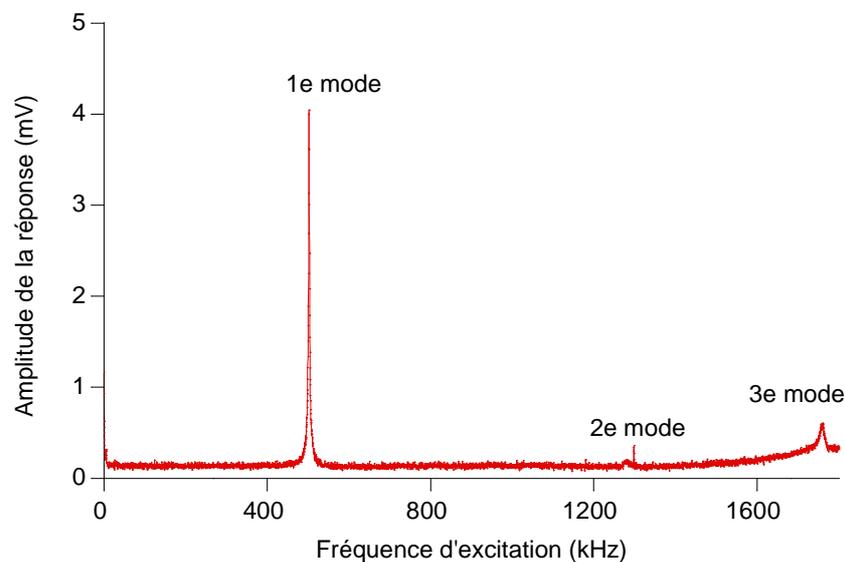


Fig. 2.5 : Spectre d'un levier en silicium MPP21100 (Veeco) en contact un échantillon d'alumine

Ce montage a assuré la réalisation de l'ensemble des travaux de spectrométrie qui seront présentés dans le chapitre III. Généralement, nous avons employé pour l'excitation des signaux variant entre 1 kHz et 2 MHz avec un pas de 250 Hz et une incrémentation toute les millisecondes. L'amplitude du signal, elle, dépend du système d'excitation employé (cf. II.2).

Ce système a l'avantage d'atteindre une précision appréciable grâce à sa détection synchrone et s'avère simple à mettre en œuvre. Cependant, sa vitesse d'acquisition constitue sa principale limite.

Suffisante pour des acquisitions ponctuelles, elle est trop lente pour envisager une cartographie CR-AFM. Elle est limitée à 8192 points de mesure avant de saturer la mémoire interne du 7280. La vidange de cette mémoire vers l'ordinateur ne pouvant se faire qu'après l'acquisition, cela ralentit d'autant l'enchaînement des mesures.

II.1.1.2. Image en mode contact résonant à fréquence f_{exc} fixée

Presque identique au précédent, ce montage rend possible de façon simple, l'acquisition d'image en mode contact résonant qualitative, grâce à une excitation à fréquence fixée f_{exc} . Il nécessite une mesure spectrométrique préalable, ce qui nous permet de choisir une fréquence d'excitation proche de l'un des pics de résonance. Puis, à partir de l'ordinateur contrôlant l'AFM, nous démarrons le scan de la surface que nous souhaitons imager (fig. 2.6).

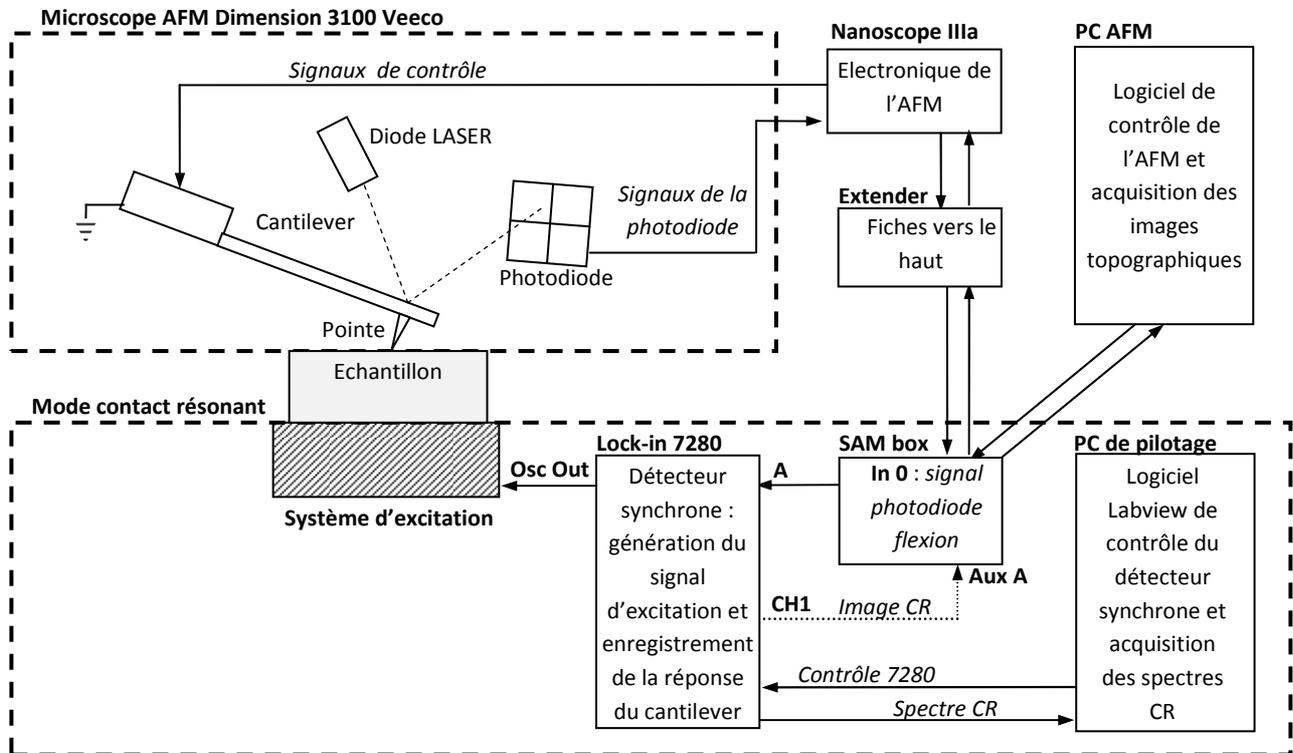


Fig. 2.6 : Schéma de notre montage CR-AFM permettant de réaliser des images à fréquence d'excitation fixée incluant une détection synchrone (7280 de Signal Recovery) et piloté par des scripts Labview.

Au cours du balayage, la détection synchrone détecte les variations dans la réponse en amplitude de la photodiode et les renvoie par une sortie analogique (CH1) vers une entrée de la SAM box, Auxiliaire A, qui sera numérisé par l'ordinateur PC-AFM en tant que signal de friction (sur une échelle de 2,5V). Au final, sur ce même ordinateur, nous retrouvons l'image AFM topographique et l'image du mode contact résonant à fréquence fixée.

Les informations que nous pouvons retirer de l'analyse des variations de contraste de ces images CR sont qualitatives comme l'illustre les résultats obtenus sur des films de silice nanoporeuse (fig. 2.7).

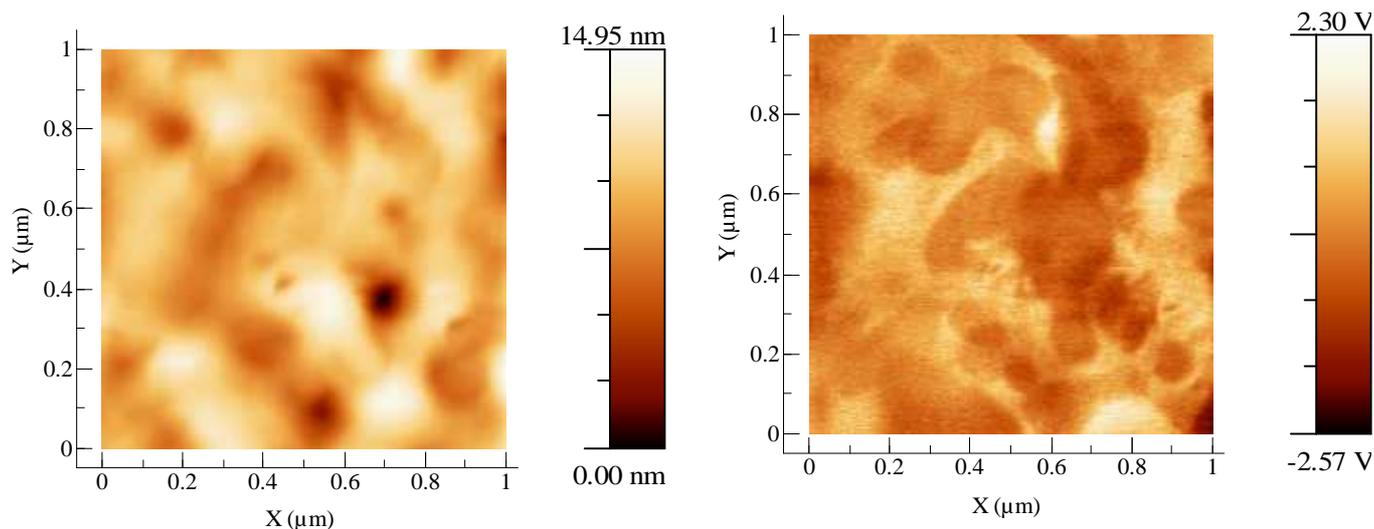


Fig. 2.7 : Image $1 \times 1 \mu\text{m}$ d'un échantillon de silice nanoporeuse.

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = 535\text{kHz} > f_{\text{résonance}} = 525\text{ kHz}$)

L'image en mode CR à fréquence fixée montre des détails supplémentaires inexistant sur l'image topographique, mais faute d'un suivi de l'évolution en fréquence du mode de résonance, il est impossible de les relier à des valeurs mécaniques.

En raison de ces multiples limitations, nous avons décidé de mettre au point un second type de montage, spécialement dédié à la cartographie en mode contact résonant.

II.1.2. Second montage utilisant une acquisition numérique

Ce deuxième montage CR-AFM doit surmonter les restrictions du précédent essentiellement dues à l'utilisation du détecteur synchrone. Remplissant à la fois le rôle de générateur de courant à l'origine de l'excitation acoustique et de système de détection des pics de résonance, il va nécessiter deux ensembles d'appareils pour le remplacer.

II.1.2.1. Version initiale

Dans un premier temps, nous avons acheté une carte d'acquisition compatible avec Labview et d'un couple de générateurs de fréquence. Ce système devait permettre de remplir le rôle tenu par la détection synchrone grâce à un pilotage approprié du groupe d'instrument. Malheureusement, il est apparu très vite que la synchronisation des différents appareils posait problème. Pour surmonter cette difficulté, nous avons développé des solutions logicielles et électroniques que nous répertorions avec le reste du matériel ici :

- 1 microscope AFM Dimension 3100 (Veeco)
- 1 électronique Nanoscope IIIa (Veeco)
- 1 SAM box 210C (Veeco) et un boîtier « extenseur » permettant de récupérer le signal brut de la photodiode
- 1 ordinateur gérant l'AFM (approche en contact du levier, taille et vitesse du scan, acquisition des images topographique)
- 2 générateurs de fréquence Agilent 33220
- 1 système d'excitation acoustique
- 1 ordinateur sous Labview contrôlant l'ensemble des appareils (gestion de l'acquisition, de l'excitation et traitement des résultats)
- 1 carte d'acquisition DAQmx 6115 et son boîtier d'accès aux signaux BNC 2110 (National Instrument)
- 1 montage électronique RMS -> DC, permettant d'amplifier puis de convertir les variations d'amplitude des oscillations du signal de la photodiode, en un signal continu. Réalisé en interne, il reprend le design proposé par Kos et Hurley. ^[Kos2008]
- 1 montage électronique travaillant sur le signal en X imposé sur les piézoélectriques de l'AFM pour effectuer le balayage d'une surface. Ce signal initialement triangulaire est converti par le circuit que nous avons développé comprenant à la fois un système dérivateur et un filtre passe bas. En sortie, nous obtenons un signal carré exploitable par notre carte d'acquisition.
- 1 oscilloscope pour contrôler régler le circuit précédent et vérifier le bon fonctionnement de l'ensemble.
- 1 amplificateur linéaire pour augmenter l'amplitude du signal d'excitation en cas de réponse trop faible. Il permet d'arriver à 30-40 V_{cc} si nécessaire.

Pour une bonne part, ce montage reprend le design du précédent. C'est en particulier vrai pour le système d'excitation, le microscope AFM et son pilotage. Les changements interviennent au niveau de la mesure de réponse du levier et pour la génération du signal d'excitation (fig. 2.8).

L'acquisition du signal de photodiode se fait après un passage dans le premier montage électronique (RMS->DC). Après amplification, il convertit le signal oscillant provenant de la SAM box, en un signal continu qui sera enregistré par la carte d'acquisition DAQmx. Cette dernière est capable d'enregistrer de manière continue 4 canaux à la fréquence d'échantillonnage de 20 MHz, et d'envoyer dans le même temps un signal sur 2 canaux. Elle va donc enregistrer le signal traité de la photodiode et le signal déclenchant la génération des rampes en fréquence. Cela nous permettra ultérieurement de relier les pics de résonance à la fréquence de vibration forcée du levier.

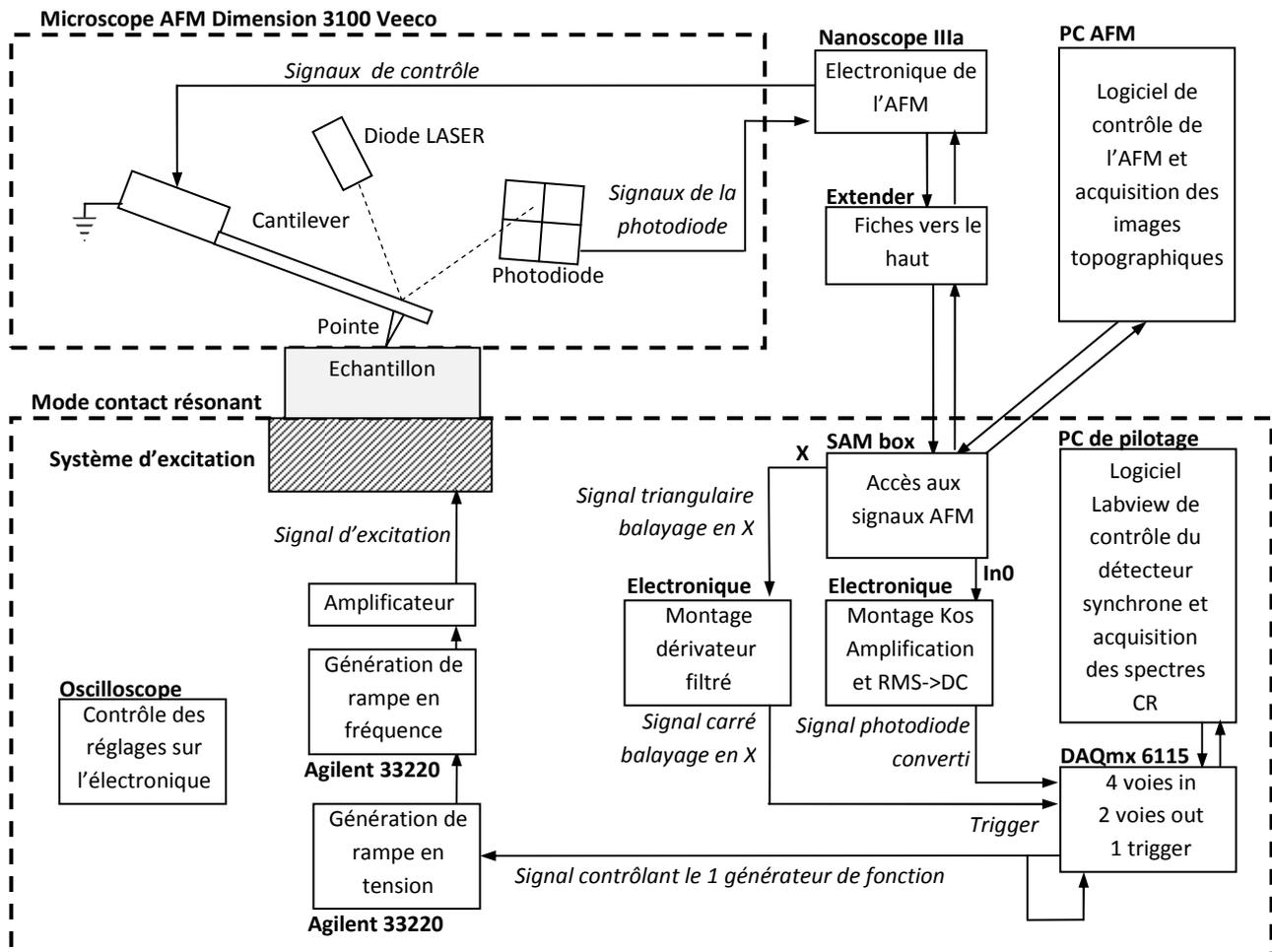


Fig. 2.8 : Schéma de notre montage permettant de réaliser des cartographies en mode contact résonant piloté par des scripts Labview.

La deuxième partie du montage assure la synchronisation entre les balayages en fréquence et le balayage de la pointe sur la surface de l'échantillon. Le déclenchement des balayages en fréquence doit ainsi s'effectuer à chaque début de ligne de scan, et s'arrêter en fin de ligne. Il convient pour cela de synchroniser le signal permettant de visualiser le balayage en fréquence avec le signal en sortie du dérivateur.

Comme l'illustre la figure 2.9, le dérivateur va donc permettre de convertir, le balayage triangulaire en X en un signal carré. Les fronts montants des créneaux en sortie du dérivateur vont alors faire office de signaux de trigger pour le premier générateur de fonctions. La demi-période des créneaux en sortie du dérivateur correspond au temps nécessaire à la pointe pour réaliser une ligne de scan. Le premier générateur de fonctions va envoyer n signaux de trigger correspondant aux n pixels constituant une ligne d'une image CR-AFM durant cet intervalle de temps. Ces n signaux de trigger arrivent ensuite en entrée d'un deuxième générateur de fonctions délivrant un signal sinusoïdal d'amplitude définie par l'utilisateur. Ce générateur va alors réaliser n balayages sur une gamme de fréquence également fixée par l'utilisateur.

Comme l'amplitude signal d'excitation délivré par le deuxième générateur de fonctions est souvent insuffisante pour dégager les pics de résonance du signal enregistré, la tension d'excitation est en général amplifiée. [Dupraz2010]

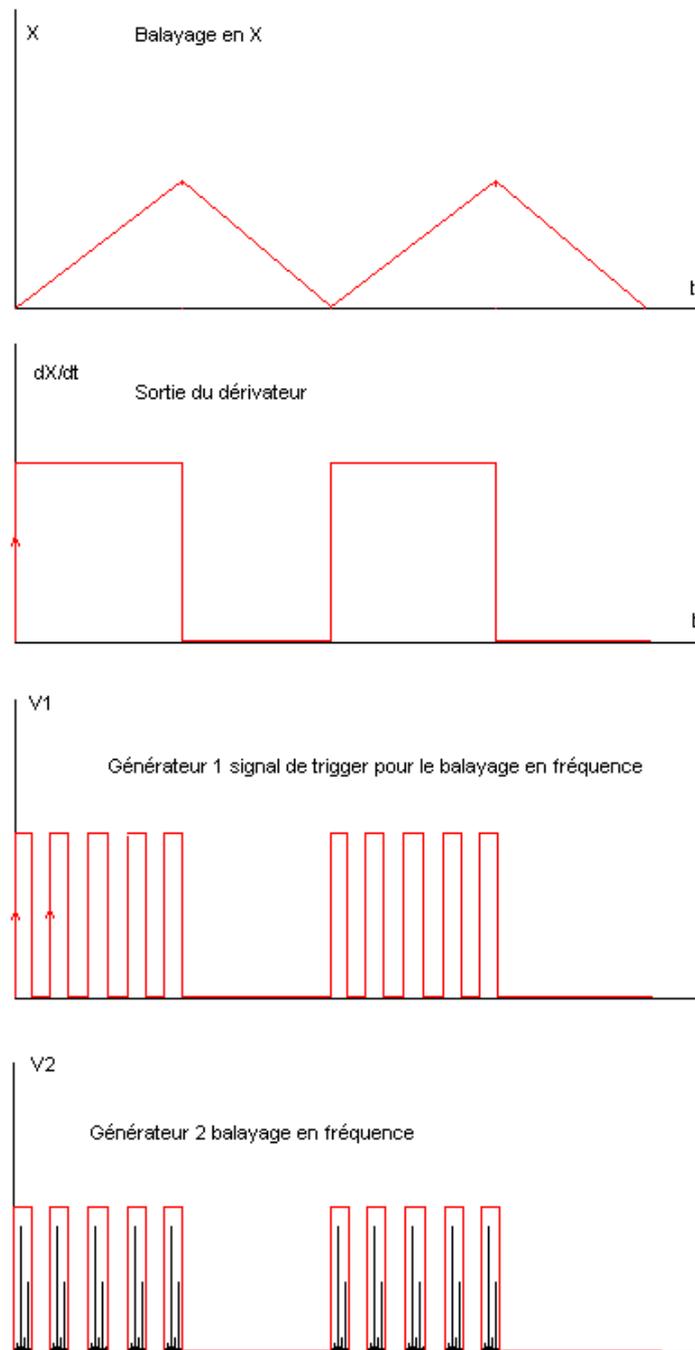


Fig. 2.9 : Synchronisation et génération des rampes en fréquence

Le programme Labview que nous avons développé avec l'aide de la société Saphir est pour ce montage beaucoup plus conséquent. En effet, il doit gérer le contrôle des instruments, assurer leur synchronisation, enregistrer en binaire deux canaux de données, et gérer le transfert de données entre la mémoire interne de la carte et l'ordinateur.

Le programme traite ensuite les données enregistrées en fonction du temps. Il reconstruit d'abord la réponse de la photodiode (convertie en DC par l'électronique), puis le signal de trigger correspondant au nombre et la position des spectres par ligne (V1 sur la fig. 2.9).

Lorsque la valeur en tension du signal de trigger est nulle, le script de traitement exclut les données enregistrées du dépouillement. Par contre, à chaque front montant, le programme analyse l'enregistrement de la réponse de la photodiode et relève la position des pics de résonance.

Pour cela, il faut veiller à ce que le nombre de points de mesure, leurs domaines et leurs pas en fréquence ainsi que la durée de balayage d'une ligne soit correctement implémenté dans le programme. En effet, le programme ne dispose pas d'un enregistrement de la valeur de la fréquence d'excitation en fonction du temps mais le recalcule à partir de ces données (fig. 2.10).

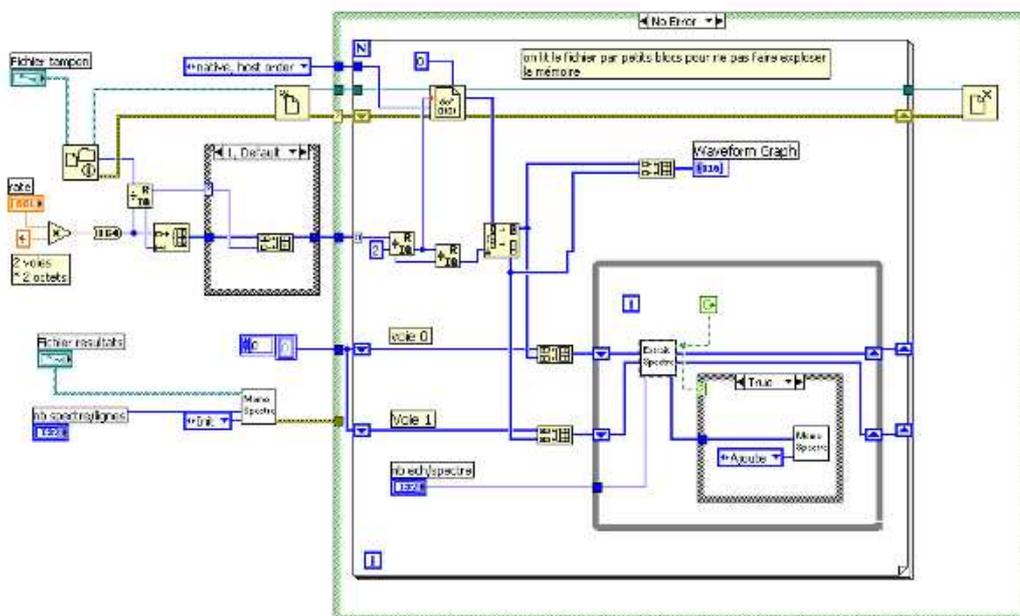


Fig. 2.10 : Sous-programme gérant le dépouillement des données

La partie programmation est donc assez contraignante sur ce montage, et génère des fichiers binaires de plusieurs centaines de mégaoctets pour des cartographies de 256×256 points et des temps d'acquisition proches de la demi-heure. Mais, au final, ce système permet d'obtenir de véritables cartographies CR-AFM capables de fournir des informations quantitatives sur les propriétés mécaniques des matériaux sondés. La première image (fig. 2.11) obtenue à l'aide de ce montage a été réalisée sur des structures d'interconnexions cuivre / silice low-k (cf. chapitre III). Les lignes de cuivre apparaissent en rouge/bleu ciel tandis que la silice reste bleu foncée ce qui traduit un décalage en fréquence du premier mode de résonance de 4 à 10kHz. Une forte dérive est constatée, d'où l'orientation oblique des lignes de cuivre.

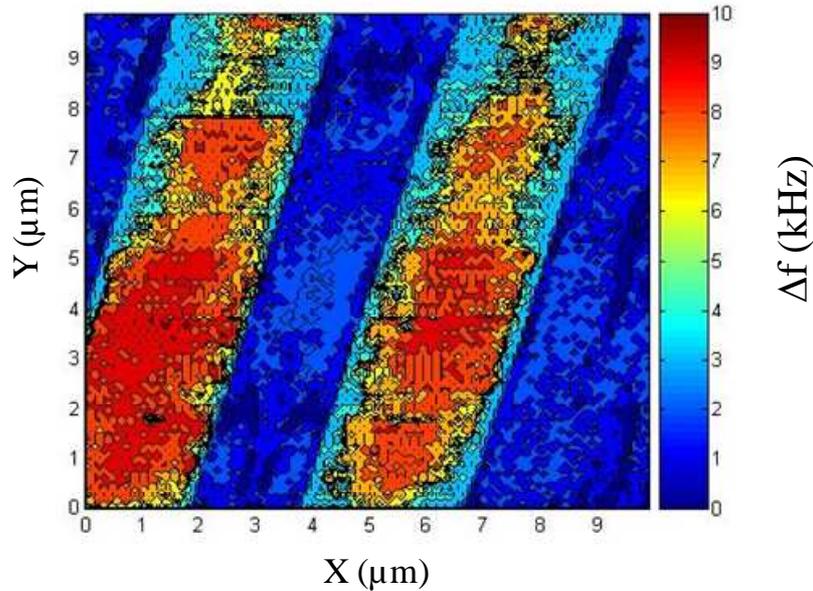


Fig. 2.11 : Image CR-AFM 10×10 µm de l'échantillon d'interconnexions cuivre – silice.
Durée d'acquisition ≈ 20 minutes pour 128×128 pixels.

Après cette première image, des progrès ont été fait sur le paramétrage ainsi que sur les leviers, ce qui a permis d'améliorer grandement la résolution et la qualité des cartographies CR-AFM, comme nous pourrons le voir dans le chapitre III.

Toutefois, ces images ont également montré qu'il subsistait un certain retard dans la synchronisation de nos appareils en début de ligne. Il s'agit du temps de réaction de notre carte d'acquisition pour envoyer le signal contrôlant le premier générateur de fonction (fig. 2.12). Du coup, nous observons souvent une partie du balayage retour sur le bord droit des cartographies (effet de symétrie).

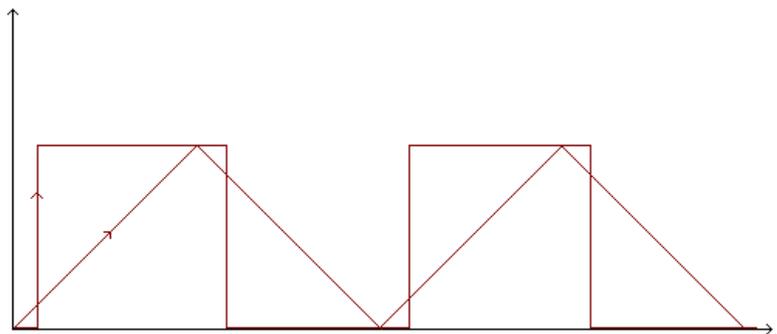


Fig. 2.12 : Illustration du problème de retard de synchronisation entre le signal créneau en sortie du dérivateur et le balayage en X

Un nouveau montage a donc été imaginé et mis en place à la fin de nos travaux de thèse, comme nous allons le voir.

II.1.2.2. Version avec table PI

Une table piézoélectrique PI 733 (X,Y) et son contrôleur E517 ont été achetés. Elle permet de gérer à la fois les déplacements horizontaux sur l'échantillon mais aussi verticaux grâce à un piézoélectrique Z, le PI-753. Du coup, nous n'avons plus besoin de l'ordinateur de contrôle de l'AFM, à part pour permettre à son électronique de fonctionner.

L'avantage d'un tel système réside dans son système de contrôle en position extrêmement précis (au nm près), et très stable à la différence de ceux du microscope AFM. Cela supprime également les problèmes de dérive due aux piézoélectriques de l'AFM ^[Veeco2004], et assure une gestion beaucoup plus fine du balayage de la surface des échantillons.

Cet appareil permet de s'affranchir du système de synchronisation (montage dérivateur, double générateur de fonction). En contre partie, le montage est beaucoup plus sensible aux bruits apportés par l'extérieur (vibrations de l'air et dans le sol), et l'acquisition de la topographie doit être prise en charge par notre carte d'acquisition (fig. 2.13).

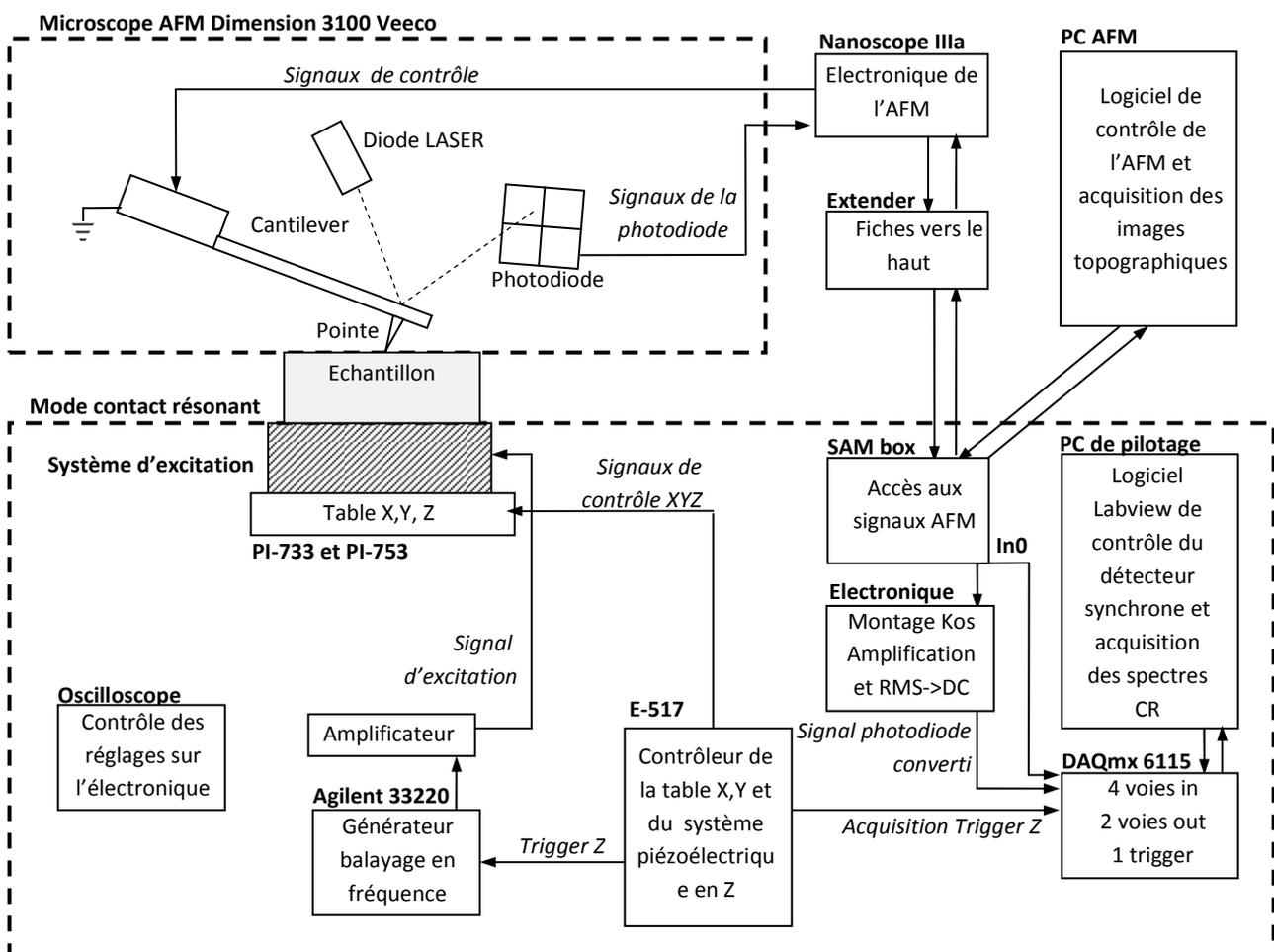


Fig. 2.13 : Schéma de notre montage permettant de réaliser des cartographies en mode contact résonant piloté par des scripts Labview avec la table PI-733

Ce montage nécessite également une programmation Labview importante ^[Dupraz2010], mais il autorise une grande liberté dans la gestion des acquisitions puisque nous disposons du contrôle complet des déplacements de la pointe AFM. Il est ainsi possible d'appliquer complètement la procédure que nous exposons dans la partie II.1.3 (avec précharge).

Par contre, sa sensibilité aux vibrations a constitué une des difficultés majeures pour sa mise en œuvre, et a entraîné la fixation des différents câbles utilisés ainsi que l'usinage d'une pièce stabilisant le piézoélectrique Z. Une fois ces développements terminés, il a alors été possible de réaliser des cartographies de bonne qualité comme nous l'illustre l'image CR-AFM réalisée sur les interconnexions cuivre/ silice low-k (fig. 2.14). Dans ce cas, le balayage en fréquence a été effectué entre 180 et 220 kHz par pas de 100 Hz, et le signal d'excitation est de 30 V_{cc}.

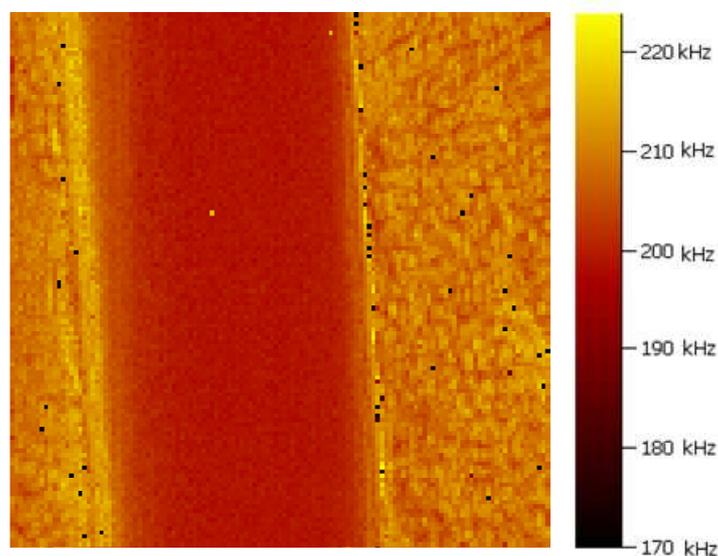


Fig. 2.14 : Image CR-AFM 5×5 µm de l'échantillon d'interconnexions cuivre – silice avec la table PI.
Durée d'acquisition ≈ 30 minutes pour 128×128 pixels.

Ayant fait l'objet d'un stage de master ^[Dupraz2010], ce montage n'a été disponible que très tardivement en raison des nombreux développements qu'il a nécessité. Nous n'avons pas pu en profiter autant que nous l'aurions souhaité. Néanmoins, il est fonctionnel, même si des améliorations sont encore prévues.

II.1.3. Elaboration d'une nouvelle procédure d'acquisition

La chaîne de mesures mise en place, il est désormais possible de s'intéresser à la façon dont nous réalisons les acquisitions en mode contact résonant sur notre microscope AFM (fig. 2.15). Avec notre retour d'expérience, nous avons développé toute une procédure visant à rendre ces mesures précises et reproductibles.



Fig. 2.15 : Photographie du microscope Dimension 3100 de Veeco

Dans un premier temps, nous réalisons un spectre en mode contact résonant avec le levier libre ce qui nous permet de relever généralement trois ou quatre fréquences de résonance. Puis nous amenons le levier en contact avec un échantillon. Nous réalisons ensuite une courbe d'approche « force-distance » (fig. 2.16) afin d'ajuster la valeur de la force imposée au niveau du contact.

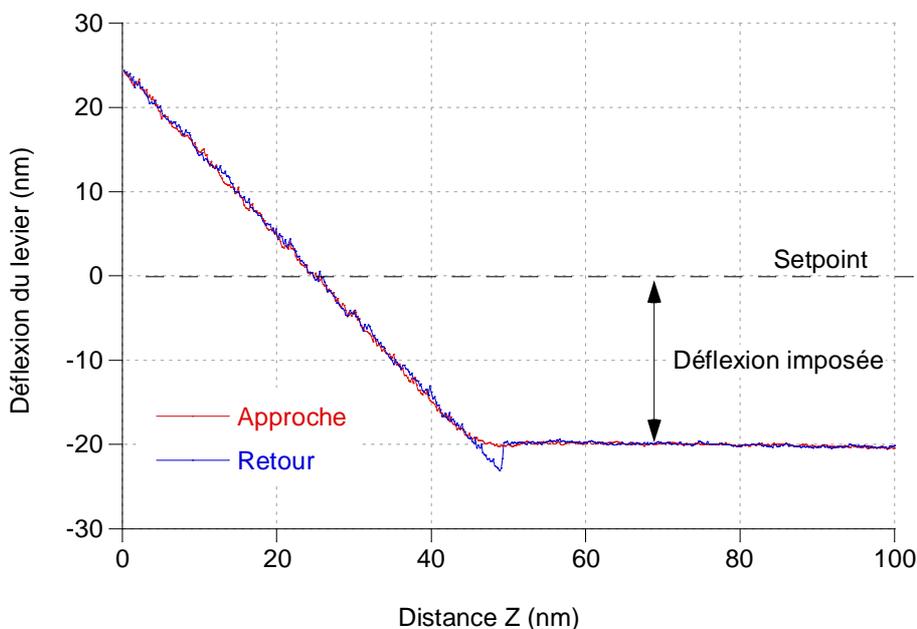


Fig. 2.16 : Courbe d'approche d'une pointe MPP21100 (Veeco) en silicium monocristallin ($k_c \approx 3N/m$)

En réalité, la valeur insérée correspond à l'évaluation de la déflexion ΔL du levier au niveau du spot LASER. La photodiode mesure la pente du levier au ce niveau, et grâce à la courbe précédente de calibration, l'instrument affiche des valeurs en distance (et non plus en tension).

Pour obtenir la force imposée, il nous faut passer ensuite par la loi de Hooke qui utilise la constante de raideur k_c du cantilever.

$$F = k_c \times \Delta L \quad (2.1)$$

Ainsi, bien que le microscope soit capable de déterminer la déflexion du cantilever avec une grande exactitude, inférieure au nanomètre, il nous faut connaître précisément la constante de raideur k_c des leviers si nous voulons déterminer précisément la force imposée. C'est la raison pour laquelle nous avons mené une étude dans ce domaine (partie II.4).

Le domaine de forces dans lequel nous effectuons nos mesures est situé entre 50 nN et 500 nN, car nous souhaitons lors de nos études travailler à faibles forces sur des films minces. Cette force doit être suffisamment grande pour pouvoir négliger l'influence des forces d'adhésion. Cela explique les travaux que nous avons menés (partie II.3) afin de réduire l'intensité de ces forces d'adhésion, et ainsi permettre d'utiliser légitimement des modèles de contact pointe-échantillon les ignorant.

Une fois cette étape de gestion de la force imposée réalisée, nous commençons nos acquisitions en mode contact résonant (statique ou cartographie). Les spectrométries que nous avons effectuées ont alors montré que la position des modes de résonance évolue lorsque nous répétons les mesures sur la même position (fig. 2.17).

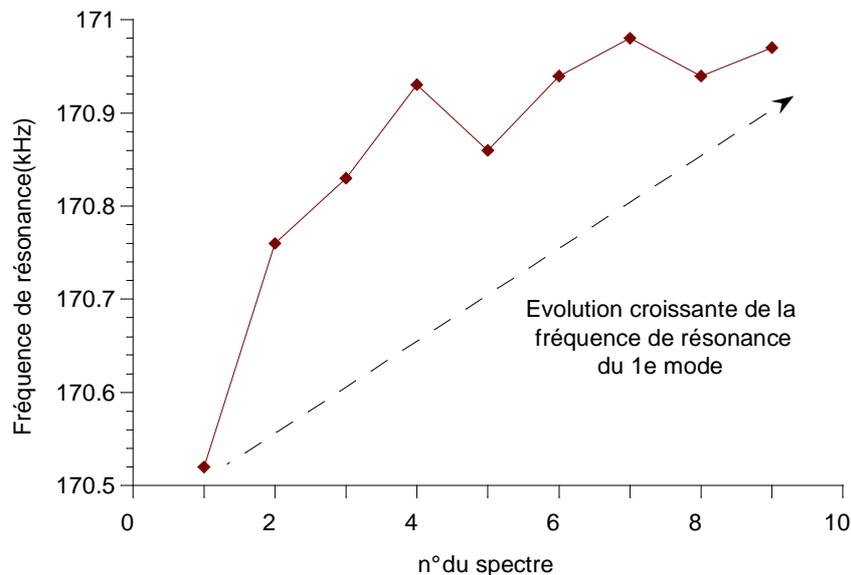


Fig. 2.17 : Evolution de la fréquence du premier pic de résonance en fonction du nombre de spectres réalisés sur le même site pour un levier en silicium monocristallin MPP 33100 en contact avec de la silice recuite

Cependant, il apparaît également que les valeurs des fréquences de résonance finissaient par se stabiliser. Nous avons donc fait un compromis au niveau du nombre d'acquisitions nécessaires et la

stabilité des fréquences relevées. Lors de nos mesures statiques, nous avons ainsi réalisé 9 acquisitions successives par site. Ces données ont ensuite été analysées à l'aide du logiciel Kaleidagraph et ont permis de reconstruire un spectre moyen dont le bruit de fond est réduit par un facteur 3.

La technique CR-AFM s'est avérée également très sensible à la rugosité de surface. Du coup, pour les mesures spectrométriques, nous avons également multiplié le nombre de sites de mesure pour chaque échantillon. De manière générale, nous avons choisi pour chaque série de mesures, 9 sites différents, ce qui impliquait à chaque fois de refaire l'approche entre la pointe et la surface et de rerégler la valeur de la force imposée sur le levier à l'aide d'une courbe d'approche.

En tout, 81 acquisitions ont été réalisées pour chaque mesure statique ensuite traitées informatiquement (fig. 2.18).

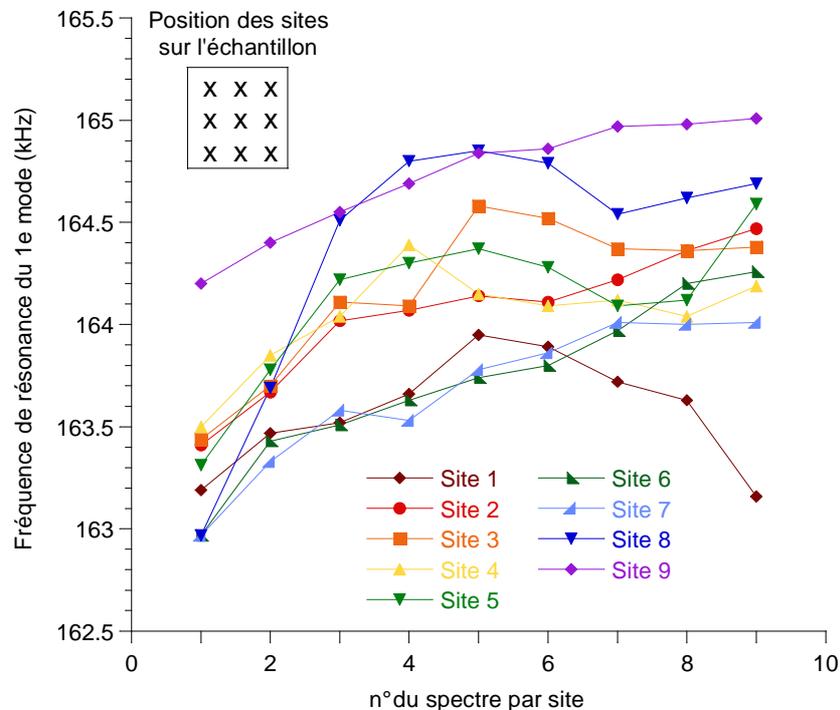


Fig. 2.18 : Evolution de la fréquence du premier pic de résonance en fonction du numéro de spectre sur un même site

Enfin, pour les mesures à multiples forces imposées, comme sur des films minces de silice (cf chapitre III.1), une nouvelle procédure s'est ajoutée aux précédentes. En effet, les premières expérimentations que nous avons menées sur ces échantillons ne dégagèrent pas une quelconque tendance. La cause de ce problème résidait dans le fait que nous effectuons ces acquisitions à forces croissantes.

En reprenant des notions issues de la nanoindentation ^[Pharr1992], cette absence de tendance s'explique simplement par le fait que nous évoluons alors sur la partie charge de la courbe d'indentation, à force croissante (fig. 2.19).

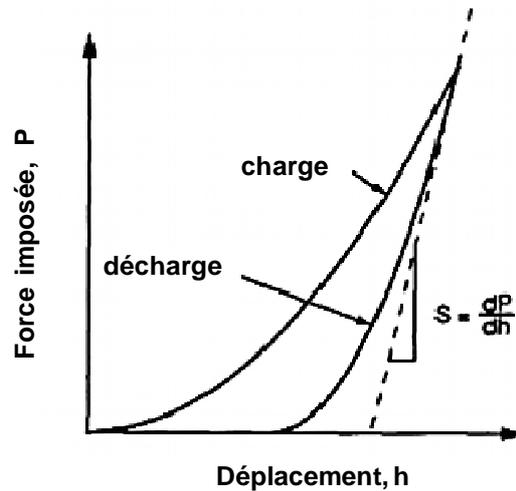


Fig. 2.18 : Courbe d'indentation typique force vs déplacement [Pharr1992]

Or ce domaine n'est pas purement élastique, contrairement à la partie de la courbe correspondant à la décharge. C'est pourquoi nous avons changé notre démarche habituelle, et élaboré un nouveau protocole de mesure.

Avant de réaliser les acquisitions à force décroissante, nous appliquons désormais une précharge supérieure à la force maximale appliquée dans les expérimentations prévues. Typiquement, si la force appliquée la plus élevée est de 300 nN, une force initiale d'environ 350 nN sera imposée avant de démarrer les mesures.

Cette procédure, permettant de rester dans le régime élastique, doit être répétée pour chaque site de mesure. Elle assure qu'à cet endroit, le solide est déjà déformé plastiquement. Les mesures étant réalisées à forces décroissantes, il ne le sera pas davantage. L'ensemble de l'approche peut être synthétisé par le schéma suivant décrivant les acquisitions à multiples forces sur un même site (fig. 2.19).

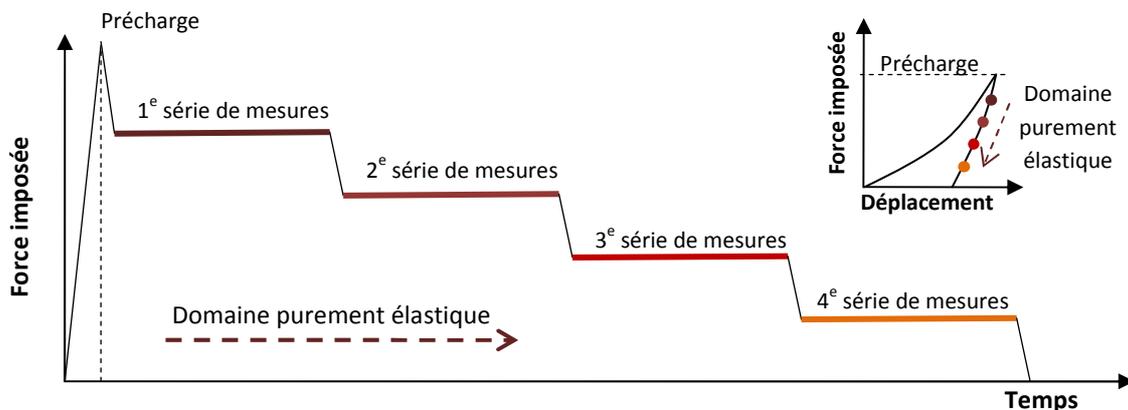


Fig. 2.19 : Procédure d'acquisition pour des expérimentations CR-AFM à multiples forces imposées.

Grâce à cette procédure, nous avons pu obtenir des données exploitables sur nos films minces comme nous le verrons dans le chapitre III et IV.

II.2. Choix du système de génération d'ondes acoustiques

Dans la description de nos montages CR-AFM, nous avons volontairement omis de décrire le système d'excitation que nous avons utilisé. En effet, celui-ci a fait l'objet de recherches, principalement dans le but d'améliorer la détection des modes de résonance.

II.2.1. L'excitation CR-AFM via le transducteur intégré dans la pointe

Lorsqu'il s'agit de générer les vibrations au sein d'un microscope à force atomique, l'utilisation de l'équipement existant apparait comme la solution la plus commode car les microscopes à force atomique modernes emploient un système d'excitation piézoélectrique intégré pour réaliser des mesures en mode « tapping » (mettant en oscillation le cantilever) ^[Veeco2004].

Notre instrument, un Dimension 3100 de Veeco intègre un transducteur piézoélectrique bimorphe à la tête du microscope (fig. 2.20) ^{[Yamanaka 1998] [Yamanaka 1996] [Tsuji2001]}. Ce dernier permet de générer des oscillations verticales du cantilever que notre détecteur synchrone peut détecter jusqu'à sa limite de détection à 2 MHz.

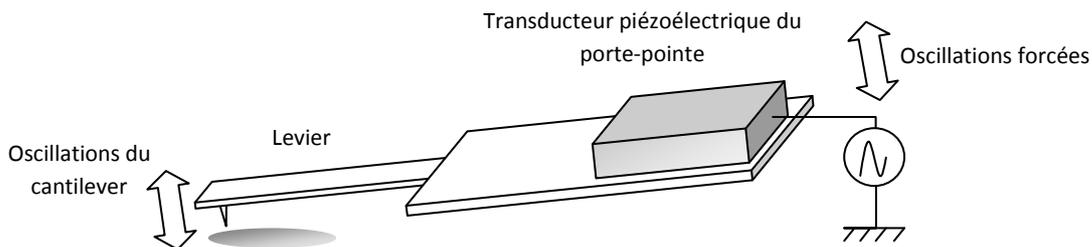


Figure 2.20: Système d'excitation CR-AFM utilisant le piézoélectrique intégré à la tête de l'AFM

Un transducteur piézoélectrique est un système qui converti une énergie électrique en un déplacement mécanique ^[Safari2008]. Il dispose pour cela d'un matériau polarisé, généralement une céramique, qui va se déformer en fonction de la différence de potentiel qui lui est appliqué ; ce qui nous donne en première approche :

$$S \propto dE \quad (2.2)$$

Avec S correspondant à la déformation du transducteur sous l'effet piézoélectrique, et E , la valeur du champ électrique imposé. Cette réaction a été mise en évidence dès la fin du 19e siècle par les frères Curie (1881) ^[Curie1881], et a autorisé le développement de nombreux procédés utilisant des piézoélectriques ^[Mason1980].

Pour notre montage, ce système va donc convertir une tension sinusoïdale en une vibration ultrasonore au niveau de la base encastrée du cantilever. Cette configuration porte le nom spécifique d'UAFM ^[Yamanaka 1996] pour « ultrasonic atomic force microscopy », et a été beaucoup développé

jusqu'au début des années 2000 ^[Rabe2006]. Le mouvement du levier sur ce dispositif (fig. 2.21) est assimilable à une excitation ponctuelle sinusoïdale à la base d'une poutre rectangulaire de longueur L , en contact élastique avec la surface d'un échantillon avec une raideur k^* et un amortissement.

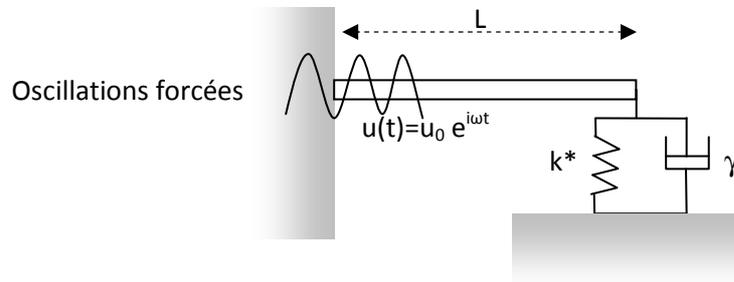


Figure 2.21: Modèle simplifié d'une excitation forcée par la base du cantilever

A partir de cette modélisation simple, développé dans la littérature ^[Rabe2006], il est possible d'écrire une équation du mouvement du levier en bout de pointe, là où se réfléchit le faisceau LASER :

$$y(L) = u_0(\alpha L)^3 \frac{\cos \alpha L + \cosh \alpha L}{(\alpha L)^3(1 + \cos \alpha L \cosh \alpha L) + \varphi(\alpha)(\cosh \alpha L \sin \alpha L - \sinh \alpha L \cos \alpha L)} \quad (2.3)$$

Ce résultat sera comparé ultérieurement avec ceux obtenus avec les autres systèmes d'excitation.

Au niveau expérimental, ce système d'excitation s'insère très simplement dans nos montages CR-AFM. Il suffit d'envoyer le signal d'excitation vers l'entrée analogique ANA 1 de la SAM box pour exciter directement le piézoélectrique du porte-pointe. C'est ainsi que nous avons obtenu les premiers résultats probants en acoustique AFM comme l'illustre ce spectre en résonance obtenue (figure 2.22) pour un échantillon de silicium centré sur le premier pic de résonance en contact.

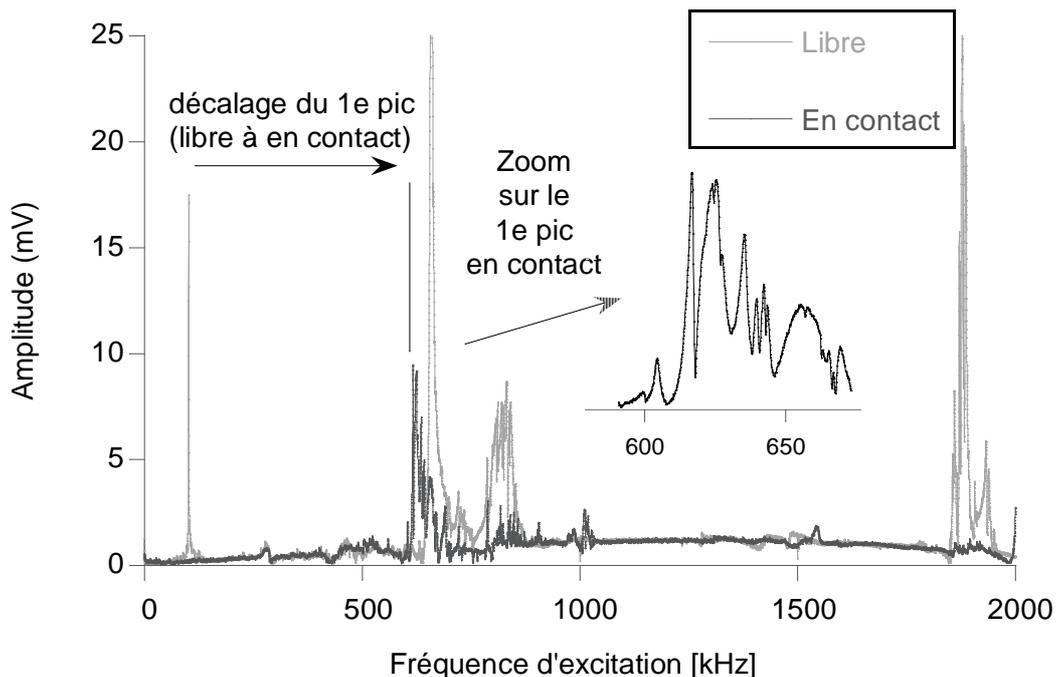


Figure 2.22 : Spectre libre puis en contact sur un échantillon de silicium avec le système d'excitation piézoélectrique.

Ce graphique résulte donc de l'excitation du piézoélectrique sur une rampe en fréquence de 1 à 2000 kHz avec une tension efficace de 10 mV, et sur celui-ci nous pouvons relever un pic de résonance compris entre 620 et 640 kHz. Ce spectre est caractéristique de ce type de montage car il présente de nombreux pics supplémentaires qui se chevauchent et rendent l'identification de la position des pics de résonance difficile. L'origine de ces pics parasites s'explique par la position du transducteur à la base du levier. Ce dernier génère des oscillations dans le cantilever mais aussi dans toute la structure de la tête du microscope qui l'entoure. Ainsi, lors de la rampe en fréquence, des pièces mécaniques vont entrer en résonance et introduire sur notre spectre des pics parasites indépendamment de la mesure effectuée. S'affranchir de ces défauts est difficile de par la conception du microscope ^[Tsujii2007], du coup, nous nous sommes orientés vers un autre montage expérimental incluant également un transducteur piézoélectrique.

II.2.2. L'excitation CR-AFM via un transducteur indépendant

La littérature nous propose une configuration alternative, se basant sur un piézoélectrique indépendant placé sous l'échantillon étudié (fig. 2.23). Ce transducteur va générer des ondes acoustiques qui vont se propager jusqu'à la surface de l'échantillon. Puis via son contact, le cantilever va entrer en oscillation ouvrant ainsi la possibilité de réaliser de la microscopie en mode contact résonant. Cette configuration CR-AFM est souvent désignée sous le nom de microscope acoustique à force atomique (AFAM). ^{[Rabe1994] [Rabe2002]}

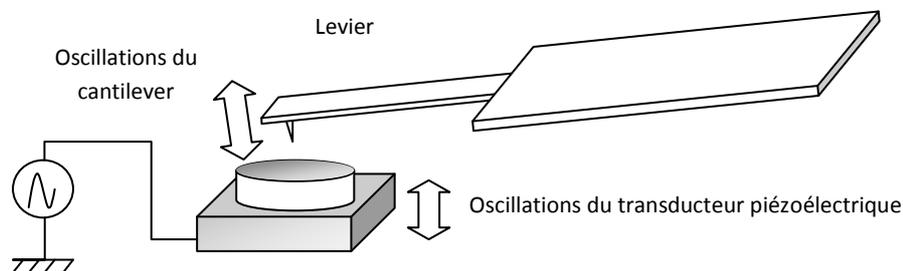


Figure 2.23 : Système d'excitation CR-AFM utilisant un piézoélectrique placé sous l'échantillon analysé

Nous avons choisi un transducteur adapté, un Panametrics-NDT V106-RM proposé par la société Olympus, couramment utilisé en CR-AFM. Ce choix s'explique notamment par sa large bande passante d'environ 3 MHz à -6 dB (voir figure 2.24).

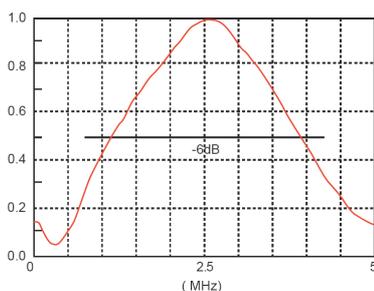


Figure 2.24: A gauche : la réponse fréquentielle normalisée du V-106 RM. A droite : Photographie V-106 RM

En reprenant notre modèle simplifié, nous pouvons avoir une idée du comportement du cantilever lorsqu'il est excité par ce type de montage (figure 2.25).

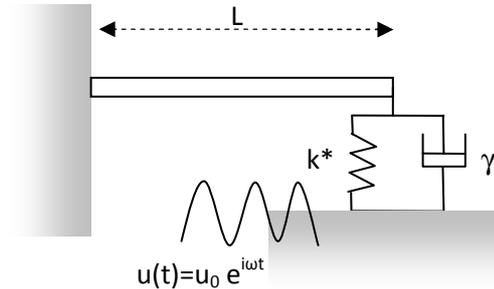


Figure 2.25 : Modèle simplifié d'une excitation forcée par la base du cantilever

L'excitation du transducteur piézoélectrique reste sinusoïdale mais cette fois-ci, cette excitation se propage jusqu'à la surface de notre échantillon.

Au final, le mouvement du levier en bout de pointe s'exprime ^[Rabe2006] :

$$y(L) = u_0 \varphi(\alpha) \frac{\sin \alpha L \cosh \alpha L - \sinh \alpha L \cos \alpha L}{(\alpha L)^3 (1 + \cos \alpha L \cosh \alpha L) + \varphi(\alpha) (\cosh \alpha L \sin \alpha L - \sinh \alpha L \cos \alpha L)} \quad (2.4)$$

Dans la pratique lorsque nous effectuons des mesures en contact sur notre échantillon de référence en silicium, nous obtenons un spectre distinct du précédent (fig. 2.26). Une tension sinusoïdale de 100 mV a été envoyée au transducteur piézoélectrique placé sous l'échantillon tandis que nous réalisons un balayage en fréquence de 1 kHz à 2000kHz.

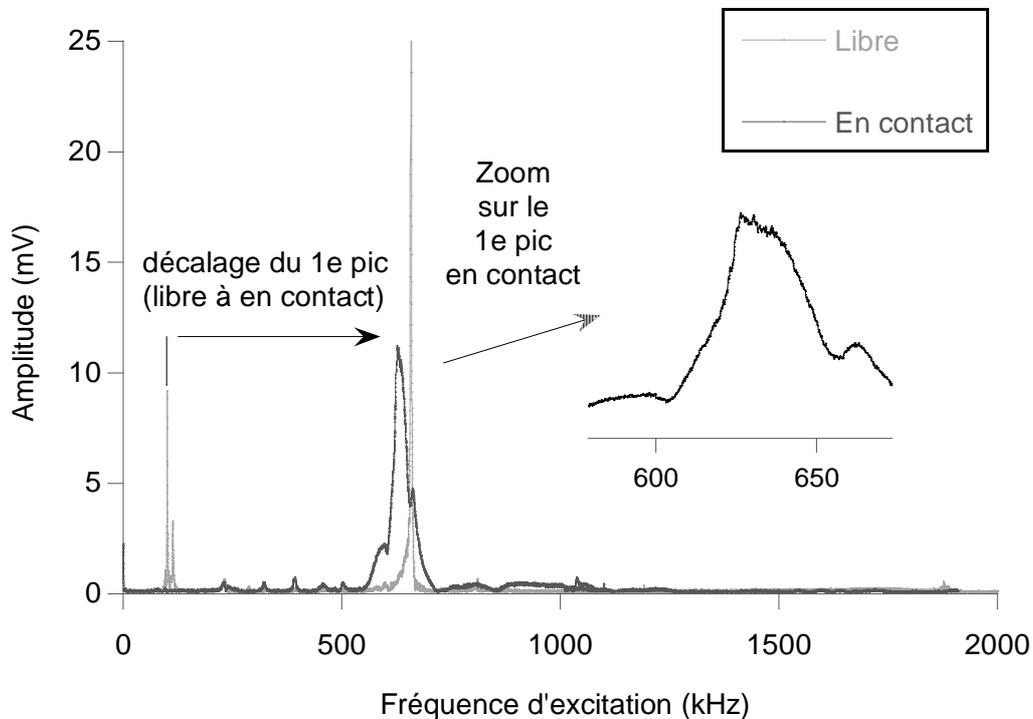


Figure 2.26 : Spectre libre puis en contact sur un échantillon de silicium avec le système d'excitation piézoélectrique indépendant.

Le spectre présente un pic clairement défini, centré autour de 641 kHz, avec un facteur de qualité Q de l'ordre de 44. Même si nous retrouvons la présence d'un pic secondaire, nous identifions de façon franche le pic principal, ce qui nous permet d'exploiter correctement ce type de courbe.

Ce type de montage semble être déjà suffisant pour notre étude, mais nous avons voulu en expérimenter un troisième, en raison de la facilité d'utilisation et de la précision qu'il promettait.

II.2.3. Le système électrostatique

Le montage dit électrostatique est un système d'excitation assez peu répandu [Arinero2003] [Dianoux2004]. Il s'agit pourtant d'une configuration intéressante pour la simplicité de sa mise en œuvre et pour son mode d'action permettant d'obtenir des spectres d'une qualité supérieure aux autres techniques (fig.2.9).

Pour mettre en place ce système, il faut utiliser un levier conducteur puis placer sous l'échantillon une électrode; dans notre cas, nous avons choisi une plaque en cuivre. Le point essentiel pour que la technique fonctionne implique que l'échantillon doit au minimum être constitué d'une couche isolante. Cela exclut par principe tout échantillon conducteur et constitue la principale limitation de ce système [Ouisse2005].

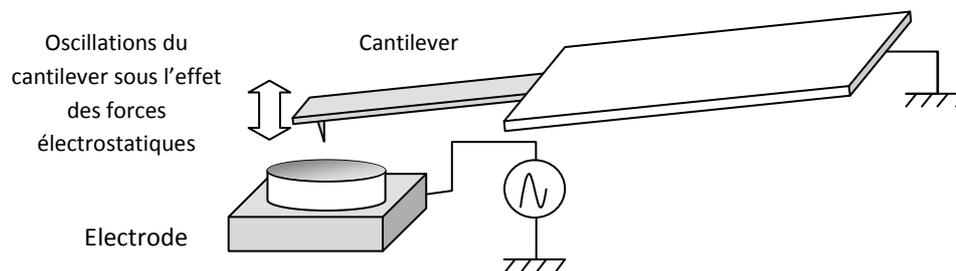


Figure 2.27 : Système d'excitation CR-AFM utilisant un système électrostatique

L'électrode et le cantilever sont assimilables à deux armatures en vis-à-vis, et constitue donc une structure similaire à un condensateur plan. Un champ électrique va naître au milieu de ces structures puis engendre des oscillations du cantilever ce qui assure la génération des ondes acoustiques au niveau du contact avec l'échantillon.

L'excitation électrostatique dépend donc du différentiel de potentiel entre les deux armatures ainsi que de la distance qui les séparent. Le cantilever étant assez différent d'une électrode plane, la force électrostatique s'exercera de façon plus importante au niveau de la pointe qui s'avance sur une dizaine de micromètre en direction de la surface de l'échantillon. Il est alors possible d'assimiler notre configuration à un modèle simplifié (fig. 2.28) où les oscillations forcées sont produites au niveau de la pointe du cantilever :

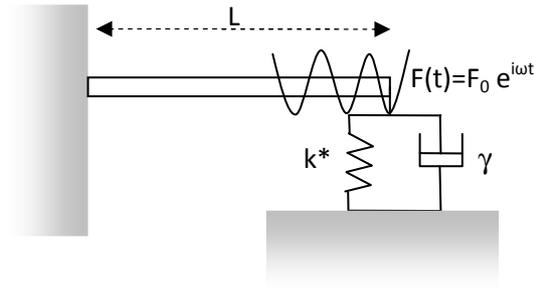


Figure 2.28 : Modèle simplifié d'une excitation forcée sur tout le cantilever

Avec une telle excitation, nous obtenons en bout de pointe l'équation suivante ^[Rabe2006] :

$$y(L) = \frac{3F_0}{k_c} \frac{\sin \alpha L \cosh \alpha L - \sinh \alpha L \cos \alpha L}{(\alpha L)^3 (1 + \cos \alpha L \cosh \alpha L) + \varphi(\alpha) (\cosh \alpha L \sin \alpha L - \sinh \alpha L \cos \alpha L)} \quad (2.5)$$

Si nous comparons cette équation de mouvement, en fonction de celles obtenues pour les deux autres systèmes d'excitation (eq. 2.3 et 2.4), nous obtenons le graphique suivant (fig. 2.29).

Il montre que si la position de la fréquence de résonance ne dépend pas théoriquement du système d'excitation, l'amplitude de la réponse produite par une excitation équivalente va varier significativement suivant le système employé.

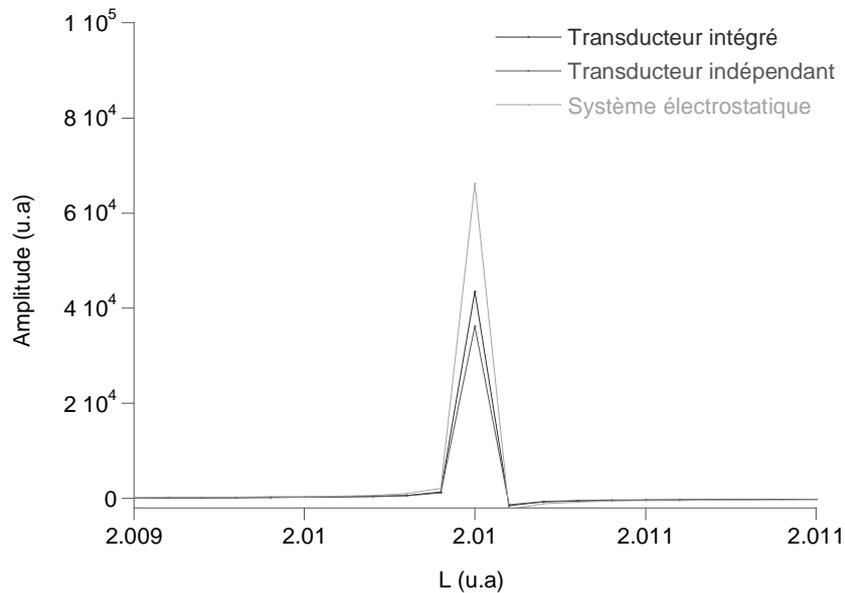


Figure 2.29 : Modélisation de la réponse du levier en fonction du système d'excitation

Expérimentalement, nous retrouvons avec ce montage les pics de résonance mais sans pics parasite comme nous pouvons le constater sur le spectre réalisé sur le même échantillon de silicium que pour les autres montages effectués avec une tension sinusoïdale d'excitation de 1V durant un balayage en fréquence de 1 kHz à 2000kHz (fig. 2.30).

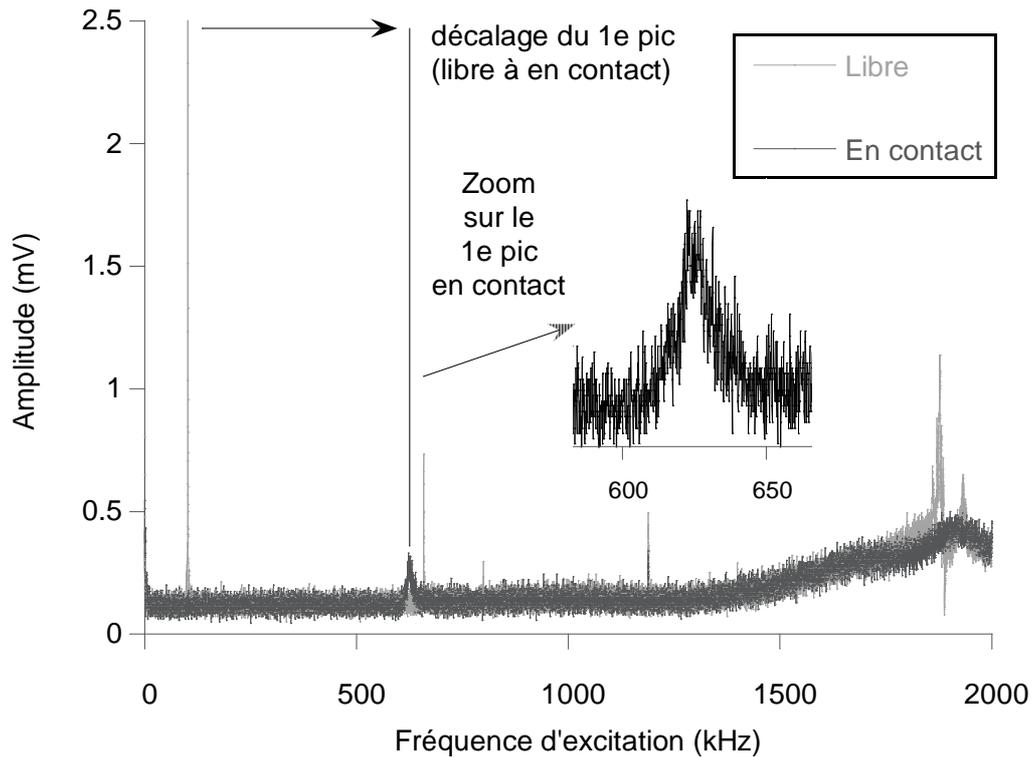


Figure 2.30: Spectre libre puis en contact sur un échantillon de silicium avec le système d'excitation électrostatique.

Ce spectre, malgré son aspect au plus bruité présente un facteur de qualité égal ou supérieur aux autres techniques (ici $Q = 40$) comme nous l'indique le tableau 2.1 réalisé d'après une dizaine de mesures générées via les trois montages dans des conditions identiques. L'avantage majeur de cette technique réside dans le fait que nous ne voyons apparaître que les pics correspondant à des modes de résonance du cantilever. C'est ce point capital qui explique que nous avons employé cette technique préférentiellement lorsque c'était possible (échantillon non-conducteur). Sur ce point, il est intéressant de noter que les wafers de silicium, pourtant semi-conducteur, se laissent mesurer avec ce système. Il semble que la couche de passivation d'oxyde de silicium à la surface du wafer soit suffisante pour isoler le cantilever du courant provenant de l'électrode située juste en dessous.

Au final, si nous reprenons les résultats obtenus via les trois montages, nous pouvons comparer les facteurs de qualité et rapport signal sur bruit obtenus sur le premier pic de résonance (tableau 2.1).

	Sur le 1 ^{er} pic de résonance	Système piézoélectrique intégré	Système piézoélectrique indépendant	Système d'excitation électrostatique
Libre	Q	155.72 ± 1.59	138.94 ± 2.73	148.53 ± 9.22
	Ratio signal/bruit	16.82 ± 0.04	22.21 ± 0.57	18.65 ± 1.32
En contact	Q	30.73 ± 2.45	41.43 ± 2.25	62.57 ± 15.18
	Ratio signal/bruit	7.12 ± 1.33	10.55 ± 0.80	2.60 ± 0.43

Figure 2.1 : Tableau récapitulatif des résultats obtenus en fonction du système d'excitation

En libre, nous constatons qu'il existe peu de différences entre les différents systèmes d'excitation aussi bien au niveau des facteurs de qualité que des ratios signal-bruit. En contact, les choses changent considérablement. En effet, la valeur du facteur qualité progresse entre les différents systèmes, et devient maximale pour le montage d'excitation électrostatique.

Dépourvu de pic parasite, le système d'excitation électrostatique constitue notre système de prédilection, suivi par le montage à transducteur indépendant (AFAM) dans les cas où l'échantillon empêche l'utilisation du système électrostatique.

Ceci conclut cet aperçu des différentes techniques d'excitation étudiées. Désormais, nous allons regarder plus précisément les autres facteurs sur lesquels nous pouvons intervenir pour optimiser nos mesures.

II.3. Optimisation des conditions expérimentales

Après les systèmes d'excitation, nous avons cherché à améliorer d'autres éléments de notre montage expérimental. Nous nous sommes ainsi intéressés à l'environnement dans lequel se déroulent nos mesures.

II.3.1. Intérêt et mise en place d'un environnement contrôlé

Dans le chapitre précédent, nous avons détaillé rapidement les forces d'adhésion à l'œuvre lors d'un contact élastique entre deux solides, et nous avons mentionné les forces de capillarité dues à l'effet du ménisque d'eau se formant autour de la pointe AFM. Ce ménisque dépendant directement du taux d'humidité de l'environnement, nous avons développé un caisson semi-étanche (fig. 2.31) dans lequel un flux d'air asséché est injecté grâce à une légère surpression. Le taux d'humidité relative dans l'environnement de la mesure est maintenu à un faible niveau, et ce taux est mesuré en permanence par une sonde placée dans la chambre.



Figure 2.31 : Photographie du caisson

L'évaluation de la valeur de la force de capillarité en fonction de la taille du ménisque d'eau a été faite par Crassous^[Crassous1997] :

$$F_{cap} = -4\pi R\gamma_{LV} \left(1 - \frac{h - 3e}{2r}\right) \quad (2.6)$$

Avec R le rayon de la courbure de la pointe, γ_{LV} l'énergie de surface, h la distance séparant la pointe de la surface de l'échantillon, e l'épaisseur du film d'eau et r le rayon de ménisque. Ce qui se traduit par une force dépendant uniquement du rayon de courbure et de l'énergie de surface lorsque l'épaisseur du film devient négligeable et que la pointe est en contact (h=0).

La littérature^[Dupas2000] nous indique un effet marqué des forces de capillarité au dessus de 10% d'humidité relative, lesquelles peuvent alors influencer sur les fréquences de résonance. Ce n'est pas notre cas avec ce système puisque nous nous situons toujours en dessous de 5% d'humidité relative.

Outre l'effet sur la position des pics en résonance, il y également une augmentation au niveau de l'amplitude de ces pics quand le taux d'humidité relative diminue. Ceci permet d'obtenir des pics avec un meilleur rapport signal sur bruit et surtout d'identifier les modes de résonance auparavant noyés dans le bruit de fond^[Hurley2006], comme nous pouvons l'observer sur nos propres résultats expérimentaux (fig 2.32).

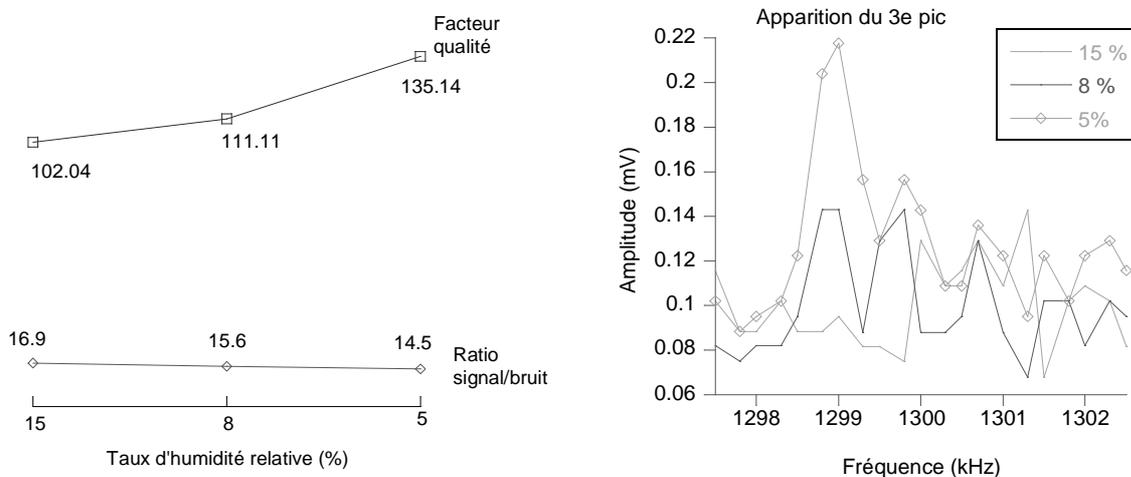


Figure 2.32 : A gauche, évolution du facteur qualité et du ratio signal/bruit en fonction de l'humidité relative ambiante. A droite, augmentation de l'amplitude du troisième pic de résonance qui finit par apparaître.

L'augmentation du facteur de qualité et l'apparition de pics de résonances supplémentaires auparavant noyés dans le bruit lorsque le taux d'humidité relatif diminue, nous permet d'améliorer la qualité de nos spectres expérimentaux, et par là même, d'améliorer la précision des analyses que nous pouvons ensuite réaliser. Dès que possible, nous nous sommes placés pour la suite de nos expérimentations dans ces conditions avec un taux d'humidité relative inférieur à 5%.

II.3.2. Un enjeu majeur : le phénomène d'usure des pointes AFM

Dans le chapitre précédent, nous avons vu que la détermination de la rigidité du contact dépendait fortement de la forme de la pointe puisque nous avons discuté des cas d'une extrémité de pointe sphérique, conique ou en forme de poinçon plat. Les pointes neuves peuvent être considérées comme un cône terminé par un bout sphérique ^[Veeco2004]. En cours d'utilisation, comme la littérature le mentionne ^[Kopycinska-Müller2006], l'utilisation du cantilever entraîne la modification du profil de la pointe, soit sous forme d'usure progressive qui tend à ramener ce profil à un poinçon plat, soit sous forme de fractures ce qui peut davantage la rapprocher d'un cône biseauté.

Ainsi la rigidité du contact S , donnée fondamentale de la mécanique du contact dépend selon Sneddon de l'aire de contact ^[Sneddon1965] :

$$S = 2E^*a \quad (2.7)$$

Cette aire de contact dépend, quoiqu'il arrive, de la forme de pointe, ce qui signifie que la moindre modification de forme va entraîner une variation dans la valeur de S . Sur une campagne de mesure, nous pouvons ainsi démarrer avec une pointe au rayon de courbure de 10 nm pour terminer avec une pointe dont le rayon est estimé à plus de 80 nm. Au delà de la perte de précision, il devient alors difficile de comparer les résultats du premier échantillon au dernier, sans parler de l'exploitation quantitative qui devient impossible à réaliser quelle que soit la méthode. Peu importe le rayon de courbure de départ d'une pointe, l'essentiel est que celui-ci reste relativement constant tout au long des mesures.

II.3.2.1. Observation du phénomène

Lors de nos campagnes expérimentales, nous avons malheureusement observé plus d'une fois des cas de fracture de la pointe AFM comme le montre la figure 2.33. Les spectres en mode contact résonnant nous montrent alors une augmentation subite des fréquences de résonances, allant de quelques dizaines de kilohertz à plusieurs centaines. Et de plus ce nouveau positionnement se retrouve sur les spectres réalisés par la suite, et donc rend toute comparaison avec les précédents impossible. Du coup, les phénomènes d'usure ont rendu inexploitable de nombreuses campagnes de mesures, ou pour le moins ont souvent limité leur analyse.

Pour expliquer plus en détail ce phénomène, ramenons nous au cas d'une pointe hertzienne décrite dans le chapitre I ^[Hertz1881] :

$$k^* = (6E^*F_n R_c)^{\frac{1}{3}} \quad (2.8)$$

Nous constatons que pour k^* , la rigidité normale du contact dépend de la racine cubique du rayon de courbure de la pointe. Donc lorsque celui-ci augmente, sous l'effet de l'usure ou d'une fracture, la

valeur de k^* va s'accroître également. Or la littérature ^[Rabe2006] aussi bien que les différentes modélisations que nous avons menées nous montrent clairement que si la rigidité de contact augmente alors les fréquences des modes de résonances augmentent également.

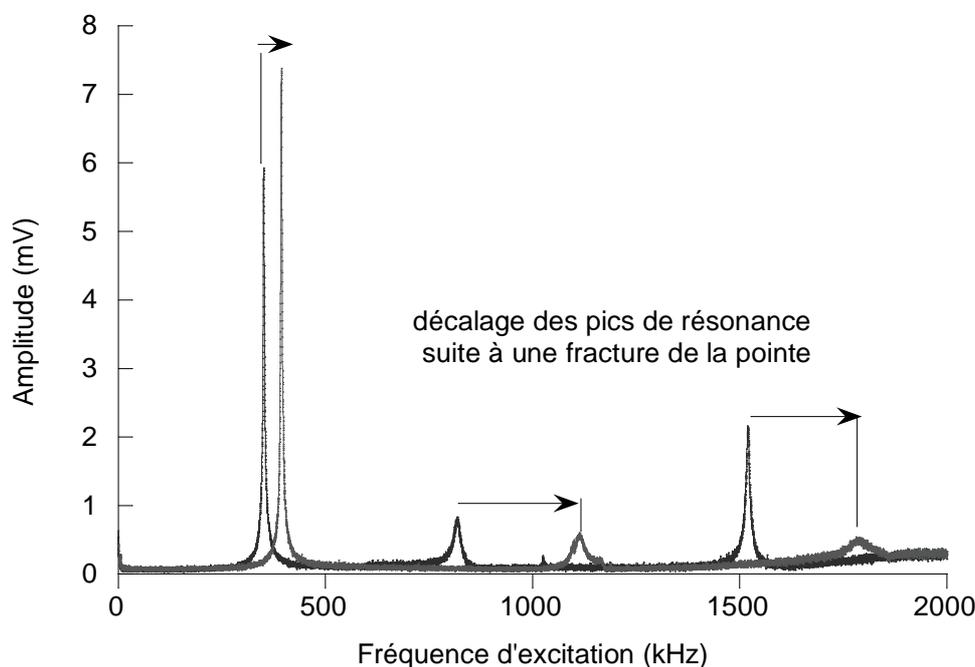


Figure 2.33 : Evolution de l'amplitude et de la position des pics en suite à une fracture

Ce type de décalage n'est pas un événement rare lorsque l'on se lance dans l'acoustique AFM et peut rendre inexploitable de nombreuses données expérimentales. La littérature est d'ailleurs prolix à ce sujet, nous pouvons ainsi citer des articles d'Hurley ^[Kopycinska-Müller2006] sur ce thème, mais si les causes sont identifiables, y remédier est beaucoup plus difficile. Malgré tout, nous avons essayé des solutions permettant au moins de diminuer cette usure.

Mais pour cela, il faut déjà pouvoir évaluer l'état des pointes autrement que par rapport à l'évolution de leur spectre en contact, et c'est pourquoi nous nous sommes intéressés à d'autres méthodes de caractérisation.

II.3.2.2. Calibration de la pointe AFM grâce à des échantillons industriels dédiés

La première méthode que nous avons employée pour suivre l'évolution de la pointe est l'utilisation d'échantillons de calibration. Ces derniers sont constitués de pointes de largeurs nanométriques comme pour l'échantillon en silice fourni par la société NT-MDT TG1 que nous avons utilisé. Lorsque le cantilever en contact passe sur ces pointes plus petites que lui, nous observons par convolution le profil du cantilever comme l'illustre la figure 2.34. En effet, la pointe de l'AFM décrit le profil de la structure, et donc son parcours va dépendre de la forme de la pointe. Plus la pointe AFM sera large, plus la trajectoire qu'elle va effectuer sera grande. C'est ainsi que nous voyons apparaître sur l'image

topographique de petites pyramides (quand la pointe est en bon état) ou des taches répétés plus ou moins étendues (signe que la pointe est usée).

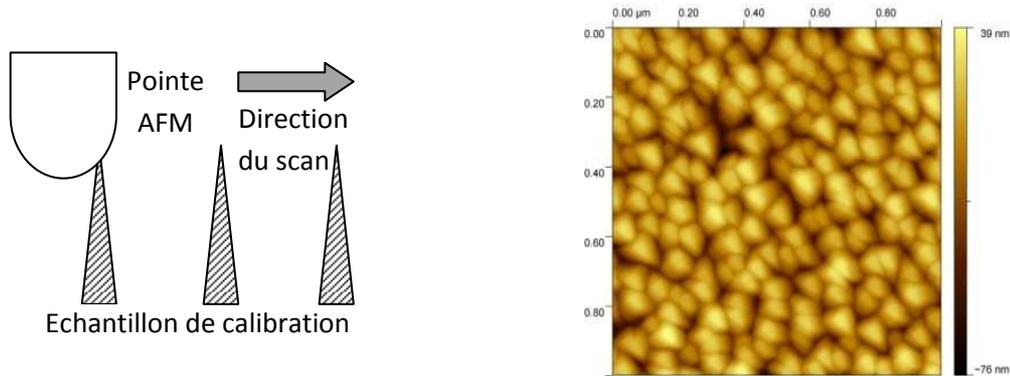


Figure 2.34: Suivi du profil de la pointe grâce à un échantillon de calibration

Il est possible en utilisant cette image, d’obtenir des grandeurs qui vont nous permettre d’estimer le rayon de courbure de la pointe. Nous pouvons ainsi extraire deux valeurs moyennes \varnothing_{10} et \varnothing_{20} correspondant au diamètre estimé de la pointe aux hauteurs respectives de 10 et 20 nm (voir 2.35).

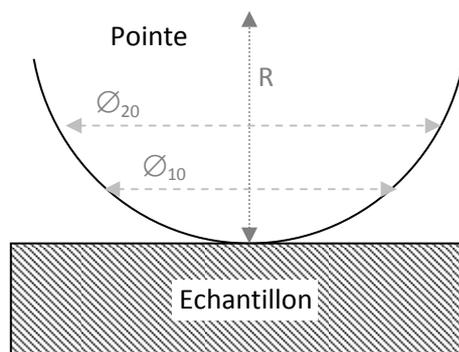


Figure 2.35: Valeurs extraites des images de calibration

Pour obtenir la valeur estimée du rayon de courbure de la pointe, nous devons utiliser les expressions suivantes provenant de propriétés trigonométriques basiques :

$$R_c = \frac{10^2 + \left(\frac{\varnothing_{10}}{2}\right)^2}{2 \times 10} \quad (2.9)$$

Régulièrement, nous réalisons donc des scans afin de recalibrer la pointe, cette donnée étant très importante pour l’exploitation des résultats puisque c’est la valeur du rayon de courbure que nous allons considérer dans nos modèles. Le graphique suivant (fig. 2.36) illustre les résultats de ce suivi, pour un cantilever en silicium (MPP 21100 de VeecoProbe) au cours d’une campagne d’expérimentation.

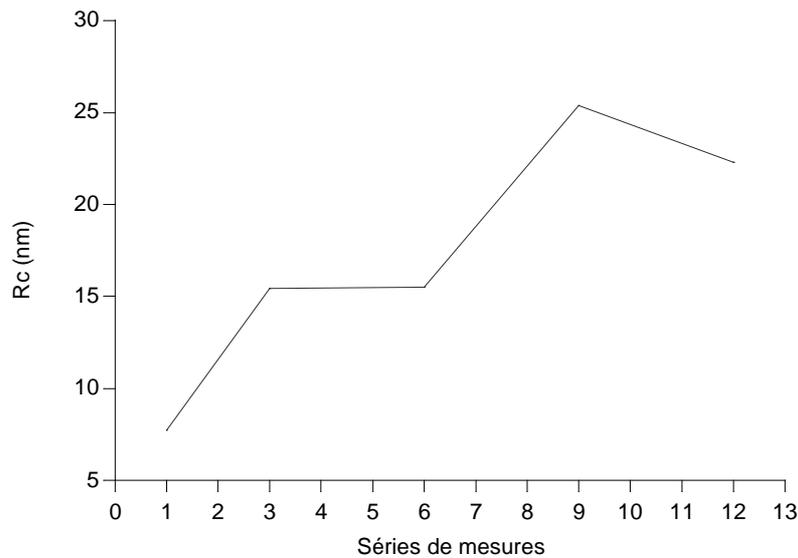


Figure 2.36 : Evolution du rayon de courbure de la pointe de la pointe d'un cantilever en silicium (MPP21100)

Cette approche permet donc de quantifier l'évolution du rayon de courbure durant une campagne de mesures en nécessitant juste des scans réguliers de l'échantillon de calibration. Cependant, ces échantillons étant constitués de silice, l'utilisation de cantilever très durs (diamant) peut altérer considérablement le profil des pics. Il est donc préférable de disposer d'une méthode alternative dans ces situations.

II.3.2.3. Calibration de la pointe AFM grâce à des mesures au microscope électronique à balayage

La caractérisation par microscope électronique à balayage constitue une solution alternative pour quantifier cette usure. Nous avons utilisé un microscope LEO 440, modèle à filament de tungstène. Assez accessible et robuste, il va nous permettre d'imager les cantilevers et l'état des pointes de façon relativement précise.

Nous avons ainsi imagé l'évolution de différents lots de pointes, en partant de pointes neuves à des pointes déjà utilisées. Les pointes en silicium subissent rapidement des dommages lorsque nous les employons, la figure 2.37 en est la parfaite illustration. Ces images MEB, nous montrent une pointe en silicium neuve puis cette même pointe après une campagne de mesure. L'échelle étant identique entre les deux images, nous pouvons observer une usure très importante, au point que plusieurs centaines de nanomètres ont été rabotés.

Les leviers « standard » que nous avons employés ont tous été marqués par l'usure, et certains ressemblent plus à des poinçons plats qu'à des demi-sphères avec des rayons de courbure de presque 0.5 μm . Il apparaît que des pointes en silicium au rayon de courbure trop étroit ou trop large, c'est-à-dire inférieur à 20 nm et supérieure à 50 nm ont une tendance plus grande à se fracturer prématurément durant les essais en acoustique AFM ^[Kopycinska-Müller2006].

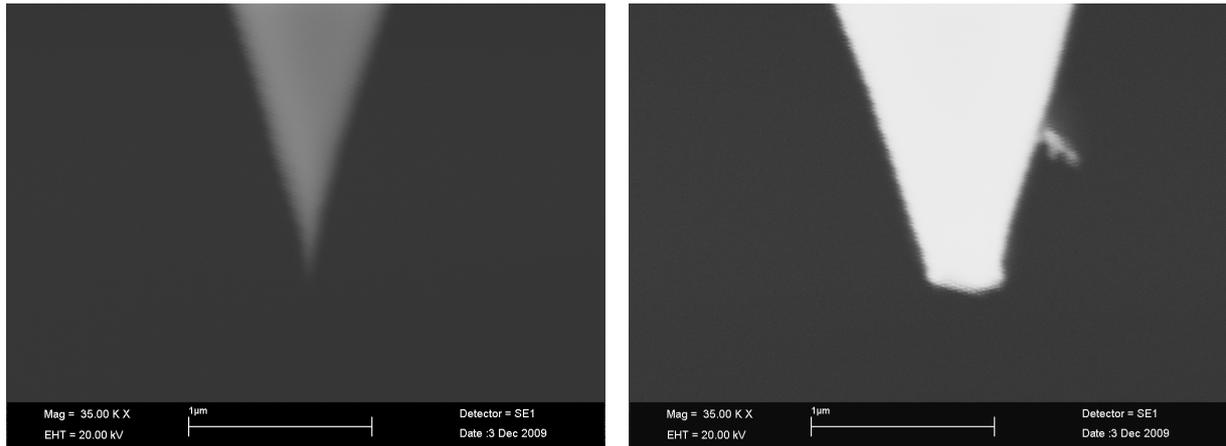


Figure 2.37: Images MEB d'une pointe neuve en silicium (gauche) et de la même pointe usée (droite)

C'est donc pour toutes ces raisons que nous avons essayé de minimiser ces effets selon deux axes :

- Limiter autant que possible la force imposée sur le cantilever lors des acquisitions CR-AFM, mais aussi pendant la calibration de la force imposée (courbes d'approche).
- Acquérir des leviers résistants à l'usure et à la fracture grâce à des matériaux d'une plus grande dureté.

Sur ce dernier point, nous avons recherché les cantilevers disponibles les plus adaptés pour résister à nos expérimentations.

II.3.2.4. Conséquence sur le choix des leviers

Lors du choix des leviers, nous nous sommes imposé trois contraintes :

- 1 constante de raideur compatible avec la gamme de force que nous souhaitons pour nos expérimentations sur des empilements modèles (50 - 500nN)
- 1 solidité améliorée pour limiter l'usure
- 1 forme parallélépipédique (pas de dièdre) pour la modélisation ultérieure

En fonction de ces contraintes et de la disponibilité nous avons utilisé 4 types de cantilevers différents. Au niveau des dimensions la plupart sont du même ordre que celles présentées dans la figure 2.38, montrant le premier levier que nous avons utilisé, le MPP21100 de VeecoProbes. Notons la forme trapézoïdale de la section qui sera importante lors de l'analyse de nos résultats dans le chapitre IV.

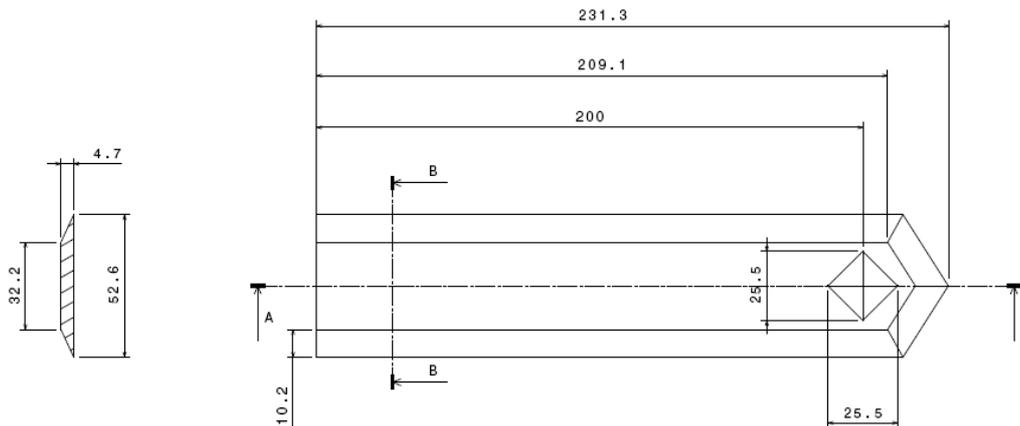


Fig. 2.38 : Côte d'une pointe MPP 21100 de Veeco Probes

Les différents leviers que nous avons utilisés peuvent se classer en plusieurs familles :

- *les cantilevers en silicium monocristallin*, très courants et peu coûteux. Ces leviers sont adaptés aux forces que nous visons, et nous ont permis nos premières mesures (comme le MPP 21100 de VeecoProbes). Constitués d'un unique matériau, ce sont les plus simples à modéliser mais aussi les plus fragiles.
- *les cantilevers recouverts de diamant polycristallin*. Le diamant étant le matériau le plus dur naturellement connu, la résistance à l'usure des leviers est beaucoup plus importante. De plus ce dépôt étant réalisé sur des modèles en silicium, les caractéristiques de ces leviers sont très proches (comme le MPP 21150 de VeecoProbes). Cependant les grains de diamant du dépôt peuvent se détacher en cours de mesure, ce qui revient à notre problème d'usure.
- *les cantilevers possédants une pointe en diamant polycristallin*. Sur ces leviers, la pointe est terminée par une sphère de diamant composite d'environ 30 à 50 nm. De rayon de courbure plus grand que les pointes précédentes, elles ont tendance à moins s'user. Le modèle B2-FMR de Nanotools a constitué l'une de nos références.
- *les cantilevers entièrement en diamant nanocristallin*. De commercialisation récente, ils sont fabriqués par la société Advanced Diamond Technologies. Ces leviers sont entièrement en diamant UNCD™ (Ultrananocrystalline Diamond™). Ce sont les leviers les plus résistants que nous ayons pu tester. Leur seul défaut se trouve dans leur constante de raideur bien plus faible que nous le souhaitons sauf pour les modèles en dièdre (comme le ND-CTIT1).

Nous avons récapitulé les modèles que nous avons utilisés dans ce tableau 2.2.

Cantilever	Fabricant	Géométrie	Mat. poutre	Mat. pointe	L (μm)	l_{moy} (μm)	e (μm)	k_c (N/m)	f_0 libre (kHz)
MPP 21100	VeecoProbes	Poutre à section trapézoïdale	Silicium monocristallin	Silicium monocristallin	225 ± 10	35 ± 5	4.0 ± 0.5	3 (1.5 - 6)	50 - 100
MPP 33100	VeecoProbes	Poutre à section trapézoïdale	Silicium monocristallin	Silicium monocristallin	450 ± 10	40 ± 5	7.0 ± 0.5	5 (2.5- 10)	45- 115
MPP 21150	VeecoProbes	Poutre à section trapézoïdale	Silicium monocristallin + dépôt de diamant	Silicium monocristallin + dépôt de diamant	225 ± 10	35 ± 5	4.0 ± 0.5	3 (1.5 - 6)	50 - 100
B2-FMR	Nanotools	Poutre à section trapézoïdale	Silicium monocristallin	Diamant nanocristallin	≈ 225	≈ 28	≈ 3.0	≈ 2.8	≈ 75
ND-CTIT1	NadiaProbes	Dièdre	Diamant nanocristallin	Diamant nanocristallin	200 ± 5	25 ± 2	1.00 ± 0.05	1.00 - 1.50	25 - 70

Tableau 2.2 : Récapitulatif des différentes pointes utilisées avec les spécifications des fabricants. L correspond à la longueur de la pointe, l à sa largeur moyenne, e son épaisseur, k_c sa constante de raideur en libre, et f_0 la fréquence du pic fondamental en libre.

Au final, pour la plupart de nos mesures fines, nous avons utilisé les poutres B2-FMR dont nous avons mesuré les dimensions au MEB. La sphère de diamant qui est fixée à l'extrémité de leur pointe est d'un rayon de courbure de 30 à 50 nm, dimensions assurées par le constructeur (fig. 2.39). Nous verrons dans le chapitre III et IV, les analyses que nous avons effectuées avec ces leviers.

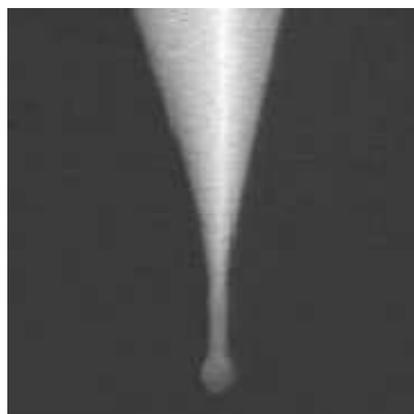


Figure 2.39 : Cantilever B2-FMR (image Nanotools)

II.4. Détermination de force imposée via une connaissance précise de la constante de raideur du cantilever

Lors d'un contact entre deux solides, que nous nous plaçons dans le cadre d'un modèle élastique ou élastoplastique, un paramètre physique majeur se doit d'être connu : la force imposée lors du contact entre les deux éléments. Comme nous l'avons vu dans la partie II.1.3, nous suivons pour cela la déflexion du cantilever ΔL , là où le laser est réfléchi, et via la loi de Hooke nous obtenons une valeur de la force imposée.

$$F = k_c \times \Delta L \quad (2.10)$$

Ainsi bien que le microscope soit capable de déterminer la déflexion du cantilever avec une exactitude de quelques nanomètres, il nous faut connaître précisément la valeur de la constante de raideur k_c des cantilevers pour déterminer la force imposée.

II.4.1. Solutions proposées dans la littérature

Sur la base des informations fournies par les fabricants de cantilever, une détermination correcte de la constante de raideur des leviers s'avère difficile. En effet, si nous prenons par exemple les spécifications des différents leviers par les constructeurs (cf. tableau 2.2 page précédente), la valeur de la raideur de chaque levier varient considérablement.

Les raisons sont à chercher du côté des techniques d'élaboration des cantilever qui vont produire des leviers aux dimensions différentes suivant l'épaisseur de chaque wafer utilisé ainsi que des variations plus petites au sein de chaque lot. Affiner les processus de production afin d'obtenir des cantilevers plus proches des spécifications nominales est toujours possible, mais le coût économique de ces mesures est prohibitif surtout lorsque nous savons que la majorité des cantilevers ne sont utilisés que pour de l'imagerie et de la mesure de force basique.

Cette problématique a donc entraîné un foisonnement de solutions ^[Clifford2005] ayant pour but une caractérisation de la constante de raideur d'un levier à partir de données expérimentales. Nous avons testé plusieurs de ces solutions et c'est l'objet de ce qui suit.

- *Méthode d'Euler-Bernoulli (nécessite des mesures MEB)*

En partant de la théorie de la poutre encastrée d'Euler-Bernoulli ^[Yamanaka 1998], il est en effet possible de calculer la constante de raideur d'un cantilever :

$$k_c = \frac{E_{can}lh^3}{4L^3} \quad (2.11)$$

Avec E, le module d'Young du cantilever, l sa largeur, h son épaisseur et L sa longueur entre la pointe et la base du cantilever. A noter qu'il est nécessaire que le cantilever soit rectangulaire et non en

dièdre pour appliquer cette formule. D'autre part, si le cantilever est recouvert d'un dépôt pour améliorer sa réflectivité, son module d'Young va différer par rapport à celui de son matériau de base (silicium, nitrure de silicium) [Sader1999].

Un des défauts de cette formule vient de son hypothèse d'une forme parallélépipédique des leviers alors que ceux-ci sont généralement à section trapézoïdale à cause du procédé de fabrication (orientation (111) du silicium monocristallin). Nous avons tenu compte de cet effet, en recalculant des dimensions équivalentes à partir des moments d'inertie (fig. 2.40). Enfin, la prise en compte de l'extrémité triangulaire de la poutre doit également être moyennée, ce qui affecte la précision de cette approche.

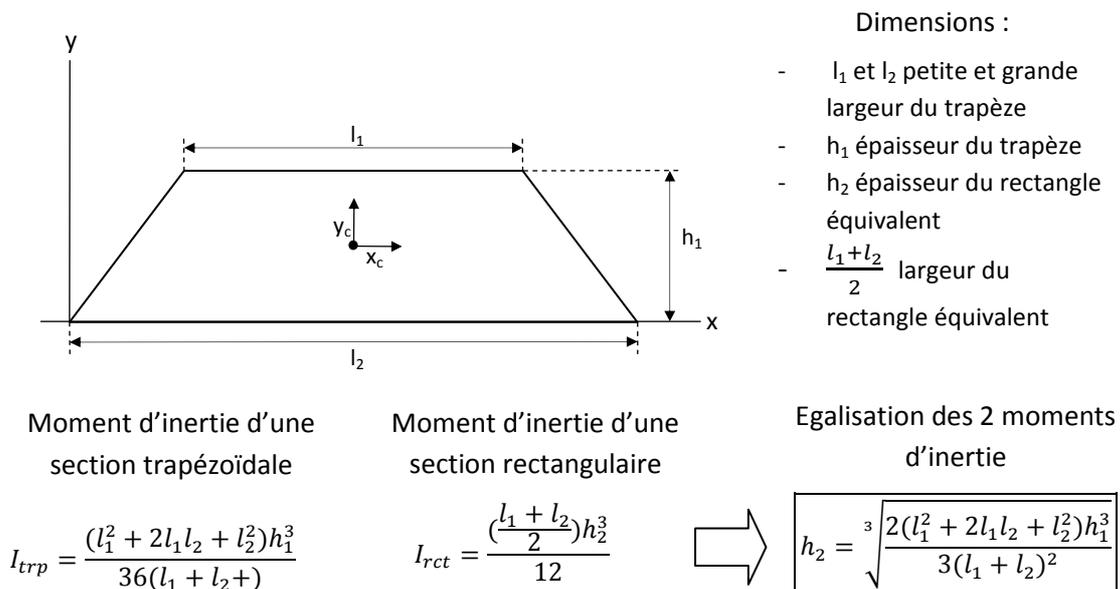


Fig. 2.40 : Calcul de nouvelles dimensions permettant d'assimiler une section trapézoïdale à une section équivalente rectangulaire

Pour les mesures au MEB, sur les conseils d'une équipe du CEA Leti, nous avons élaboré des portes-pointe spécifiques afin de systématiser et d'uniformiser la mesure de chaque lot de pointe que nous utilisons. Outre la possibilité de mesurer en parallèle des séries de cantilever, cet accessoire va présenter en plus l'avantage de positionner directement les leviers dans le microscope selon des angles de vue limitant les erreurs de parallaxe dans nos mesures (fig. 2.41).



Figure 2.41 : Porte pointe développé pour l'observation MEB

Régulièrement, nous avons donc effectué des campagnes de mesures au MEB (fig. 2.42 & 2.43) qui nous ont permis de préciser les dimensions de chaque cantilever. L'imprécision sur les dimensions relevées est faible (<2%), souvent inférieure au micron. Ceci nous autorise à considérer les mesures vue de dessus comme fiables. Cependant, lors de la mesure de l'épaisseur de l'ordre de quelques microns, l'estimation de cette distance peut varier de près de 5% [Ohler]. Or d'après l'équation 2.11, les variations de cette grandeur entraînent des variations au cube sur la valeur de la constante de raideur du cantilever.

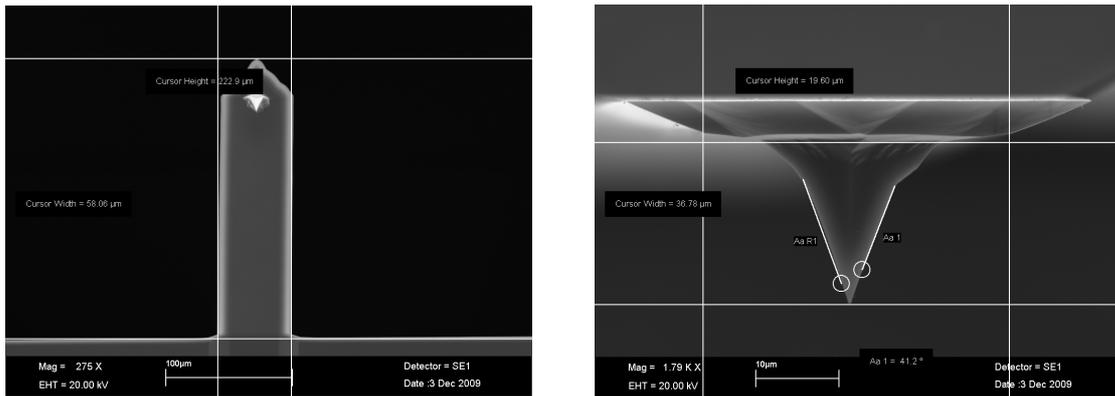


Figure 2.42: Cantilever silicium MPP21100 n° 2.7 de VeecoProbes observé au MEB

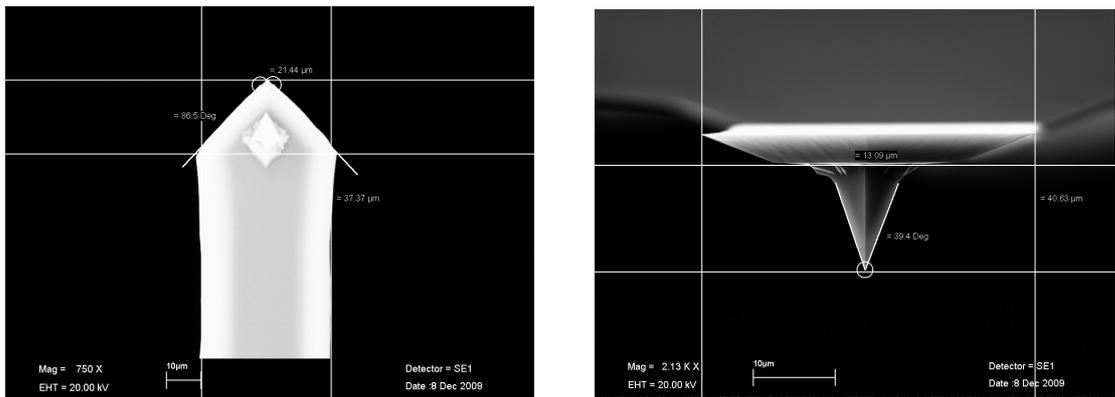


Figure 2.43: Cantilever B2-FMR n°4 de Nanotools

Lorsque nous reportons ces dimensions dans un tableau 2.3, nous aboutissons à des valeurs de k_c cohérentes avec celles proposées par le constructeur, mais avec une précision bien plus grande. L'incertitude de cette méthode est estimée à environ 16%, principalement à cause des imprécisions sur l'épaisseur, et donc nous nous sommes intéressés à des techniques permettant des résultats plus fins [Ohler]. Nous trouvons donc des grandeurs qui se trouvent dans l'incertitude spécifiée par le constructeur mais qui peuvent s'éloigner significativement de leur valeur nominale.

Cantilever	Pointe (n°)	Longueur totale (μm)	Longueur base-extrémité triangulaire (μm)	Section petite largeur (μm)	Section grande largeur (μm)	Section épaisseur (μm)	Module élastique (GPa)	k_c (N/m)
MPP 21100	2.2	232.9	206.5	26.9	39.1	3.6	169	4.09
B2-FMR	3	231.8	209.9	23.69	41.31	3.47	169	3.55
B2-FMR	4	232.2	210.8	23.32	40.63	3.55	169	3.71

Tableau 2.3 : Quelques déterminations de la constante de raideur k_c de leviers utilisés grâce aux dimensions à partir des mesures MEB

- *Méthode de Cleveland (nécessite des mesures optiques ou au MEB)*

Basée sur une solution intermédiaire avec la précédente et développée par Cleveland ^[Cleveland1993], nous avons utilisé une mesure de la première fréquence de résonance en flexion du cantilever afin d'éliminer le recours à la mesure de l'épaisseur facteur d'incertitude. C'est une mesure simple à réaliser avec le microscope à force atomique en plaçant le cantilever hors de tout contact et en utilisant le transducteur intégré. Une fois cette fréquence f_0 connu, Cleveland puis Clifford et Seah ^[Clifford2005] ont montré que nous pouvions la relier à la constante de raideur ainsi :

$$k_c \approx \frac{59,3061 \times w(f_0 L \sqrt{\rho})^3}{\sqrt{E}} \quad (2.12)$$

Avec ρ la densité du cantilever.

Sur la série précédente de cantilever B2-FMR4 en silicium, nous pouvons ainsi retrouver pour la première pointe une constante de raideur de l'ordre de $k_c = 3,08$ N/m à partir de sa fréquence de résonance en libre de 81.82 kHz. L'écart illustre l'imprécision de nos mesures en épaisseur.

- *Méthode dite du bruit thermique et de Sader*

Nous nous sommes ensuite intéressés aux deux techniques de détermination du k_c les plus précises actuellement, permettant de déterminer la constante de raideur sans avoir nécessité de mesures de dimension. L'une s'appuie sur l'exploitation du bruit thermique d'un cantilever libre ^[Hutter1993] et l'autre a été développée par Sader ^[Sader1999].

La méthode du bruit thermique oblige l'enregistrement sur une durée d'intégration suffisante les vibrations d'un cantilever libre non excité. Pour cela nous utilisons notre système d'acquisition DAQ pour enregistrer en continu le signal de la photodiode. Une transformée de Fourier est ensuite appliquée afin de faire apparaître le spectre en fréquence. A partir de ces enregistrements, nous calculons l'aire sous le premier pic de résonance. Ajouté à un suivi de la température ambiante, il devient alors possible grâce aux travaux de Butt et Jaschke de déterminer la constante de raideur du cantilever étudié à l'aide du théorème d'équipartition ^[Butt1995]:

$$k_c = \frac{12k_bT}{\alpha_i^4 \langle z_1^2 \rangle} \quad (2.13)$$

Avec k_b la constante de Boltzmann ($1.38.10^{-23}$ J/K), T la température ambiante (K), et $\langle z_1^2 \rangle$ la moyenne du déplacement au carré du cantilever (fig. II.30), et α_i la constante égale à 1.8751 pour le mode fondamental d'un levier rectangulaire.

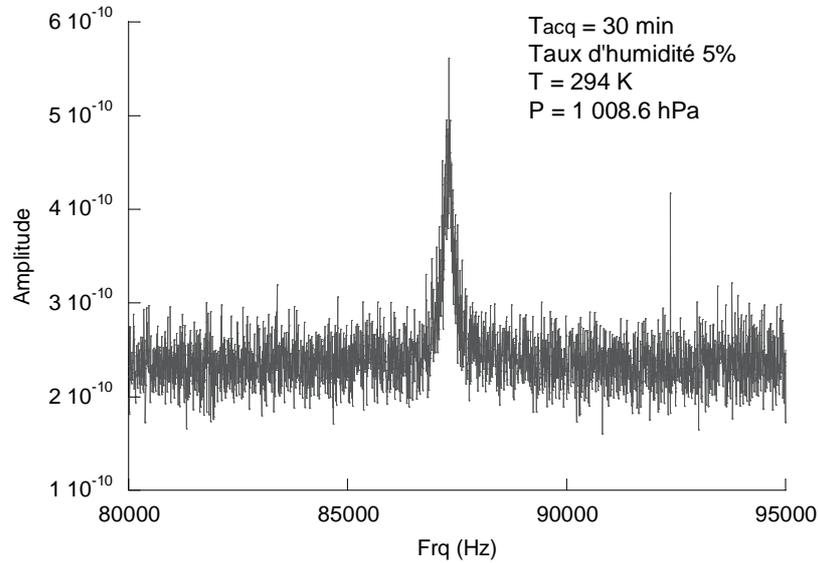


Figure 2.45 : Spectre libre en «bruit blanc» MPP 21100

Ainsi pour la pointe n°2 de la série que nous avons présentée, pour une température de 294 K, nous trouvons une valeur de $\langle z_1^2 \rangle = 8,63.10^{-8} V_{RMS}^2$. Cependant cette valeur est homogène à une tension au carré ce qui est logique car c'est ce qu'envoie le photodétecteur du microscope. Il faut donc convertir ce résultat pour le rendre homogène à un déplacement au carré. Pour cela nous nous appuyons sur une courbe d'approche réalisée avec ce cantilever, courbe qui va nous permettre d'estimer la correspondance entre le mouvement vertical du cantilever et les variations de tension enregistrée. Dans notre cas nous déterminons ce facteur à 178.10^{-9} m/V. Il reste alors à convertir la tension RMS en tension pics à pics pour obtenir :

$$k_c = 2.97 \text{ N/m} \quad (2.14)$$

Nous avons ensuite étudié le système proposé par Sader ^[Sader1999] qui reprend l'enregistrement du bruit blanc thermique mais y ajoute également la prise en compte d'autres facteurs comme la densité (ρ_f) et la viscosité de l'air (η_f). Cette méthode est applicable uniquement aux cantilevers rectangulaires respectant un rapport d'au moins trois entre la largeur et la longueur du levier.

Nous relevons le facteur qualité Q du pic fondamental de fréquence f_0 du spectre en bruit blanc ainsi que la largeur (w) et la longueur (L) du cantilever mesurées précédemment.

$$k_c = 7.5246\rho_f w^2 L Q f_0^2 \Gamma_i(\text{Re}) \quad (2.15)$$

$$Re = \frac{2\pi\rho_f f_0 w^2}{4\eta_f} \quad (2.16)$$

$\Gamma_i(Re)$ est la partie imaginaire fonction de Reynolds. Cette fonction est calculable grâce à l'équation suivante et à partir du résultat nous pouvons en extraire la partie imaginaire soit grâce à des tables [Berkahn2005], soit grâce à des scripts sous Mathématica [Sader2010].

Bien que mathématiquement très complexe, cette méthode est celle sensée nous permettre d'obtenir la meilleure précision. En effet, la détermination du facteur de qualité d'un pic et de sa fréquence peut se faire très précisément sans aucune calibration nécessaire au niveau de l'AFM. Les mesures de dimensions peuvent se faire optiquement et la densité ainsi que la viscosité de l'air sont constantes au niveau d'un laboratoire. La seule limitation demeure dans le fait que ce n'est applicable qu'aux cantilevers rectangulaires, ce qui dans notre cas ne pose aucun problème.

Si nous reprenons le cantilever précédent, le levier MPP21100 n°2, nous obtenons une constante de raideur de l'ordre de 2.91 N/m ce qui semble cohérent avec le résultat précédent.

Nous n'avons pas poussé nos investigations plus loin sur le sujet, en raison de la mise au point d'une méthode innovante, bien plus précise et dont la mise en œuvre est désormais beaucoup plus simple.

II.4.2. Une méthode originale : le couplage AFM-nanoindenteur

Les solutions que nous avons vues présentent toutes une limitation inhérente à leur approche : elles fournissent toute une valeur de la constante de raideur pour toute la longueur du cantilever libre. Cependant, pour être rigoureux, nous ne devrions prendre en compte que la partie allant de la base du levier à la pointe. En effet, lorsque le cantilever est en contact, la constante de raideur réelle ne dépend que de cette partie du cantilever, la portion allant de la pointe au bout du levier n'ayant alors aucune influence. Face à cette problématique, nous avons développé un système original couplant un AFM à un indenteur (fig. 2.46).



Figure 2.46 : Montage AFM-nanoindenteur

Ce montage se base sur le nanoindenteur du laboratoire, MTS XP monté avec une tête DCM et une pointe Berkovich, sous lequel nous venons fixer un microscope AFM Molecular Imaging ^[Goyer2008] tête renversée. Cette configuration nous assure que le contact entre la pointe du levier de l'AFM puisse se faire avec la tête DCM. Afin d'assurer la stabilité de l'AFM, une pièce mécanique a été réalisée et s'insère à la place du porte échantillon du nanoindenteur. L'ensemble du montage est décrit par le schéma 2.47.

L'idée est d'utiliser le nanoindenteur pour sonder la rigidité de la pointe en fonction de la force imposée. La pointe de la tête DCM est très large (rayon de courbure >100nm) par rapport à celle de l'AFM (<10nm), avec un repérage adéquat, la tête de l'indenteur touchera donc la pointe AFM lors de la descente. Le cantilever étant incliné de 12°, nous reproduisons ainsi les conditions expérimentales du CR-AFM.

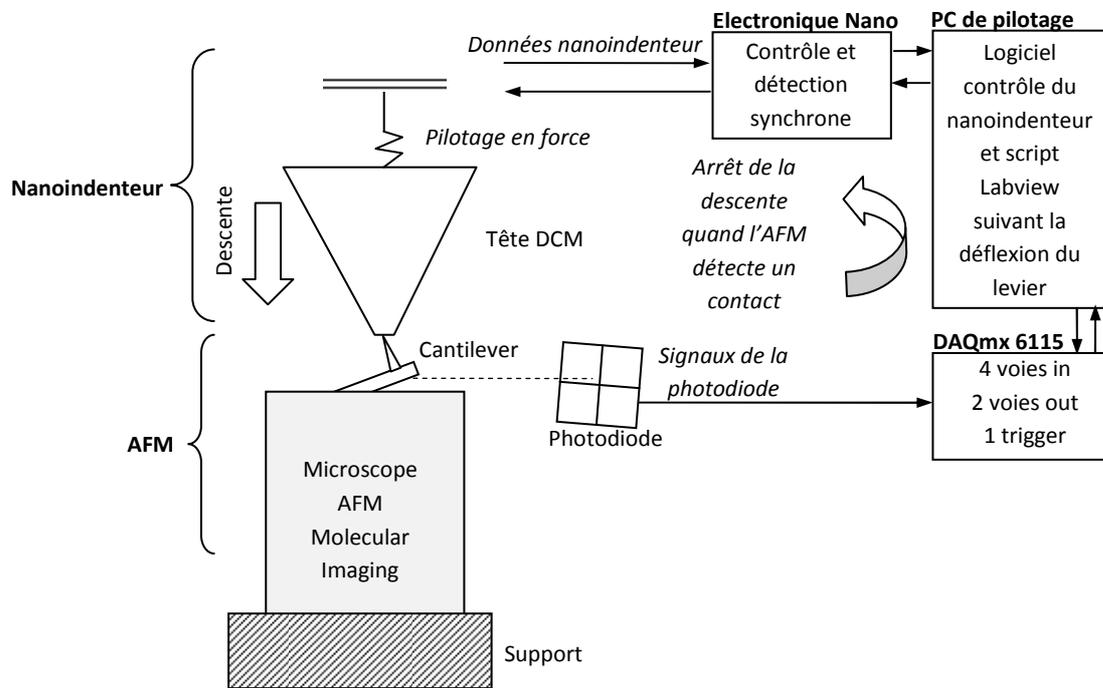


Figure 2.47 : Montage AFM-nanoindenteur

La descente de la pointe du nanoindenteur se fait pas à pas, tout les 100nm, et ne s'arrête que lorsque l'AFM détecte une déflexion du cantilever. Cela explique la raison pour laquelle nous réalisons une acquisition des signaux de la photodiode. Sans cette solution, l'indenteur ne détecterait le cantilever que trop tard sauf pour les plus rigides car il ne travaille qu'en fonction de la force (fig 2.48). Sur les données envoyées par le nanoindenteur, cela se traduit par l'apparition d'un pic important qui suit la phase d'approche.

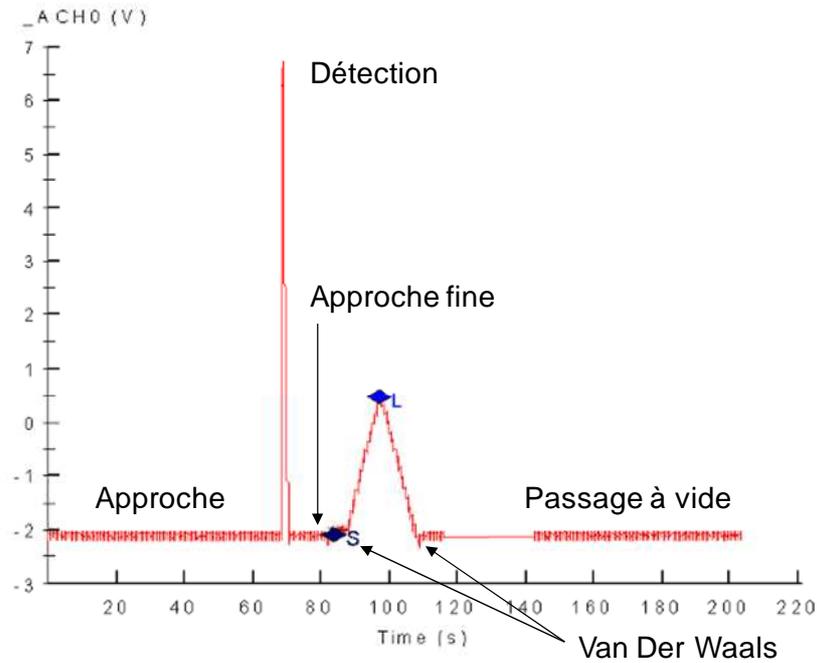


Figure 2.48 : Résultats bruts d'une approche par le nanoindenteur d'une pointe B2-FMR 4

Une fois le contact repéré, l'indenteur se rétracte et entame une nouvelle descente beaucoup plus fine de façon à enregistrer précisément la réaction du cantilever (entre S et L). Puis l'indenteur remonte, nous voyons d'ailleurs le Van der Waals apparaitre, et s'arrête. Le microscope AFM et son cantilever sont décalés, afin de permettre à l'indenteur de refaire ses acquisitions dans les mêmes conditions, mais à vide. Cela permet d'enregistrer le comportement du ressort de la tête de Nanoindentation sur le même parcours (fig. 2.49).

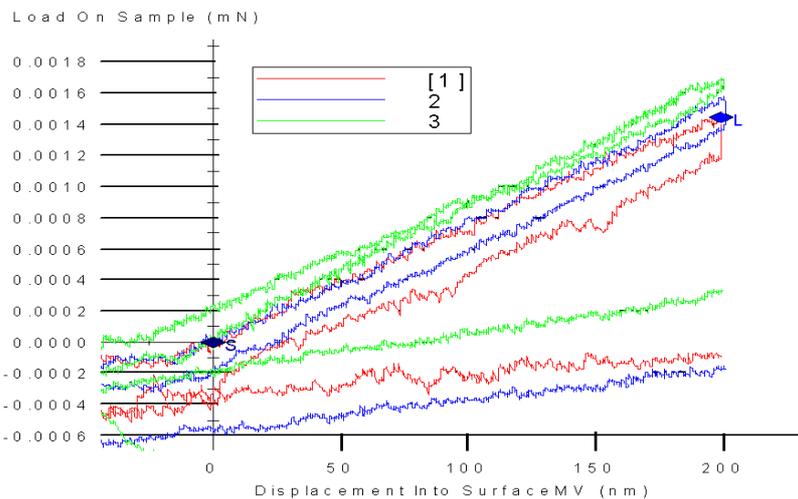


Figure 2.49 : Evolution de la force en fonction du déplacement

Les courbes ci-dessus nous indiquent la force relevée par le ressort du nanoindenteur en fonction de son déplacement. La courbe rouge correspond à une vitesse de déplacement de $2\mu\text{N/s}$, la bleu à $1\mu\text{N/s}$ et la verte à $0.5\mu\text{N/s}$. Les courbes du haut sont celles obtenues lors de l'approche fine (de S à L) tandis que celles du bas correspondent aux mesures à vide (l'approche et le retour se superposent

parfaitement). A partir de leurs pentes, nous pouvons évaluer la constante de raideur du cantilever à environ 5 N/m, en soustrayant les pentes des courbes en contact (7 N/m) de celles à vide (2 N/m).

Les mesures statiques permettent également de construire le graphique présentant l'évolution de la tension à sortie de l'électronique du nanoindenteur en fonction du déplacement (fig. 3.50).

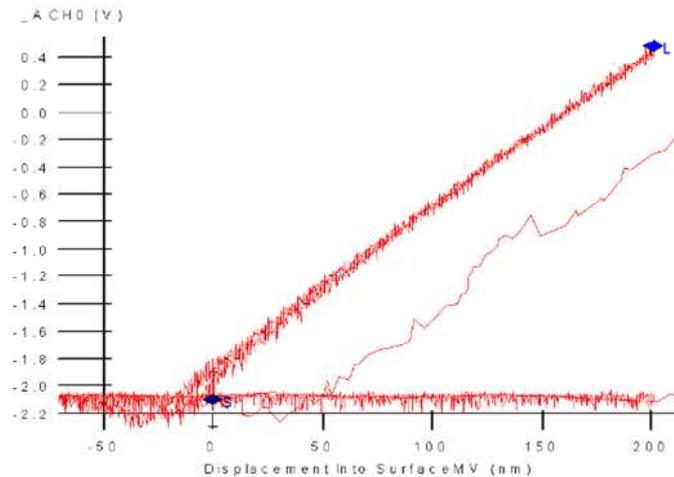


Figure 2.50 : Evolution de la tension enregistrée en fonction du déplacement

Jusqu'à maintenant nous avons vu le mode statique du nanoindenteur. Parfait pour les leviers de rigidité supérieure à 1N/m, il s'avère insuffisant pour des rigidités inférieures. Dans ce cas, nous pouvons utiliser le mode dynamique du nanoindenteur.

Ce mode fonctionne avec une détection synchrone en générant des oscillations d'amplitude allant entre 1 et 20 nm à 75Hz. Cette approche nous donne directement la rigidité de la poutre au bout de 10 paliers et permet une décharge et un passage à vide rapides.

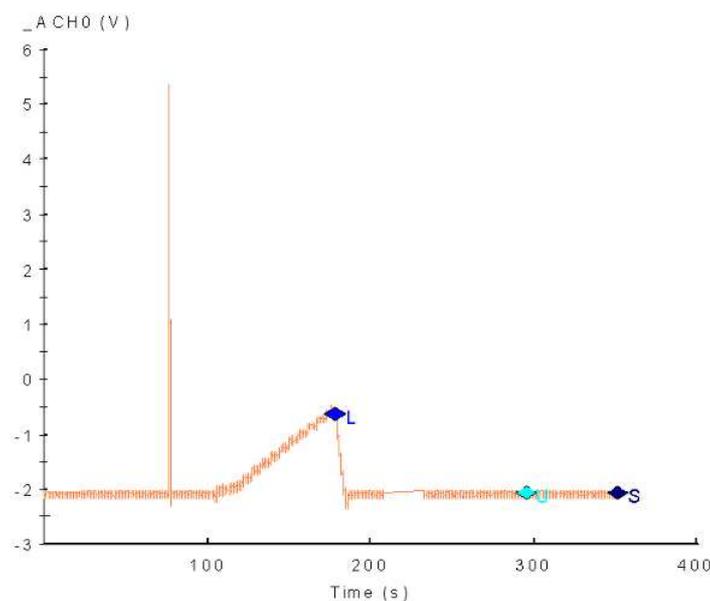


Figure 2.51 : Evolution de la tension enregistrée en fonction du déplacement en mode dynamique

Suivant l'amplitude de l'oscillation, nous obtenons des profils très différents (fig. 2.52).

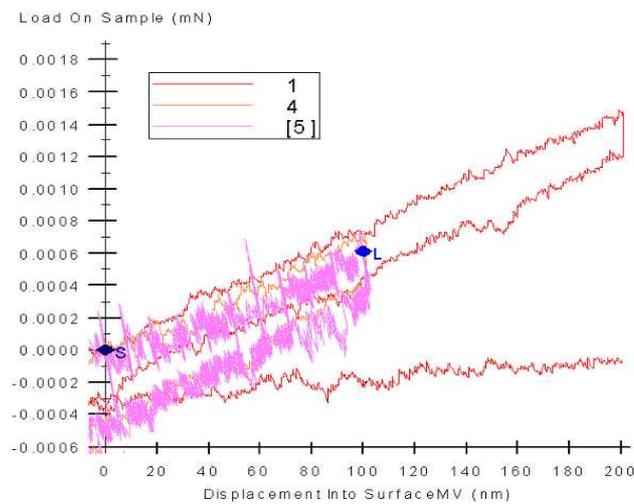


Figure 2.52 : Evolution de la force en fonction du déplacement en mode dynamique

Sur une excursion de 100 nm, nous retrouvons la courbe 2.49 quasistatique en rouge (4), pour une oscillation de 1nm tandis que pour une oscillation de 20 nm nous obtenons la courbe rose (5).

Au final, nous pouvons construire la courbe montrant l'évolution de la rigidité en fonction du déplacement (fig. 2.53).

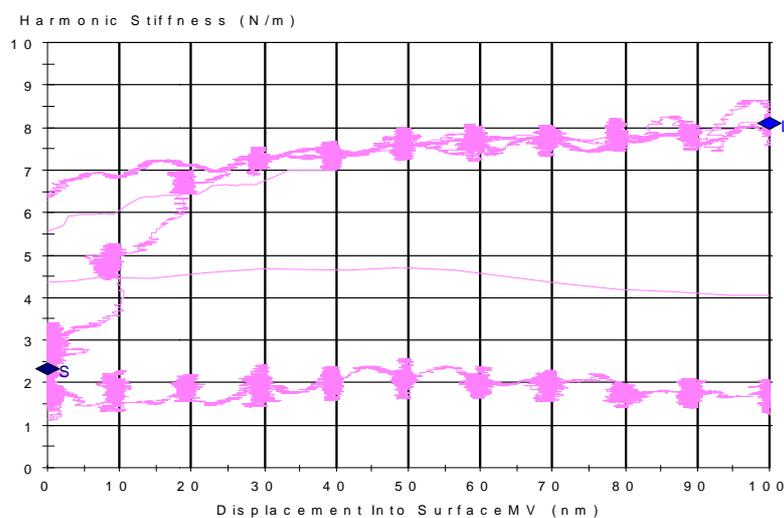


Figure 2.53 : Evolution de la rigidité en fonction du déplacement.

Comme pour la courbe 2.49 obtenue en statique, nous pouvons évaluer la constante de raideur du levier *en contact* B2-FMR n°4 à environ 5N/m puisque la courbe d'approche vaut environ 7 N/m et celle à vide 2 N/m. Même si nous n'avons pas pu l'utiliser beaucoup car opérationnelle que tardivement au cours de la thèse, elle constitue notre méthode de référence pour évaluer la constante de raideur des cantilevers.

II.5. Résumé du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons décrit les montages en mode contact résonant que nous avons réalisés, avec leurs limites et leurs avantages. Tous fonctionnels, ils permettent suivant les montages d'enregistrer dans un temps raisonnable, des spectrométries en résonance ou des cartographies de bonne qualité. Nous avons également détaillé la procédure utilisée pour obtenir les résultats que nous présenterons dans le prochain chapitre. L'ensemble de cette partie constitue une part majeure du travail effectué durant la thèse. Ce n'est qu'une fois celui-ci terminé que nous avons vraiment pu exploiter correctement les résultats du mode contact résonant.

Nous avons ensuite vu les différents systèmes d'excitation employés pour générer les ondes acoustiques du CR-AFM. Le transducteur piézoélectrique et surtout le système électrostatique ont permis l'obtention de spectres CR plus propres, avec peu ou pas de pics parasites. Suivant les échantillons, nous avons utilisé donc le système plus approprié lors de nos mesures.

La suite du chapitre s'intéresse aux différentes optimisations que nous avons menées pour améliorer les résultats du CR-AFM. D'abord au niveau de l'environnement, en rendant les forces de capillarité négligeables, puis au niveau des leviers, en choisissant des modèles plus résistants à l'usure, elles ont permis un gain qualitatif appréciable.

Enfin nous avons vu les méthodes employées pour évaluer la raideur de nos leviers, ceci afin de déterminer plus précisément la valeur de la force que nous imposons lors de nos mesures CR-AFM. Le nouveau montage combinant un nanoindenteur à un AFM, nous permet d'obtenir des résultats plus pertinents que les autres approches et s'avère donc très prometteur.

Chapitre III : Quelques résultats expérimentaux

Le chapitre précédent recense à la fois les différents montages CR – AFM que nous avons mis en place dans notre laboratoire et les procédures expérimentales qui nous assurent l’obtention de mesures reproductibles. Cette démarche s’est accompagnée de nombreuses campagnes de mesures dont nous ne présentons ici que quelques résultats. Une contribution importante de Maxime Dupraz a été apportée à ce niveau, qui par son stage nous a permis de réaliser ces analyses en bénéficiant des dernières améliorations que nous avons apportées au montage, nous permettant d’obtenir les résultats les plus probants sur l’ensemble des campagnes de mesures.

Dans un premier temps, nous exposerons les analyses que nous avons réalisées de manière locale (pas de scan de surface). Nous observerons en particulier l’évolution des fréquences des premiers modes de résonance sur différents types de film mince servant de matériaux modèles. Présentant des rigidités effectives très différentes, ces échantillons vont nous permettre de mettre en évidence la sensibilité de notre microscope face aux variations des propriétés mécaniques.

Puis, dans un second temps, nous présenterons des matériaux sur lesquels nous avons réalisé des cartographies en mode contact résonant. Ces échantillons seront l’occasion de démontrer tout l’intérêt d’une imagerie capable d’identifier et de caractériser des structures avec la résolution presque nanométrique du microscope à force atomique.

III.1. Caractérisation de films de silice d'épaisseur croissante

L'étude de films minces de silice déposés sur un substrat de silicium constitue une des pierres angulaires de notre projet. En effet, nous nous en sommes servis dans de nombreux tests ce qui nous a permis de parfaire notre montage et d'optimiser nos procédures expérimentales. Ce type d'échantillon constitue un empilement modèle caractéristique du comportement d'un film souple (silice d'environ 72 GPa de module élastique) sur un substrat rigide (wafer de silicium d'environ 169 GPa de module élastique) ^[Simmons1971]. Le choix des matériaux composant ces empilements réside dans le fait qu'il s'agit de matériaux aux propriétés bien connues, dont la rugosité de surface est quasi nulle et facile à élaborer avec une très bonne reproductibilité.

Nous avons donc voulu éprouver les capacités d'analyse de notre microscope CR-AFM sur des films de silice d'épaisseur inférieure ou égale à la centaine de nanomètres.

III.1.1. Description des échantillons

Les échantillons ont été élaborés au CIME-Nanotec à Grenoble (plateforme technologique des procédés microélectroniques). Les films de silice ont été déposés sur des wafers de silicium <100> de 2 pouces en utilisant un procédé d'oxydation thermique sèche à 1000°C sous un flux gazeux d'oxygène ^[Deal1965]. L'ensemble de l'élaboration a été réalisé en salle blanche dans un environnement contrôlé, classe 100, avec une humidité relative de 40 %. L'épaisseur des films a été contrôlée par ellipsométrie avec une précision de l'ordre du nanomètre ^[Tompkins2005].

Nous obtenons donc un ensemble d'échantillons composé de film de silice d'épaisseur croissante, ainsi que de deux matériaux de référence, l'un en silice recuite, et un autre composé d'un wafer de silicium <100> dopé p (0.5 Ω .cm) (fig. 3.1).

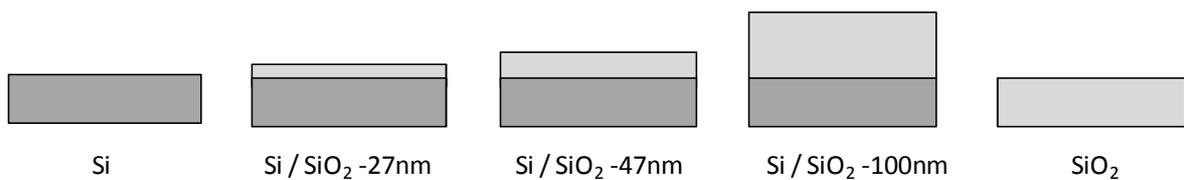


Fig. 3.1 : Schéma en coupe des échantillons.

Nous avons effectué sur ces échantillons des mesures à l'aide de notre microscope CR-AFM, mais aussi à l'aide d'un nanoindenteur de façon à pouvoir comparer les résultats que nous obtenons via ces deux techniques de caractérisation.

III.1.2. Spectrométrie CR-AFM

Dans le chapitre 1, nous avons abordé la détermination du module élastique de films sur substrat. Ces échantillons nous placent dans cette configuration ^{[Stan2008] [Stan2009]}, où nous savons que le module élastique effectif que nous allons mesurer se situe entre les valeurs des matériaux constituant les empilements. Nous attendons donc une évolution de ce module élastique, puisque lorsque nous appliquons la pointe de notre CR-AFM, le champ de déformation élastique ^[Hurley2010] va augmenter jusqu'à atteindre le substrat en silicium monocristallin. Le silicium ayant un module élastique plus important (de 130 à 169 GPa suivant l'axe cristallographique) que celui de la silice (72 GPa) ^[Johnson1971], le module élastique mesuré va donc croître entre les valeurs de la silice et du silicium. Lorsque la force imposée est faible, le volume du champ de déformation l'est également et donc une proportion de silice plus importante est sondée par rapport au substrat de silicium (voir fig 3.1). A forte force, la zone sondée s'étend majoritairement sur le substrat de silicium et donc la valeur effective du module mesuré doit se rapprocher de celui du silicium comme le montre la figure 3.2.

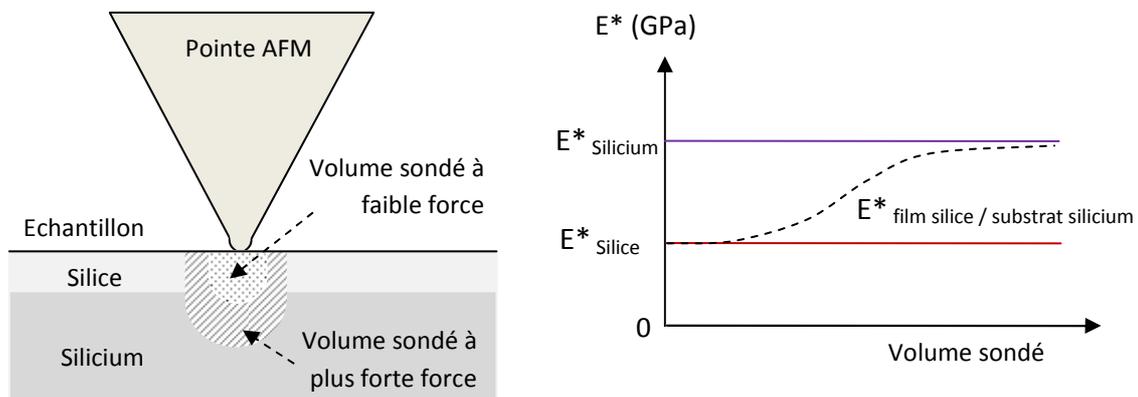


Fig. 3.2 : Schéma représentant l'augmentation de zone sondée en fonction de la force imposée (à gauche) et comportement idéal attendu pour la mesure du module effectif par CR-AFM (à droite).

Puisque nous avons des échantillons ayant des films de silice d'épaisseur croissante, nous devrions mesurer un module effectif croissant du film le plus épais au plus fin. Plus l'épaisseur de silice est importante, plus le module apparent se rapproche de celui de la silice massive et inversement.

Par ailleurs, si le volume sondé à faible force comprend déjà une proportion notable du substrat de silicium, les mesures du module effectif initial seront déjà supérieures à celle de la silice seule. Enfin, si nous nous plaçons dans le cadre précédent tout en demeurant dans le domaine élastique, les mesures doivent discriminer les différents films minces de silice en fonction de leur épaisseur ^[Striegler2007].

Nous allons éprouver ces hypothèses avec les résultats que nous avons obtenus à l'aide de notre montage de microscope CR-AFM.

III.1.2.1. Analyse des échantillons à l'aide du levier doté d'une pointe recouverte de diamant

Dans le chapitre 2, nous avons vu que le levier B2 – FMR de Nanotools était constitué d'une poutre et d'une pointe en silicium sur laquelle a été collée une sphère de silice recouverte de diamant d'environ 30 à 50 nm de rayon. Ce type de pointe offre, comme nous l'avons mentionné, une durabilité bien supérieure à de classiques leviers en silicium ^[Nanotools2010] (fig 3.3).

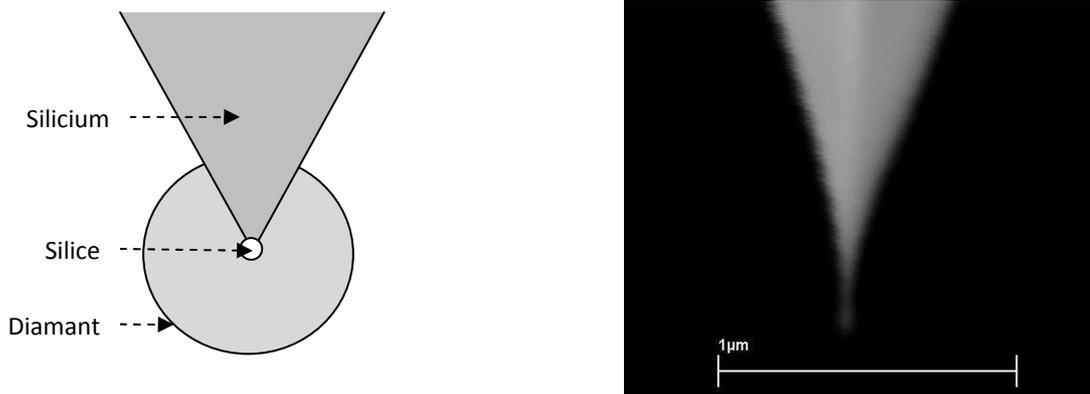


Fig. 3.3: Schéma en coupe (à gauche) et image MEB (à droite) de la pointe du levier B2-FMR de Nanotools.

Les caractéristiques de ce levier ont d'après les mesures MEB que nous avons réalisées : une longueur de 232.2 μm , une largeur moyenne de 32.0 μm , une épaisseur de 3.6 μm pour une raideur estimée par le constructeur comme étant autour de 2.8 N/m. L'ensemble des mesures se déroulent sous atmosphère contrôlée à la température de 20 °C, avec un taux d'humidité relatif inférieur à 5%.

Nous utilisons pour ces mesures le système d'excitation électrostatique dont nous avons vu dans le chapitre 2 qu'il était le plus performant. C'est en effet possible sur ces échantillons car des essais que nous avons menés ont donné des résultats cohérents même sur du silicium (semiconducteur). Normalement, sans une couche d'isolant entre l'électrode excitatrice et la pointe de l'afm, le courant circule au sein de l'échantillon empêchant la formation du champ électrique oscillant voulu. Le fait que ce système soit malgré tout efficace sur des échantillons conducteurs s'explique par le fait qu'une couche d'oxyde natif se forme à la surface de ces derniers lorsqu'ils sont exposés à l'air libre ^[Doering2007].

La figure 3.4 présente un spectre du levier libre entre 1kHz à 2MHz avec une tension appliquée de 3V. La première fréquence libre résonance est de 82 kHz, ce qui correspond aux spécifications attendues (voir chapitre 2). Nous relevons également deux modes de résonance supplémentaires sur ce spectre ce qui nous permettra une meilleure modélisation ultérieure. Le rapport signal sur bruit ($r = 63$) et le facteur qualité ($Q = 64$) sont suffisamment hauts pour nous permettre de relever correctement les pics.

Puis nous réalisons la phase d'approche, détaillée dans le chapitre 2. Le levier est descendu sans qu'aucune vibration ne soit appliquée, jusqu'à ce qu'il entre en contact avec la surface, et subisse une déflexion de 120 nm. Puis dans un second temps, nous diminuons légèrement cette déflexion pour nous fixer à 100 nm. De cette façon, comme nous l'avons décrit dans le chapitre précédent, nous nous assurons que l'interaction pointe-surface demeure dans un domaine purement élastique, nous assurant du même coup une bonne reproductibilité. Le spectre que nous présentons a été réalisé suivant cette procédure, et nous permet d'identifier les pics de résonance lorsque le levier est en contact avec l'échantillon de référence en silice (fig 3.4). L'acquisition s'est déroulée en reprenant les paramètres précédents. Les deux premiers modes sont ainsi clairement visibles, même si le rapport signal sur bruit s'est dégradé ($r = 32$), tout comme le facteur de qualité ($Q = 46$). Le troisième pic a disparu, son amplitude étant devenu trop faible pour être détecté par nos instruments. Nous pouvons toutefois remarquer que ce spectre est très propre, sans pics parasites et avec des pics distincts.

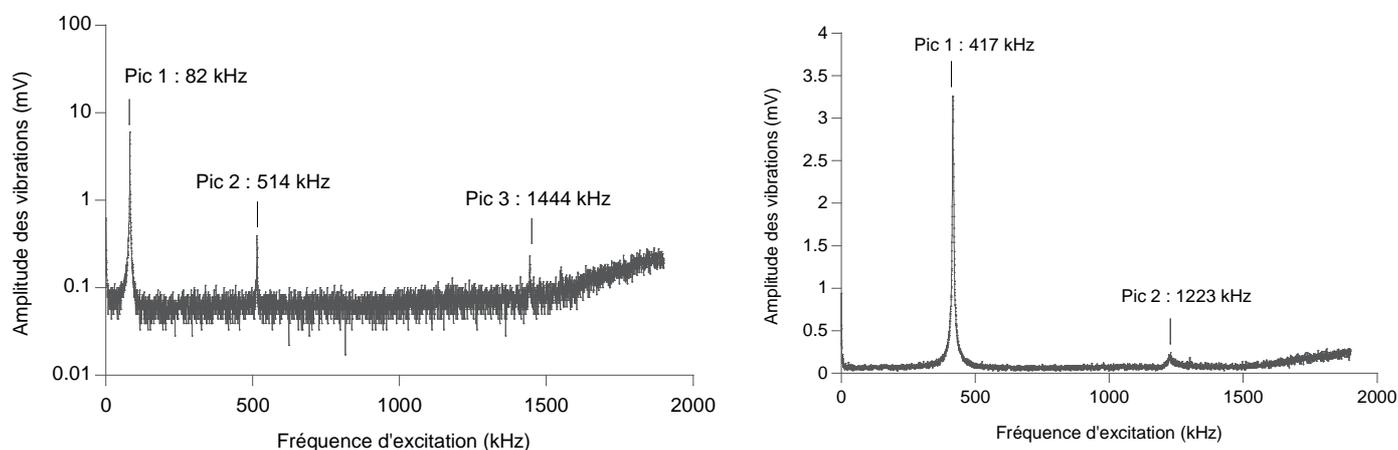


Fig. 3.4 : Spectres réalisés avec la pointe B2-FMR 4 avec notre montage électrostatique CR-AFM.
A gauche, le spectre libre mesuré avant le premier contact avec l'échantillon.
A droite, le spectre en contact avec l'échantillon de silice massive, avec une déflexion imposée de 100 nm.

Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit (fortement affecté par la topographie de la surface), nous avons multiplié le nombre d'acquisitions comme nous l'avons décrit dans le chapitre II. Nous avons ainsi réalisé plusieurs centaines de mesures sur ces échantillons : pour chaque force que nous imposons, nous procédons à des séries de 9 acquisitions de spectres et nous répétons ce processus sur 9 sites différents. A partir de ces données nous obtenons des valeurs moyennes des fréquences de résonance ainsi qu'une incertitude sur chacune de ces valeurs correspondant à l'écart type obtenu sur l'ensemble des mesures (voir fig. 3.5).

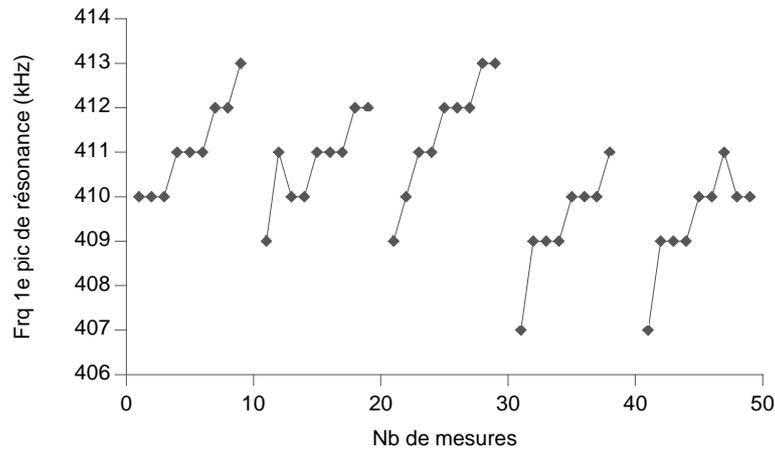


Fig. 3.5 : Evolution ordonnée de la première fréquence de résonance-échantillon de silice-pointe capée diamant
 $F_{appliquée}=100$ nN

Nous construisons avec ces données un graphique retraçant l'évolution de la première fréquence de résonance en fonction de la force qui a été imposée sur le levier (fig. 3.6).

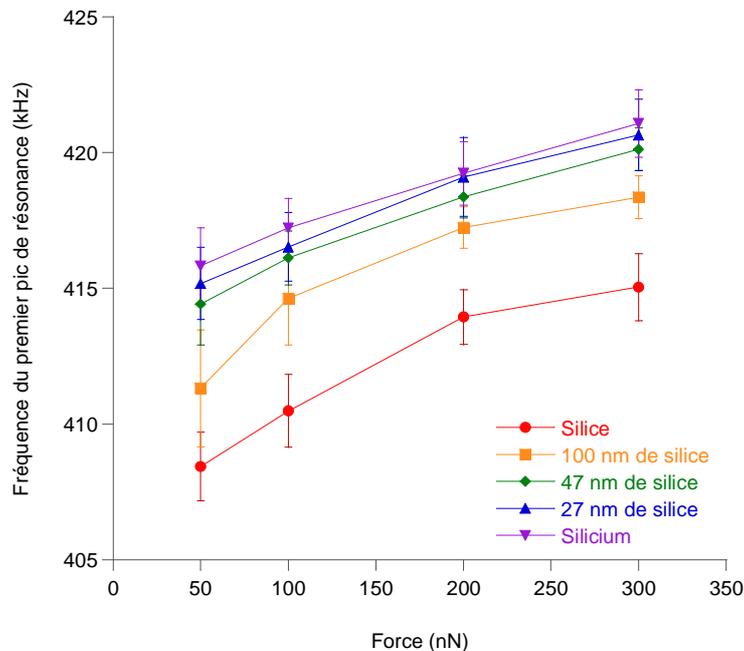


Fig. 3.6 : Evolution de la position en fréquence du premier pic de résonance en fonction de la force imposée au levier.
Chaque point est la médiane de 81 acquisitions. Mesures effectuées avec la pointe B2-FMR 4.

Ce graphique nous permet de confronter les résultats expérimentaux aux hypothèses que nous avons faites au début du chapitre. Nous retrouvons d'abord le positionnement distinct des courbes de chaque échantillon les uns par rapport aux autres. Nous observons que les courbes correspondant aux matériaux massifs (Si et SiO₂) encadrent les courbes des films de silice avec la répartition prévue : à même force plus l'épaisseur du film est fine, plus la contribution du substrat de silicium est importante donc plus la rigidité effective est forte et plus les fréquences sont élevées. Cela se retrouve expérimentalement par des fréquences de résonance pour l'échantillon de 27 nm très proche de celles du silicium massif (cf graphique 3.6).

D'autre part, nous constatons que pour la plus faible force imposées (50 nN) les différences entre les différents films minces sont déjà bien marquées. Cela signifie que le volume sondé à cette force comprend déjà une proportion importante du substrat de silicium. Il ne nous a donc pas été possible de sonder uniquement le film de silice et donc de trouver des fréquences proches du matériau massif. Réduire davantage la force imposée rend les forces d'adhésion prépondérantes ce qui laisse uniquement la possibilité de diminuer la taille du rayon de courbure de l'extrémité de la pointe. De telles pointes compatibles avec notre utilisation n'étant pas encore disponibles actuellement cela reste une piste pour une étude ultérieure.

De façon globale, nous constatons une augmentation des fréquences de résonance pour chaque matériau donné avec la charge imposée. Lorsque la pointe s'enfonce dans l'échantillon, son aire de contact augmente d'où cette évolution des fréquences de résonance en accord avec celle de la rigidité de contact ^[Sneddon1965].

Enfin, si nous considérons les barres d'erreur reportées nous devons tenir compte du fait que celles-ci indique la répartition de l'ensemble des mesures effectuées sur chaque points, et que si nous avons réalisé uniquement des mesures ponctuelles, nous aurions un domaine bien plus restreint (voir fig 3.4). Cela provient de la manière dont nous avons réalisé ces mesures comme nous l'avons décrit dans le chapitre 2. Nos conclusions prennent en compte ces considérations, et ne négligent pas ces incertitudes comme il serait possible de l'objecter.

Si nous reconstruisons de façon semblable l'évolution de la seconde fréquence de résonance (fig 3.7), nous pouvons aboutir aux mêmes conclusions.

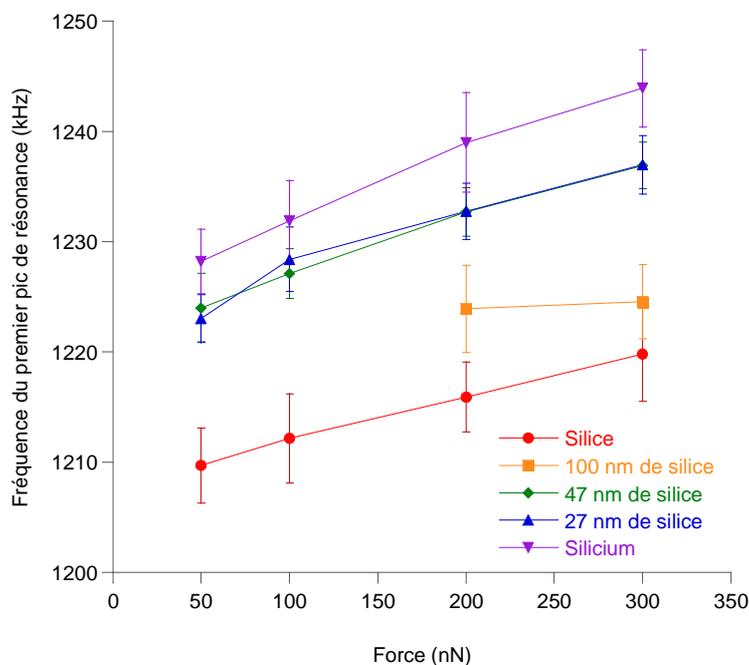


Fig. 3.7 : Evolution de la position en fréquence du second pic de résonance en fonction de la force imposée au levier. Chaque point est la médiane de 81 acquisitions. Mesures effectuées avec la pointe B2-FMR 4.

Nous reviendrons par la suite dans le chapitre 4 sur ces résultats pour nos exploitations et nos modélisations. Il reste que pour confirmer tout ceci, nous avons voulu reprendre l'ensemble de ces mesures avec un autre levier, afin de valider ces résultats en excluant le facteur de forme dû à l'usure de la pointe.

III.1.2.2. Analyse avec la pointe en diamant massif nanocristallin

Nous avons utilisé l'une de nos dernières pointes, un levier en forme de dièdre, le ND-CTIT1-4 fabriquée par Advanced Diamond Technologies, entièrement en diamant synthétique UNCD (ultrananocrystalline diamond) ce qui lui assure une très grande durabilité [Kim2005]. Les dimensions que nous avons relevées au MEB indiquent une longueur de 194,7 μm , une largeur d'environ 25,2 μm , une épaisseur d'1,0 μm et une constante de raideur garantie entre 1 et 1,5 N/m [Technologies2010]. Le levier que nous avons utilisé est neuf, et présente un rayon de courbure inférieur à 50 nm.

En se plaçant dans les mêmes conditions que pour l'expérience précédente (excitation à 3 V), nous enregistrons le spectre libre de ce levier avec notre montage électrostatique (fig 3.8). Nous ne relevons pas moins de 4 pics de résonance sur ce spectre, avec une fréquence fondamentale à 41 kHz, pour un rapport signal sur bruit de 41, et un facteur de qualité de 26 ce qui est moins que pour la pointe précédente. La composition du levier et sa géométrie sont les responsables les plus probables de cette baisse, mais nous sommes encore à des valeurs satisfaisantes.

Le spectre obtenu en contact sur l'échantillon de silice pour une déflexion de 90 nm, a été réalisé après une précharge de 150 nm (fig 3.8). Les forces que nous appliquons à ce levier sont assez faibles par rapport aux expérimentations précédentes, la constante de raideur du levier, basse, nous obligeant à imposer des déflexions importante. Nous relevons sur ce spectre en contact 3 pics de résonance émergeant du bruit de fond ($r = 20$), avec un premier mode très bien résolu à 204 kHz ($Q = 19$).

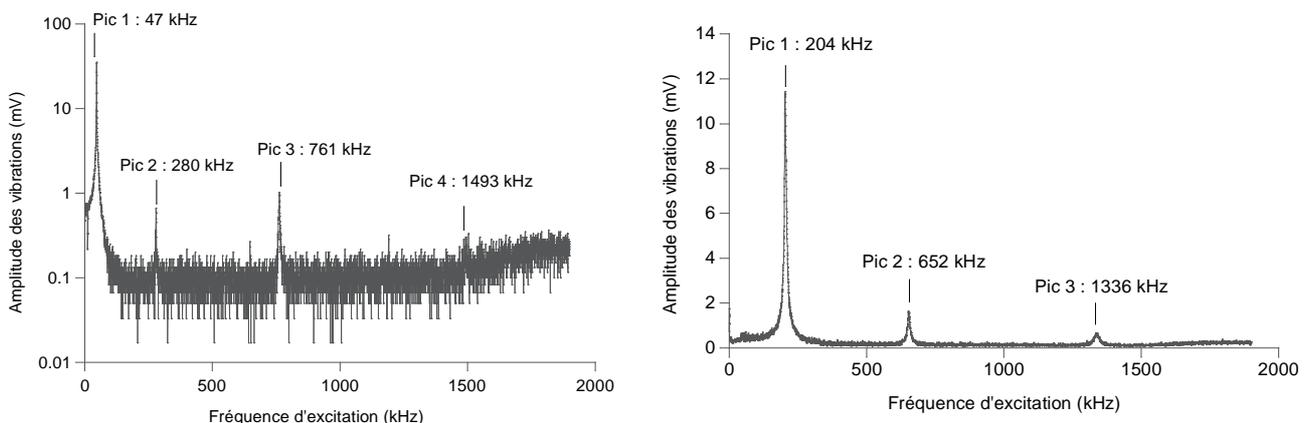


Fig. 3.8 : Spectres réalisés avec la pointe ND-CTIT1 4 avec notre montage électrostatique CR-AFM. A gauche, le spectre libre mesuré avant le premier contact avec l'échantillon. A droite, le spectre en contact avec l'échantillon de silice massive, avec une déflexion imposée de 90 nm.

De façon semblable, avec 81 acquisitions de spectres en contact pour chaque mesure, nous avons construit l'évolution de la position du premier pic en fonction de la force appliquée sur le levier (fig 3.9). Ce graphique nous présente des tendances en accord avec les résultats que nous avons obtenus avec la pointe précédente B2-FMR. Nous retrouvons à la fois la séparation entre les différents films de silice, ce qui illustre la sensibilité de notre montage, mais aussi la croissance des fréquences allant de pair avec l'augmentation de la force appliquée. Ce comportement a d'ailleurs des implications sur la géométrie de la pointe, car dans le cas d'un contact entre poinçon plat et une surface (voir chapitre I.3) l'aire de contact reste constante, ce qui implique une stabilité de la fréquence en fonction de la charge. Or la croissance des fréquences que nous relevons ce le graphique 3.9 indique un comportement plus proche de celui d'une demi-sphère en contact avec une surface tel que le décrit la théorie d'Hertz ^[Kim2005].

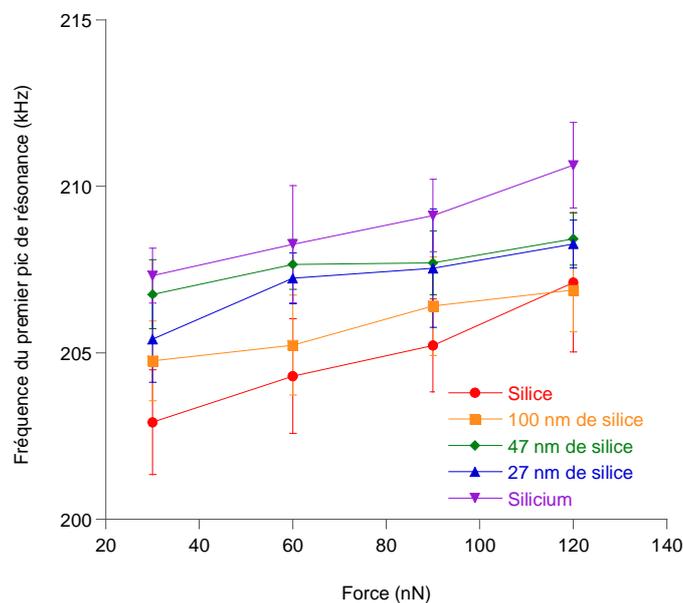


Fig. 3.9 : Evolution de la position en fréquence du premier pic de résonance en fonction de la force imposée au levier. Chaque point est la médiane de 81 acquisitions. Mesures effectuées avec la pointe ND-CTIT1-4.

Lorsque nous nous intéressons au graphique 3.9 dans le détail, nous remarquons que les courbes présentant l'évolution des fréquences de résonance pour les différents échantillons ne sont pas aussi distinctes les unes des autres que dans l'étude précédente. Dans le cas des films minces, celles-ci sont très proches les unes des autres. Si nous tenons compte des incertitudes cela rend difficile toute analyse pointue. La raison est à chercher du côté du levier, bien qu'en diamant, celui-ci présente une géométrie particulière (dièdre) qui implique un positionnement de la première fréquence de résonance plus faible et plus ramassée, et donc du coup une précision moindre.

III.1.2.3. Comparaisons des résultats obtenus en CR-AFM avec ceux obtenus par nanoindentation

Pour confronter les résultats CR-AFM avec d'autres, nous avons recouru à un instrument de caractérisation mécanique à faible échelle courante, la nanoindentation ^{[Vlassak1992] [Saha2002] [Jung2004]}.

Nous avons utilisé un MTS XP monté avec une tête DCM et une pointe Berkovich. Durant les mesures, l'indenteur utilise la méthode de la rigidité continue. Il s'agit de surimposer des oscillations de 1-2 nm à 75 Hz lors de la descente de l'indenteur. Le module élastique du composite film/substrat est ensuite calculé à partir des données expérimentales grâce à la méthode d'Oliver-Pharr, de même que l'évolution l'aire de contact plastique en fonction de la profondeur de pénétration ^[Oliver2004].

Un échantillon de silice thermique sert de matériau de référence car en mesurant via le nanoindenteur la valeur force sur le carré de la rigidité au carré (L/S^2), ici 0.0015 GPa^{-1} , il permet de déterminer le paramètre de calibration ($C_f = 8.10^{-8} \text{ m/N}$). La capacité du nanoindenteur à sonder en profondeur nous assure de déterminer le module réduit et la dureté d'un film sur un substrat ^{[Mencik1997] [Verdier2006]}. Nous reportons donc ici les résultats que nous avons obtenus pour nos différents films minces (fig. 3.10).

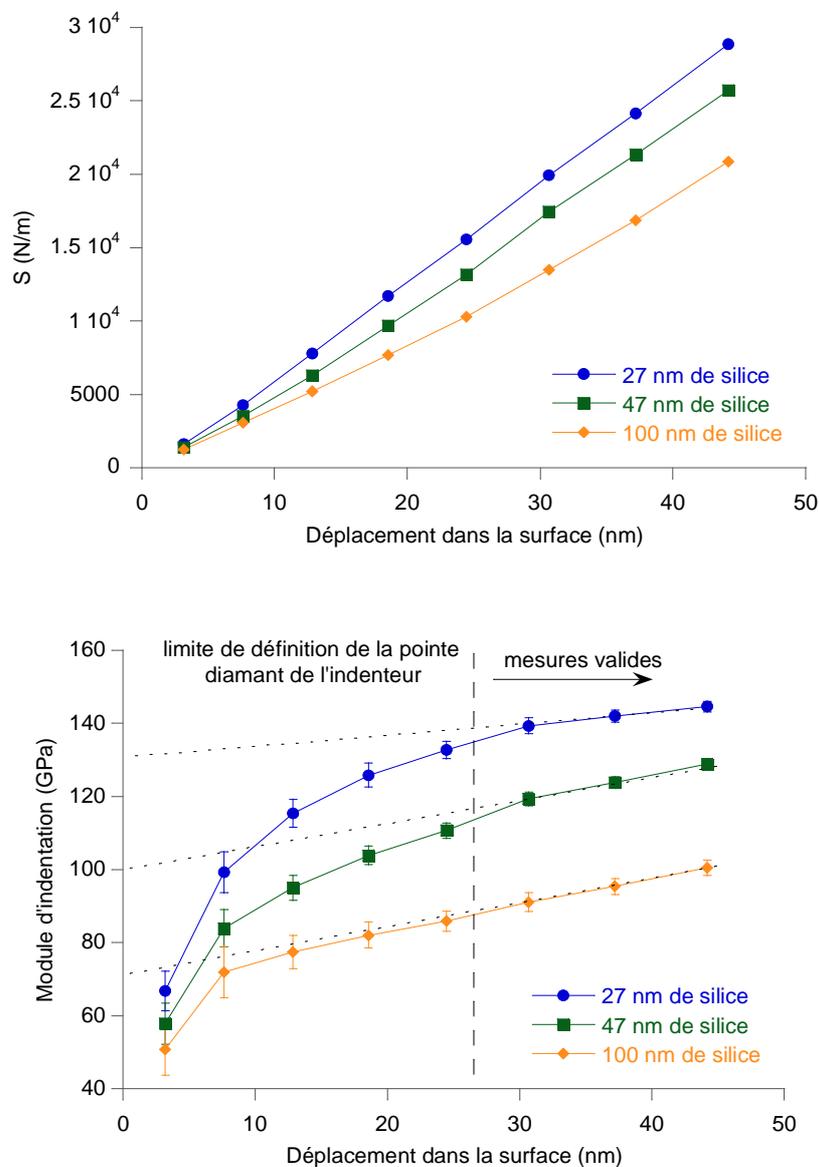


Fig. 3.10 : Courbes obtenues par nanoindentation en fonction de la profondeur d'indentation δ . En haut, la rigidité de contact harmonique S vs δ . En bas : le module d'indentation M vs δ .

A partir ces données, il est possible d'évaluer le module d'indentation M de chaque matériau en première approximation ^[Mencik1997]. Pour rappel, ce dernier est une fonction du module d'Young et du coefficient de Poisson :

$$M = \frac{1 - \nu^2}{E} \quad (3.1)$$

Dans notre cas, nous avons obtenu les modules suivants (tableau 3.1) :

Epaisseur du film de silice (nm)	M_s module d'indentation (GPa)
27	131 ± 9 GPa
47	102 ± 6 GPa
100	73 ± 12 GPa

Tableau 3.1: Résultats obtenus par nanoindentation

Le module d'indentation du silicium étant d'environ 182 GPa, tandis que celui de silice varie autour de 74 GPa ^[Simmons1971], nous reprovons le positionnement des films en fonction de leur épaisseur d'alumine que nous avons relevée en CR-AFM. Ainsi le film de 100 nm présente un module d'indentation plus proche de celui de la silice recuite tandis que les échantillons ayant des films plus fins se rapprochent de celui du silicium.

Il faut cependant savoir que la nanoindentation présente des limitations lorsqu'il s'agit de déterminer le module élastique de films très minces ^{[Chen2005] [Chen2007]}. En effet, pour ce type de mesure une règle empirique a émergé et spécifie que pour obtenir des résultats valides, la profondeur d'indentation doit être limitée à 10% de l'épaisseur du film ^[Buckle1973]. Techniquement cela s'avère malaisé ^[Oliver2004], sans compter que cette recommandation devient erronée pour les échantillons structurés autour d'un film rigide déposé sur un substrat souple ^[Pelletier2006]. Les conclusions que nous pouvons tirer de ces valeurs sont donc à tempérer. Nous pouvons donc seulement indiquer que la hiérarchie entre les échantillons est respectée, avec les matériaux souples composés de silice en quantité plus ou moins importante, et les matériaux rigides en silicium.

Les différentes mesures nous ont permis d'établir que notre montage CR-AFM était sensible à de faibles variations d'épaisseurs de films minces et que le volume sondé prenait en compte le substrat sous-jacent. Cette capacité à apprécier des volumes enterrés représente un des grands intérêts de la microscopie en résonance de contact ^[Hurley2007].

III.2. Caractérisation de films d'alumine nanométriques

Succédant à l'analyse de différents films de silice sur un substrat de silicium, nous avons voulu examiner des films minces dont le module élastique était supérieur à celui de leur substrat sous-jacent. En effet, la littérature nous indique que, dans cette situation, les mesures déterminées par nanoindentation ne suivent plus la loi empirique de 10% introduite par Buckle ^[Buckle1973]. L'influence sur la mesure de nanoindentation des propriétés mécaniques du film deviennent prépondérantes par rapport à celle du substrat ^[Pelletier2006]. Dans le cas précédent, nous avons vu que même pour de faibles forces notre système CR-AFM est déjà sensible au substrat. Il est donc intéressant de regarder le comportement de l'instrument face à ce type d'échantillon. Nous avons donc acquis des films d'alumine sachant que le module élastique du film l'alumine est estimé à environ 370 GPa ce qui est bien supérieur au 68 GPa du substrat d'aluminium ^[Simmons1971].

III.2.1. Description des échantillons

Nous avons obtenu des échantillons du CEA LETI ^[Mercier2010] constitués d'une couche d'alumine d'une épaisseur de 10 nm et un autre avec une couche de 40 nm (fig 3.11). Ils sont constitués d'un substrat en silicium massif (100) CZ de type p, sur lequel une couche de silice de 500nm a été élaborée par oxydation humide d'une heure à 1050°C. Ensuite une couche d'aluminium de 500 nm a été déposée par évaporation (PVD). L'échantillon est ensuite clivé en plusieurs morceaux pour le dépôt d'alumine épaisse 10 et 40 nm (Al_2O_3) réalisé par ALD (Atomic Layer Deposition) grâce à un équipement Svannah. ^[Smith1995]

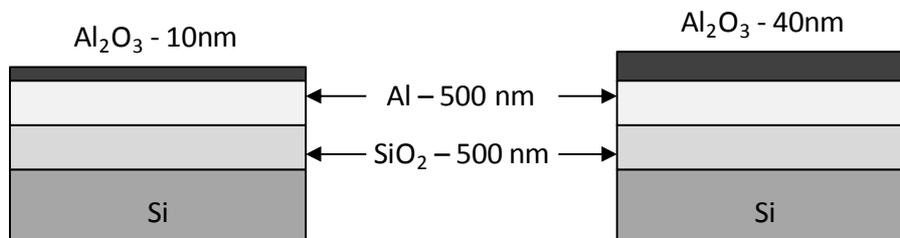


Fig. 3.11 : Schéma des deux échantillons composites film d'alumine sur silicium.

En raison de l'homogénéité de l'échantillon, il ne présentait pas d'intérêt de réaliser des cartographies, ce qui explique pourquoi seules des spectroscopies ponctuelles ont été réalisées. Si nous reprenons les résultats obtenus pour les films de silice, nous nous attendons à observer une augmentation du module d'Young et donc des fréquences de résonance en fonction de l'épaisseur du film d'alumine.

III.2.2. Spectrométrie CR-AFM

Nous avons repris pour cette série d'expérimentations, un levier du lot ND-CTIT1 entièrement en diamant synthétique (NadiaProbes de Advanced Diamond Technologies). Ses caractéristiques physiques ont également été déterminées par MEB, et nous avons trouvé que le dièdre avait une

longueur totale de 193,4 μm , une largeur de 25,2 μm , pour une épaisseur d'1,0 μm . La constante de raideur de ce levier reste comprise entre 1 et 1,5 N/m. Le choix de cette pointe s'est imposé de par la dureté de l'alumine (9 Mohs) ; le diamant qui compose le pointe est le seul capable de supporter sans dommage les séries de charges et de décharges que nous effectuons pour que nos mesures soient toujours effectuées dans un domaine purement élastique ^[Technologies2010].

Nous commençons tout d'abord par enregistrer le spectre libre de notre levier en forme de dièdre à l'aide de notre montage électrostatique. La tension d'excitation est limitée à 3 V et la mesure a été effectuée entre 1kHz et 1.9 MHz (fig. 3.12). Nous observons trois pics résonance, le premier étant situé à 46 kHz, le deuxième à 280 kHz puis un dernier qui apparait à 1445 kHz. Le ratio signal sur bruit de ce spectre n'est pas bon ($r = 5$), ce qui explique l'absence de pics détecté entre 300 et 1400 kHz. Lorsque nous passons en contact, le rapport signal sur bruit évolue favorablement, augmentant à 16 (tout comme le facteur qualité). Deux pics et une anti résonance sont alors identifiables, ce qui est suffisant pour nos exploitations.

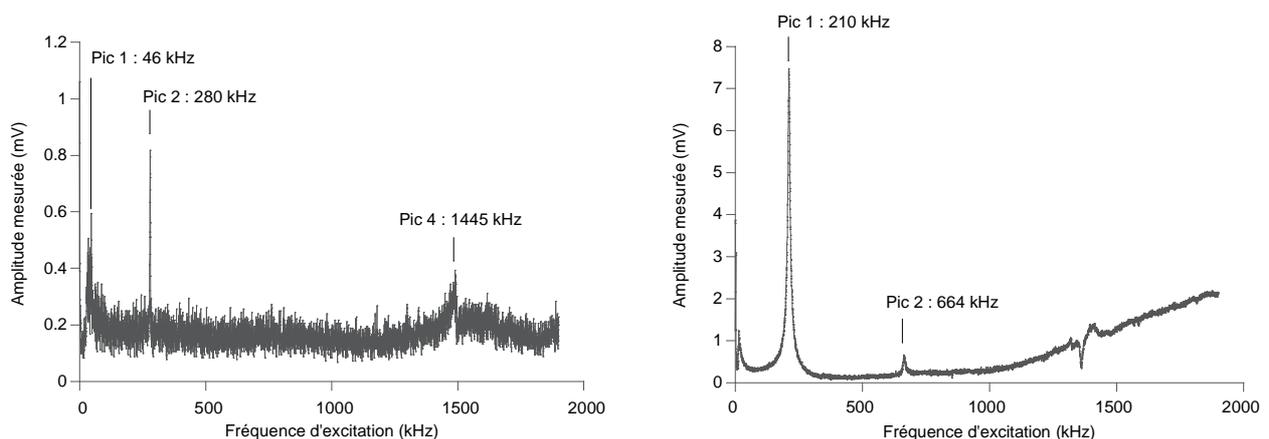


Fig. 3.12 : Spectres réalisés avec la pointe ND-CTIT1 2 avec notre montage électrostatique CR-AFM
A gauche, le spectre libre mesuré avant le premier contact avec l'échantillon

A droite, le spectre en contact avec l'échantillon composite d'alumine à 10 nm, avec une déflexion imposée de 120 nm

Comme dans le cas des films en silice, nous nous sommes intéressés à l'évolution de la position en fréquence des premiers modes de résonances. Afin d'avoir une statistique suffisante pour éviter d'être influencé par des mesures aberrantes, nous avons multiplié le nombre de mesures à la fois sur chaque site (9 spectres) mais aussi topographiquement en changeant 6 fois la position du point de contact. Puis à partir des spectres enregistrés, nous construisons la courbe retraçant l'évolution de la position de première fréquence de résonance en fonction de la charge à l'aide de notre script Kaleidagraph (fig. 3.13).

Avant de regarder les résultats, si nous nous basons sur les résultats obtenus en III.1, nous nous attendons ce que le module effectif de l'échantillon composé d'un film de 10 nm d'alumine soit plus petit que celui de 40 nm. En effet, pour un volume sondé équivalent, la proportion d'aluminium sondée sera plus importante dans le cas de la couche d'alumine la plus mince. Enfin, le module

élastique de cette couche d'aluminium ($E_{\text{silice}} = 70.4 \text{ GPa}$) est très inférieure à celle de l'alumine ($E_{\text{Alumine}} = 370 \text{ GPa}$).^[Simmons1971]

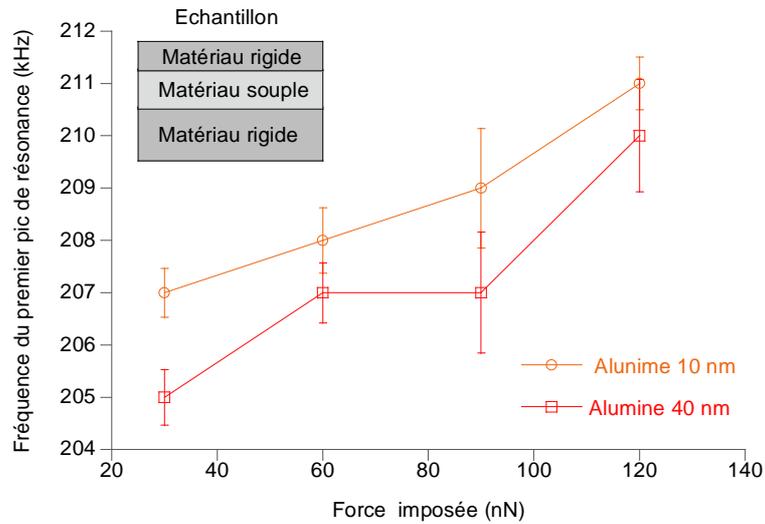


Fig. 3.13 : Evolution de la position en fréquence du premier pic de résonance en fonction de la force imposée au levier. Chaque point est la médiane de 81 acquisitions. Mesures effectuées avec la pointe ND-CTIT1-2

Si nous suivons cette logique, les fréquences de résonance correspondant au film d'alumine de 40 nm devraient être supérieures à celles de la couche de 10nm. Or, nous constatons que nous obtenons exactement l'inverse, ce qui nécessite une explication.

Première hypothèse, la rugosité de surface différente entre les deux échantillons^[Stan2008a]. Suivant son importance celle-ci peut induire une augmentation de l'aire de contact entre la pointe du levier et la surface, et donc une augmentation des fréquences de résonance relevées. Pour vérifier cette explication, nous avons effectué des mesures topographiques à l'aide du montage classique de microscopie à force atomique (fig. 3.14).

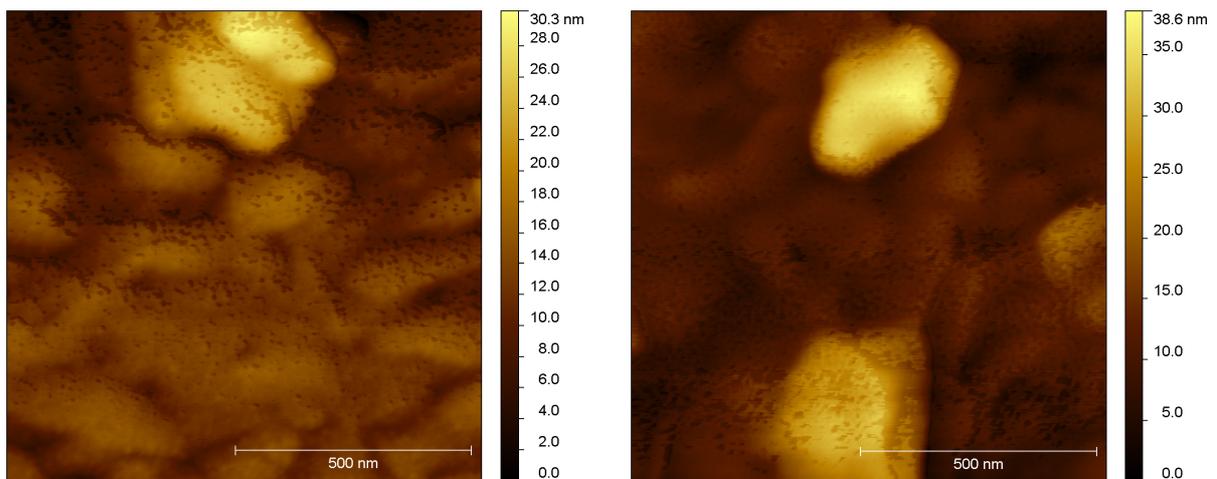


Fig. 3.14 : Image topographique tapping $5 \times 5 \mu\text{m}$ de l'échantillon de 40 nm d'alumine (gauche) et de 10 nm (droite).

L'échantillon de 40 nm présente ainsi une rugosité d'environ 4 nm qui s'avère ainsi légèrement inférieure à celle obtenue sur le film de 10 nm (≈ 7 nm), ce qui pourrait confirmer cette interprétation mais la différence de rugosité reste trop faible pour vraiment conclure. Autre hypothèse, nous sommes sur un empilement complexe (cf fig 3.13) constitué successivement d'un matériau rigide (alumine) déposé sur un matériau souple (aluminium/silice) lui-même situé au dessus d'un substrat rigide (silicium). Le volume sondé étant typiquement estimé à 3 fois l'aire de contact ^[Striegler2007], la pointe ayant un rayon de courbure initial inférieur à 50 nm, il est peu plausible que l'instrument soit sensible au substrat de silicium situé sous les 500 nm de silice. Seul, un comportement particulier pour ce type d'empilement (matériau rigide/ matériau souple) permet d'expliquer ce résultat.

III.3. Caractérisation de films de silice nanoporeuse

Après avoir étudié des matériaux composites ou massifs, nous avons voulu tester notre dispositif expérimental sur des échantillons architecturés présentant de fortes hétérogénéités d'élasticité. La silice nanoporeuse sert de matériau modèle pour des applications allant de la biologie à la micro-électronique ^[Jauffres2010]. Pour l'industrie du semiconducteur, ce type de matériau avec leur structure poreuse remplie de cavités, permet d'atteindre des propriétés diélectriques bien meilleures, ce qui est impératif pour poursuivre la course à la miniaturisation ^[Maier2001]. Dans le cadre de nos travaux, nous nous sommes ainsi procuré des échantillons constitués de couches minces de silice à porosité hiérarchique ^[Yacou2009]. L'élaboration de ces échantillons s'est faite via la technique sol-gel : une solution de Tetraethylorthosilicate (TEOS) est utilisée comme précurseur de la silice et va être diluée dans de l'éthanol et hydrolysé avec de l'acide chlorhydrique ($\text{pH} \approx 1.25$). Puis une fois le mélange homogénéisé, des agrégats de Polystyrène d'environ 137 nm sont ajoutés afin de créer des macroporosités. Dans la même optique, des particules de 4nm d'un polymère, le Plutronic® F68, sont versés dans la préparation. L'ensemble subit un traitement thermique qui va d'abord solidifier le film puis calciner les précurseurs de porosités ^[Yacou2008]. Le résultat final est un échantillon structuré schématiquement ainsi (fig 3.15) :

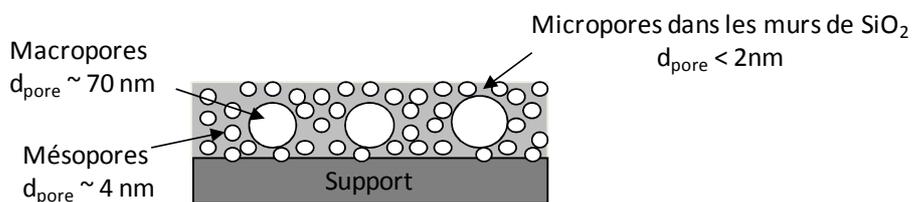


Fig. 3.15 : Structure de l'échantillon de silice nanoporeuse "hiérarchisé".

L'observation de cet échantillon dit « hiérarchisé » par microscope électronique à balayage (MEB) nous révèle que les macropores sont répartis aléatoirement dans le solide sous la forme d'ellipsoïde d'environ 50 nm \times 100 nm (fig 3.16). D'autres observations (TEM) ont montré que les mésopores étaient répartis de manière homogène dans le film. L'épaisseur du film mince a été examinée par ellipsométrie et varie entre 250 et 600 nm suivant l'échantillon.

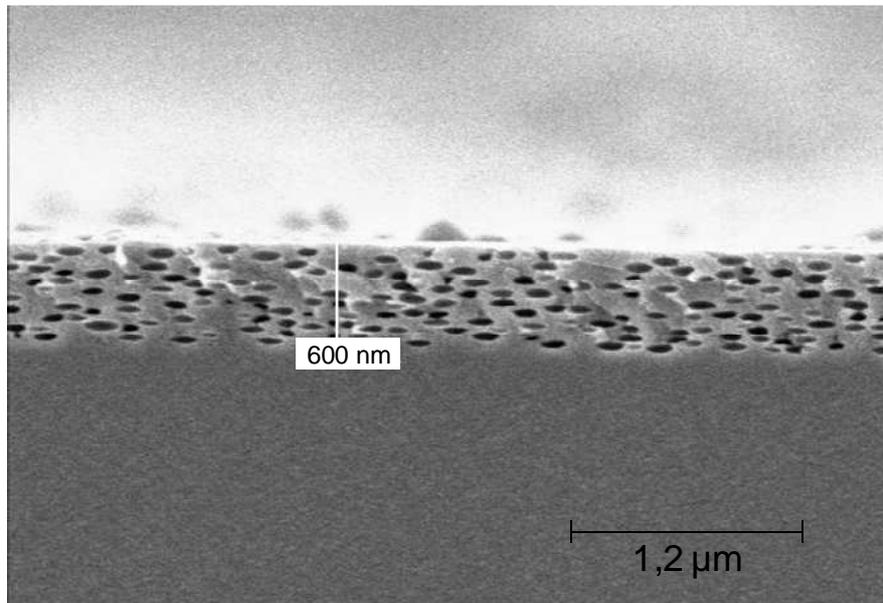


Fig. 3.16 : Image MEB en coupe d'une couche mince de silice à porosité hiérarchique (par C. Yacou).
Les macropores sont déformés sur cet échantillon.

En plus de cet échantillon, nous avons également des échantillons comprenant des microporosités et suivant les cas, des cavités plus importantes. Ils sont nommés échantillon micro, méso et macro (fig. 3.17) :

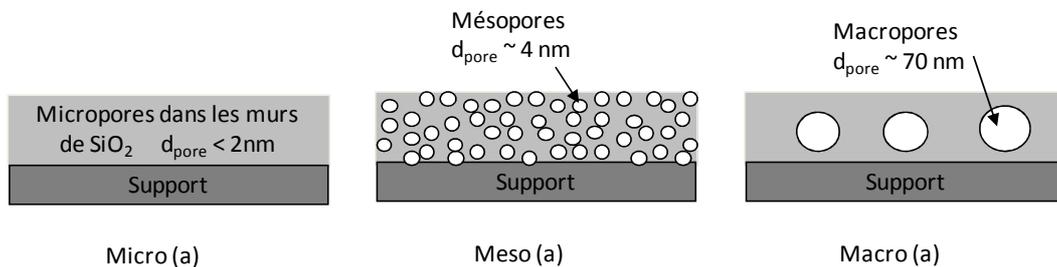


Fig. 3.17 : Structure de l'échantillon de silice nanoporeuse "micro" (a), "méso" (b), "macro" (c).

L'analyse par nanoindentation de ces échantillons donne un module élastique variant entre 10-15 GPa pour l'échantillon composé uniquement de macropores et 8 GPa pour l'échantillon « hiérarchisé ». ^{[Yacou2009] [Jauffres2010]}

III.3.1. Spectrométrie CR-AFM

Nos expérimentations en CR-AFM sur ces échantillons ont été réalisées à mi-parcours de nos travaux de développement. C'est pourquoi nous avons utilisé une poutre en silicium MPP21100 de VeecoProbes ($k_c \approx 3$ N/m), que nous avons également mesurée par MEB. Ce levier a une longueur de 222 μm , pour une largeur de 45 μm et une épaisseur de 3,7 μm . Sa fréquence libre de résonance de l'ordre de 104 kHz a été déterminée grâce à un spectre libre réalisé avant le premier contact avec l'échantillon. Pour cela, nous employons le système électrostatique en liaison avec la détection synchrone (7280 de Signal Recovery), et nous transmettons un signal d'excitation sinusoïdal de 3 V à l'électrode placée sous l'échantillon. La mesure a été effectuée entre 1 kHz et 2MHz (fig 3.18).

Le rapport signal sur bruit est très bon ($r = 47$), tout comme le facteur de qualité du premier pic ($Q = 88$), ce qui permet de repérer les trois premiers modes de résonance du levier et ainsi augmente la précision des modélisations ultérieures. Puis nous avons réalisé une acquisition en contact avec une déflexion imposée au levier de 20 nm, soit une force d'environ 60 nN. Le rapport signal sur bruit s'est effondré ($r = 6$ et $Q = 12$) malgré le fait que nous ayons augmenté la tension d'excitation à 30 V. Nous observons des pics asymétriques, ce qui est lié à un phénomène linéaire dont l'origine est à chercher du côté de l'amplitude de vibration devenue très importante avec la hausse de la tension envoyée à l'électrode [Dupas2000].

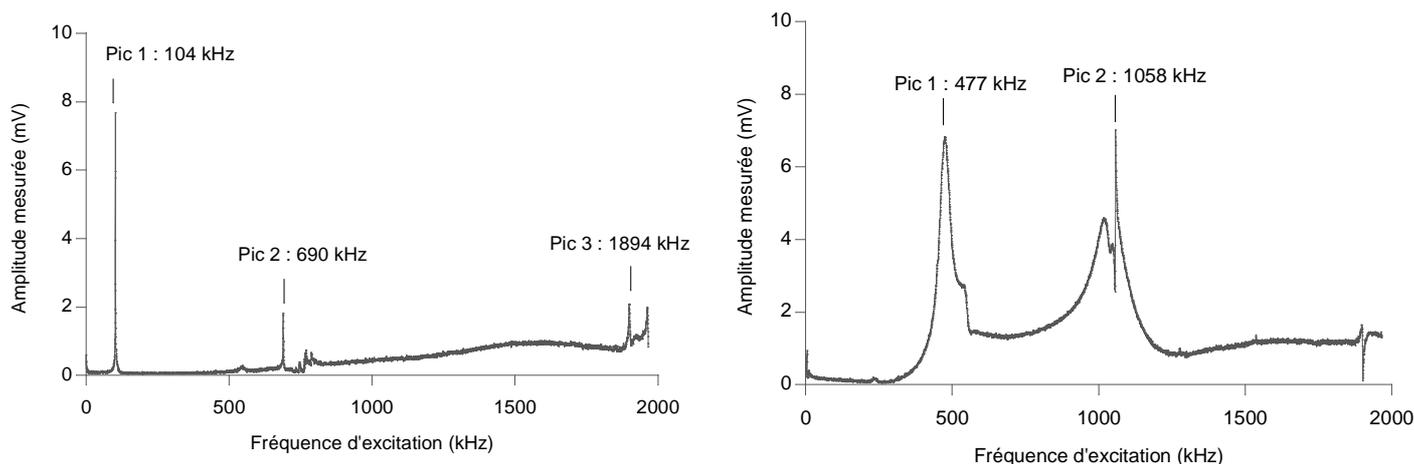


Fig. 3.18 : Spectres réalisés avec la pointe MPP 21100 n°1 avec notre montage électrostatique CR-AFM. A gauche, le spectre libre mesuré avant le premier contact avec l'échantillon. A droite, le spectre en contact avec l'échantillon comportant des porosités de 4 et 2 nm (méso), avec une déflexion imposée de 20 nm et une excitation électrostatique de 30 V.

L'étude de ces spectres, et en particulier, le repérage du premier mode de résonance nous permet de passer à la seconde étape de notre étude, la cartographie en mode contact résonant des différents échantillons de silice nanoporeuse.

III.3.2. Cartographie

Pour réaliser ces images, nous avons conservé le système précédent basé autour de la détection synchrone, le montage permettant des acquisitions de cartographie quantitative n'ayant pas été encore développé à cette époque (voir chapitre 2). Du coup, les images produites sont réalisées à fréquence fixée, autour du premier pic de résonance, et n'offrent plus que la possibilité de commenter le contraste entre les éléments composant le matériau sondé. Ainsi nous avons procédé à l'étude de plusieurs des échantillons nanoporeux dont la rugosité de surface est suffisante pour permettre d'utiliser la nanoindentation.

III.3.2.1. Echantillon « Hiérarchisé »

Le premier couple d'images que nous présentons montre la surface de l'échantillon « hiérarchisé » (fig. 3.19). La fréquence d'excitation en mode contact résonant que nous avons fixé est inférieure à celle du premier mode de résonance. Une topographie AFM classique est enregistrée dans le même

temps, et nous montre la présence de nombreux macropores ouverts ($\varnothing \approx 100$ nm) ainsi qu'une rugosité moyenne de 6.4 nm. Au niveau de l'image acoustique, celle-ci est obtenue pour une fréquence d'excitation de 465 kHz avec une force imposée de 100 nN. Celle-ci présente un contraste très fort à chaque variation de topographie. Les macropores sont ainsi clairement apparents ainsi que les autres reliefs topographiques.

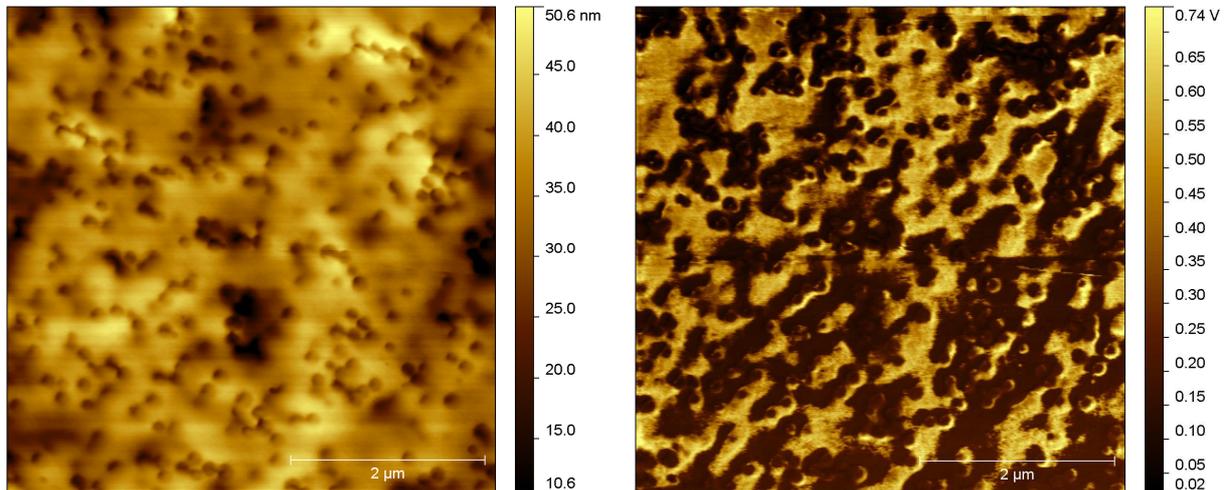


Fig. 3.19 : Images $5 \times 5 \mu\text{m}$ de l'échantillon « hiérarchisé ».

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = 465$ kHz)

En étudiant une zone plus restreinte ($1 \mu\text{m}^2$), nous pouvons mettre en évidence la capacité du microscope CR – AFM à détecter des porosités sous la surface (fig. 3.20). Sur le couple d'image que nous présentons, nous avons entouré une zone qui apparaît topographiquement comme complètement plane et qui indique l'existence d'une porosité subsurface dans l'image par CR-AFM. Le microscope est donc sensible aux variations du module élastique dues à la présence de cavités sous la surface matériau. En effet, au dessus d'une porosité la réponse que matériau à l'excitation acoustique est celle d'un matériau souple, ce qui provoque une diminution de l'élasticité locale.

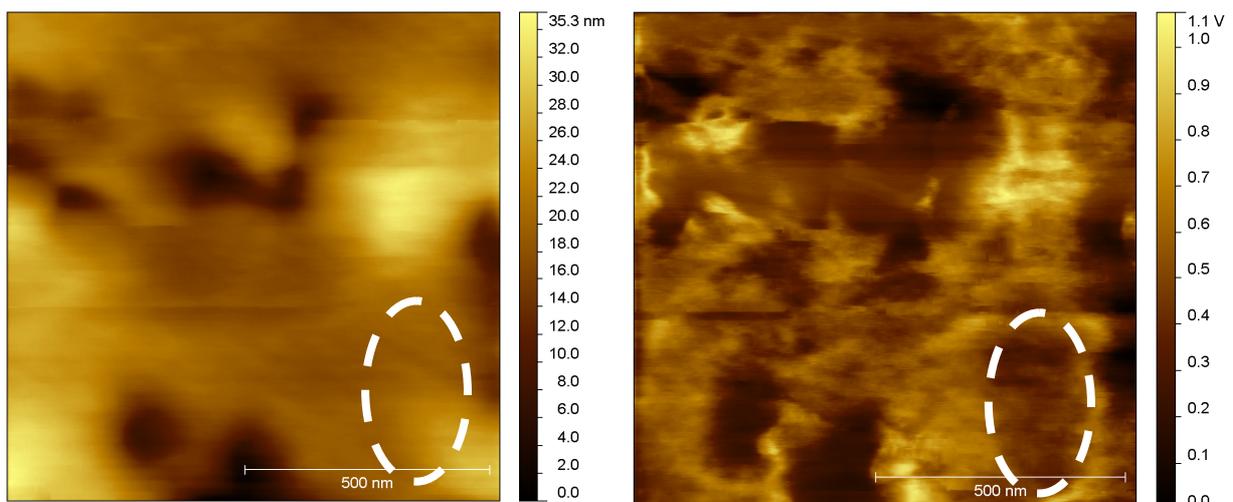


Fig. 3.20 : Images $1 \times 1 \mu\text{m}$ de l'échantillon « hiérarchisé ».

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = 465$ kHz)

Suite aux récents travaux en CR-AFM de L. Boatemaa sur ces échantillons, nous nous permettons d'ajouter quelques unes de ses illustrations. Elles ont été réalisées avec une pointe MPP21150 (VeecoProbes) de géométrie identique à la précédente (MPP21100) mais bénéficiant d'un dépôt protecteur de diamant sur sa pointe. Ces images confirment nos assertions précédentes tout en apportant une amélioration de la qualité (fig. 3.21 et fig. 3.22).

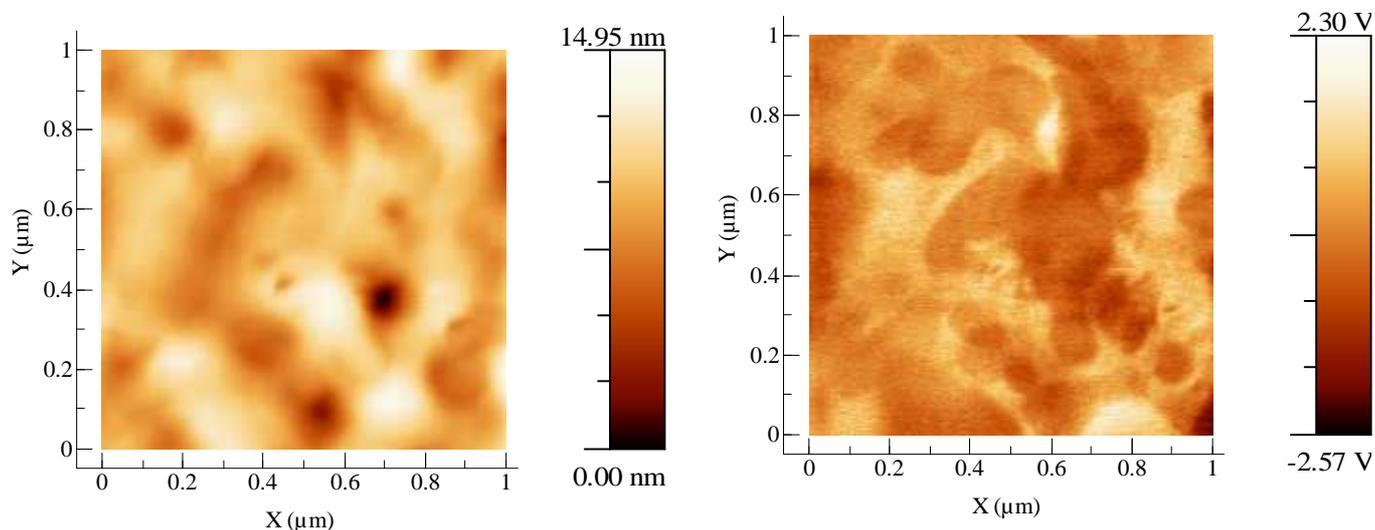


Fig. 3.21 : Image $1 \times 1 \mu\text{m}$ de l'échantillon « hiérarchisé ».

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = 535\text{kHz} > f_{\text{résonance}} = 525 \text{ kHz}$)

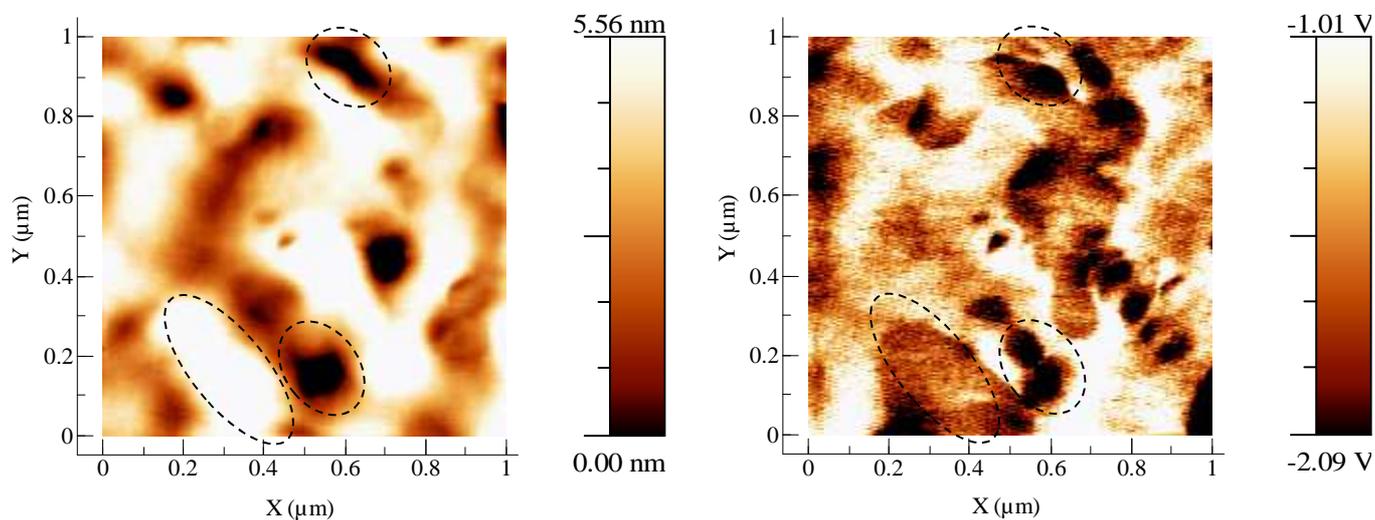


Fig. 3.22 : Image $1 \times 1 \mu\text{m}$ de l'échantillon « hiérarchisé ».

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = f_{\text{résonance}} = 525 \text{ kHz}$)

III.3.2.2. Echantillon « macro »

Lorsque nous étudions les autres échantillons, il apparaît que nous ne pouvons caractériser correctement que les échantillons comprenant des macropores. En effet, les porosités plus petites n'apparaissent pas en raison de leur diamètre (>4 nm), très inférieur à celui de la pointe (≈ 40 nm). Nous avons donc observé des détails intéressants que sur le matériau macroporeux comme nous le montre la figure 3.23.

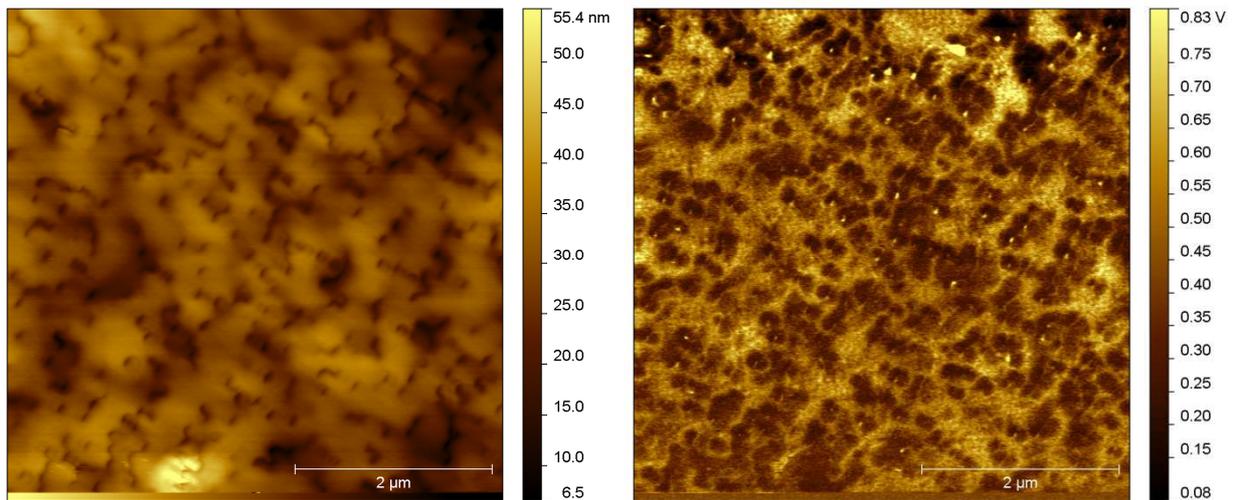


Fig. 3.23 : Image $5 \times 5 \mu\text{m}$ de l'échantillon macroporeux.

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = 470$ kHz)

Nous voyons apparaître les macropores qui affleurent à la surface de l'échantillon ainsi que les effets de surface qui sont magnifiés par l'image en mode contact résonant. L'image CR-AFM fait apparaître en plus les structures cachées correspondant à porosités enterrées sous la surface ce que confirme le couple d'images suivantes (fig 3.24). Le contraste que cette dernière affiche permet d'identifier clairement les détails des vides enterrés avec une résolution spatiale bien meilleure que 100 nm.

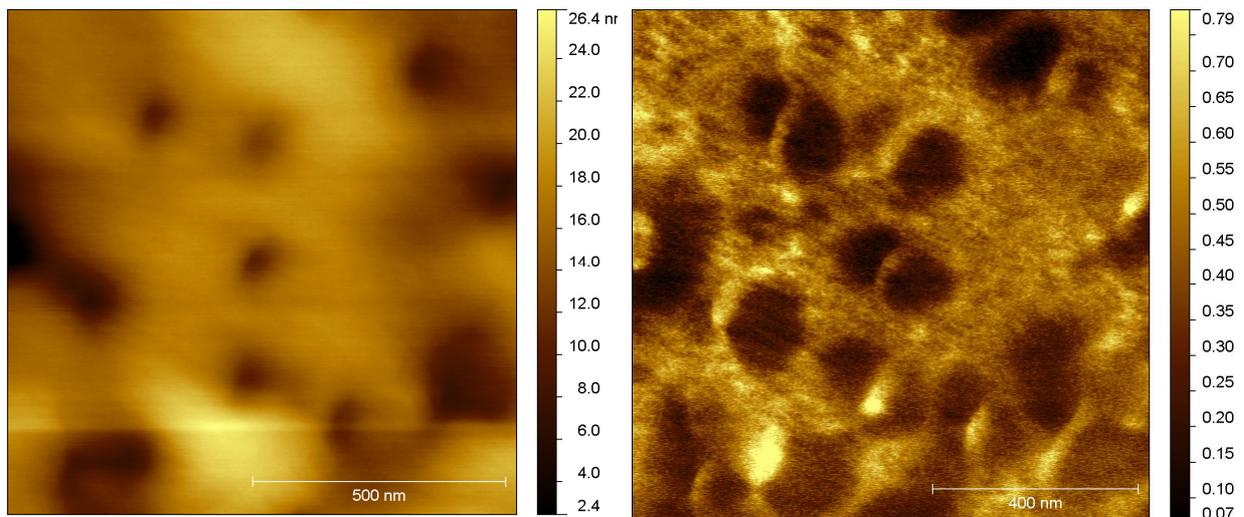


Fig. 3.24 : Image $1 \times 1 \mu\text{m}$ de l'échantillon macroporeux.

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = 470$ kHz)

A ces images, nous pouvons ajouter celles-ci, plus récentes (fig. 3.25) qui confirment nos analyses précédentes.

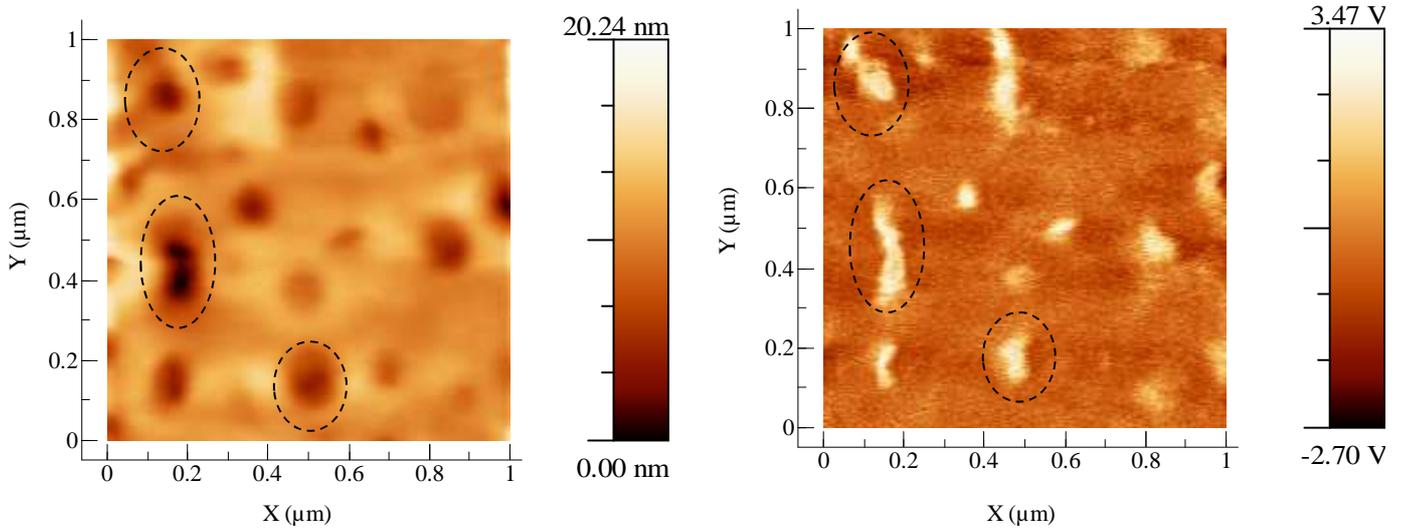


Fig. 3.25 : Image $1 \times 1 \mu\text{m}$ de l'échantillon macroporeux.

A gauche, image topographique. A droite image en mode contact résonant à fréquence fixée ($f_{\text{excitation}} = 580\text{kHz} > f_{\text{résonance}} = 575 \text{ kHz}$)

Avec ces travaux, nous avons mis en évidence la capacité du microscope CR- AFM à caractériser des structures enterrés en subsurface. Des travaux effectués sur le sujet suggèrent que pour une pointe semblable à la notre, avec un rayon de courbure d'environ 50 nm, ce type de système est capable de sonder un wafer de silicium jusqu'à 800 nm de profondeur ^[Striegler2007].

III.4. Caractérisation de cuivre polycristallin

Cet échantillon est composé d'un film de cuivre polycristallin déposé par un procédé de déposition électrochimique au CEA-LETI (fig 3.26). Pour cela, le wafer de silicium qui lui sert de substrat a été oxydé thermiquement, et recouvert par CVD d'un film mince de TiN (10nm). Le cuivre a été déposé dessus par électrochimie et recuit pour générer la formation de grains de cuivre polycristallin. Puis cette couche est polie chimiquement (CMP) jusqu'à une épaisseur d'environ un demi-micron ^[Gaillard2006]. A l'échelle nanométrique ce matériau présente une anisotropie car il est constitué de grains ayant des orientations cristallographiques orientées de façon aléatoire (grains équiaxes) ^[Gartland1972]. Ainsi pour chaque monocristal, le module d'Young va varier suivant son orientation, entre 67 GPa (direction $\langle 100 \rangle$) à 192 GPa (direction $\langle 111 \rangle$). Notre montage étant sensible aux variations du module élastique, nous avons donc cherché à observer des changements au niveau des fréquences résonance entre chaque grain de cuivre.

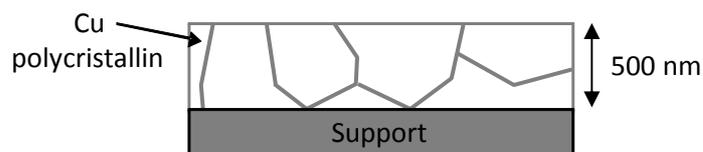


Fig. 3.26 : Structure de l'échantillon de cuivre polycristallin.

Si nous observons cet échantillon au microscope à force atomique, nous mettons en évidence tout d'abord le caractère polycristallin du film de cuivre grâce aux joints de grains qui ressortent topographiquement malgré le procédé de polissage CMP. La taille moyenne des grains de cuivre varie autour du micromètre, tandis que la rugosité (RMS) de la zone sondée reste assez faible avec une valeur estimée à 4,4 nm (fig. 3.27).

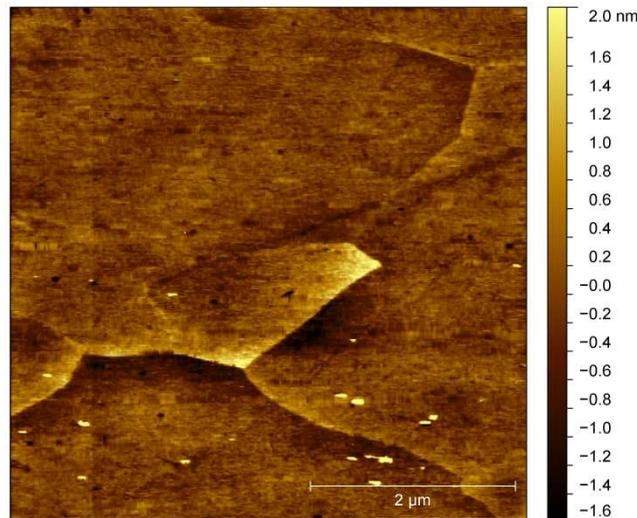


Fig. 3.27 : Image topographique tapping $5 \times 5 \mu\text{m}$ de l'échantillon de cuivre par AFM

Pour identifier l'orientation de chaque grain, il faudrait faire appel à d'autres méthodes de caractérisation comme par exemple l'EBSD (Electron Backscattered Diffraction) ou le KFM (Kelvin Force Microscopy), issu lui aussi du microscope à force atomique [Nonnenmacher2009]. Pour notre part, nous allons expérimenter notre montage CR-AFM en essayant de distinguer le module d'Young spécifique à chaque orientation de grains. Pour cela, nous employons un levier en dièdre constitué entièrement en diamant synthétique, le modèle ND-CTIT1 de NadiaProbes dont les caractéristiques sont selon le fournisseur et nos mesures MEB : une raideur d'environ 1.28 N/m, une longueur de 195 μm , une largeur en bout de poutre de 31 μm , et une épaisseur de 1 μm .

L'échantillon étant conducteur, il nous était impossible d'utiliser notre système électrostatique pour générer les ondes acoustiques, c'est pourquoi nous avons utilisé pour ces mesures le système d'excitation piézoélectrique. Comme nous l'avons présenté dans le chapitre précédent, les spectres ont été réalisés à l'aide du montage CR-AFM basé sur notre détecteur synchrone tandis que les images ont été obtenues avec notre montage utilisant le système d'acquisition rapide DAQmx (National Instrument).

III.4.1. Spectrométrie CR-AFM

Les mesures que nous avons effectuées en spectrométrie CR-AFM visent à optimiser l'acquisition de cartographie les plus précises possible tout en gardant un temps de mesure raisonnable. Pour cela, il nous faut optimiser les paramètres contrôlant cette acquisition, et en premier lieu, déterminer la position en fréquence du premier pic de résonance en contact ainsi que ses fluctuations moyennes.

La première mesure est un spectre libre sur toute la gamme de fréquence exploitable pour l'expérience (fig. 3.28). Puis nous nous sommes concentrés sur la position du premier pic de résonance (entre 20kHz et 60kHz). Le rapport signal sur bruit ($r = 27$) et le facteur de qualité ($Q = 32$) de ce spectre sont plutôt bons pour un spectre libre obtenu avec un montage utilisant un transducteur piézoélectrique. Puis nous réalisons l'approche sans vibration pour nous placer en contact avec l'échantillon afin de réaliser un spectre en contact sur une gamme de fréquences allant de 1kHz à 2MHz. Les autres paramètres sont conservés. Nous constatons que le rapport signal sur bruit ($r = 12$) ainsi que le facteur de qualité ($Q = 12$) du premier pic se dégrade.

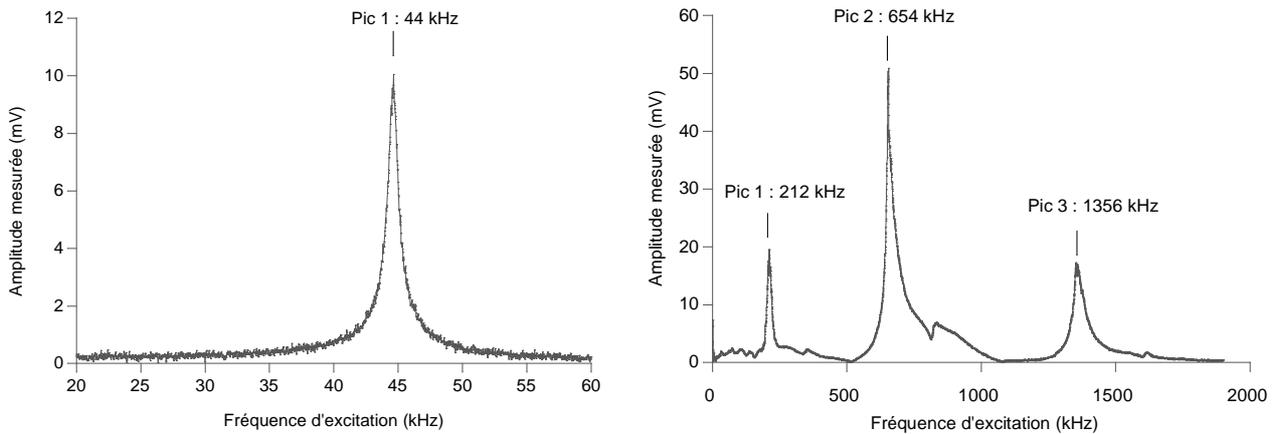


Fig. 3.28 : Spectres réalisés avec la pointe diamant ND-CTIT1 avec le montage piézoélectrique CR-AFM. A gauche, le spectre libre mesuré avant le premier contact avec l'échantillon de cuivre. A droite, le spectre en contact avec l'échantillon avec une déflexion imposée de 30 nm et une excitation piézoélectrique de 3 V.

En répétant ces acquisitions en contact, nous avons pu affiner le domaine de fréquence où se trouvait le premier mode de résonance, ce qui nous autorise à procéder à une cartographie en contact résonant.

III.4.2. Cartographie

Plusieurs séries de cartographies ont été réalisées à l'aide du montage DAQ que nous avons vu dans le chapitre II. En moyenne, la durée pour scanner l'ensemble d'une zone est d'une vingtaine de minutes à raison d'un spectre par pixel. Nous présentons ici l'image topographique classique que nous obtenons grâce à système AFM après traitement par le logiciel Gwydion (fig. 3.29). La zone analysée couvre une surface de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$. Celle-ci présente une surface assez hétérogène avec des excroissances d'une dizaine de nanomètres de hauteur réparties sur toute la zone analysée. Nous nous sommes attachés ensuite à exploiter l'image CR-AFM de cette surface. Pour cela notre système d'acquisition a enregistré la réponse en fréquence à une rampe en fréquence de 200 à 220 kHz par pas de 1 kHz, en gardant tous les autres paramètres constants. Puis après traitements permettant de repérer la position du premier mode de résonance, nous avons reconstruit une image représentant les variations de fréquence de cette résonance (fig. 3.29).

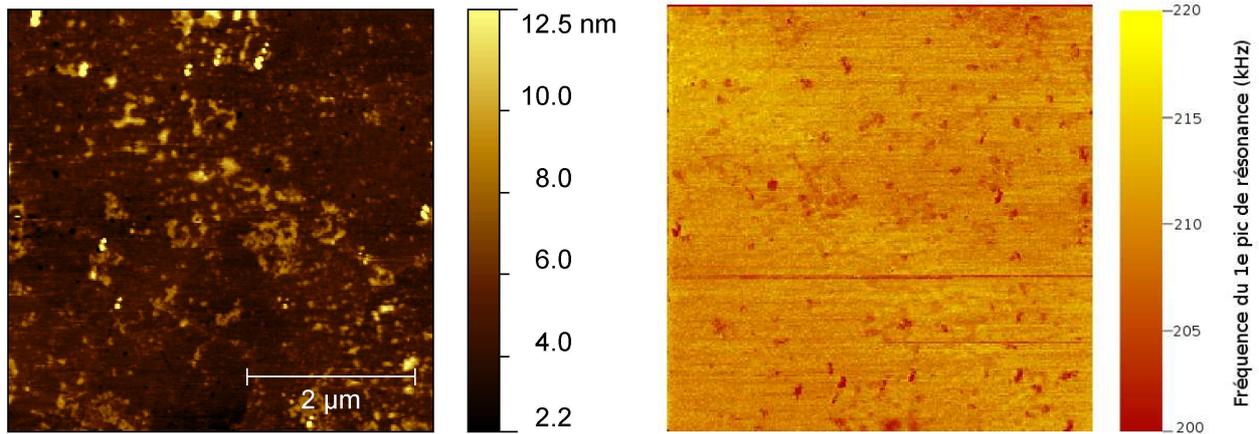


Fig. 3.29 : Images $5 \times 5 \mu\text{m}$ du film de cuivre polycristallin. Durée d'acquisition ≈ 20 minutes pour 256×256 pixels. A gauche, l'image AFM. A droite, l'image CR - AFM.

Par rapport à l'image topographique, nous n'avons ici aucune information supplémentaire. Nous n'observons aucun contraste (variation marquée de la fréquence de résonance) assimilable à une variation de rigidité. Plusieurs hypothèses ont été avancées pour expliquer ce résultat : la première considère que la couche d'oxyde qui s'est développé sur le cuivre empêche notre système de détecter les variations de module élastique dans la couche de cuivre sous-jacente. La seconde plus probable envisage simplement que les grains de cuivre déposés sur la couche de silice présentent une texture : ils ont tous la même orientation (111), d'où cette absence de contraste (fig. 3.30).

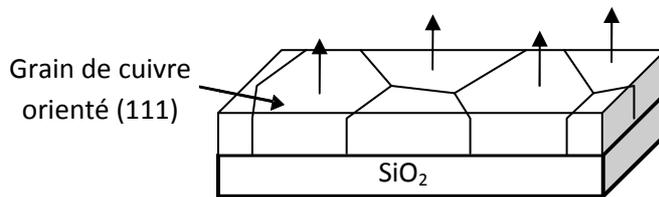


Fig. 3.30 : Orientation (111) des grains de cuivre sur la silice.

III.5. Caractérisation d'interconnexions Cuivre/Silice

Utilisées depuis plus de dix ans par l'industrie du semiconducteur, les interconnexions cuivre deviennent de plus en plus petites au fur et à mesure des avancées de la miniaturisation [Andricacos2010]. Pour poursuivre cette course, il a fallu limiter les phénomènes d'électromigration du cuivre et de formation de cavité sous contraintes mécaniques [Hauschildt2006], ainsi que les mécanismes de défaillance [Zhang2007]. Dans ce but, des études ont été menées afin de caractériser l'état de structure des lignes conductrices dans les architectures Damascène et y apporter des améliorations. Le CR-AFM représente une alternative intéressante pour ces recherches, en permettant d'accéder avec la résolution nanométrique nécessaire aux propriétés mécaniques locales.

III.5.1. Interconnexions non-capées

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à un échantillon d'étude dépourvu de la couche d'encapsulation qui surmonte généralement ces empilements (d'où la dénomination non-capée). Les lignes conductrices et le diélectrique isolant apparaissent donc en surface (fig. 3.31) :

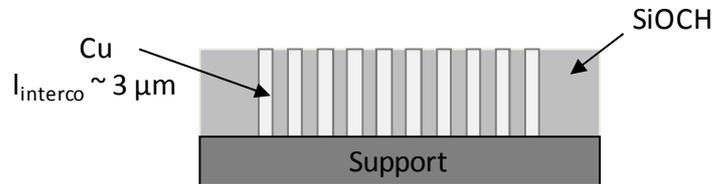


Fig. 3.31 : Structure de l'échantillon composé d'interconnexions cuivre isolées par de la silice nanoporeuse.

Il s'agit d'un échantillon nommé « peigne serpentin » de par son architecture conçue pour des mesures électriques (fig.3.32 gauche). Ces zones sont dédiées spécifiquement au test des interconnexions afin de vérifier tout problème dans cette étape du processus de fabrication des circuits intégrés. Gravé sur un wafer de 300 nm, elles permettent de détecter des défauts pouvant entraver la fiabilité des puces manufacturées et les enverraient au rebut ^[Rigaud2008]. Il est élaboré suivant les procédés de fabrication décrits pour les architectures damascènes ^[Andricacos2010]. Sa structure est composée d'une alternance de lignes de cuivre et de silice à basse permittivité (low-k) sur un substrat de silicium comme l'illustre l'image topographique (fig. 3.32 droite), que nous avons obtenue par AFM.

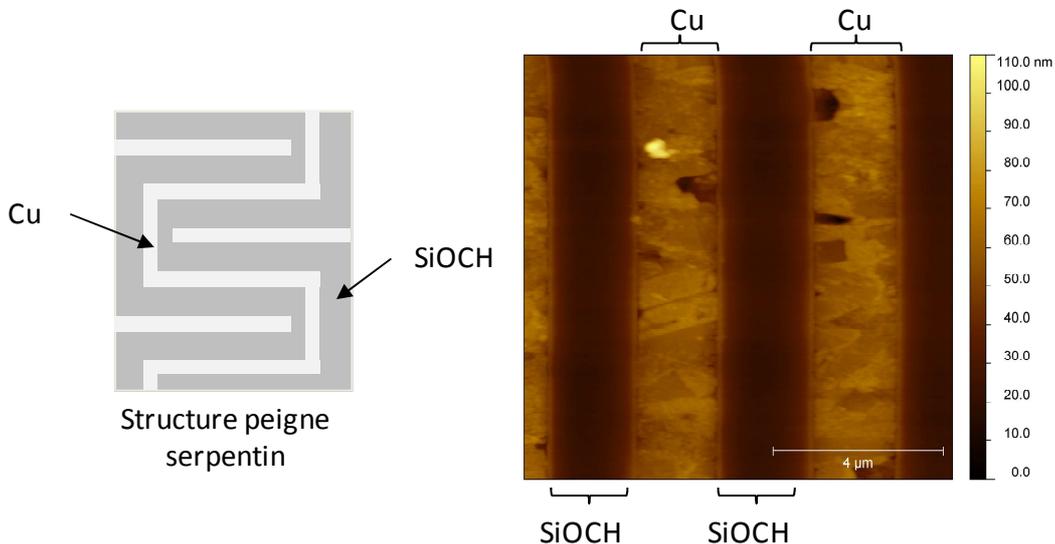


Fig. 3.32 : A gauche, schéma de la structure peigne serpentin. A droite, image topographique 5×5 µm de l'échantillon composé d'interconnexion cuivre-silice par AFM.

Les lignes de cuivre apparaissent distinctement avec leur structure polycristalline granuleuse (rugosité de 1,1 nm) et tandis que la silice low-k demeure plane avec une rugosité de 0,4 nm. La différence de hauteur relevée par l'AFM entre les lignes semble indiquer qu'une couche d'oxyde s'est développée sur le cuivre qui du coup se situe 50nm plus haut que la silice.

Comme nous l'avons montré précédemment, le module élastique du cuivre polycristallin est de 110 GPa [Simons1971], tandis que celui de la silice low-k est d'environ 4,6 GPa [Urbanowicz2010] soit une différence $\frac{\Delta E}{E_{Cu}}$ d'environ 96%, ce qui va engendrer un décalage significatif des fréquences de résonance par microscopie AFM à contact résonant.

III.5.1.1. Spectrométrie CR-AFM

Cet échantillon a été l'un des premiers à être étudié dans ce projet, c'est pourquoi nous avons employé un cantilever tout silicium MPP33100 (VeecoProbes) donc sujet à l'usure de la pointe. Les caractéristiques nominales de ce levier sont les suivantes : une longueur de 450 μm , une largeur de 40 μm , une épaisseur de 7 μm pour une constante de raideur d'environ 5 N/m. Nous avons utilisé notre montage électrostatique avec une tension d'excitation de 3V, puis nous avons réalisé un spectre libre puis un spectre en contact (fig. 3.33).

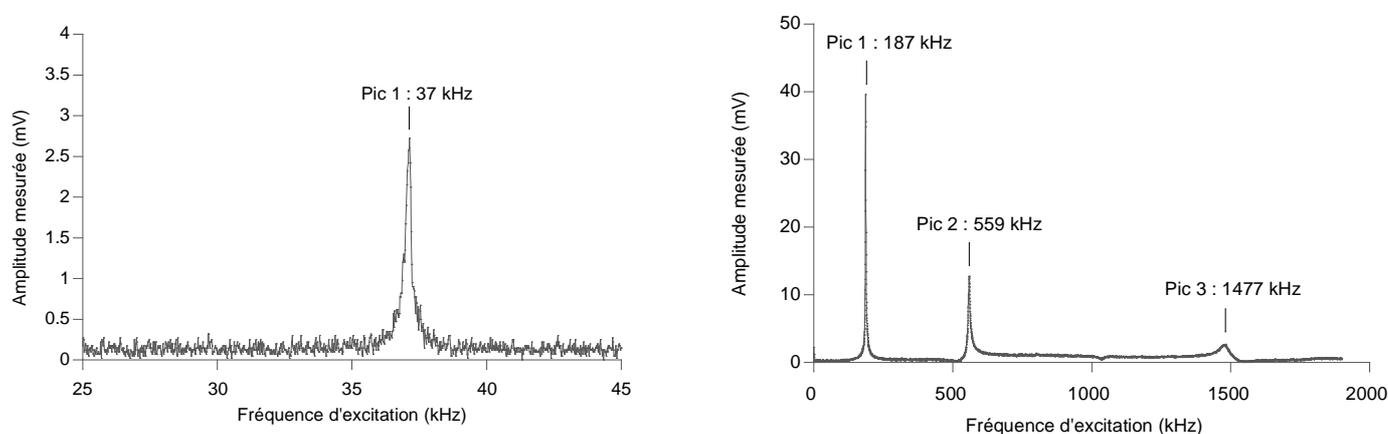


Fig. 3.33 : Spectres réalisés avec la pointe silicium MPP 31100 (VeecoProbes) avec notre montage piézoélectrique CR-AFM. A gauche, le spectre libre mesuré avant le premier contact avec l'échantillon. A droite, le spectre en contact avec l'échantillon avec une déflexion imposée de 30 nm et une excitation piézoélectrique de 15 V.

L'analyse du spectre libre a fait apparaître un rapport signal sur bruit un peu faible ($r_{\text{libre}} = 17$), avec malgré tout un très bon facteur de qualité ($Q_{\text{libre}} = 119$). Nous avons donc mis en place notre dispositif d'amplification linéaire afin de porter l'amplitude du signal d'excitation à 15 V lors de nos acquisitions en contact. Le spectre en contact que nous avons obtenu présente alors un bien meilleur rapport signal sur bruit ($r_{\text{contact}} = 38$) tout en gardant un facteur de qualité satisfaisant ($Q_{\text{contact}} = 74$). obtenu pour les deux acquisitions est très bon, respectivement 119 en libre et 74 en contact, tout comme le rapport signal sur bruit ($r_{\text{libre}} = 17$ et $r_{\text{contact}} = 38$). Une fois ces optimisations accomplies, nous avons effectué une comparaison entre le spectre obtenu sur les interconnexions cuivre et celui recueilli en contact avec la silice (fig. 3.34).

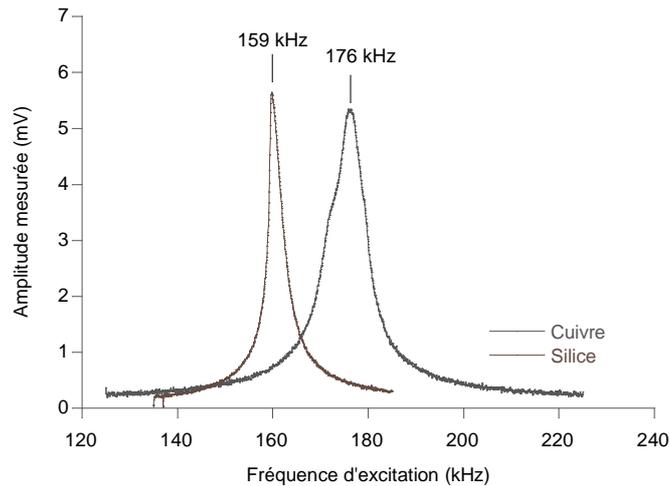


Fig. 3.34 : Position du premier mode de résonance lors du contact avec le cuivre et la silice.

Un décalage en fréquence d'environ 20 kHz est constaté entre la silice et le cuivre pour le premier mode de résonance, ce qui rejoint les considérations que nous avons déjà faites précédemment. La cartographie CR-AFM est donc à même de détecter cette variation, et de fournir des résultats intéressants.

III.5.1.2. Cartographie

La première cartographie que nous réalisons est présentée à la figure 3.35. Une surface de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ a ainsi été scannée sur 256×256 pixels avec une vitesse de balayage de $2 \mu\text{m/s}$ et donc une durée totale d'acquisition d'environ 20 min. Le domaine en fréquence balayé varie entre 140 et 190 kHz pour chaque point, avec un pas de 200 Hz. Ceci représente un bon compromis qualité/temps avec près de plusieurs milliards de valeurs enregistrées pour construire une image en mode contact résonant. Ceci permet de suivre l'évolution de position du premier pic de résonance et donc par conséquence celui du module élastique et de l'aire de contact (fig. 3.35).

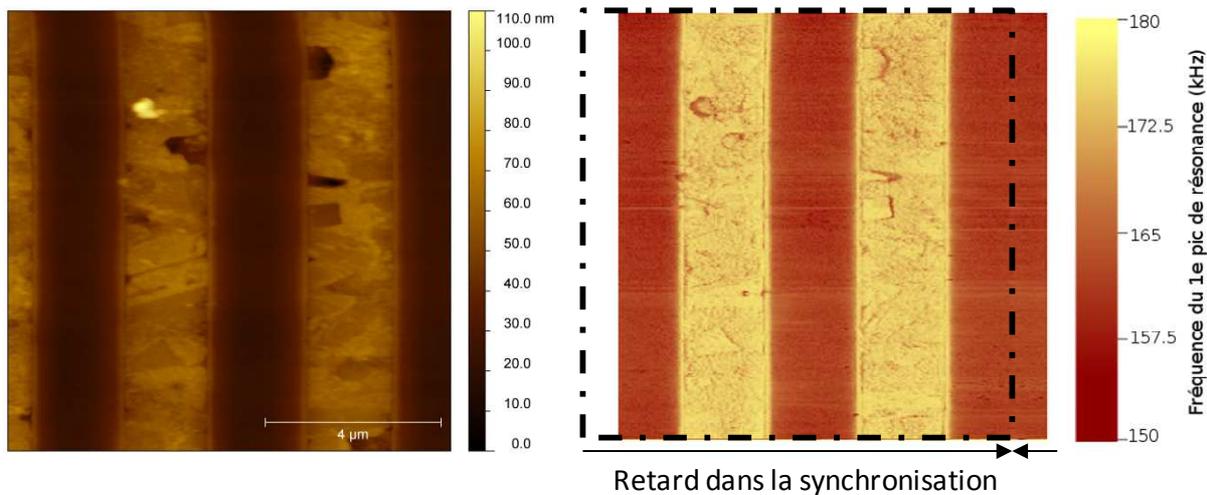


Fig. 3.35 : Images $5 \times 5 \mu\text{m}$ de l'échantillon d'interconnexions cuivre – silice. Durée d'acquisition ≈ 20 minutes pour 256×256 pixels. Déflexion appliquée d'environ 30 nm. À gauche, l'image AFM. À droite, l'image CR – AFM.

Par rapport à l'image topographique classique de l'AFM (figure de gauche), la cartographie CR-AFM met en évidence une différence de fréquence très nette entre la silice et le cuivre. Il n'y a pratiquement aucun contraste sur la silice massive, et la position du premier mode de résonance est peu dispersée tandis que le cuivre polycristallin fait apparaître nettement ses joints de grains grâce à la sensibilité du microscope CR-AFM à toute variation de l'aire de contact ^[Stan2010]. Le décalage en fréquence important entre la silice et le cuivre est lui clairement attribuable à l'écart très important entre les modules élastiques des deux matériaux.

III.5.1.3. Remarque instrumentation

Nous pouvons noter que l'image CR-AFM présente un décalage qui ôte le bord gauche de l'image et duplique de manière symétrique le bord droit (pointillé sur la figure 3.35 de droite). Il s'agit en fait d'une des limitations de ce système d'acquisition qui se synchronise via notre logiciel de contrôle sous Labview avec l'AFM. Le microscope gère le mouvement de la pointe, et scanne en effectuant des allers-retours, ligne par ligne, sur la surface. Notre appareil d'acquisition CR-AFM est programmé pour se déclencher en début de ligne, mais un temps de latence persiste, et donc va démarrer son enregistrement en retard. Le système enregistre 90 % de chaque ligne lors du mouvement aller du scanner et les 10 % restant lors du retour, d'où une surface symétrique qui apparaît sur le bord droit des images CR-AFM.

Pour résoudre au moins partiellement ce problème, nous avons développé un montage qui remplace complètement le système de déplacement de l'AFM en introduisant dans notre montage une table piézoélectrique P733 (Physic Instrumente), assemblage que nous avons décrit dans notre second chapitre dans sa version complète. La table est capable d'éliminer la plupart des problèmes de dérive, et peut se positionner avec une précision nanométrique point par point. A cette occasion, nous avons bénéficié de la disponibilité de l'une de nos pointes diamant, la ND-CTI-T1 (NadiaProbes de Advanced Diamond Technologie) ^[Technologies2010] dont les tests ont situé la première fréquence de résonance à 208 kHz (rapport signal sur bruit de 16 et un facteur qualité à 26).

Une nouvelle acquisition a pu être ainsi réalisée, avec une résolution de 512×512 pixels sur une surface de $1 \times 1 \mu\text{m}^2$, avec pour chaque point un spectre en fréquences centré autour du premier pic entre 180 et 220 kHz et un pas de 200 kHz (fig 3.36).

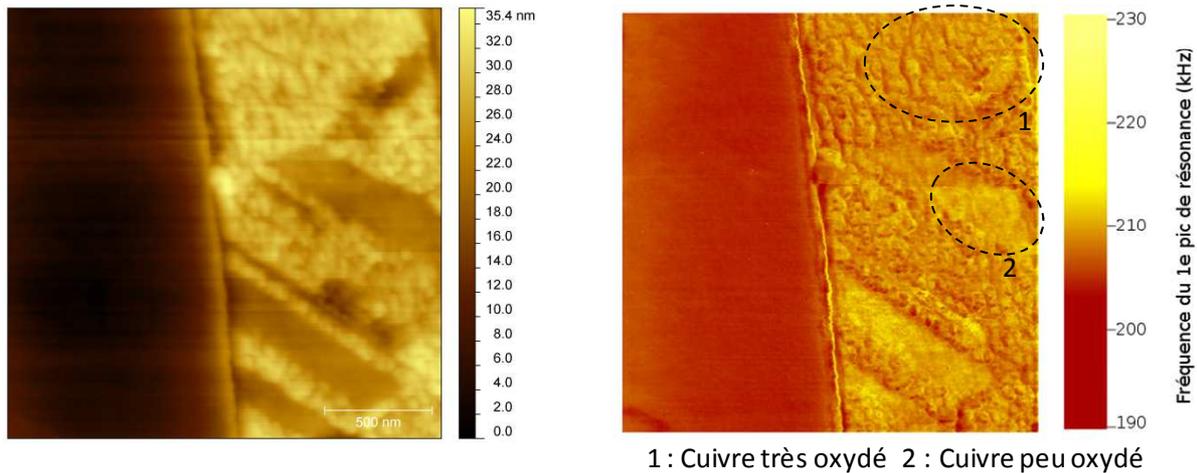


Fig. 3.36 : Images $1 \times 1 \mu\text{m}$ de l'échantillon d'interconnexions cuivre – silice. Durée d'acquisition ≈ 2 heures pour 512×512 pixels. Déflexion appliquée d'environ 90 nm. A gauche, l'image AFM. A droite, l'image CR-AFM.

Avec ce nouveau montage, nous obtenons une cartographie CR-AFM d'une très grande qualité. Comparé à l'image topographique, de nombreux détails apparaissent sur le cuivre polycristallin, et dans le même temps nous enregistrons pour chaque pixel, la position du premier pic de résonance, ce qui peut ensuite être exploité pour remonter au module élastique de chaque matériau dans cette structure.

III.5.2. Structures d'interconnexions Cuivre/Silice low-k capées par un film de SiCN

Cet échantillon élaboré par ST-Microelectronics, correspond à l'échantillon précédent après une étape de dépôt. Désormais une couche protectrice de SiCN a été déposée sur la couche où se situent les interconnexions cuivre et la silice à basse permittivité (fig. 3.37).

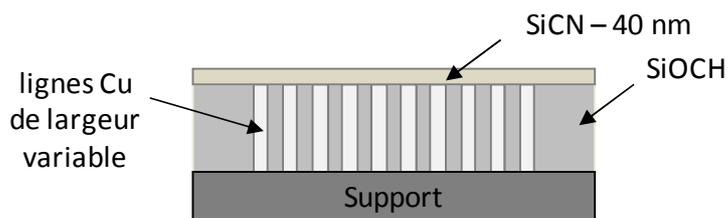


Fig. 3.37 : Structure l'échantillon composé d'interconnexions cuivre isolées par de la silice nanoporeuse. L'ensemble a été recouvert par une couche de SiCN protectrice.

La zone que nous analysons à l'aide de notre microscope est structuré autour de lignes conductrices en cuivre formant un serpent, isolé par un diélectrique à base de silice nanoporeuse et protégé par une couche de SiCN de 40 nm. Les analyses rapides que nous avons faites en AFM nous indique que la rugosité en surface est assez faible (0,7 nm) et qu'un contraste régulier topographique apparait (fig. 3.39) sur lequel nous reviendrons plus loin.

III.5.2.1. Spectrométrie CR-AFM

Nous avons utilisé pour cette étude les deux leviers de l'étude précédente, cependant nous ne présenterons ici que les résultats obtenus avec le MPP 33100 en silicium car c'est lui qui nous a fourni les résultats les plus contrastés. Nous avons ainsi enregistré des spectres en libre et en contact afin de nous permettre d'optimiser les acquisitions cartographiques. Nous avons employé notre montage électrostatique avec une tension d'excitation de 3V pour l'ensemble des mesures sur cette structure. La figure présente le spectre libre autour de la première fréquence de résonance du levier, puis ce même mode lorsque le contact est imposé avec une force de 20 nN (fig. 3.38). Le rapport signal sur bruit évolue entre 30 et 23, tandis que le facteur de qualité diminue de 116 à 43 ce qui reste correct.

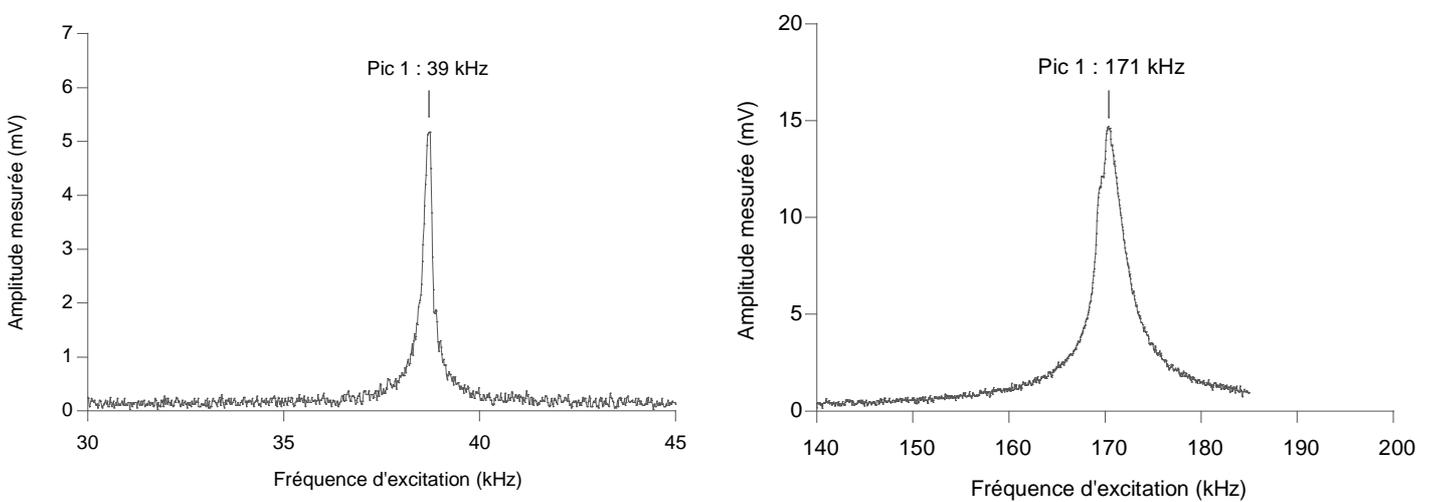


Fig. 3.38 : Spectres réalisés avec la pointe silicium MPP 31100 (VeecoProbes) avec notre montage piézoélectrique CR-AFM. A gauche, le spectre libre mesuré avant le premier contact avec l'échantillon. A droite, le spectre en contact avec l'échantillon avec une déflexion imposée de 20 nm et une excitation piézoélectrique de 15 V.

III.5.2.2. Cartographie

Lorsque nous enregistrons les cartographies en mode contact résonant, nous constatons rapidement que seul un contraste topographique se retrouve sur l'image CR-AFM (fig. 3.39). Il semble en effet que la couche de SiCN empêche d'observer un contraste entre le cuivre des lignes d'interconnexion et le diélectrique à base de silice nanoporeuse. La très forte dureté du SiCN ($H = 33$ GPa) ainsi que son module d'Young important d'environ 200 GPa ^{[Jedrzejewski2004] [Chen1999]} le place dans la situation que nous avons décrite précédemment d'un film rigide sur un substrat mou. Notre microscope apparaît dans ce cas incapable de sonder au-delà de la première couche.

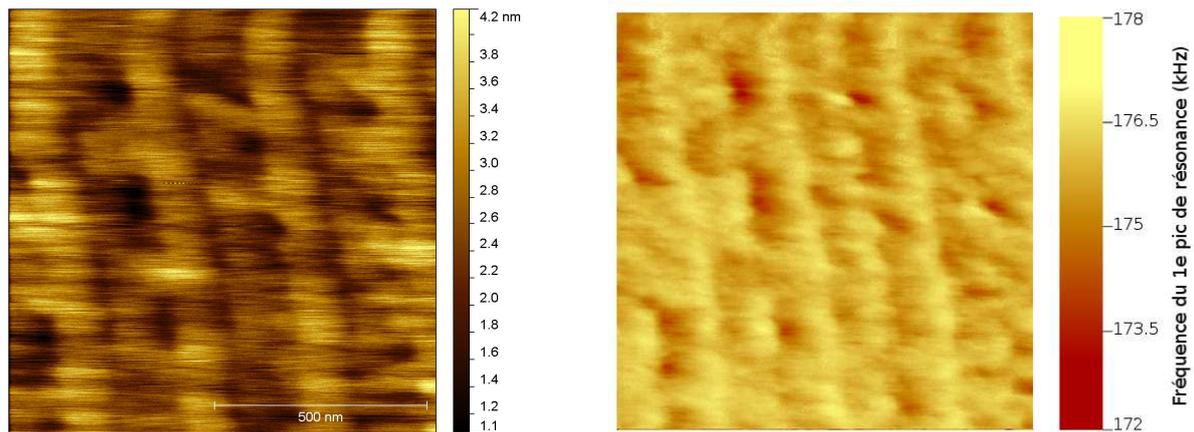


Fig. 3.39 : Images $1 \times 1 \mu\text{m}$ de l'échantillon test. Durée d'acquisition ≈ 40 minutes pour 512×512 pixels. Déflexion appliquée d'environ 90 nm. A gauche, l'image AFM. A droite, l'image CR - AFM.

Avec un balayage limité à un domaine situé entre 160 et 180 kHz par pas de 200 Hz, la cartographie que nous présentons se termine en moins de 45 min. L'image obtenue ne nous montre pas plus de détails qu'en mode topographique. Seules les structures ondulées semblent avoir une influence. Le dépôt de SiCN n'est ici pas à mettre en cause. Celui-ci a été déposé de manière uniforme sur toute la surface. Il s'agit en fait de ce que nous appelons le phénomène de « dishing » ^[Doering2007] qui intervient juste avant le dépôt de SiCN (fig.3.40).

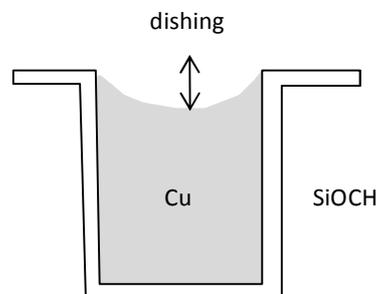


Fig. 3.40 : Illustration du phénomène de dishing

A cette étape du procédé de fabrication, un polissage est nécessaire pour enlever le cuivre en surplus et uniformiser la surface. Cependant, l'érosion du cuivre est alors supérieure à celle de la silice creusant d'avantage, d'où cette topographie particulière qui se retrouve sur l'échantillon final.

III.6. Résumé du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons utilisé notre montage CR-AFM pour caractériser de multiples échantillons allant d'empilements modèles à des films de silice nanoporeuse et des structures damascènes d'interconnexions cuivre. A chaque étude, nous nous sommes placés dans les meilleures conditions dont nous disposions au moment de l'expérience. Certaines n'ont pu donc bénéficier de toutes les améliorations que nous avons apportées à notre montage au cours de ces 3 années.

Nous avons apporté un soin particulier à nos mesures sur les films de silices que nous présentons au début de cette partie, car ceux-ci vont nous servir de référence dans le chapitre suivant qui s'intéresse aux modèles permettant d'exploiter les résultats bruts du CR-AFM. Les courbes que nous avons produites à cette occasion, nous démontrent déjà la capacité à discriminer les différents films minces en fonction de leur épaisseur avec une sensibilité à ce niveau de quelques dizaines de nanomètres. Cette précision est l'un des avantages de la technique en mode contact résonant, puisqu'elle est donc capable de fournir des caractérisations à des forces et à des échelles bien plus faibles que d'autres, comme la nanoindentation pour n'en citer qu'une.

En outre, nous sommes capables de profiter des capacités de l'AFM pour scanner la surface de divers échantillons et ainsi obtenir des images en résonance de contact avec, lorsque cela a été possible, la capacité de relever sur chaque point composant la cartographie, la position en fréquence du premier pic de résonance afin de permettre ultérieurement une exploitation via des modélisations et ainsi une caractérisation du module élastique apparent.

A l'occasion de ces mesures, nous avons enfin pu montrer la capacité du CR-AFM à sonder les défauts présents sous la surface des échantillons, en particulier des cavités présentes dans les silices poreuses. Comme toute technique, celle-ci présente des limitations, et pour notre part, il semble que la présence de films rigides sur des empilements plus souples constitue un écueil pour notre montage. Sa sensibilité au substrat sous jacent est alors diminuée au point qu'il détecte plus que les variations topographiques comme l'illustre notre étude sur les interconnexions cuivre.

Au final, nous pouvons déjà dire au vu de ces résultats, que le microscope à force atomique à résonance de contact s'avère un mode capable d'apporter des informations qualitatives voire quantitatives valables avec une précision submicrométrique pour peu que celui-ci soit placé dans des conditions appropriées.

Maintenant, nous allons porter nos investigations sur les modèles que nous pouvons utiliser ou développer afin de traiter les données brutes fournies par l'instrument et être capable d'en extraire les propriétés mécaniques des matériaux sondés.

Chapitre IV : Quelques résultats expérimentaux

Le chapitre précédent présentait les résultats expérimentaux que nous avons obtenus grâce à notre microscope AFM à résonance de contact et les commentait de façon qualitative. Nous cherchons donc dans cette partie à établir une correspondance quantitative entre les fréquences de résonance du système poutre AFM - échantillon et les propriétés mécaniques locales des matériaux que nous étudions. Pour atteindre cet objectif, il faut modéliser le contact entre la pointe et la surface de l'échantillon, puis coupler ces modèles avec une modélisation de l'ensemble du levier et enfin confronter les résultats obtenus expérimentalement.

Il s'avère que cette démarche est loin d'être évidente, et c'est pourquoi la majorité des articles publiés sur le sujet utilisent des méthodes de calcul en se basant sur des échantillons de référence. Cette approche reste correcte tant que les mesures demeurent à aire de contact constante et prennent comme référence des matériaux aux modules élastiques proches de ceux qui sont testés. Dans notre cas, cela rend difficile l'exploitation de nos résultats sur nos films minces réalisés à force décroissante.

Notre objectif dans cette partie est de reproduire numériquement nos résultats expérimentaux (en particulier ceux obtenus sur les films de silice), et d'en tirer des informations au niveau des propriétés mécaniques locales. Pour cela nous allons reprendre et développer différents modèles qui tiennent compte d'un nombre plus ou moins important de paramètres expérimentaux.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons au modèle unidimensionnel le plus courant. Nous partirons de l'importante étude bibliographique dont il a fait l'objet pour aboutir à son application sur quelques uns de nos résultats expérimentaux. Nous montrerons l'extrême sensibilité du modèle aux conditions d'optimisation et la difficulté d'extraire des données quantitatives.

Puis dans un second temps, nous nous consacrerons à un autre modèle analytique plus complet (plus grand nombre de paramètres expérimentaux) ; celui-ci prend mieux en compte l'interaction pointe échantillon. A cette occasion, nous présenterons la démarche d'optimisation que nous avons mise en place, et son utilisation sur une partie des données expérimentales que nous avons.

Enfin, nous exposerons nos différentes avancées sur le sujet dans le domaine de la simulation numérique sur le logiciel ABAQUS. Le développement d'une modélisation complète représente un travail qui devra être poursuivi, cependant, nous avons pu établir plusieurs résultats que nous commenterons.

IV.1. Modélisation analytique simple du système poutre - échantillon

Dans le premier chapitre, nous avons déjà présenté plusieurs modèles analytiques simulant le contact entre un cantilever et une surface avec différents degrés de complexité par modèle. Plus le nombre de paramètres pris en compte est important, plus les procédures d'optimisation sont longues. C'est pourquoi nous allons tout d'abord nous intéresser au modèle le plus simple et le plus répandu pour l'exploitation des résultats obtenus en microscopie CR – AFM ^{[Stan2006] [Hurley2007]}.

IV.1.1. Description du modèle

Les premiers modèles de levier que nous avons vus (cf. chapitre 1.3) considéraient la pointe de la poutre comme étant située exactement à son extrémité. Rapidement, il est apparu ^[Rabe1996] que cette approche n'était pas appropriée en raison de l'absence de prise en compte de la position de la pointe. Celle-ci constitue pourtant un paramètre crucial pour la détermination des fréquences des modes de résonance en contact.

Il faut pour cela modifier les conditions aux limites de l'équation du mouvement du levier encastré (figure 4.1) et partitionner en deux ce dernier avec une partie allant de l'extrémité encastrée jusqu'à l'emplacement de la pointe (L_1) et l'autre de cette position au bout libre de la poutre (L_2). La longueur totale du cantilever a pour valeur L ^[Rabe2000].

Ce régime élastique reste valable à la condition que les amplitudes de vibrations demeurent faibles, que les courbes de résonance demeurent symétriques, et que les forces d'interaction entre la pointe et l'échantillon puissent être assimilées à un ressort vertical de raideur k^* . De plus toute force latérale et les amortissements sont ici négligés ^[Loubet1995].

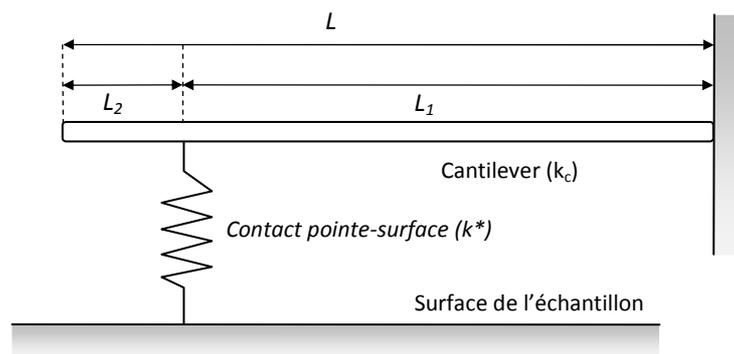


Fig. 4.1 : Modèle d'une poutre encastrée d'un côté et en contact élastique de l'autre.

En tenant compte de toutes ces contraintes, il est alors possible d'écrire la nouvelle équation caractéristique de ce modèle ^[Rabe1996] :

$$\begin{aligned}
 & [\sinh \alpha_n^{cont} L_1 \cos \alpha_n^{cont} L_1 - \sin \alpha_n^{cont} L_1 \cosh \alpha_n^{cont} L_1] \times (1 + \cos \alpha_n^{cont} L_2 \cosh \alpha_n^{cont} L_2) \\
 & + [\cosh \alpha_n^{cont} L_2 \sin \alpha_n^{cont} L_2 - \sinh \alpha_n^{cont} L_2 \cos \alpha_n^{cont} L_2] \\
 & \times (1 - \cos \alpha_n^{cont} L_1 \cosh \alpha_n^{cont} L_1) \\
 & = \frac{2 k_c}{3 k^*} (\alpha_n^{cont} L_1)^3 (1 + \cos \alpha_n^{cont} L \cosh \alpha_n^{cont} L)
 \end{aligned} \tag{4.1}$$

Avec α_n^{cont} le nombre d'ondes en contact (qui dépend de la fréquence de vibration du levier), k_c la constante de raideur du levier, et k^* celle du contact (normal). A partir de cette équation de dispersion, nous sommes capables de relier les fréquences des modes de vibration à la raideur du contact pointe-échantillon de la même façon que pour le modèle présenté dans le chapitre 1.

Ainsi, il faut tout d'abord calculer les différentes racines $\alpha_n^{libre} L$ à partir de l'équation de dispersion du levier libre.

$$1 + \cos \alpha_n^{libre} L \cosh \alpha_n^{libre} L = 0 \tag{4.2}$$

Puis en reprenant les valeurs des fréquences des pics de résonance établies expérimentalement, nous pouvons relier α_n^{libre} au nombre d'onde α_n^{cont} :

$$\alpha_n^{cont} = \alpha_n^{libre} \sqrt{\frac{f_n^{cont}}{f_n^{libre}}} \tag{4.3}$$

Au final, lorsque nous injectons ceci dans l'équation nous obtenons un rapport k^*/k_c , pour chaque mode de résonance relevé par notre montage CR – AFM, ce qui dans notre cas concerne les deux premiers modes de résonances.

Ces formules ont été implémentées dans un script Scilab (Consortium Scilab (DIGITEO), 2009), ce qui nous a permis d'établir des résultats préliminaires. Il apparut à l'analyse de ceux-ci qu'une différence importante existait entre le rapport k^*/k_c obtenu à partir du premier mode de résonance et le deuxième.

L'influence des paramètres géométriques (longueurs L, L_1) que nous injectons est décisive à ce niveau, et la moindre variation de ceux-ci modifie considérablement les solutions obtenues comme l'illustre la figure 4.2 retraçant l'évolution du rapport k^*/k_c en fonction de la position relative de la pointe. Aussi bien au niveau de l'allure que des positions finales, une différence même minime dans la mesure de la pointe entraîne des fluctuations importantes pour le résultat final.

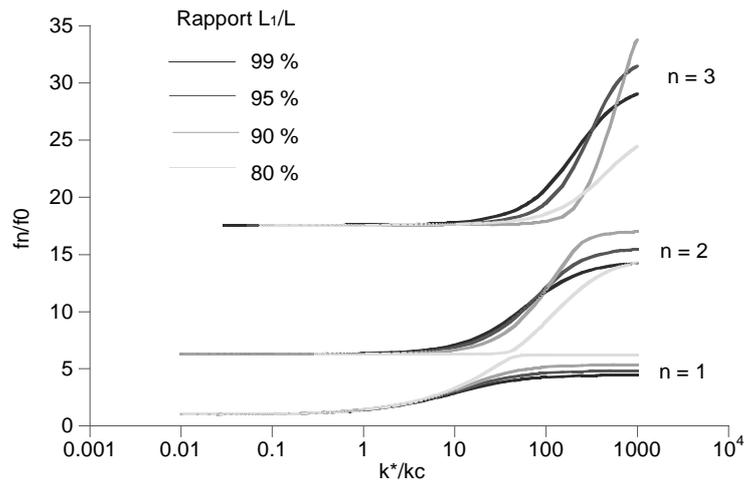


Fig. 4.2 : Evolution du rapport des fréquences de résonance en fonction de k^*/k_c pour le modèle utilisé pour différentes positions de la pointe sur la longueur de la poutre (en % de la longueur totale).

IV.1.2. Mise en place et méthodologie

Pour déterminer le module élastique des matériaux sondés à partir des fréquences de résonance relevées à l'aide du mode CR-AFM, il nous faut passer par deux étapes. Dans la première, nous nous servons du modèle pour extraire des fréquences de résonance les rapports k^*/k_c . Cette extraction se fait par optimisation de L et L_1 . Ces 2 grandeurs étant fixées nous pouvons passer à l'étape 2 qui nous permettra de déterminer à partir de ce rapport, le module élastique local E .

IV.1.2.1. Etape 1 : Extraction du k^*/k_c

Nous devons donc développer un algorithme d'optimisation afin de nous permettre d'égaliser les valeurs des rapports k^*/k_c pour les deux modes de résonance que nous relevons expérimentalement. Pour cela nous avons programmé un ensemble de VI Labview (National Instruments) qui va minimiser l'écart entre les rapports k^*/k_c obtenus en modifiant les paramètres géométrique injecté. Cette démarche se justifie physiquement car les mesures que nous avons relevées sur nos leviers le sont pour des poutres non-rectangulaires. Pour la plupart, leur extrémité se termine par une portion triangulaire à la base de laquelle se trouve la pointe (fig.4.3).

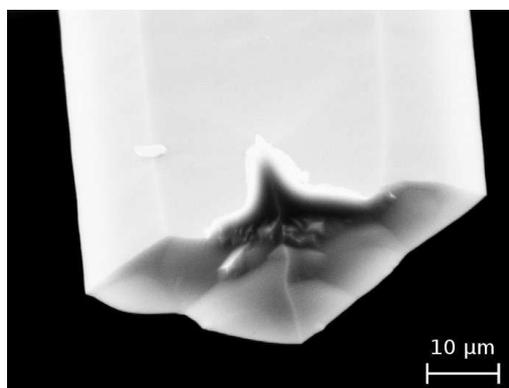


Fig. 4.3 : Image MEB d'un levier en silicium standard (MPP 33100 VeecoProbes). L'extrémité triangulaire de la poutre est ici visible ainsi que la section en forme de trapèze isocèle du levier

Assimiler ces leviers à des poutres unidimensionnelles nécessite une adaptation que notre algorithme prend en compte ; raison pour laquelle il a été divisé en deux parties indépendantes.

Dans un premier temps, nous cherchons à déterminer une longueur L cohérente avec les fréquences des modes de résonance observées dans le mode libre. Pour cela nous avons pris comme point de départ la relation que nous avons considérée pour une poutre encastree libre ^[Rabe2006] :

$$f_n^{libre} = \frac{(\alpha_n^{libre} L)^2}{2\pi} \frac{1}{L^2} \sqrt{\frac{EI}{\rho A}} \quad (4.4)$$

Nous retrouvons des paramètres connus : $\alpha_n^{libre} L$ dépendant uniquement du mode de résonance considéré, E le module élastique de la poutre, et ρ sa densité. Il faut par contre adapter le moment d'inertie I et l'aire A au fait que nos cantilever sont à section trapézoïdale et non rectangulaire. Nous considérons donc les largeurs l_1 et l_2 , ainsi que l'épaisseur b . Toutes ces valeurs ont été mesurées lors d'observation au MEB comme nous l'avons décrit dans le chapitre II, avec les incertitudes qu'elles comportent. Malgré tout, cette démarche est plus solide qu'une simple mesure de la longueur, étant donné que celle-ci ne prend pas en compte l'extrémité triangulaire du levier.

Ces différentes valeurs étant connue, il devient possible d'exprimer le moment d'inertie I de la section trapézoïdal du levier sous cette forme :

$$I_{trap} = \frac{b^3(l_1^2 + 4l_1l_2 + l_2^2)}{36(l_1 + l_2)} \quad (4.5)$$

Tandis que pour l'aire de la section considéré s'écrit ainsi :

$$A_{trap} = \frac{b(l_1 + l_2)}{2} \quad (4.6)$$

Lorsque nous réinjectons dans l'équation 4.4, nous avons :

$$L = \left(\frac{(\alpha_n L)^2}{2\pi} \frac{1}{f_n^2} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{Eb^2(l_1^2 + 4l_1l_2 + l_2^2)}{18\rho(l_1 + l_2)^2} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (4.7)$$

A partir des différents modes de résonance relevés, nous parvenons à calculer une valeur moyenne de la longueur de la poutre ce qui nous sert de base pour nos optimisations ultérieures. Puis dans un second temps, nous calculons les rapports k^*/k_c en prenant en compte les fréquences obtenues en contact suivant les équations 4.1 à 4.3. La longueur L_1 traduisant la distance entre la base du levier et la position de la pointe doit également être spécifiée.

Le programme fonctionne de manière itérative, en résolvant tout d'abord l'équation de dispersion pour les deux premiers modes de contact. Il va ensuite comparer l'écart entre les deux rapports k^*/k_c

obtenus à un critère d'arrêt. Tant que cet écart est supérieur au critère d'arrêt, il va incrémenter ou décrémenter) les valeurs des longueurs L_1 et L .

$$\frac{\Delta\left(\frac{k^*}{k_c}\right)}{\frac{k^*}{k_c}} > \delta \quad (4.8)$$

Après chaque itération, le script va comparer l'écart calculé avec celui de l'itération précédente afin de savoir s'il doit poursuivre l'incrémentation et dans quel sens il doit la faire (augmentation ou réduction). L'algorithme boucle ainsi tant qu'il n'a pas atteint un écart relatif entre les deux valeurs de $\frac{\Delta(k^*/k_c)}{k^*/k_c}$ inférieure au critère d'arrêt δ que nous avons spécifié ($\delta < 10^{-10}$). Pour résumer l'ensemble du processus adopté pour ce programme, nous avons présenté la totalité de l'algorithme implémenté figure 4.4 et reporté une description détaillée en annexe.

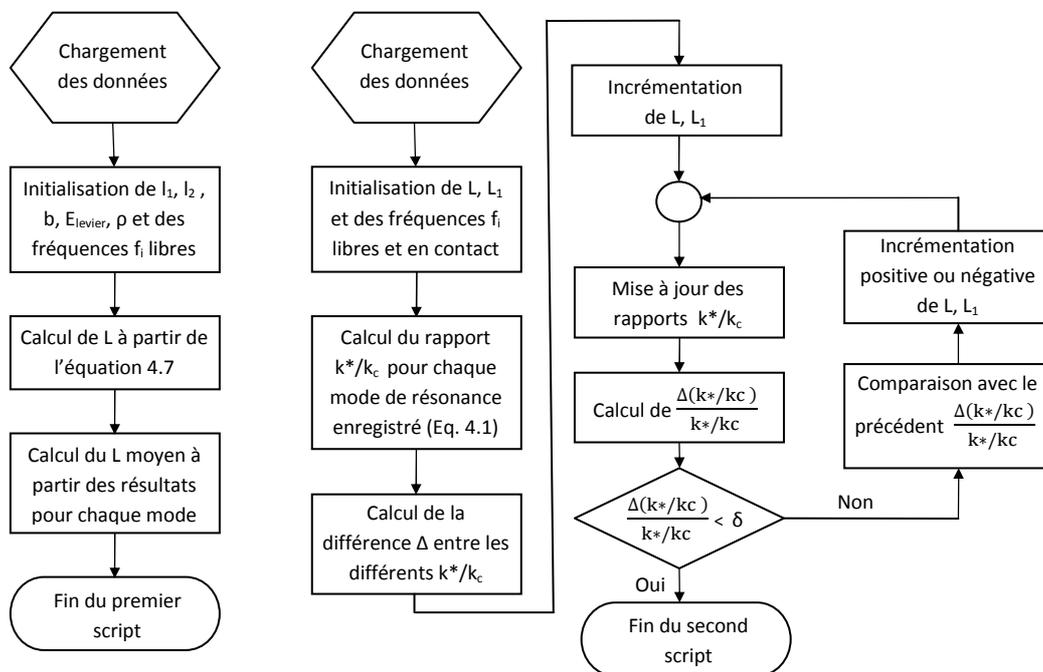


Fig. 4.4 : Organigramme de l'algorithme incrémental de calcul analytique du modèle de levier encastré unidimensionnel simple.

Ce modèle permet donc d'établir à partir d'un ensemble de fréquences de résonances obtenu lors d'une analyse acoustique en contact, une valeur correspondante k^*/k_c .

IV.1.2.2. Etape 2 : Passage du rapport k^*/k_c au module élastique local

Pour remonter au module élastique du matériau testé, plusieurs possibilités se présentent. La première implique la capacité d'estimer de façon précise la constante de raideur du cantilever en contact. En effet, si nous connaissons k_c , nous sommes capables de calculer k^* , puis d'en déduire le module élastique du matériau. Il faut pour cela caractériser précisément le cantilever comme nous

l'avons abordé dans le chapitre précédent, puis suivant la structure de la pointe et l'évaluation des forces d'adhésion, utiliser la théorie du contact élastique la plus appropriée (voir chapitre 1).

Au final, cette voie nécessite de nombreuses mesures expérimentales, c'est pourquoi une méthode alternative s'est popularisée parmi la plupart des équipes dans le monde travaillant en microscopie acoustique à champs proche ^{[Hurley2006] [Stan2009]}. Elle nécessite pour fonctionner, l'utilisation d'un ou plusieurs matériaux de référence. Cette démarche permet d'obtenir une valeur cohérente pour le module d'Young d'un matériau sans avoir besoin de connaître les caractéristiques physiques de la poutre ^{[Hurley2003] [Rabe2002]}. Seule la forme du contact intervient alors, avec des relations différentes suivant que la pointe est plus proche d'une sphère ou d'un poinçon plat. Ainsi pour la même valeur de la force appliquée F_n maintenant le contact entre le cantilever et la surface du solide, sous réserve de connaître le module élastique et le coefficient de Poisson du matériau de référence, il peut être montré que la valeur du module élastique réduit E^* d'un échantillon inconnu vaut ^[Rabe2002] :

$$E^* = E_{ref}^* \left(\frac{k_s}{k_{ref}} \right)^m = E_{ref}^* \left(\frac{k_s/k_c}{k_{ref}/k_c} \right)^m \quad (4.9)$$

Avec E_{ref}^* le module réduit de l'échantillon de référence et k_{ref} la valeur de sa constante de raideur normale, k_s étant celle de l'échantillon testé. Quant à m , dans le cas d'un contact Hertzien celui-ci vaut $3/2$, tandis que pour le cas d'un poinçon plat, il ne vaut que 1. Ces coefficients sont établis à partir des relations permettant de calculer la rigidité de contact que nous avons abordée dans le premier chapitre. Pour la grande majorité des cantilevers, ceci représente les deux situations extrêmes que nous pouvons rencontrer ^[Kopycinska-Müller2006].

A partir du module réduit E^* , il est possible de remonter au module d'Young du matériau en utilisant l'équation que nous avons vue auparavant :

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1 - \nu_{pointe}^2}{E_{pointe}} + \frac{1 - \nu_{ech}^2}{E_{ech}} \quad (4.10)$$

Mais cette méthode souffre encore d'avoir à déterminer le module réduit E_{pointe} de la pointe. Lorsque la pointe est faite d'un matériau massif comme le silicium, cela ne pose aucun problème, cependant, établir une valeur du module élastique d'une pointe composite relève plus de l'estimation (comme notre lot B2-FMR de Nanotools terminé par une sphère de diamant). C'est pourquoi une équipe du NIST ^[Stan2010] a développé une approche utilisant deux échantillons de référence dont ils spécifient le module d'indentation M_{R1} et M_{R2} :

$$\frac{1}{M_R} = \frac{1 - \nu_R^2}{E_R} \quad (4.11)$$

Grâce au montage acoustique, les constantes de raideurs normales sont précisées et du coup le module d'indentation M_{ech} :

$$M_{ech} = \frac{\left(k_{R1}^*/k_{R2}^*\right)^m - 1}{\left(k_{R1}^*/k_{ech}^*\right)^m \left[1/M_{R2} - 1/M_{R1}\right] + \left(k_{R1}^*/k_{R2}^*\right)^m \left[1/M_{R1}\right] - 1/M_{R2}} \quad (4.12)$$

En définitif, cette approche initialement mise au point par l'équipe de Rabe ^[Rabe2002] a largement facilité l'exploitation des données obtenues en microscopie acoustique à résonance (CR-AFM), puisqu'elle permet d'éviter d'avoir à déterminer précisément des grandeurs difficile à mesurer telles que la géométrie du cantilever, son rayon de courbure ou la force imposée.

Cependant, si l'évolution de la pointe peut être ignorée avec cette méthode lorsque nous ne réalisons que des mesures ponctuelles alternativement sur l'échantillon de référence et un autre, des mesures successives à différentes forces peuvent induire une usure non-régulière. Elle provoquera ainsi un décalage des fréquences de résonances en fonction de la force imposée qui sera différent de celui attendu entre les deux échantillons et donc non prise en compte par cette méthode.

IV.1.3. Exploitation des résultats expérimentaux par cette modélisation

Dans cette partie, nous allons nous attacher à appliquer ce modèle à certains de nos résultats expérimentaux obtenus en CR-AFM, et remonter ainsi au module élastique local détecté à la surface de ces échantillons.

IV.1.3.1. Premiers essais

Nous nous sommes ainsi intéressés à la série d'acquisitions CR-AFM réalisées sur nos films minces de silice avec l'une des pointes terminée par une sphère de silice recouverte de diamant (B2-FMR de Nanotools). Ces échantillons constituent pour nous le choix idéal pour tester la validité de ce modèle analytique. Nous rappelons (fig.4 .5) les résultats exposés dans le chapitre III.1 obtenus sur les films de silice de différentes épaisseurs et pour de multiples forces.

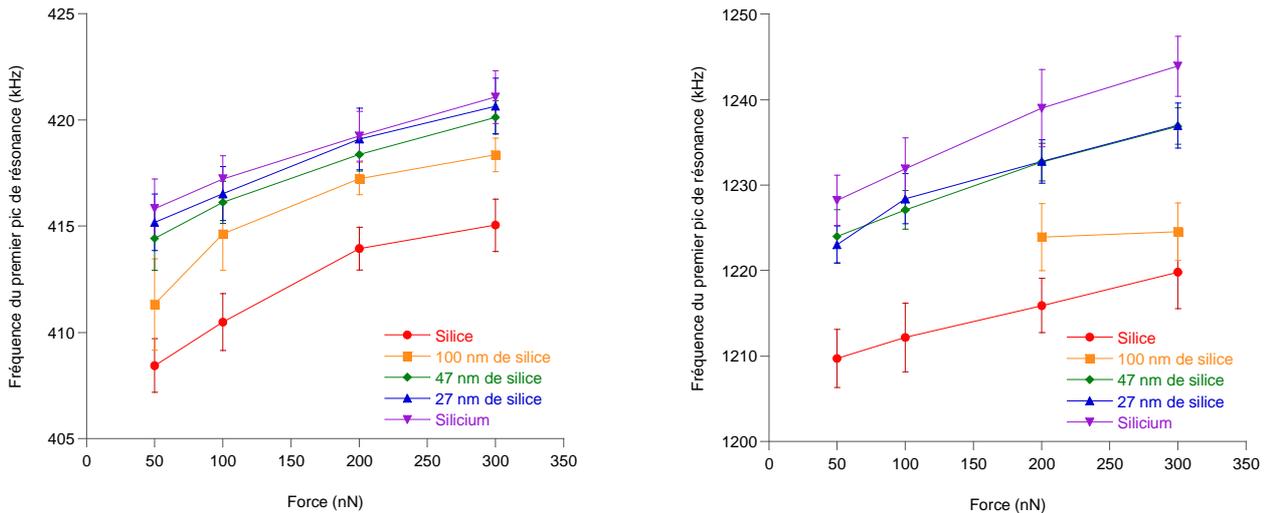


Fig. 4.5 : Evolution de la position en fréquence en fonction de la force imposée du premier pic de résonance (à gauche) et du second (à droite).

Nous observons donc l'évolution des fréquences de résonance en fonction de la force imposée pour les deux premiers modes en flexion. A partir de ces résultats, nous appliquons la méthode que nous avons vue précédemment, et que nous avons condensé dans la figure 4.6.

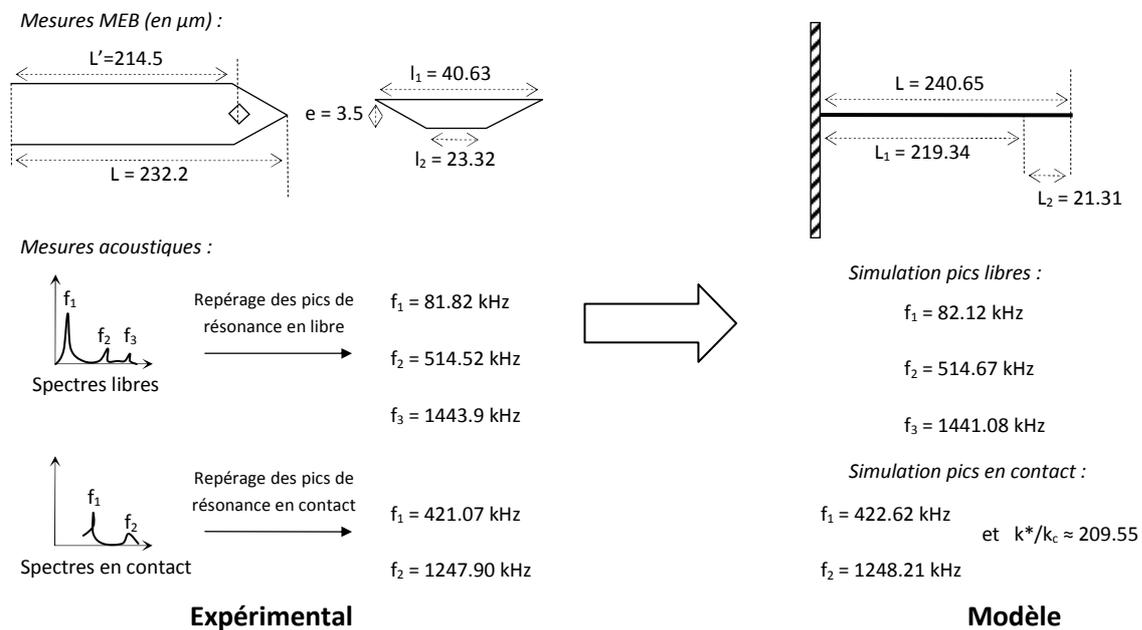


Fig. 4.6 : Illustration du fonctionnement du modèle pour un cantilever en diamant sur un échantillon de silicium.

Dans un premier temps, nous appliquons notre algorithme d'optimisation pour chaque point de mesure (pour chaque jeu d'échantillon et de force). Les résultats sont reportés sur la figure 4.7. Cette approche recalcule pour chaque point de mesure un nouveau jeu de longueurs du levier. Sur l'ensemble des acquisitions, ces changements demeurent inférieurs à $2 \mu\text{m}$, soit moins de 1% de variations (fig. 4.6). Par ailleurs, de par le fonctionnement de l'algorithme (qui égalise les rapports

k^*/k_c), les valeurs de k^*/k_c obtenues à partir du premier et du second mode de résonance sont bien égales. Attention : Cela ne sera plus forcément le cas dans la partie IV 3.2.

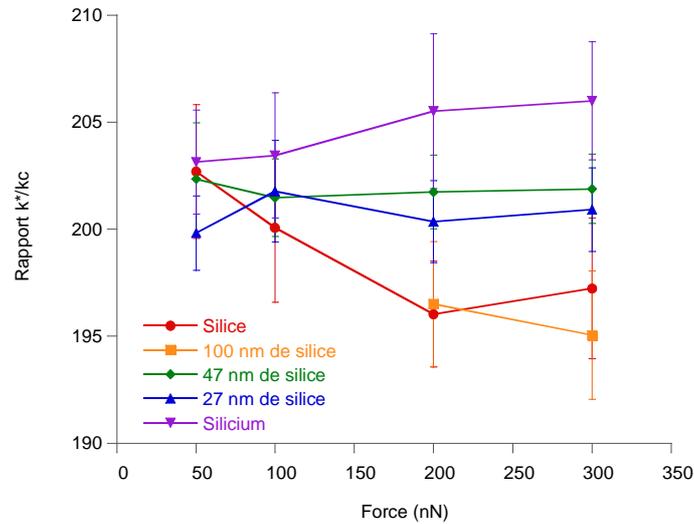


Fig. 4.7 : Evolution du rapport k^*/k_c en fonction de la force appliquée.

Sur la figure précédente, il apparaît que :

- les évolutions des rapports k^*/k_c ne présentent plus la même monotonie que les évolutions des pics expérimentaux reportés dans la figure 4.5. (Exemple : la courbe de la silice est décroissante alors que celle du Si est bien croissante).
- les courbes se croisent entre elles, ce qui signifie que les différentes épaisseurs de films ne sont plus discriminées.

Malgré tout, nous poursuivons notre démarche en déterminant la valeur du module élastique local de ces matériaux, en nous plaçant dans le cadre d'un contact hertzien. En effet, celui-ci est cohérent avec l'augmentation des fréquences de résonances avec celle de la force imposée sur le cantilever (eq. 4.13).

$$k^* = (6E^{*2}F_n R_c)^{\frac{1}{3}} \quad \text{soit } k^{*3} = \beta F_n \quad (4.13)$$

D'après cette équation, nous devons voir une évolution linéaire du cube de la raideur de contact (k^{*3}) avec la force imposée. Nous vérifions dans la figure 4.8 si cette tendance est assurée avec les k^* extraits ci-dessus.

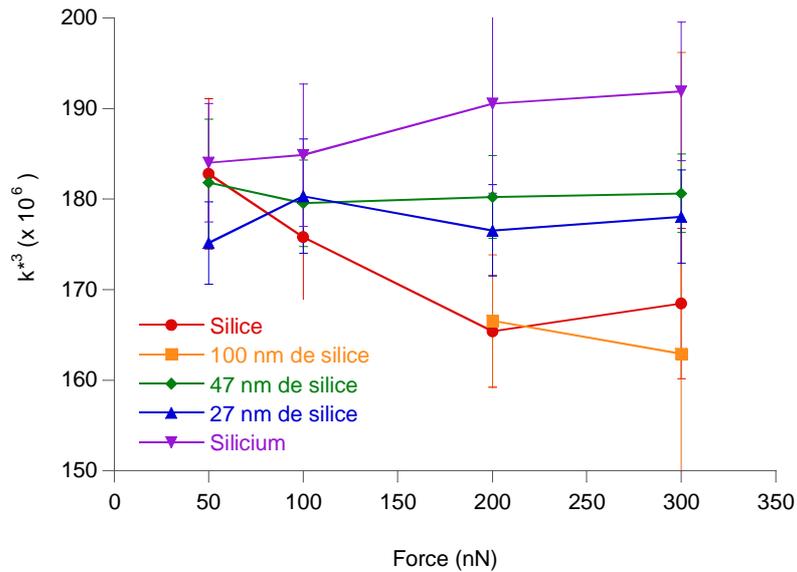


Fig. 4.8 : Evolution de $k^*{}^3$ en fonction de la force appliquée.

De façon analogue au graphe 4.6, nous ne retrouvons ni la monotonie attendue, ni la séparation entre les différentes courbes qui nous permettraient de discriminer les différents films. Nous constatons que l'évolution $k^*{}^3=f(F_n)$ pour les matériaux massifs ne correspond pas à celle prévue au graphe 4.5, c'est-à-dire une croissance en fonction de la force imposé.

Nous nous sommes alors demandé si nous ne devons pas prendre en compte un modèle de contact plus complet comme ceux que nous avons abordés dans le chapitre 1 (JKR et DMT) et il s'est avéré que cela ne change pas fondamentalement les conclusions précédentes. D'une part, les forces d'adhésions qui s'ajoutent dans ces modèles restent faibles par rapport aux forces imposées pour cette série d'échantillons pour les raisons que nous avons exposées dans les chapitres II et III. Et d'autre part, elles interviennent uniquement sur le facteur β sans changer la forme générale de l'équation ^[Stan2009a]. Il n'apparaît donc pas d'explication physique permettant de valider le comportement contradictoire des échantillons massifs en fonction de la force.

La démarche que nous avons employée mène donc à une impasse, c'est pourquoi nous avons tenté une approche différente.

IV.1.3.2. Optimisation unique des dimensions du cantilever

Jusqu'à maintenant nous avons traité ces points expérimentaux indépendamment les uns des autres : cette méthode de traitement des données implique que les dimensions du levier évoluent d'un point à l'autre (comme si chaque mesure expérimentale était faite avec une poutre différente des autres). Nous avons donc choisi de fixer ces dimensions en ne réalisant qu'une seule fois cette optimisation sur les longueurs L , L_1 . Nous choisissons pour cela les mesures réalisées sur un matériau massif à force maximale (300 nN) pour se placer dans le cas d'échantillon modèle.

C'est pourquoi nous avons pris comme référence dans un cas les résultats relevés sur la silice recuite et dans l'autre sur le silicium. L'algorithme a alors égalisé les rapports k^*/k_c calculé à partir des deux modes de résonance expérimentaux, et déterminé un couple L, L_1 qui restera ensuite fixé pour l'ensemble des autres points. Ceux-ci sont alors calculés à partir de ces paramètres nous permettant de construire les courbes suivantes (fig. 4.9), retraçant l'évolution de la constante de raideur au cube k^{*3} du contact en fonction de la force appliquée. En raison de l'incertitude plus faible présente sur les fréquences de résonance du second pic, nous avons travaillé d'abord avec ses données en prenant comme référence l'échantillon de silice (fig. 4.9 à gauche) puis le silicium (fig. 4.9 à droite).

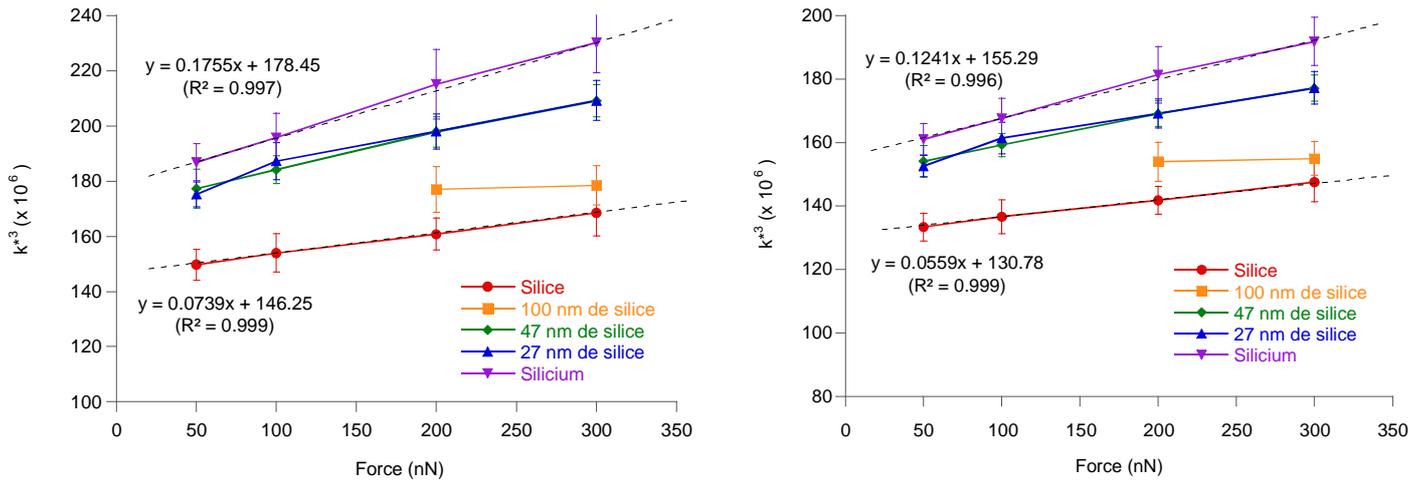


Fig. 4.9 : Evolution de k^{*3} en fonction de la force appliquée. A gauche, la mesure à 300 nN obtenue sur l'échantillon de silice sert de référence, tandis qu'à droite il s'agit de l'échantillon de silicium.

Les courbes précédentes présentent une monotonie cette fois-ci en accord avec nos hypothèses. Nous avons ainsi pu ajouter sur les courbes des matériaux massifs des courbes de tendance avec de très bonne valeurs de régression ($R^2 > 0.99$). Quant aux données correspondant aux films minces, ceux-ci se répartissent entre les valeurs obtenues pour la silice et le silicium massif. Les courbes des échantillons de couche mince à 27 et à 47 nm sont confondues, alors que l'échantillon de 100 nm est clairement distinct.

Si nous considérons ces résultats comme acceptables, cet écart serait alors à attribuer à la différence du module d'Young local entre les différents échantillons. La profondeur sondée serait donc légèrement supérieure au film de silice le plus épais. Ceci expliquerait pourquoi la courbe de l'échantillon de 100 nm d'épaisseur a un comportement plus proche de la silice massive que de celui du silicium. A l'inverse, les deux autres échantillons, constitués d'une couche plus fine, génère une réponse plus importante du substrat de silicium qui composerait l'essentiel du volume sondé. L'idée d'observer une réponse uniquement du film mince en imposant de très faibles forces ne semble pas ici possible, vu qu'une sensibilité au substrat apparaît dès la force de 50 nN. Pour confirmer ces analyses, nous nous sommes donc interrogés sur la validité de cette approche.

IV.1.3.3. Validité du modèle

En effet, la question se pose si nous nous attardons sur nos courbes de régression linéaire. Dans un premier temps, nous pouvons extraire directement le module élastique en fonction de la pente de ces courbes en prenant le rayon de courbure de cette pointe purement sphérique comme annoncé par le constructeur (de 30 à 50 nm).

$$\frac{k^{*3}}{F_n} = 6E^{*2}R_c \quad \text{soit } E^* = \sqrt{\frac{k^{*3}}{F_n} \frac{1}{6R_c}} \quad (4.14)$$

Nous trouvons des valeurs de module réduit variant entre 432 et 640 GPa pour le contact avec la silice et entre 643 et 987 GPa pour celui avec le silicium. La pointe étant en diamant, nous avons donc implémenté une densité de 3515 kg/m³, un module élastique de 1050 GPa et un coefficient de Poisson de 0,1 [ioffe2010]. A partir de l'équation du module réduit, nous trouvons alors :

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1 - \nu_1^2}{E_1} + \frac{1 - \nu_2^2}{E_2} \quad \text{soit } E_1 = \frac{1 - \nu_1^2}{\frac{1}{E^*} - \frac{1 - \nu_2^2}{E_2}} \quad (4.15)$$

Nous trouvons alors des valeurs aberrantes de modules élastiques pour la silice et le silicium > 700 GPa, ce qui montre les limites de cette démarche.

Par ailleurs, si nous revenons aux courbes 4.9, nous constatons que celles-ci ont une ordonnée à l'origine très éloignée de 0 (entre 130 et 180 N³.m⁻³) ainsi qu'un décalage au niveau de la position (x, y) en fonction de la référence choisie. Une pointe dont la forme serait une combinaison entre un poinçon plat et une demi-sphère permettrait d'expliquer ce comportement en créant dès le contact une zone d'interaction étendue (fig. 4.10).

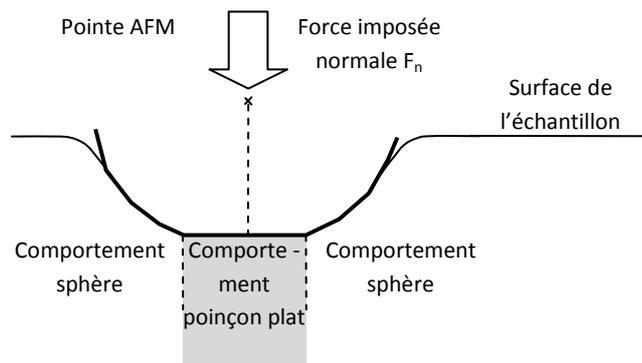


Fig. 4.10 : Contact mécanique entre un poinçon plat combiné à une sphère et un milieu élastique semi-infini.

Cette discontinuité initiale due à la présence d'une section plate en bout de pointe se vérifie à la fois par les observations MEB que nous avons réalisées dans notre chapitre 2 et par la littérature [Kopycinska-Mueller2006]. Elle a pour origine l'usure de la pointe. Néanmoins, c'est le cas essentiellement avec des

leviers en silicium, et avec nos pointes terminées par des sphères en diamant, ce phénomène ne peut être aussi important.

Une autre éventualité permettant d'expliquer le décalage des courbes est que notre modèle est insuffisant pour décrire correctement le comportement de nos échantillons. Cette possibilité sera explorée dans le modèle évoqué en deuxième partie.

Une donnée intéressante à ce niveau est d'estimer la profondeur d'indentation en fonction de la force imposée. Pour cela nous utilisons les résultats des travaux d'Oliver Pharr ^[Oliver1992] permettant de calculer la profondeur de pénétration élastique h_s en fonction de la constante de raideur du contact k^* , et de la force imposée F_n :

$$h_s = \epsilon \frac{F_n}{k^*} \quad (4.16)$$

Avec $\epsilon \approx 0.75$ pour une pointe de forme parabolicoïde comme semble l'être la notre. Nous construisons donc la courbe montrant l'évolution de cette profondeur pour nos différents échantillons (fig. 4.11) :

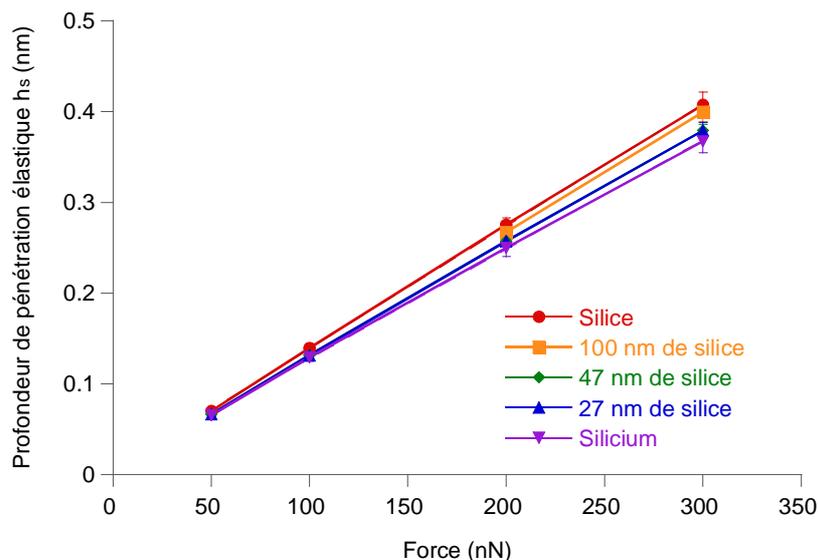


Fig. 4.11 : Evolution de la profondeur de pénétration élastique h_s en fonction de la force imposée

La force exercée reste très faible par rapport à celles imposées par un nanoindenteur, et du coup, la profondeur de pénétration dans l'échantillon est inférieure au nanomètre. L'évolution de la profondeur de pénétration est linéaire et passe par l'origine (avec un écart inférieur à 1%).

Ce résultat renforce donc le poids de notre hypothèse d'une limite inhérente au modèle plutôt que celle d'une forme de pointe particulière.

IV.1.3.4. *Extraction des modules apparents par la méthode des échantillons de référence*

Pour surmonter ces écueils, les équipes utilisant ce modèle ^{[Stan2009] [Hurley2009]} utilisent également la méthode dite des échantillons de référence que nous allons appliquer afin de déterminer les modules apparents des échantillons. Pour cela nous partons des résultats obtenus par notre modèle, en prenant comme référence la mesure sur l'échantillon de silice massive à 300 nN. Un graphique présentant l'évolution du rapport k^*/k_c en fonction de la force imposée est présenté ici, figure 4.12.

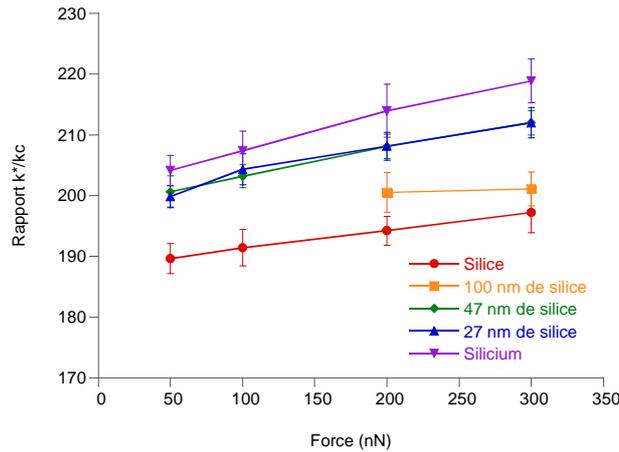


Fig. 4.12 : Evolution du rapport k^*/k_c en fonction de la force appliquée (à partir du 2^e mode de résonance)

A partir de ces données nous allons en tirer les valeurs quantitatives du module élastique apparent des échantillons. Pour cela, nous allons prendre la méthode du double échantillon de référence décrite précédemment ^[Stan2006]. Elle va nous permettre d'augmenter la précision des mesures et d'éviter d'avoir besoin du module d'indentation de la pointe que nous ne connaissons pas avec précision ici. Seuls deux paramètres doivent être connus : le module d'indentation de l'échantillon de silice massive ($M_{SiO_2} \approx 74,1$ GPa), et celui du wafer de silicium ($M_{Si} \approx 186,6$ GPa) ^{[Oliver1992] [Fisher-Cripps1997]}. Ainsi en reprenant les données du graphique précédent, et en utilisant l'équation 4.11 dans le cadre d'un contact hertzien, nous pouvons construire la figure 4.13 :

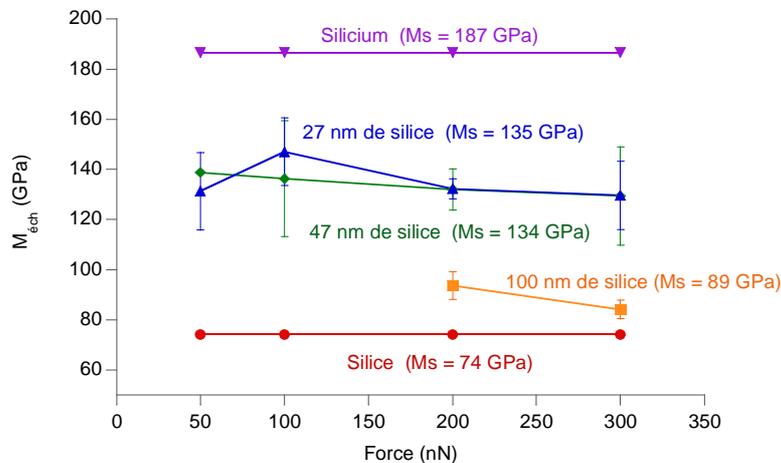


Fig. 4.13 : Evolution du module d'indentation en fonction de la force imposée avec deux échantillons de référence.

Les valeurs moyennes du module élastique des films de silice se répartissent entre celles de la silice massive et celle du silicium. De par notre approche, ces dernières sont fixées, raison pour laquelle nous n'avons pas inséré de barre d'erreur. L'échantillon constitué d'un film de silice de 100 nm présente un module d'indentation d'environ 88 ± 4 GPa, tandis que le film de silice de 47 nm est estimé à $134 + 12$ GPa et celui de 27 nm est à environ 135 ± 12 GPa.

IV.1.3.5. Même approche avec le 1^e pic

Afin de permettre une comparaison, nous allons appliquer la même méthodologie en travaillant sur les premiers pics de résonance de nos échantillons. Jusque là ces données ont été mises de côté en raison de l'incertitude que le modèle générait avec celles-ci. En effet, si nous reportons ici le graphique retraçant l'évolution de k^* en fonction des fréquences de résonance f_i par notre modèle, nous constatons que la moindre variation dans la valeur de la fréquence de résonance entraîne une forte variation de la valeur du k^* , en particulier pour le premier mode de résonance (fig 4.14) alors que c'est beaucoup plus limité pour le deuxième.

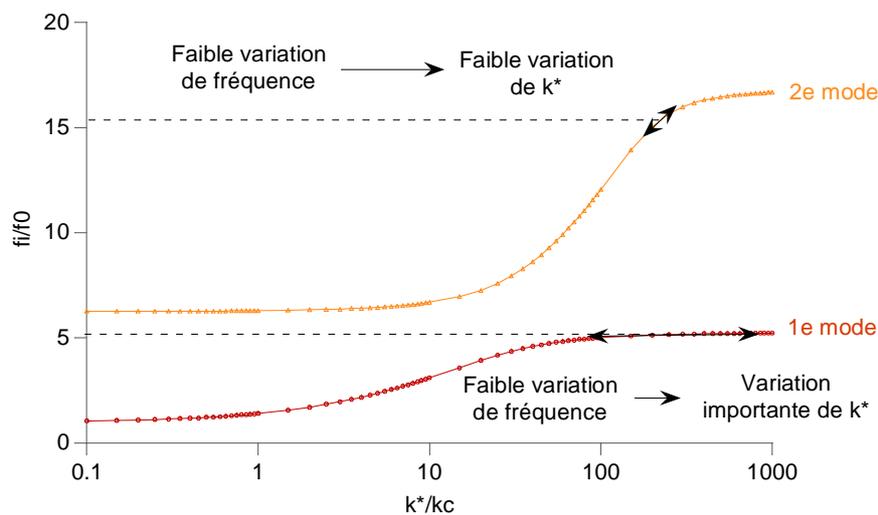


Fig. 4.14 : Position des modes de résonance dans le modèle. L'incertitude sur k^* varie fortement suivant le mode considéré.

Si nous recalculons les graphiques précédents à partir des données expérimentales obtenues pour le premier mode, nous retrouvons l'allure des courbes précédentes avec cependant une évolution du rapport k^*/k_c beaucoup plus marquée (fig. 4.15). Ainsi, au lieu d'une variation comprise entre 190 et 220, nous avons une croissance du rapport comprise entre 120 et 535, et une incertitude allant jusqu'à 40% de la valeur nominale.

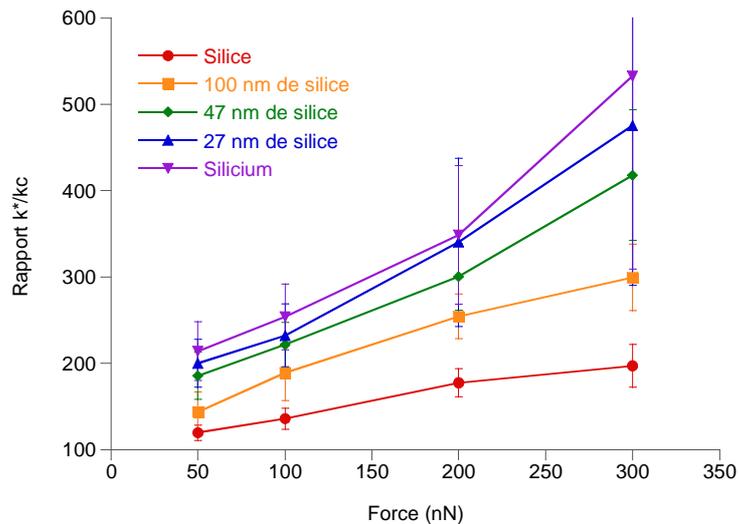


Fig. 4.15 : Evolution du rapport k^*/k_c en fonction de la force appliquée (à partir du 1^e mode de résonance)

De même, si nous calculons la valeur du module d'indentation avec cette méthode, nous constatons que l'ordre de grandeur des modules des films de silice est supérieur de 30 à 40 GPa par rapport au même graphique à partir des données du 2^e mode de résonance. L'incertitude est comme pour le graphique précédent très importante (fig. 4.16).

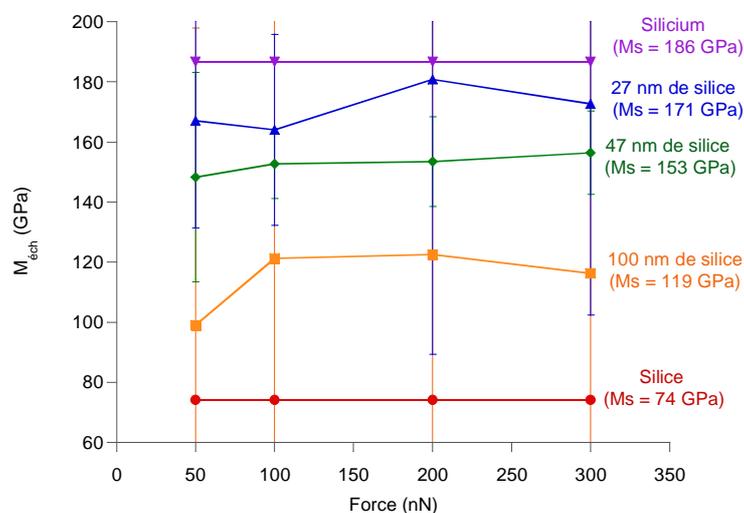


Fig. 4.16 : Evolution du module d'indentation en fonction de la force imposée avec deux échantillons de référence.

Nous retrouvons sur ce graphique, les valeurs des modules d'indentation de la silice massive et du wafer de silicium, par contre nous obtenons des valeurs différentes pour les films minces. Les échantillons se différencient les uns des autres de façon nette. L'échantillon composé d'un film de 100 nm présente ainsi un module élastique apparent d'environ 119 ± 15 GPa, celui de 47 nm, un module de 152 ± 19 GPa et enfin celui de 27 nm est calculé en moyenne à 171 ± 57 GPa. Comme prévu, les valeurs de l'incertitude sont beaucoup plus importante de part le comportement du modèle pour les fréquences du premiers mode. Si ces valeurs s'avèrent plus proches de la réalité

alors cela signifierait que le volume sondé comprend une proportion de silicium bien plus importante que ce qui était envisagé à partir des données obtenues pour le second mode.

Nous avons montré au cours de cette étude que ce modèle présentait des difficultés pour reproduire correctement le comportement du cantilever en contact. Malgré tout, en utilisant la méthode des deux échantillons de référence, il permet d'obtenir des résultats probants. Pour évaluer ces derniers, nous avons mené une dernière étude utilisant un modèle alternatif que nous allons appliquer sur ces échantillons.

IV.1.4. Comparaison avec les résultats obtenus pour un modèle élastique « film sur substrat »

Pour évaluer la pertinence des résultats calculés, nous avons employé un script développé sous Igor Pro pour des problèmes d'indentation ^[Barthel2008]. Ce modèle cherche à déterminer la solution exacte du problème élastique film sur substrat sous l'effet d'une contrainte pour différentes géométries de pointe (sphérique, poinçon, conique). Il reprend la relation établie par Li et Chou ^[Li1997] permettant de déterminer la contrainte normale appliquée à la surface du film considéré ainsi que le déplacement normal de la pointe par rapport au système. Le travail de Barthel et Perriot a consisté à développer cette approche afin de prendre en compte les conditions limites spécifiques à l'indentation de films minces. Il considère également les différents matériaux composant les empilements comme élastiques, isotropes et homogènes et leur adhésion parfaite. Pour d'avantages de précisions sur ce modèle utilisé dans les problèmes de rhéologie, nous nous renvoyons aux articles publiés sur le sujet ^[Barthel2004] ^[Barthel2008]. Pour notre part nous nous limitons au cas d'une pointe sphère suite aux conclusions que nous avons faites auparavant (fig. 4.17).

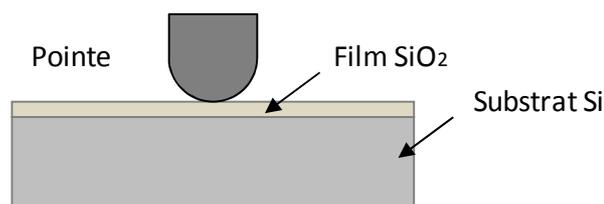


Fig. 4.17 : Structure l'échantillon composé d'interconnexions cuivre isolées par de la silice nanoporeuse. L'ensemble a été recouvert par une couche de SiCN protectrice.

Nous injectons ensuite dans le modèle, les valeurs suivantes : épaisseur du film mince (27, 47 et 100 nm), du substrat (infini), leurs caractéristiques mécaniques ($E_{SiO_2} = 72$ GPa et $\nu_{SiO_2} = 17$, $E_{Si} = 169$ GPa et $\nu_{Si} = 28$ ^[Simmons1971]). Après calcul, nous remontons à la rigidité du contact k^* en fonction de la force appliquée sur la pointe F . Les figures 4.18 à 4.20 présentent cette évolution pour plusieurs rayons de courbure de pointe ^[Herbert2001]. Nous y avons ajouté les résultats obtenus grâce à notre modèle pour comparaison.

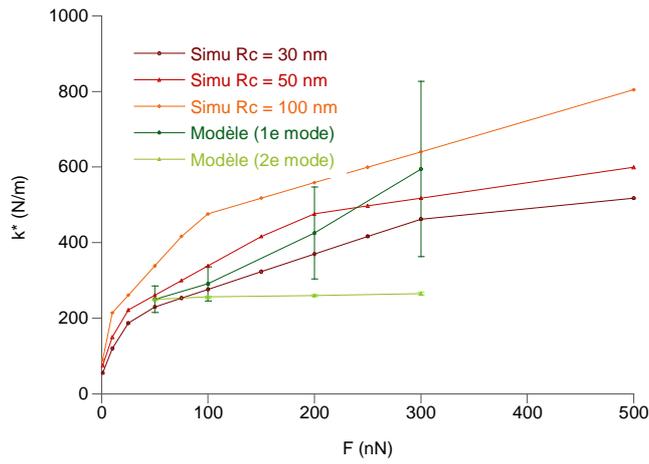


Fig. 4.18 : Simulation pour l'échantillon constitué d'un film de silice de 27 nm et confrontation aux valeurs calculées à partir des fréquences de résonances expérimentales.

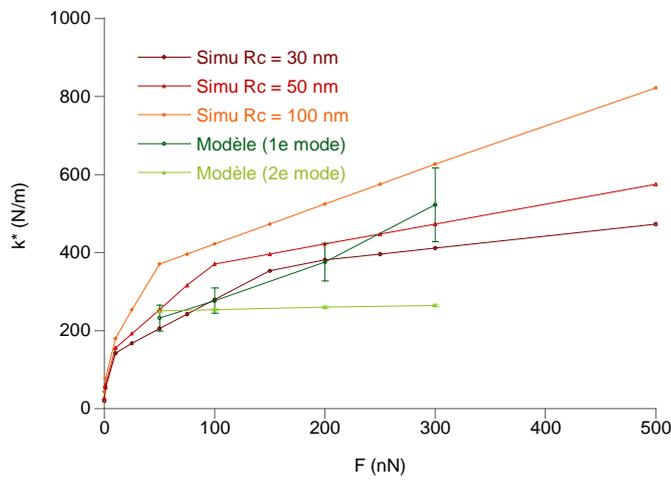


Fig. 4.19 : Simulation pour l'échantillon constitué d'un film de silice de 47 nm et confrontation aux valeurs calculées à partir des fréquences de résonances expérimentales.

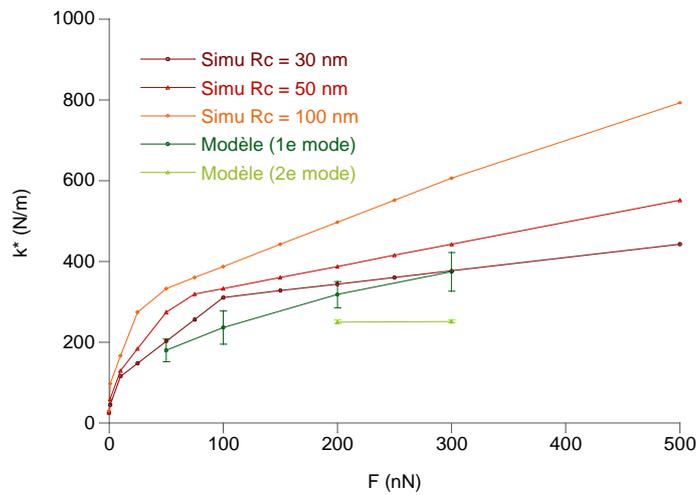


Fig. 4.20 : Simulation pour l'échantillon constitué d'un film de silice de 100 nm et confrontation aux valeurs calculées à partir des fréquences de résonances expérimentales.

Nous savons que la valeur nominale de ce rayon se situe entre 30 et 50 nm d'après les informations livrées par le constructeur, mais nous avons également ajouté une valeur à 100 nm pour simuler une usure importante de la pointe.

L'analyse de ces graphiques nous indique que les résultats sur la rigidité de contact k^* que nous avons obtenus à l'aide des fréquences de résonances du premier mode sont plus proches de l'évolution simulée que ceux ayant pour origine le second mode. Ainsi, d'après ces simulations les valeurs obtenues à partir du premier mode de résonance semblent les plus pertinentes.

IV.1.5. Bilan

D'après les résultats obtenus à partir du modèle et de la simulation précédente, l'échantillon au film de 27 nm a donc un module d'indentation proche de 171 ± 57 GPa, celui de 47 nm, un module de 153 ± 19 GPa et enfin celui de 100, 119 ± 15 GPa. Nos analyses démontrent également la grande sensibilité du CR-AFM, avec la capacité à sonder une profondeur supérieure à notre film le plus épais même à faible force. Cependant, face aux limites de ce modèle, nous nous sommes intéressés à une modélisation analytique complète du système poutre-échantillon afin de voir si ce dernier ne permet pas une exploitation plus précise de nos données expérimentales.

IV.2. Modélisation analytique complète du système poutre-échantillon

Le modèle développé par Dupas dans le cadre de ces travaux ^[Dupas2000] est encore à ce jour le modèle analytique le plus complet pour décrire le comportement du levier AFM sous excitation acoustique : il prend en compte un nombre très important de paramètres allant de la géométrie de la poutre à la prise en compte de la rigidité latérale du contact k_{lat} . Cela permet de s'approcher plus finement des conditions expérimentales, mais nécessite également des mesures complémentaires pour définir les valeurs des variables insérées dans le modèle. La description de ce modèle ayant été effectuée dans la partie I.22 du chapitre 1, nous nous intéresserons ici à son implémentation dans un algorithme que nous avons développé et nous concluons sur les résultats que nous avons obtenus.

IV.2.1. Implémentation du modèle

Prenant en compte à la fois la géométrie des leviers rectangulaires et les interactions avec la surface de l'échantillon de façon plus précise, ce modèle exige la connaissance d'un grand nombre de paramètres. Pour ceux concernant la géométrie de la poutre, nous pouvons injecter les valeurs grâce à nos mesures microscopiques, mais pour les autres paramètres nous devons nous contenter de valeurs évaluées à partir de données constructeur ou de la littérature, et optimisées par la suite.

C'est la démarche que nous avons suivie et dans une certaine mesure automatisée grâce à une programmation sous Matlab (MathWorks).

A partir d'une géométrie de poutre donnée, le modèle calcule un spectre nous donnant la réponse en amplitude du cantilever en fonction d'une fréquence d'excitation. Puis, notre script va identifier la position des différents modes de résonance et compare celle-ci à nos données expérimentales. Suivant l'écart relevé, notre script va modifier certains paramètres injectés dans le modèle et réitérer le processus. Ce processus itératif continue jusqu'à atteindre un critère d'arrêt, qui correspond à l'écart relatif entre les fréquences expérimentales et celles calculées.

Mais avant d'aller plus en détail, nous allons revenir sur quelques points concernant le modèle utilisé, en particulier les raisons qui nous ont poussés à fixer des variables voire à en négliger certaines. Pour cela, nous décrivons le levier avec les paramètres optimisés à la figure 4.21 exposée ci-contre.

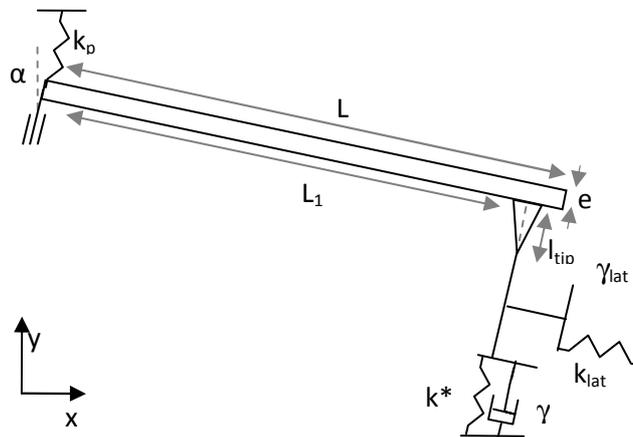


Fig. 4.21 : Modèle analytique d'un levier rectangulaire en contact.

Nous voyons avec ce schéma que ce modèle prend en compte la plupart des dimensions géométriques du levier. L'interaction pointe-surface est représentée par un ensemble de ressorts pour la rigidité et de pistons pour l'amortissement. Nous reviendrons plus loin sur ces derniers. Il décrit également l'inclinaison du levier et modélise sa fixation au bâti par un ressort de rigidité k_p .

D'autres paramètres sont aussi présents bien que non indiqués sur la figure 4.21 tels que le moment d'inertie de la section de la poutre (ce qui nous a permis d'insérer la géométrie trapézoïdale de nos leviers), le module d'Young et la densité du levier, ou la position du faisceau laser réfléchi.

Sur cet ensemble de paramètres, nous disposons des informations fournies par nos observations des leviers au microscope électronique à balayage (MEB LEO 440, voir fig. 4.22), et des indications des constructeurs. Nous injectons donc dans ce modèle les différentes grandeurs que nous possédons, et nous estimons les autres à partir des données fournies par la littérature.

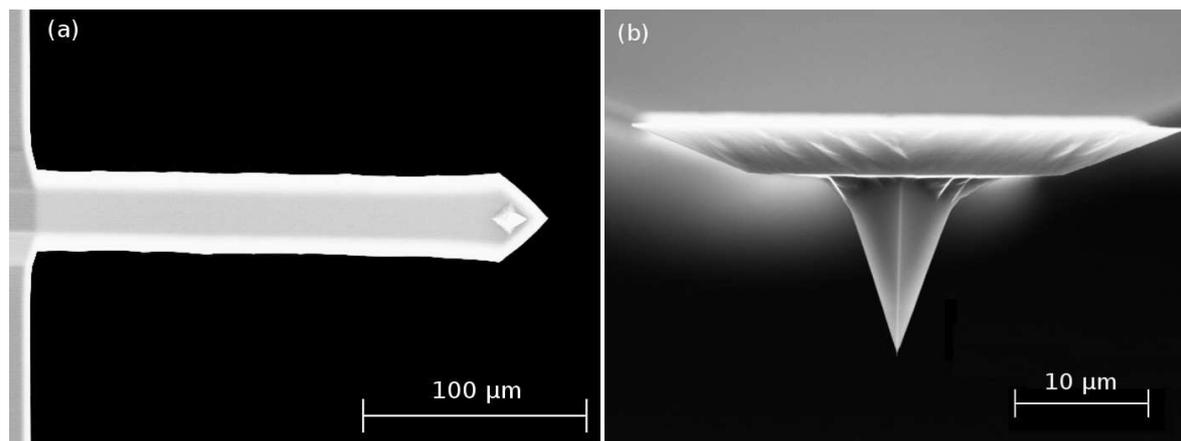


Figure 4.22 : Cantilever B2-FMR en silicium, vue du dessus (a) et de face (b)

Typiquement si nous dénombrons l'ensemble des paramètres que nous entrons dans cette modélisation, nous aboutissons à plus d'une dizaine de variables différentes. Pour les présenter succinctement et préciser leur origine, nous présentons un tableau récapitulatif (Tab. 4.1). Pour illustrer celui-ci, nous avons ajouté entre parenthèse les valeurs implémentées pour le levier en silicium avec sa pointe diamant qui nous a permis d'obtenir les données sur les films de silice (la n°4 du lot B2-FMR de Nanotools).

Paramètres optimisables		Valeurs	Influence dans le modèle sur la position des modes de résonance
Géométrie levier	Longueur de la poutre	232,2 μm	**
	Epaisseur de la poutre	3,5 μm	***
	Grande largeur	40,63 μm	**
	Petite largeur	23,32 μm	**
	Hauteur pointe h_{pointe}	13 μm	**
	Position pointe	214.5 μm	***
	Inclinaison levier	12°	*
Propriétés matériau	Module élastique de la poutre	169 GPa	**
	Densité matériau poutre	2330 kg/m ³	**
	Centre masse pointe	33% de h_{pointe}	*
	Masse pointe	$5 \cdot 10^{-13}$ kg	*
Propriétés contact	Rigidité de contact latérale k_{lat}	90% de k^*	**
	Rigidité du ressort à l'origine k_p	10^7 N/m	**
	Amortissement normal γ	1	-
	Amortissement latéral γ_{lat}	1	-

Tableau 4.1 : Paramètres injectés dans le modèle

Les mesures des dimensions du cantilever par MEB sont relativement précises (à quelques dixièmes de micron près) mais de fines variations de celles-ci peuvent avoir des répercussions importantes sur les fréquences des pics de résonance ^[Dupas2000]. Par ailleurs, le modèle se permet une concession par rapport à la géométrie des leviers en considérant l'extrémité de ces derniers comme étant rectangulaire. Dans les faits, c'est plutôt exceptionnel, et la majorité des leviers commercialisés se

terminent en pointe triangulaire. Il nous faut donc injecter une valeur de la longueur corrigée pour prendre en compte cette particularité.

Les autres données proviennent de la littérature ou de la documentation des fabricants. Elles ont en général moins d'influence tant qu'elles restent près de leurs valeurs nominales. Le comportement de la rigidité du ressort à l'origine en est l'illustration : de valeur généralement très élevée ($k_p > 10^5$ N/m), elle n'exerce une influence notable que lorsqu'elle atteint des valeurs inférieures à 10^4 N/m [Dupas2000]. Pour s'assurer que les valeurs sélectionnées sont appropriées, au moins pour les paramètres sur lesquels nous avons le plus d'incertitudes, un travail d'optimisation s'avère indispensable. La seule solution pour cela est de suivre l'effet des variations de ces paramètres sur la position des pics de résonance et les comparer avec les fréquences obtenues expérimentalement.

Lorsque nous injectons ces éléments dans les équations constituant ce modèle, nous obtenons le profil de la réponse en fréquence du levier en contact avec un matériau (fig. 4.23).

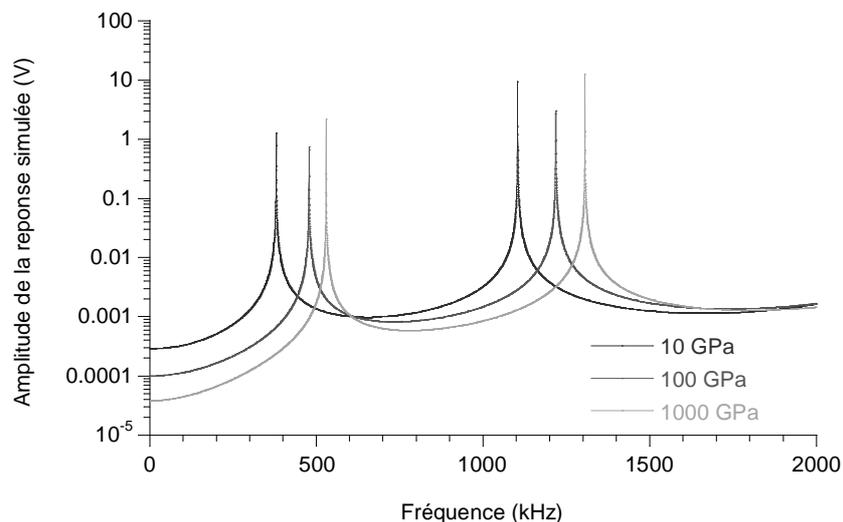


Fig. 4.23 : Spectres de résonance simulés par le modèle sur des matériaux de rigidité différentes.

En injectant des valeurs appropriées, nous pouvons resserrer l'écart entre les valeurs simulées et nos résultats expérimentaux. Il s'agit d'un travail d'optimisation assez fastidieux, c'est pourquoi nous avons développé un algorithme nous permettant d'automatiser et d'affiner cette recherche de paramètres optimaux.

Malgré cela, pour des raisons de temps de calculs nous avons dû sélectionner les paramètres les plus influents sur lesquels notre algorithme travaillera et fixer les autres. Ce choix a été effectué à partir des informations recueillies dans la littérature [Dupas2001] [Hurley2007] [Stan2009], et par notre expérience d'optimisations manuelles effectuées sur des cas particuliers.

Les paramètres que nous allons chercher à optimiser via notre algorithme sont donc tout d'abord géométriques. Nous considérons la longueur de la poutre L , son épaisseur t , ainsi que la position de la pointe L_1 par rapport à la base du levier. Au niveau des interactions du levier avec son environnement, nous prenons en compte l'influence du ressort à l'origine (de raideur k_p) et la rigidité de contact pointe-échantillon aussi bien normale k_c que latérale k_{lat} . La prise en compte de la

composante latérale s'explique par le mouvement que la pointe du levier, incliné qui décrit une ellipse sous l'effet de l'excitation acoustique au lieu d'une simple oscillation verticale [Dupas2001]. La rigidité latérale s'avère un paramètre influent comme l'indique des publications sur le sujet [Rabe2006] [Hurley2007] [Stan2009]. Les autres paramètres sont fixés par calcul à partir des données expérimentales ou de la littérature.

Une fois ces bases posées, nous avons pu programmer un script d'optimisation sous le logiciel Matlab intégrant les équations régissant le modèle. Pour chaque jeu de paramètres, le programme calcule la position des pics simulés et la compare avec les valeurs expérimentales que nous avons injectées. A chaque incrément, suivant l'évolution de l'écart, la script va plus ou moins modifier les valeurs des paramètres libres afin de s'ajuster au plus près des fréquences expérimentales. Si l'écart relatif entre les grandeurs simulées et empiriques dépasse la valeur du critère d'arrêt, soit $\sum \frac{f_{\text{modèle}} - f_{\text{exp}}}{f_{\text{exp}}} < 10^{-4}$, le script continue ses itérations sinon il s'arrête. L'organigramme décrivant ce programme est présenté figure 4.24 et le code est donné en annexe.

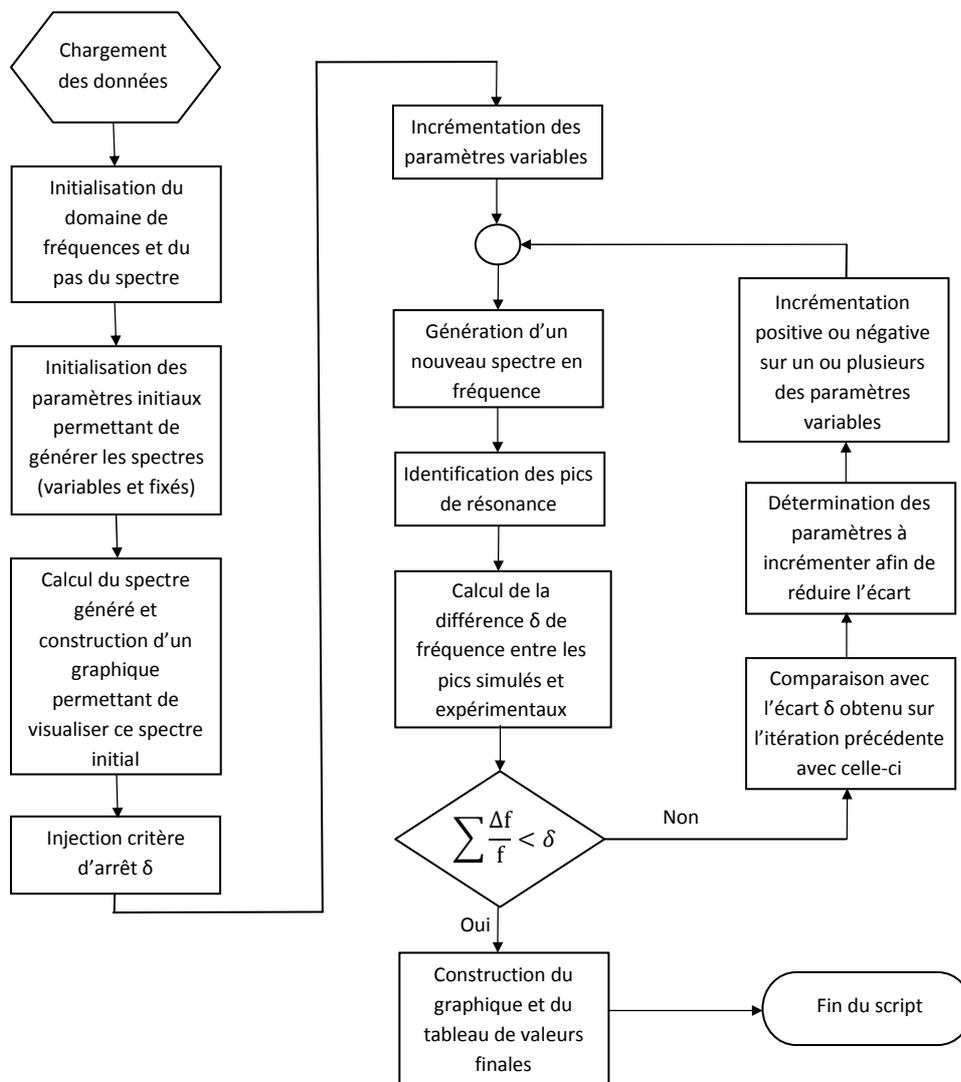


Fig. 4.24 : Organigramme de l'algorithme incrémental de calcul analytique du modèle complexe de levier encastré.

L'exécution de cet algorithme peut être assez longue, en effet, à chaque itération celui-ci va recalculer un nouveau spectre en fréquence puis le comparer avec le précédent afin de déterminer quels paramètres modifier pour l'itération suivante. La durée d'exécution dépend évidemment de la précision voulue et de la puissance de calcul. Typiquement, nous obtenons une précision d'environ trois chiffres significatifs sur l'ensemble des paramètres variables après une à deux heures d'exécution du programme.

IV.2.2. Optimisation à partir des données expérimentales

Grace à l'utilisation de cet algorithme, nous avons pu obtenir de bonnes optimisations entre les résultats simulés et ceux obtenus expérimentalement. Afin d'évaluer la pertinence de cette modélisation, nous sommes partis des données relevées lors de nos expérimentations sur nos échantillons constitués de films minces de silice à l'aide de la pointe composite terminée par une sphère de diamant B2-FMR de Nanotools comme pour le modèle précédent. Dans le cas présent, nous nous intéresserons particulièrement aux données obtenues lors des mesures de l'échantillon de référence de silicium.

IV.2.2.1. Cas 1 : La rigidité latérale k_{lat} est considérée nulle

Dans un premier temps, nous considérons que $k_{lat} = 0$, et nous réalisons les optimisations des paramètres d'abord en libre puis en contact en prenant dans ce dernier cas les fréquences de résonance obtenue sur notre échantillon de silicium monocristallin (cf tableau 4.2).

Paramètres fixés		Optimisations		
Paramètres	Valeurs	Paramètres	Valeurs initiales	Valeurs finales
Largeur max poutre	40.63 μm	Longueur poutre L	232.2 μm	219.6 μm
Largeur min poutre	23.32 μm	Longueur L_1 pointe-base	214.5 μm	212.8 μm
Longueur pointe	13.0 μm	Epaisseur de la poutre	3.5 μm	3.0101 μm
Angle poutre	12°	Rigidité à l'origine k_p	1e7 N/m	1.1e7 N/m
Masse pointe	5E-13 kg	Rigidité de contact k^*	-	-
Rapport $k_{lat}/k_{contact}$	0.0			

Tableau 4.2 : Paramètres injectés notre script d'optimisation

A partir de ces données, nous avons pu construire le graphe 4.25 reportant les valeurs (f_1, f_2) simulées après optimisation ainsi que les points expérimentaux. La courbe simulée est construite pour des valeurs de rigidité normale croissante k^* (de 0 à 5000 N/m). Nous constatons que les points expérimentaux libres et simulés, initialement confondus pour une rigidité k^* nulle (correspondant au mode de vibration libre du levier) s'éloignent progressivement les uns des autres. L'optimisation sur les paramètres que nous avons laissés libres ne suffit pas pour que le modèle simule correctement les variations de fréquences que nous observons expérimentalement.

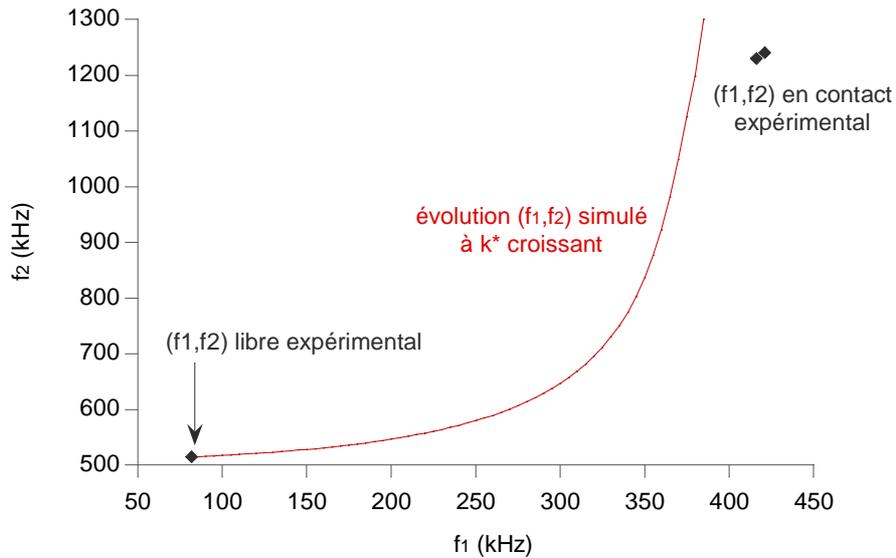


Fig 4.25: Evolution des points (f_1, f_2) lorsque la rigidité de contact normale k^* est croissante et comparaison avec les points expérimentaux obtenus sur l'échantillon de silicium massif.

IV.2.2.2. Cas 2 : La rigidité latérale k_{lat} est variable

Nous avons donc lancé des simulations comprenant un ou plusieurs des paramètres que nous avons laissés auparavant fixés et il est apparu que la prise en compte de variations sur la rigidité latérale améliorerait notre modélisation. Certains articles de la littérature signalent cette influence mais celle-ci est dans la plupart des cas fixée à un rapport d'environ 90% de la rigidité normale k^* comme le calcule Dupas^[Dupas2001] à partir des équations de Johnson pour un contact hertzien avec une pointe incompressible :

$$k_{lat} \approx k_n \frac{1 - \nu}{1 - \frac{\nu}{2}} \approx 0.9k_n \quad (4.17)$$

Nous avons donc employé notre script d'optimisation pour évaluer ce rapport dans notre cas, en utilisant différentes valeurs de k_{lat} . Chaque courbe ainsi construite résulte d'un calcul d'optimisation de plusieurs heures. Ainsi nous avons pu construire la figure 4.26 illustrant la progression (f_1, f_2) simulée lorsque la rigidité k^* augmente.

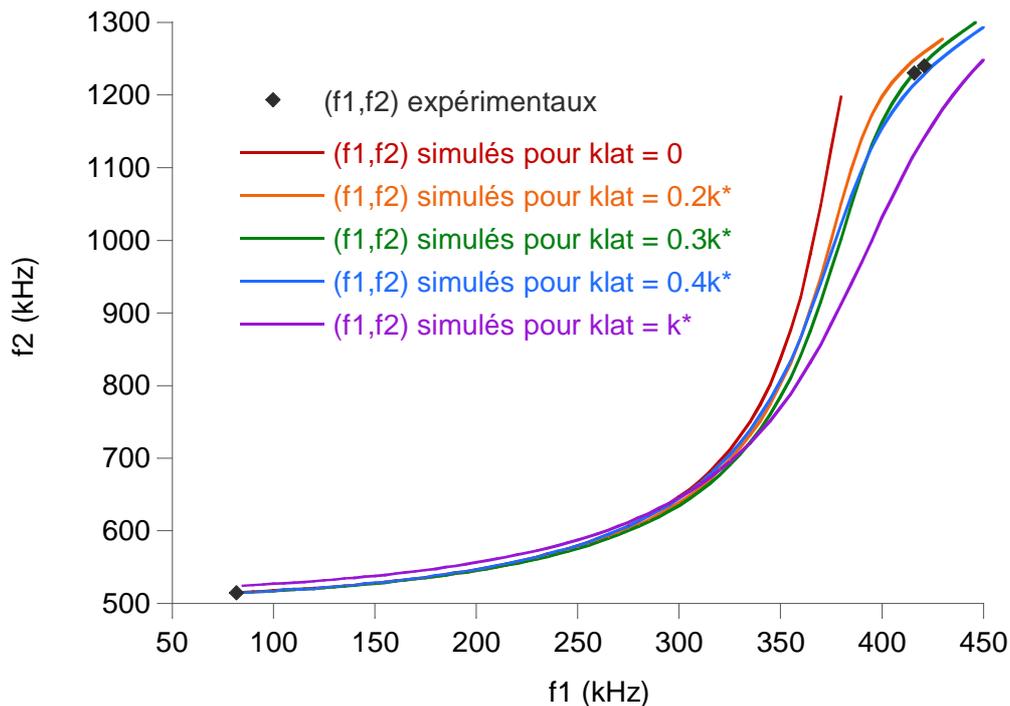


Fig 4.26: Evolution des points (f_1, f_2) simulés pour différents rapports k_{lat}/k^* et comparaison avec les points expérimentaux obtenus sur l'échantillon de silicium monocristallin.

Les résultats obtenus nous indiquent qu'un rapport $k_{lat} = 0.3k^*$ pour l'échantillon de silicium monocristallin nous donne une simulation assez juste du comportement de notre courbe avec un écart de l'ordre de 3 kHz avec les fréquences expérimentales comme nous l'avons reporté sur le tableau 4.3.

Situation du levier	Fréquences expérimentales		Fréquences simulées pour $k_{lat} = 0.3k^*$	
	f_1 (kHz)	f_2 (kHz)	f_1 (kHz)	f_2 (kHz)
Libre	81.824	415.82	82.00	515.0
En contact avec la silice	415.82	1228.2	415.0	1227.0
En contact avec le silicium	421.07	1243.9	420.0	1242.0

Tableau 4.3 : Fréquences expérimentales et après optimisation obtenues pour le levier libre et en contact avec la silice recuite et le silicium monocristallin sous une déflexion de 100 nm.

Cette valeur du rapport entre la rigidité normale et latérale peut s'expliquer par une géométrie de pointe située entre celle d'un poinçon plat et celle d'une sphère comme nous l'avons évoquée pour le modèle précédent.

Pour confirmer ce résultat, nous avons repris cette procédure d'optimisation et nous l'avons comparée aux résultats expérimentaux obtenus sur l'échantillon de silice massive. L'ensemble des résultats obtenus ont été reportés dans la figure 4.27.

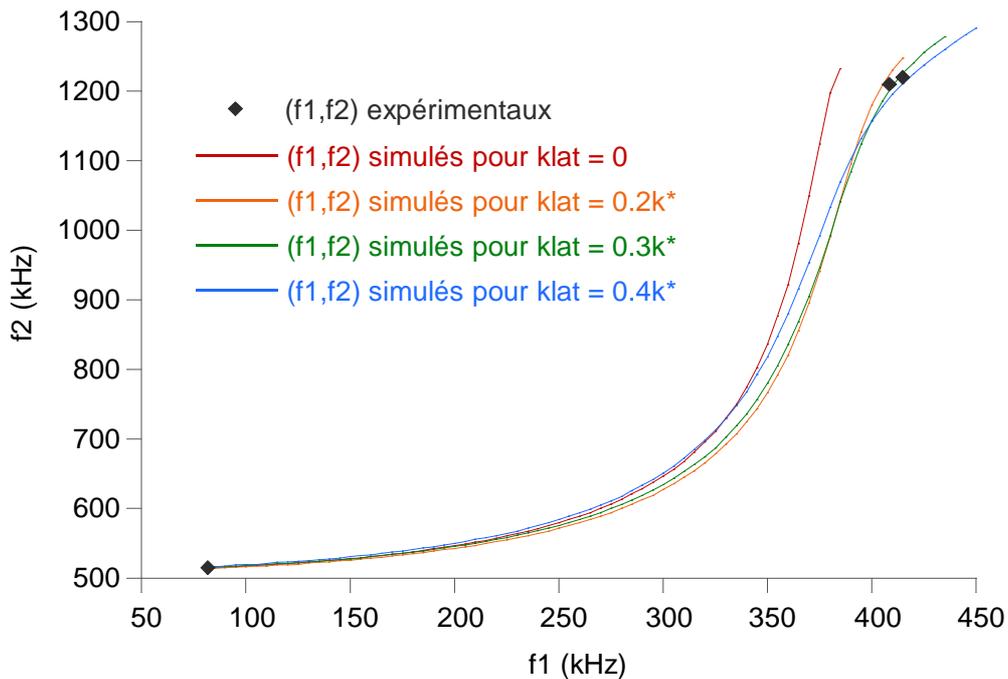


Fig 4.27: Evolution des points (f_1, f_2) simulés pour différents rapports k_{lat}/k^* et comparaison avec les points expérimentaux obtenu sur l'échantillon de silice recuite.

L'analyse des données obtenues confirme l'évaluation précédente d'un rapport $k_{lat} = 0.3k^*$, ce modèle nécessite donc une prise en compte appropriée de la rigidité latérale afin de fonctionner correctement. Les calculs que nous avons effectués nous montre un écart type entre les fréquences expérimentales et simulées d'environ 4 kHz dans ce cas (tableau 4.4).

Fréquences expérimentales		Fréquences simulées pour $k_{lat} = 0.3k^*$	
f_1 (kHz)	f_2 (kHz)	f_1 (kHz)	f_2 (kHz)
81.824	514.52	82.00	515.5
408.44	1209.7	415.0	1207.5
415.04	1219.8	420.0	1226.0

Tableau 4.4 : Fréquences obtenues après optimisation pour l'échantillon de silice recuite

IV.2.3. Bilan

Le modèle analytique que nous avons examiné ici s'avère capable de décrire de façon acceptable le comportement vibratoire des leviers employés mais au prix de l'utilisation d'un nombre important de facteurs. Il utilise de plus un certain nombre d'hypothèses sur le contact, la forme du levier et de sa pointe qui font qu'une adaptation importante des paramètres insérés dans le modèle est toujours nécessaire.

Notre script d'optimisation nous a permis de nous acquitter de cette tâche au prix de la variation entre chaque exécution de paramètres à priori fixés (géométrie du levier). En dépit d'un temps

d'optimisation long, il permet d'obtenir une modélisation des spectres de résonances relevés expérimentalement d'une bonne précision.

Des améliorations restent possibles, en particulier si nous souhaitons prendre en compte l'amortissement qui est observé expérimentalement (Dupas 2001), ou l'adhésion. Pour cette dernière, une étude menée par Stan montre que dans certains cas, sa prise en compte via les modèles JKR et DMT permet d'approcher l'évolution observée sur certains échantillons mais pour notre part, il semble que l'utilisation d'un environnement à humidité contrôlée nous dispense de cette prise en compte et que le modèle hertzien suffise pour approcher suffisamment les fréquences de résonance observées.

IV.3. Modélisation par la méthode des éléments finis (FEM)

Les modèles analytiques que nous avons étudiés sont de bonnes références pour comprendre le comportement vibratoire d'un levier en contact avec une surface. Cependant en l'état, ils ne permettent pas de simuler avec exactitude les fréquences de résonance utilisées en raison de la façon dont ils prennent en compte la géométrie de levier et du contact pointe-échantillon. Pour extraire des valeurs du module élastique, ils nécessitent une optimisation préalable sur leurs paramètres d'entrée à l'aide des données obtenues sur des échantillons de référence.

C'est pourquoi nous avons employé ensuite des simulations par la méthode des éléments finis. En effet, cette méthode permet en résolvant numériquement des équations aux dérivées partielles simuler le comportement dynamique des cantilevers. Elle permet de reproduire avec exactitude la géométrie des structures mises en jeu (pointes, leviers), et de gérer de façon fine le contact entre la pointe et le substrat.

Après avoir discuté des travaux FEM qui ont été effectués sur le mode contact résonant puis des choix que nous avons faits au vu de nos propres études, nous décrirons le modèle que nous avons implémenté, puis des résultats que nous avons obtenus à l'aide de ce dernier.

IV.3.1. Etude bibliographique

Face aux limitations des modèles analytiques, de multiples équipes ont développé des simulations par éléments finis, d'abord en 1D ^[Arinero2003] et 3D sur des modèles simples ^{[Song2006] [Louarn2009]}. Ces premiers modèles doivent simplifier la géométrie du levier afin de limiter leur temps de calculs. Avec l'évolution de la puissance informatique, des modèles 3D plus complets ont été créés reproduisant la géométrie des leviers utilisés de façon précise à l'aide de logiciel comme ANSYS (Ansys inc.) ou COMSOL (Comsol inc.). La plupart de ces études visent à comparer les résultats obtenus par le calcul sur des échantillons variés à ceux déterminés par l'expérience en prenant en compte un nombre plus au moins important d'éléments.

L'un d'entre eux, réalisé par l'équipe d'Espinoza-Beltran ^[Beltran2009] (figure 4.28), est l'un des plus abouti et modélise un levier dans son ensemble, et prend également en compte l'élasticité de son attache ainsi que l'anisotropie du silicium le constituant.

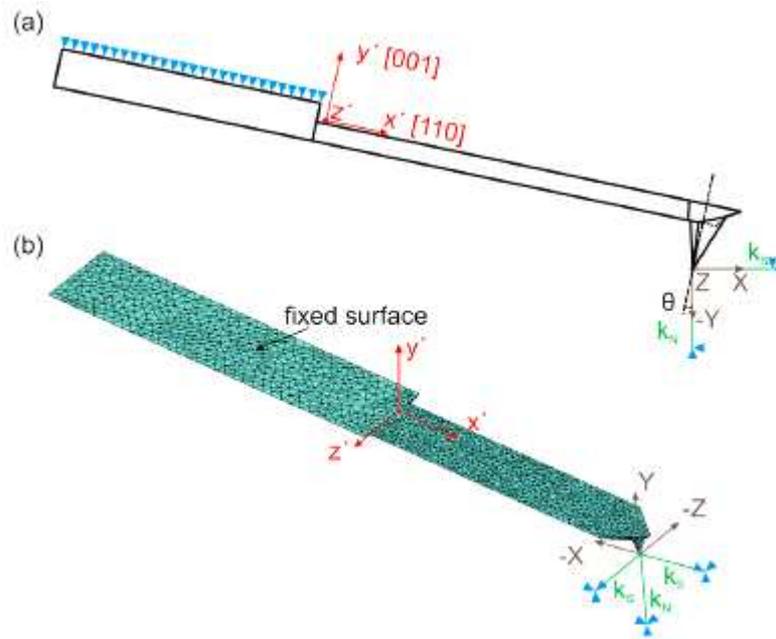


Fig. 4.28 : (a) schéma de la poutre avec son système de coordonnées $\{x, y, z\}$ incliné d'un angle θ par rapport à l'échantillon de surface système de coordonnées $\{X, Y, Z\}$. (b) modèle FEM après le maillage.

Dans leur modèle ^[Beltran2009], des mesures MEB ainsi que des données fournies par le fournisseur ont été utilisées (module élastique et anisotropie du levier). Puis ils ont ajusté la longueur du levier L pour parvenir à minimiser l'erreur entre la première et la troisième fréquence de résonance simulées et expérimentales à moins de 1%. Pour simuler ensuite le contact avec un matériau, un tel modèle utilise un ensemble de ressorts reproduisant l'effet de la rigidité normale k_N et de la latérale k_{lat} . Enfin, ils remontent au module élastique du matériau simulé en utilisant la théorie élastique de Hertz comme nous l'avons fait sur nos précédents modèles analytiques.

Si un tel modèle est capable d'approcher de façon convaincante les fréquences de résonance observées expérimentalement, il ne parvient pas à simuler correctement l'évolution de la rigidité du contact en fonction de la force imposée sur le levier. Il conclut donc sur la nécessité de décrire plus fidèlement le contact pointe-échantillon, et insiste sur la difficulté à adapter le modèle aux échelles nanométriques de ce contact, tout en gardant un levier simulé micrométrique.

Voici en quelques mots, le défi auquel nous avons dû également faire face et la suite de notre étude va décrire la méthode que nous avons utilisée pour nous en affranchir.

IV.3.2. Implémentation du modèle FEM

Le développement de nos différents modèles s'est réalisé sous le logiciel ABAQUS (v 6.10 SIMULIA Dassault). Après une étude sous ANSYS, nous avons finalement choisi le logiciel ABAQUS en raison de sa capacité à gérer les contacts et les déformations entre différents matériaux. Utilisé avec succès pour d'autres travaux ^[Parry2008], il est à même de simuler précisément le contact entre notre pointe et la surface de nos échantillons.

IV.3.2.1. Description du modèle

Pour développer notre modèle tridimensionnel, nous avons pris comme référence nos leviers B2-FMR de Nanotools utilisés sur nos expériences avec les films minces de silice. Constitué essentiellement d'un cristal de silicium monocristallin dont nous avons pris les mesures au MEB (fig. 4.29), ce levier possède des caractéristiques physiques et géométriques bien connues, nous permettant de développer un modèle suffisamment précis (fig 4.30).

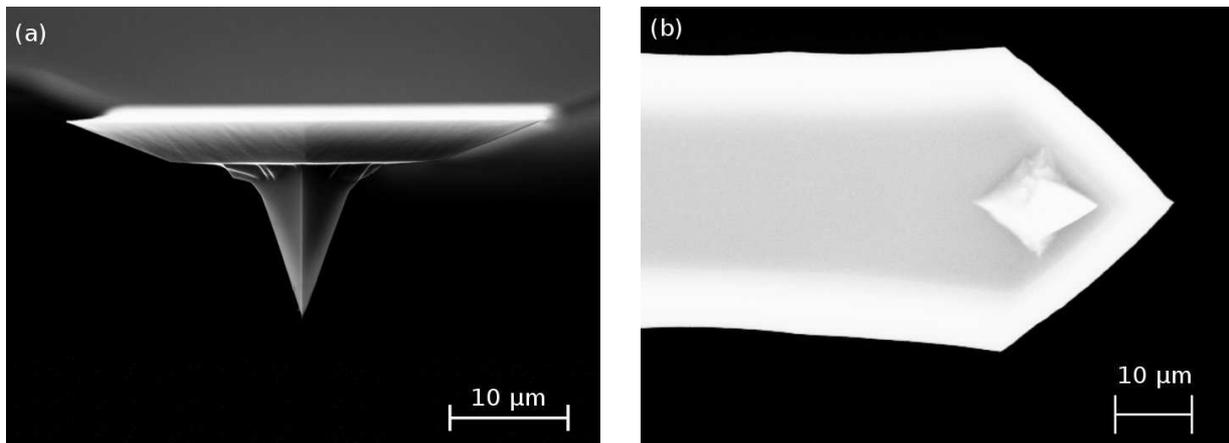


Figure 4.29 : Cantilever B2-FMR en silicium en vue de face (a) et du dessus (b)

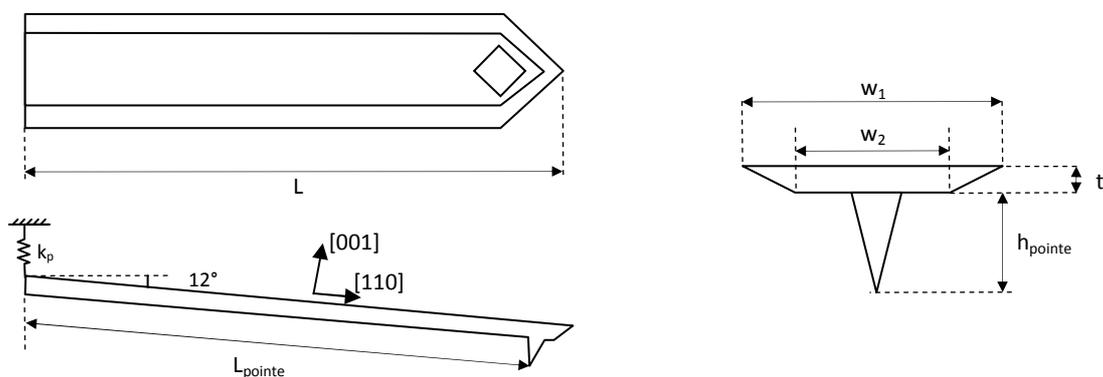


Fig. 4.30 : Schéma de la géométrie du levier utilisé dans la simulation FEM.

Décrit dans le modèle comme une poutre à section trapézoïdale terminée par une extrémité triangulaire, le levier a une longueur totale L et d'une épaisseur t (voir fig. 4.30). Sa pointe, de longueur h_{pointe} , est située à la distance L_{pointe} de la base encastree du levier. Enfin, la section de la

poutre se compose de deux largeurs, w_1 et w_2 . Afin de reproduire l'encastrement du levier avec le support du porte-pointe, nous avons fixé la base du levier à un ressort de rigidité $k_p = 10^7$ N/m et l'ensemble de la poutre est incliné de 12° par rapport à l'horizontal. L'ensemble de la section de la base du levier est lié au mouvement du point d'attache au ressort et ne peut se déplacer que verticalement (fig. 4.31).

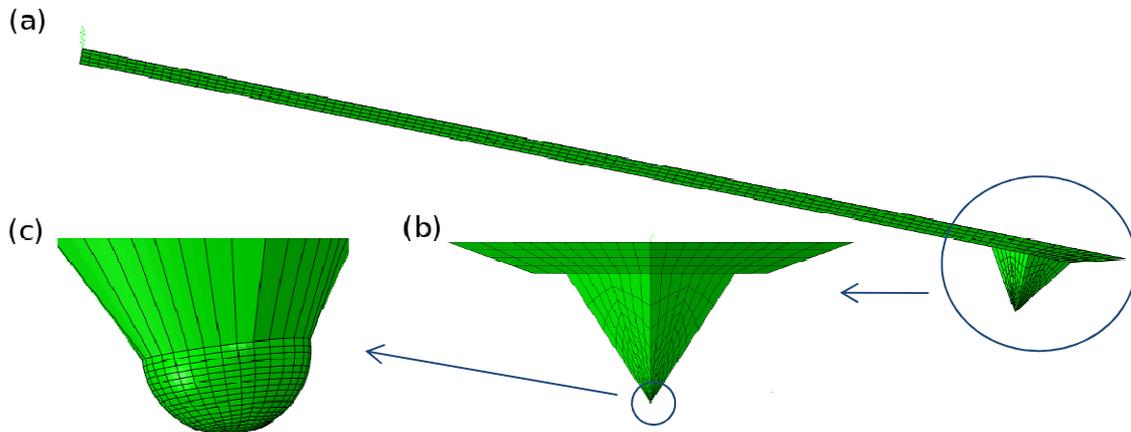


Figure 4.31 : Modélisation du levier B2-FMR sous ABAQUS vue de côté (a) et de face (b) et au niveau de l'extrémité de la pointe (c) maillée plus finement.

L'anisotropie du silicium a été prise en compte, en introduisant un repère local (X, Y,Z) (ref. fig. 4.32) dans lequel on peut définir directement sa matrice de rigidité.

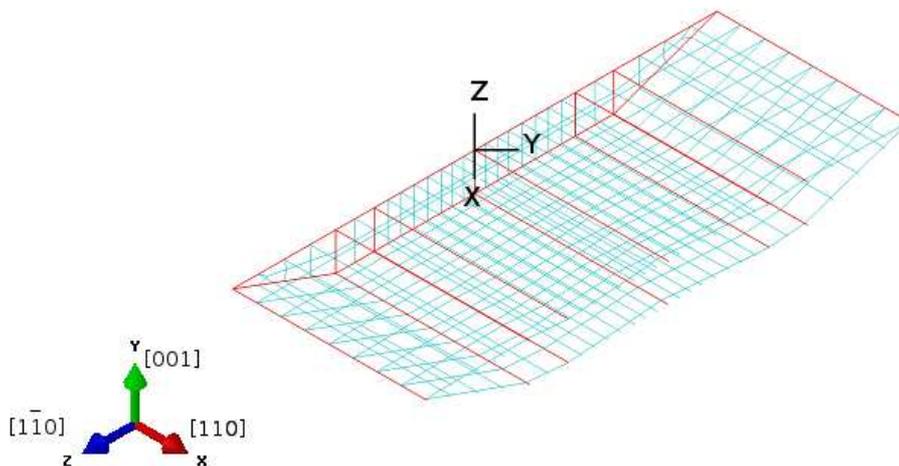


Figure 4.32 : Prise en compte de l'anisotropie du silicium composant levier grâce à un repère spécifique (en noir)

En effet, nous assimilons le silicium monocristallin à un matériau orthotrope décrit par 12 coefficients élastiques indépendants. Cette matrice permet de relier grâce à la loi de Hooke généralisée les contraintes $\bar{\sigma}$ aux déformations $\bar{\epsilon}$. Pour le silicium nous [001] [010] [001] nous implémentons les valeurs suivantes ^[Hopcroft2010] :

$$\begin{Bmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{12} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{23} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} D_{1111} & D_{1122} & D_{1133} & 0 & 0 & 0 \\ & D_{2222} & D_{2233} & 0 & 0 & 0 \\ & & D_{3333} & 0 & 0 & 0 \\ & & & D_{1212} & 0 & 0 \\ \text{sym} & & & & D_{1313} & 0 \\ & & & & & D_{2323} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ \gamma_{12} \\ \gamma_{13} \\ \gamma_{23} \end{Bmatrix} \quad (4.18)$$

$$\text{avec } \begin{cases} D_{1111} = D_{2222} = D_{3333} = 165,7 \text{ GPa} \\ D_{1122} = D_{1133} = D_{2233} = 63,9 \text{ GPa} \\ D_{1212} = D_{1313} = D_{2323} = 79,6 \text{ GPa} \end{cases}$$

Enfin pour l'ensemble des simulations nous avons pris pour densité du silicium, soit $\rho_{\text{Si}} = 2330 \text{ kg.m}^{-3}$.

A partir de l'ensemble de ces données nous avons construit un modèle par éléments finis comprenant 6654 éléments linéaires avec une taille d'éléments de $2 \mu\text{m}$. Comme le montre la figure 4.31, le maillage a été raffiné au niveau de la pointe afin de gérer de manière précise le contact dans cette zone. La détermination des fréquences propres du levier se fait grâce à la méthode Lanczos intégré dans le logiciel ^[Rajakumar1992].

Nous nous intéressons dans un premier temps au comportement du levier libre, c'est pourquoi le modèle ne comporte pas encore une représentation du contact pointe-échantillon. Nous y reviendrons par la suite.

IV.3.2.2. Adaptation du modèle à un levier spécifique

A l'échelle où nous nous plaçons, les leviers AFM présentent tous des caractéristiques uniques, en particulier au niveau géométrique. Les variations des fréquences de résonance des leviers libres en sont le témoignage le plus évident. Ainsi sur un même lot de cantilevers, ces fréquences ne seront jamais identiques quelle que soit la finesse du procédé de fabrication. Nos observations au microscope électronique à balayage nous ont montré ainsi des variations de longueurs de plusieurs micromètres pour un même type de pointe. La méthode des éléments finis nous permettant de reproduire de façon précise la géométrie des cantilevers, nous utilisons lors de l'ajustement du modèle les mesures MEB que nous avons réalisées. Dans le cas présent, nous reprenons les caractéristiques du levier que nous avons utilisé lors de nos mesures en mode contact résonant sur les films minces de silice, la pointe B2-FMR n°4 (fig. 4.33).

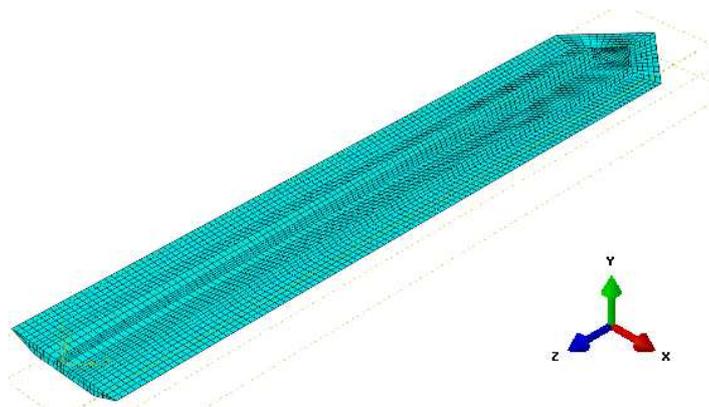


Figure 4.33 : Modélisation de la pointe B2-FMR n°4

Cependant, les observations MEB ont une incertitude plus ou moins importante (de 0.1 à 3.1 μm), ce qui engendre au niveau du modèle FEM des variations de fréquence de plusieurs kilohertz (tableau 4.5). Comme pour les précédents modèles, une phase d'optimisation sur la géométrie du cantilever est donc nécessaire. Et c'est pourquoi après avoir fixé la plupart des dimensions dont l'influence sur les fréquences de résonances est liée, nous modifions par itération l'épaisseur implémentée dans le modèle. Ce choix se justifie par l'incertitude importante qui affecte ces valeurs lors de nos observations. La position de la pointe change ici pour des raisons de construction, nous verrons que sa position va influencer principalement lors du contact.

Dimension	Valeurs mesurées au MEB	Valeurs dans le modèle	Différence relative (%)
longueur L (μm)	232.2 \pm 1.9	232.2	-
position L _{pointe} (μm)	214.5 \pm 3.1	211.5	1.40
hauteur h _{pointe} (μm)	13.04 \pm 0.25	13.04	-
largeur w ₁ (μm)	40.63 \pm 0.14	40.63	-
largeur w ₂ (μm)	23.32 \pm 0.18	23.32	-
épaisseur t (μm)	3.46 \pm 0.31	3.38	2.31

Tableau 4.5 : Dimensions du levier B2-FMR 4 relevées par observations MEB et celles implémentées dans le modèle FEM après optimisation.

Par itération, nous avons rapproché les fréquences de résonance expérimentales aux valeurs simulées. Il est intéressant de noter que cette convergence s'est faite avec des dimensions restant dans le domaine d'incertitude de nos mesures MEB.

Etant donné qu'expérimentalement nous n'avons relevé que les trois premiers modes de résonance en flexion, c'est donc sur ceux-ci que nous avons travaillé pour obtenir au final les valeurs simulées suivantes à l'aide de fonction « analyse modale » d'ABAQUS (tab. 4.6).

Mode de vibration	Fréquences exp (kHz)	Fréquences FEM simulées (kHz)	Différence relative (%)
Flexion 1	81.82 \pm 0.011	81.91	0.11
Flexion 2	514.52 \pm 0.024	514.63	0.02
Latéral 1	-	899.44	-
Torsion 1	-	924.47	-
Flexion 3	1443.90 \pm 0.121	1438.32	0.39

Tableau 4.6 : Mode de résonances du levier B2-FMR 4. Fréquences observées, simulées par FEM et différence relative par rapport à l'expérimental.

Il apparait donc que nous avons un écart inférieur à 1% entre les fréquences simulées et celles relevées expérimentalement. Cette précision est tout à fait comparable à celle obtenue par nos modèles analytiques pour des poutres libres. Mais à la différence de ces derniers, le modèle FEM s'avère au moins aussi performant, tout en étant plus respectueux des caractéristiques propres des leviers (géométrie, anisotropie des matériaux).

IV.3.2.3. Optimisation du modèle FEM pour un levier en contact

Succédant à l'optimisation du modèle de levier libre, la suite des travaux que nous avons menés sur le modèle ABAQUS imposait de se placer dans le cadre d'un contact entre la pointe de levier et de la surface d'un échantillon.

Dans un premier temps, suivant l'exemple de la littérature ^[Beltran2007], nous avons simulé ce contact par un ensemble de ressorts. Nous avons ainsi relié l'extrémité de la pointe à trois ressorts suivant une orientation XYZ prenant en compte l'inclinaison du levier par rapport à l'échantillon. L'un vertical représente la rigidité normale k^* du contact, et deux latéraux reproduisent l'effet de la rigidité latérale k_{lat} (fig. 4.34).

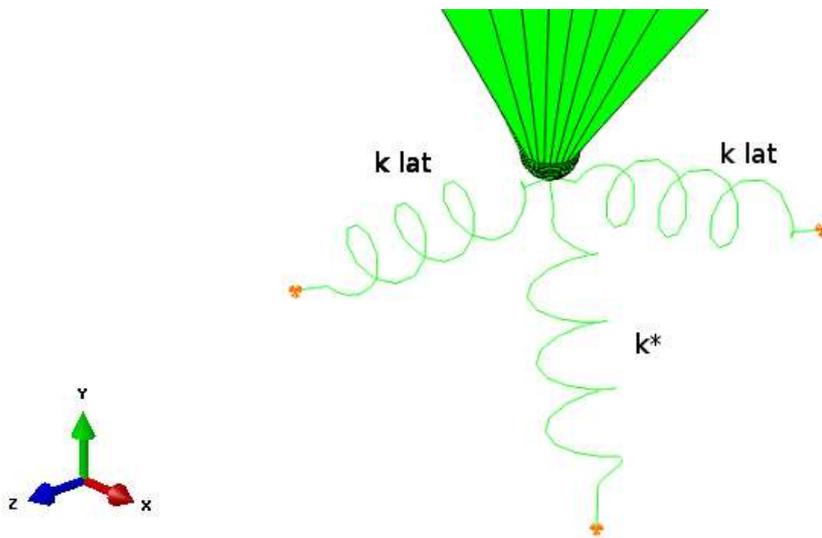


Figure 4.34 : Modélisation du contact par un ensemble de ressorts.

Comme dans nos modèles analytiques, la position de la pointe sur le levier s'avère un paramètre crucial pour prévoir les différentes fréquences de résonance en contact. La littérature souligne d'ailleurs l'importance de cette étape ^[Rabe2006], qui s'avère ici difficile à mettre en œuvre. En effet, les modifications à apporter au modèle pour décaler la pointe le long de la poutre ont plusieurs fois nécessité une refonte complète pour des problèmes de partitionnement inhérent au logiciel. De plus, des modifications de la position de la pointe induisent également un changement dans la répartition de la masse du levier qui va, du coup, ne plus présenter les mêmes fréquences en libre ce qui nous renvoie à l'étape précédente imposant des variations des dimensions géométriques du levier en libre.

Le développement de ce modèle nécessiterait une programmation spécifique, ce qui constitue en soit une étude complète. Il faut en effet faire varier non seulement la position de la pointe, mais aussi le rapport k^*/k_{lat} qui va changer pour chaque échantillon tout comme la valeur de k^* . Ce travail qui s'apparente à celui que nous avons effectué sur le modèle analytique complexe, a fait l'objet d'une étude par une équipe allemande ^[Beltran2009]. Les résultats qu'ils ont apportés mettent en évidence les limites inhérentes au choix de modélisation du contact par des ressorts. Ainsi, il s'avère

incapable de prendre en compte correctement les interactions pointe-surface et les déformations de la pointe. Seul un remplacement des ressorts par un modèle de contact réel le permettrait, mais cela est difficile en raison du changement d'échelle qui est nécessaire entre le levier micrométrique et le contact pointe-échantillon nanométrique. C'est vers cette voie que nous avons choisi de nous orienter, c'est pourquoi nous ne présenterons qu'un résultat avec ce modèle utilisant des ressorts. Il s'agit de l'évolution des fréquences (f_1, f_2) lorsque la rigidité augmente, comme pour notre modèle analytique précédent. Pour la même raison nous nous limiterons au cas d'un rapport $k^*/k_{lat} = 0.3$ qui semblait être le plus approprié.

Pour cela il a fallu modifier la position du point de contact de façon à rapprocher notre modèle des fréquences obtenues expérimentalement. Nous avons alors vérifié si les fréquences libres se situaient toujours dans un domaine acceptable (tableau 4.7), et en effet, c'est bien le cas (<1%). Nous construisons ensuite la courbe f_1 en fonction f_2 en exécutant de nombreuses simulation à rigidité (k^*) croissante du cas libre jusqu'à 9000 N.m^{-1} (fig. 4.35).

Mode de vibration	Fréquences exp (kHz)	Fréquences FEM simulées (kHz)	Différence relative (%)
Flexion 1	81.82 ± 0.011	81.98	0.20
Flexion 2	514.52 ± 0.024	515.88	0.26
Latéral 1	-	899.97	-
Torsion 1	-	924.70	-
Flexion 3	1443.90 ± 0.121	1442.82	0.07

Tableau 4.7 : Mode de résonances du levier B2-FMR 4 après un changement $L_{pointe} = 205 \mu\text{m}$
Fréquences observées, simulées par FEM et différence relative par rapport à l'expérimental.

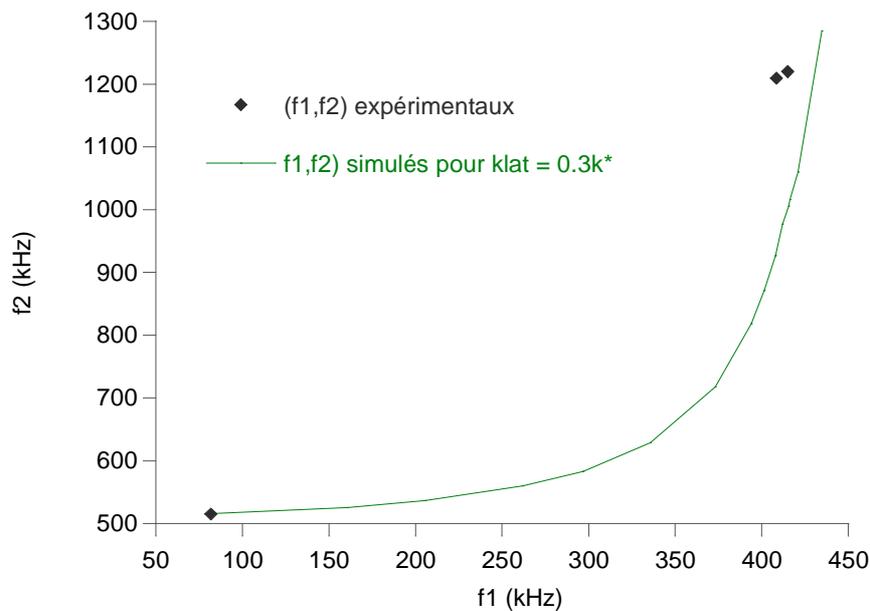


Fig 4.35 : Evolution des points (f_1, f_2) simulés avec notre modèle FEM et comparaison avec les points expérimentaux obtenu sur l'échantillon de silice massive.

La figure 4.35 nous indique que pour le premier mode nous atteignons les fréquences voulues, il semble que cette modélisation soit encore loin de s'approcher correctement des fréquences expérimentales. En l'absence de script d'optimisation, cette approche s'avère trop limitée c'est pourquoi nous ne nous étendrons pas davantage.

IV.3.3. Modèle FEM tridimensionnel levier-échantillon

Dans cette approche, le contact n'est plus modélisé par des ressorts mais par un solide. Cette représentation des échantillons testés est représentée par des éléments solides ce qui permet de gérer le contact entre surface ^[Parlak2008]. Ainsi l'aire de contact peut évoluer au cours du chargement, ce qui devrait se traduire par une augmentation des fréquences des résonances du cantilever.

Nous gardons les modifications géométriques du levier que nous avons faites précédemment, et nous ne considérons que le solide comme étant purement élastique. Le maillage spécifique de cette structure a été développé dans le cadre de travaux sur l'indentation, et permet d'avoir au niveau du contact un maillage très fin (là où les contraintes sont les plus importantes) et plus grossier lorsque nous nous en éloignons (figure 4.36). Le nombre d'éléments en contact atteint ainsi la vingtaine ce qui semble être suffisant pour obtenir de bons résultats.

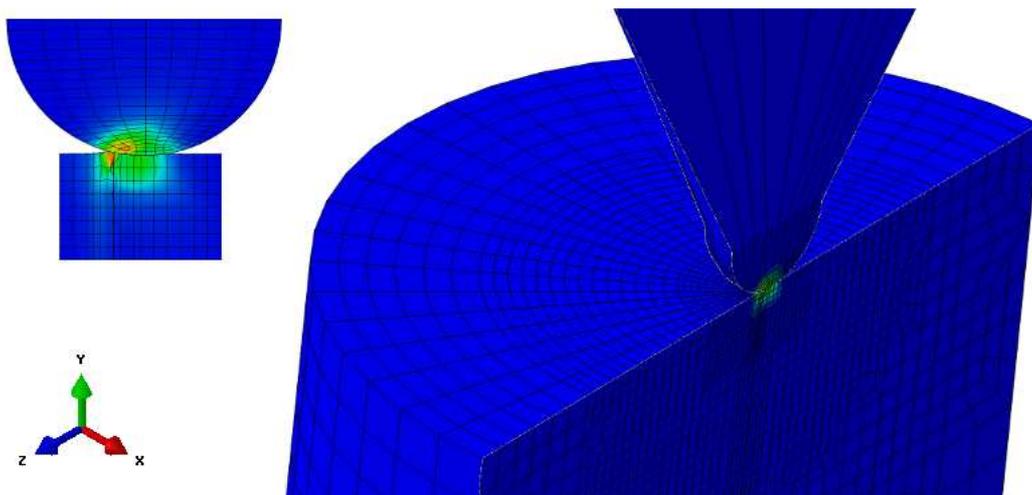


Figure 4.36 : Modélisation du levier B2-FMR sous ABAQUS en contact avec un solide représentant l'échantillon de silice. Vue en coupe du contact (a) et plus globale (b).

Le déplacement vertical du cylindre permet d'imposer de façon simple la déflexion que subit le levier lors de nos mesures. Le contact entre la pointe du levier et la surface se fait via une demi-sphère de 40 nm de rayon, reproduisant la sphère de diamant qui se situe au bout de nos leviers B2-FMR avec lesquels nous avons fait nos expérimentations. A défaut de connaître précisément les caractéristiques physiques de ce matériau, nous avons assimilé ce dernier à du diamant pur. Nous attribuons à l'échantillon les caractéristiques de la silice recuite ainsi puis ultérieurement celle du silicium monocristallin que nous avons utilisé lors de nos mesures sur des films minces ^[Simmons1971]. L'ensemble de valeurs implémentées sont compilées dans le tableau 4.8 ci-dessous.

Matériaux	Densité	Module élastique	Coefficient de Poisson
Silicium	2330 kg/m ³	Orthotrope (cf eq. 4.7)	
Silice	2180 kg/m ³	72 GPa	0,17
Diamant	3515 kg/m ³	1050 GPa	0,10

Tableau 4.8 : Caractéristiques des matériaux insérés dans le modèle.

Nous souhaitons ainsi comparer les fréquences de résonance relevées sur cet échantillon avec celles simulées, et ainsi reconstruire la courbe comparant les fréquences de résonance à la force imposée sur le levier. L'idée sous jacente est d'ouvrir la voie avec ce modèle à la simulation de n'importe quel levier en contact, et d'envisager l'étude de film mince avec cette méthode (fig. 4.37).

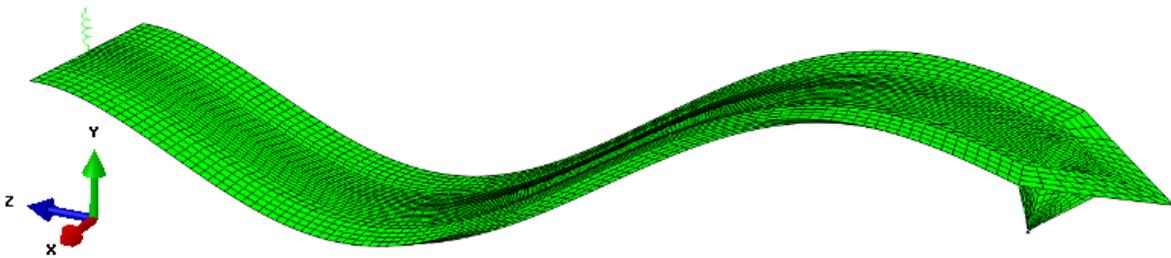


Figure 4.37 : Simulation de la déformation du levier B2-FMR en contact avec un solide pour sa deuxième fréquence de résonance en flexion. Les déformations du levier sont amplifiées 23 fois.

Le défaut de cette approche est qu'elle nécessite un nombre bien plus important d'éléments en ajoutant près de 29472 éléments supplémentaires, et doit gérer en plus une phase de chargement nécessaire pour tenir compte de la déflexion imposée sur le levier. Du coup, chaque calcul prend de 30 à 40 minutes ce qui ne facilite pas nos efforts d'optimisation. Malgré tout, nous avons obtenu de bons résultats même si nous pouvons regretter un meilleur maillage au niveau du contact. En effet, suivant la position de la pointe sur le maillage après sa charge, il apparaît parfois des écarts aberrants au niveau des fréquences si le maillage devient trop grossier. Un repositionnement initial du solide par rapport à la pointe permet de s'en affranchir. Cet effet du maillage affecte également le levier, c'est pourquoi nous discuterons de cette problématique ultérieurement.

Ce modèle nous a permis de reconstruire la courbe nous montrant l'évolution de la première fréquence de résonance en fonction de la force appliquée pour la silice pure et de la comparer à la courbe établie expérimentalement (figure 4.38) :

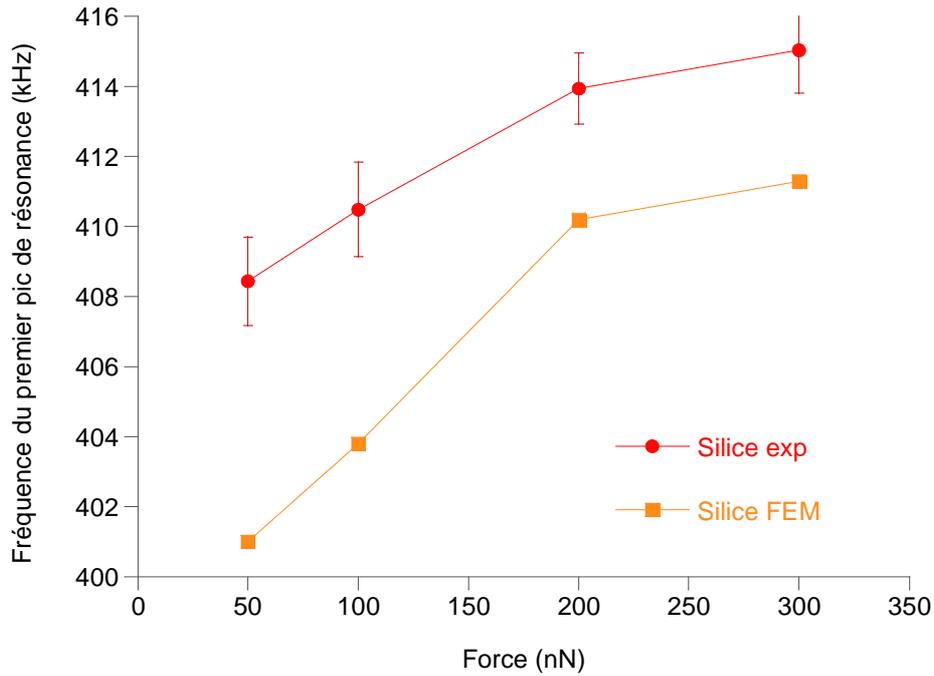


Fig. 4.38 : Evolution de la position en fréquence du premier pic de résonance (à gauche) et du second (à droite) en fonction de la force imposée.

Il reste un écart significatif entre les deux courbes, mais nous pouvons constater que cette courbe obtenue sans nouvelle correction au niveau de la position de la pointe s’approche de par son profil et de ses valeurs du comportement que nous avons observé expérimentalement. Nous avons donc retravaillé la géométrie du modèle, essentiellement sur la position de la pointe ($L_{\text{pointe}} = 204 \mu\text{m}$), pour obtenir une meilleure corrélation au final (tableau 4.9).

Mode de vibration	Levier libre		Levier en contact	
	Fréquences simulées (kHz)	Différence relative (%)	Fréquences simulées (kHz) sur la silice recuite	Différence relative (%)
Flexion 1	81.23	0.73	414.86	0.23
Flexion 2	513.34	0.23	1220.74	0.61
Flexion 3	1439	0.34	-	-

Tableau 4.9 : Mode de résonances du levier B2-FMR 4 pour l’échantillon de silice sous une déflexion de 100nm. Fréquences simulées par FEM et différence relative par rapport à l’expérimental.

Les valeurs obtenues par la simulation FEM restent proches à moins de 1% de celles relevées expérimentalement sans que nous ayons eu besoin de modifier profondément notre modélisation (la pointe s’est juste décalée de $1 \mu\text{m}$). Nous parvenons à une bonne corrélation des valeurs en contact et du coup, nous avons poursuivi nos simulations pour reconstruire la courbe fréquence de résonance en fonction de la force pour la silice recuite et le silicium monocristallin (fig. 4.39).

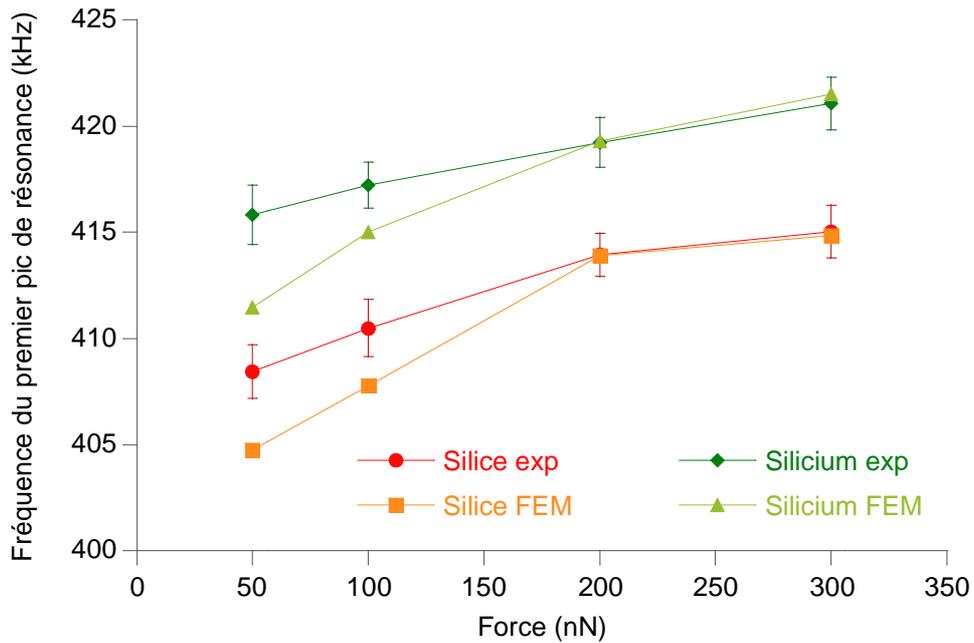


Fig. 4.39 : Evolution de la position en fréquence du premier pic de résonance (à gauche) et du second (à droite) en fonction de la force imposée.

Lorsque nous analysons ce graphique nous constatons que les valeurs simulées par la méthode des éléments finis se rapprochent beaucoup de celles relevées expérimentalement (> 2%), en particulier pour celles simulées aux plus grandes forces. Comparée à la simulation précédente utilisant des ressorts, cette représentation du contact permet un bien meilleur fit des courbes expérimentales ce qui nous conforte dans nos choix. Des différences subsistent encore, une des raisons pouvant être à leur origine réside dans la finesse du maillage qui mériterait d'être encore raffinée si cela était possible (limitation des possibilités de calcul). L'illustration présentant le champ de contraintes à différents moments de la charge (fig. 4.40) semble en tout cas l'indiquer.

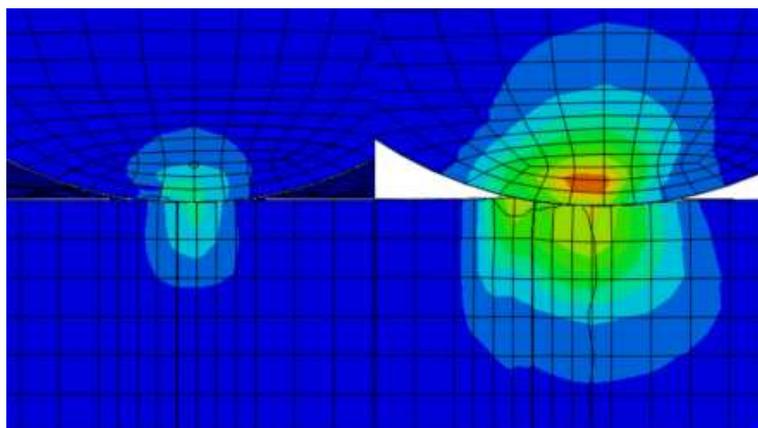


Figure 4.40 : Evolution du champ de contrainte lors de la charge

En conclusion, ce modèle réussit donc à reproduire relativement correctement le comportement d'un cantilever, ce qui ouvre la voie à de multiples applications. Cependant, il s'avère assez long à calculer, c'est pourquoi nous avons envisagé un modèle alternatif.

IV.3.4. Modèle FEM de poutre 1D – pointe 3D

A la fin de nos travaux de thèse, une modélisation combinant un modèle de poutre et une pointe tridimensionnelle a été menée (fig. 4.41).

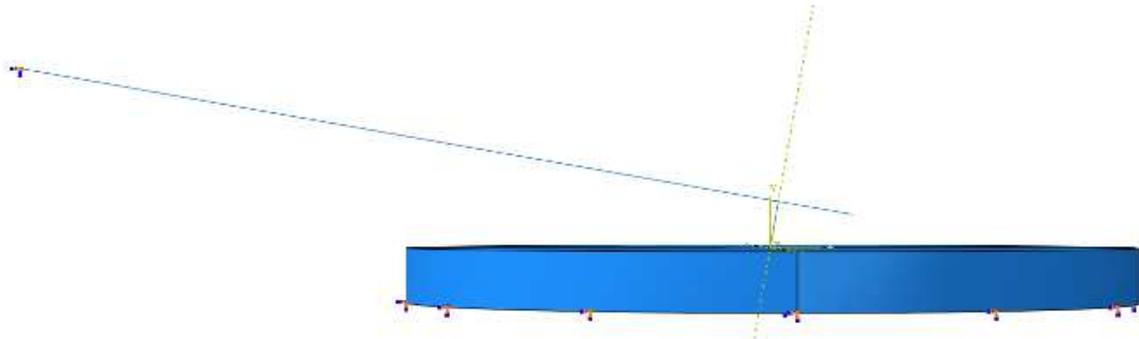


Figure 4.41 : *Nouveau modèle FEM*

Dans cette représentation, la poutre est modélisée sous la forme d'une ligne prenant en compte sa section trapézoïdale, de même que la pointe qui intègre sa géométrie comme une caractéristique au même titre que le module élastique. Outre les défauts soulevés dans la partie précédente, cette représentation ne prend pas en compte la géométrie de l'extrémité de la poutre, ni le caractère pyramidal de la pointe. Ceci entraîne des modifications dans la distribution dans l'espace du matériau composant le levier, d'où un comportement vibratoire différent. Face à cela, nous avons décomposé la pointe en trois parties de section différente et modifié la densité de la partie située entre la pointe et l'extrémité de la poutre.

Un tel levier se représenterait tridimensionnellement comme l'illustre la figure 4.42.

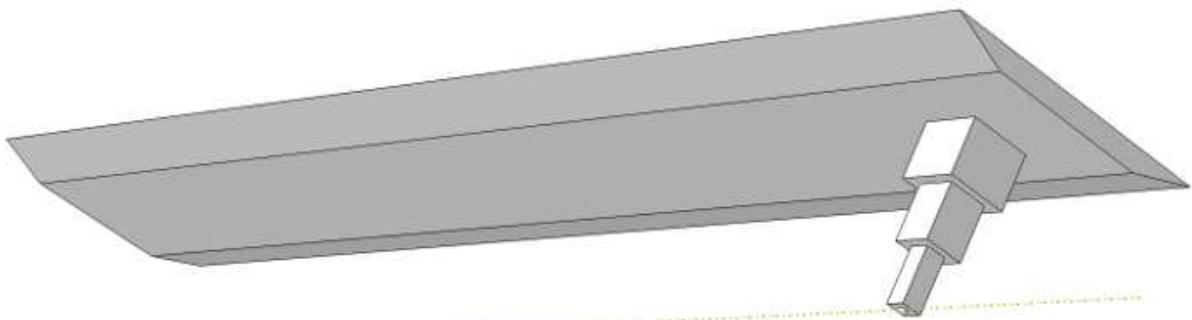


Figure 4.42 : *Représentation tridimensionnelle du nouveau modèle FEM*

En contrepartie, ce modèle plus léger nous permet de raffiner davantage le contact entre la pointe et le solide élastique représentant notre échantillon (fig. 4.43). Nous avons ainsi plus d'une vingtaine d'éléments en contact, pour un total inférieur à 5000 éléments, ce qui nous permet des simulations très rapides, et donc une optimisation bien plus rapide.

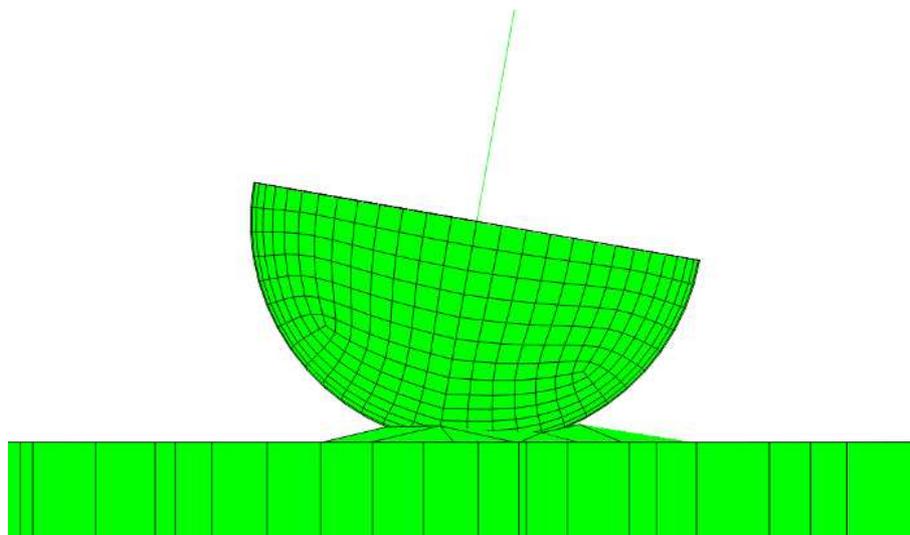


Figure 4.43 : *Modèle de poutre 1D FEM « ligne »*

Pour des raisons de temps, nous nous sommes limités à quelques simulations ponctuelles que nous avons réunies dans ce tableau 4.10.

Mode de vibration	Levier libre		Levier en contact	
	Fréquences simulées (kHz)	Différence relative (%)	Fréquences simulées (kHz) sur la silice recuite	Différence relative (%)
Flexion 1	81.81	0.02	415.35	0.07
Flexion 2	514.94	0.08	1013.31	16.93
Flexion 3	1442.42	0.10	-	-

Tableau 4.10 : *Mode de résonances du levier B2-FMR 4 pour l'échantillon de silice sous une déflexion de 100 nm. Fréquences simulées par le nouveau modèle FEM et différence relative par rapport à l'expérimental.*

Les résultats en libre sont bons, en contact aussi, mais seulement pour la première fréquence de résonance. La seconde s'écarte de plus de 16% des fréquences expérimentales, signe que ce modèle n'est pas encore valable.

Afin de déterminer sur quel modèle nous devons poursuivre nos efforts, une étude sur les limites de chaque modélisation a été menée. Les résultats de ces travaux sont exposés dans la partie suivante.

IV.3.5. Limites des modèles de poutres

Dans le présent paragraphe, les limites de la validité des modèles de poutres dans l'interprétation quantitative des mesures du CR-AFM sont discutées. Dans ce but, les vibrations d'un solide de forme parallélépipédique (voir dimension fig. 4.44) et de loi de comportement élastique isotrope sont étudiées.

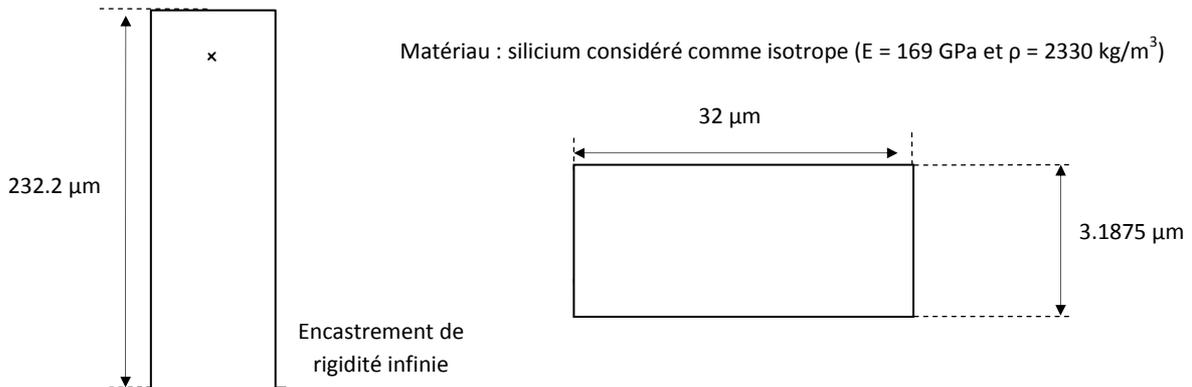


Fig. 4.44 : Poutre simulée vue de dessus et en coupe

Trois modèles différents sont comparés à l'aide de la méthode des éléments finis ^[Cecchi2004]:

- le modèle de poutre
- le modèle de plaque
- le modèle de 3D

Pour comprendre les différences entre ces trois modèles, nous rappelons rapidement quelques éléments de la théorie des poutres.

- *Quelques notions de la théorie des poutres :*

Dans ce cadre, les leviers peuvent être modélisés par une poutre de section droite S . Au niveau de son centre d'inertie G passe une courbe appelée fibre moyenne ou fibre neutre dans le sens de la longueur de la poutre. A la fibre moyenne est associé un repère $(G, \vec{u}_{x1}, \vec{u}_{x2}, \vec{u}_{x3})$, tel que \vec{u}_{x1} est un vecteur unitaire tangent à la fibre neutre (fig. 4.45). Ainsi, une section droite peut être identifiée par la coordonnée x_1 de son centre d'inertie $G = G(x_1)$.

Nous faisons alors une hypothèse cinématique fondamentale : nous supposons que les sections droites restent droites. Cela signifie que chaque section droite, caractérisée par sa coordonnée x_1 , à un déplacement de type "solide rigide".

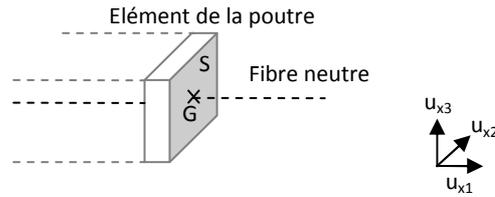


Fig. 4.45 : Modèle cinématique d'une poutre

Si nous prenons un point M quelconque d'une section situé en x_1 , il est alors possible d'écrire ainsi son déplacement (à condition que les rotations des sections droites restent modérées).

$$\vec{U}^M = \vec{U}^G(x_1) + \vec{r}(x_1) \wedge \overline{GM} \quad (4.19)$$

Avec $\vec{r}(x_1)$ le vecteur rotation de la section, $\vec{U}^G(x_1)$ le déplacement du point G et $\vec{U}^M(x_1)$ le déplacement du point M de la section.

Si nous nous intéressons en particulier au cas de la flexion plane d'une poutre droite, c'est-à-dire d'une flexion dans le plan (O, x_1, x_2) . Nous avons $\vec{r} = \theta \vec{x}_3$, $\overline{GM} = x_2 \vec{u}_{x_2} + x_3 \vec{u}_{x_3}$, $U_3^G = 0$, où θ est l'angle de rotation de la section autour de sa position initiale (voir figure ...). Nous posons $U_1^G = u$ et $U_2^G = v$. Nous pouvons alors écrire :

$$\vec{U}^M = \begin{pmatrix} \vec{u}_{x_1} - \theta(x_1)x_2 \\ \vec{v}_{x_1} \\ 0 \end{pmatrix}_{(x_1, x_2, x_3)} \quad (4.20)$$

Et ensuite, nous en déduisons les déformations au point M :

$$\varepsilon^M = \begin{pmatrix} u_{,1} - \theta_{,1} x_2 & \frac{v_{,1} - \theta}{2} & 0 \\ \frac{\vec{v}_{,1} - \theta}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}_{(x_1, x_2, x_3)} \quad (4.21)$$

Ce lien entre déplacement \vec{U}^M et déformation ε^M dépend du type de théories élastiques utilisées, et suivant les modèles utilisés, nous verrons que leurs hypothèses sont plus ou moins simplificatrices.

- *Modèles simulés :*

Ces différents modèles sont implémentés dans ABAQUS. Ainsi, contrairement au modèle élastique 3D, pour lequel le champ de déplacements est recherché en tout point du volume, les modèles de plaque et de poutre présentent des simplifications conduisant à des hypothèses cinématiques particulières. Comme nous l'avons vu précédemment, dans le cas de la poutre le déplacement est recherché le long de la fibre neutre (fig. 4.45). Le modèle FEM ne représente que cette ligne d'où son nom de modèle 1D. La section de la poutre $S(x_1)$ doit être rentrée dans le modèle comme un paramètre.

Dans le cas de la plaque (fig. 4.46), ce n'est plus d'une fibre neutre, mais d'un plan neutre qu'il s'agit dont le déplacement peut être noté $u_G(x_1, x_2)$. Une hypothèse cinématique de type "mouvement de corps rigide" est alors formulée pour les points situés le long de la normale de chaque point $M(x_1, x_2)$ du plan neutre. ^[Koiter1959] L'épaisseur de la plaque $h(x_1, x_2)$ doit alors être rentrée comme un paramètre.

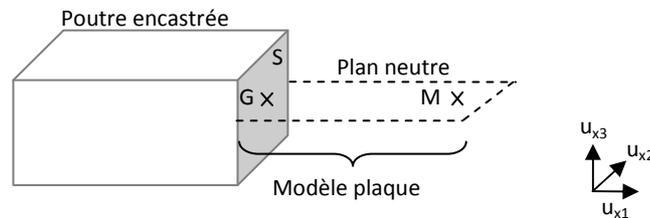


Fig. 4.46 : *Modèle cinématique de la plaque simulée (2D)*

Après avoir construit ces deux modèles dans ABAQUS avec un troisième tridimensionnel, et entré les mêmes paramètres, nous avons comparé les fréquences obtenues pour le premier mode de résonance (fig. 4.47). Pour comparaison, nous avons inséré les résultats du second modèle analytique (cf partie IV.2) fourni pour une telle poutre.

Nous relevons un écart de 0,5 Hz entre les modèles FEM, 3D et 2D et les modèles 1D/analytique. Le modèle 3D étant le plus proche du mouvement d'une poutre réelle, il est donc préférable de se limiter à celui-ci et à celui de la plaque lorsque nous utilisons la méthode des éléments finis.

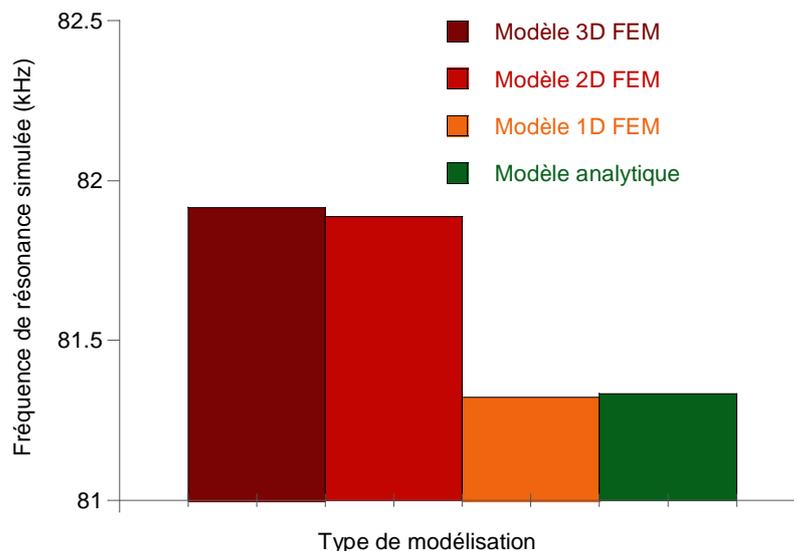


Fig. 4.47 : *Position de la fréquence du premier mode de résonance en flexion de la poutre simulée suivant le type de modélisation.*

En effet, pour l'ingénierie classique, où nous ne cherchons pas des fréquences à 1 Hz près, le modèle de poutre est valide (modèle 1D). Beaucoup plus léger, il permet d'effectuer des calculs très

rapidement. Cependant, pour le mode CR-AFM, sa précision est insuffisante et *l'écart de 0,5 Hz est considérable*.

Le modèle de plaque est une bonne alternative: il est plus simple que le modèle 3D tout en donnant des résultats très proches. Nous pourrions donc envisager de développer un tel modèle.

D'après ces conclusions, nous avons orienté nos efforts de développement sur le modèle tridimensionnel et délaissé le modèle combinant une poutre (1D) et une pointe tridimensionnelle. Les derniers résultats du modèle tridimensionnel nous permettent d'envisager d'étendre la simulation à des films minces sur substrat en comparant à la fois les résultats du modèle et ceux obtenus expérimentalement par AFM en mode contact résonant.

IV.4. Résumé du chapitre

Ce chapitre a développé les différentes solutions que nous avons envisagées pour relier les fréquences de résonances, que notre montage CR-AFM nous livre aux propriétés mécaniques des matériaux.

Dans un premier temps, nous avons repris le modèle de référence sur le sujet, un modèle analytique simple qu'utilisent des équipes majeures dans le domaine du CR-AFM ^[Hurley2009] ^[Stan2010]. Simplifiant beaucoup le comportement du levier, il nécessite des échantillons de référence suffisamment proches des caractéristiques mécaniques des échantillons étudiés sans quoi il ne permet pas d'obtenir des résultats valables. Après avoir programmé un ensemble de scripts d'optimisation nous permettant d'approcher correctement les caractéristiques de nos courbes, nous avons pu obtenir des résultats pertinents sur nos films minces de silice.

Face aux limites de cette modélisation, nous avons repris et amélioré un modèle analytique beaucoup plus complet. Prenant en compte de nombreux paramètres supplémentaires, il a nécessité le développement d'un algorithme beaucoup plus conséquent et nous a permis de souligner l'importance de la prise en compte de la rigidité latérale pour parvenir à une approche valable de nos résultats expérimentaux.

Enfin, nous avons développé plusieurs simulations par éléments finis qui nous ont permis de reproduire de façon satisfaisante les observations que nous avons faites par le mode CR-AFM sur les matériaux massifs. A ce jour, la prise en compte à la fois de la géométrie précise des cantilevers et du contact pointe-échantillon n'avait pas été entreprise dans la littérature.

Ces travaux sur la modélisation par la méthode des éléments finis ont permis d'observer les limites des modélisations analytiques simplifiées type poutre par rapport à leur équivalent tridimensionnel. Le modèle de poutre semble présenter un écart intrinsèque important par rapport à la modélisation 3D. Si cet écart n'est pas gênant en ingénierie classique (0,5 Hz dans notre exemple), il peut par contre s'avérer rédhibitoire pour l'exploitation des données expérimentales d'AFM en mode contact résonant. Enfin, un modèle très léger capable de simuler tridimensionnellement le contact entre le levier et un solide a été mis au point. Il ouvre de nombreuses perspectives pour l'étude des cantilevers en mode CR-AFM, allant d'une forme de pointe complexe, à des études sur la propagation des déformations suivant la force imposées dans des structures complexes.

Conclusion

L'ensemble des travaux présentés ici fait partie d'une étude plus vaste sur la mise au point d'outils de caractérisation innovants combinant les possibilités d'instruments indépendants. Ces nouveaux appareils doivent permettre d'identifier et d'analyser sous un angle différent les problèmes de fiabilité affectant les circuits intégrés. Le développement au sein du SIMaP d'un mode contact résonant sur un microscope AFM répond à cet objectif. C'est pourquoi nous avons tenu à valider notre montage sur des échantillons couramment utilisés dans l'industrie du semi-conducteur. C'est également la raison pour laquelle, nous avons tenu à disposer d'un instrument capable de réaliser des imageries quantitatives en mode contact résonant, à même de situer et d'analyser les structures présentes dans ces matériaux. Une part importante de cette étude est donc consacrée à l'expérimentation, puis à l'analyse des données produites, ce qui nous a régulièrement amené à apporter des améliorations à nos montages.

Pour cela, une bonne compréhension des phénomènes mis en jeu était essentielle, et c'est ce que nous avons fait dans le premier chapitre. Après un rapide historique de la microscopie acoustique, nous avons examiné le fonctionnement de l'instrument à la base de notre technique, le microscope à force atomique ainsi que les forces auxquelles il est sensible. Puis les différents modes acoustiques ont été abordés pour arriver sur celui qui nous intéresse, le CR-AFM dont nous avons décrit les possibilités en particulier dans le domaine de l'imagerie et des mesures à faibles forces.

La suite de ce chapitre se consacre aux bases théoriques du mode contact résonant, pour relier les fréquences de résonance mesurées par l'instrument à la rigidité du contact grâce à une meilleure connaissance de la cinématique d'un levier encastré. Puis pour relier cette rigidité aux propriétés mécaniques du matériau sondé, nous avons exposé les théories du contact majeures et nous les avons appliquées à la configuration d'un contact entre une pointe CR-AFM et la surface des matériaux testés. A cette occasion, nous avons mentionné l'importance des forces d'adhésion dans certains modèles (JKR, DMT). Afin de se placer dans une situation plus simple, nous avons ensuite orienté notre développement instrumental de façon à limiter au maximum ces dernières et nous permettre d'utiliser le modèle de Hertz. Enfin, puisque nous voulons expérimenter le mode contact résonant sur des films minces, les spécificités d'un tel contact sur la mesure du module élastique sont décrites tout comme les implications sur nos futures mesures.

Le second chapitre retrace l'ensemble des développements que nous avons apportés sur le mode contact résonant du microscope AFM du laboratoire. Nous présentons deux montages expérimentaux, l'un reposant sur un détecteur synchrone qui n'autorise que des mesures locales, et l'autre utilisant une carte d'acquisition numérique DAQ, dont la rapidité nous a permis la réalisation de cartographies quantitatives en mode contact résonant. Une attention singulière a été apportée à

la synchronisation entre les différents instruments impliqués dans les montages ainsi qu'à l'enregistrement et au traitement des données brutes, ce qui a suscité le développement de nombreux programmes de contrôle sous Labview. Sans ce travail, les résultats fournis par le CR-AFM auraient beaucoup perdu en précision (pas de compilation statistique à la volée), et en perspectives (imagerie CR quantitative). Aujourd'hui encore, ce travail de développement instrumental se poursuit, et même si dans ce travail de recherche nous n'avons pas pu profiter de l'ensemble des innovations que nous avons apportées au montage arrivé trop tardivement, celui-ci s'avère aujourd'hui parfaitement fonctionnel et fiable.

L'établissement d'un protocole expérimental a constitué l'autre préoccupation majeure lors de notre développement instrumental. En effet, l'évolution des pointes en cours de mesures, ainsi que la sensibilité à la topographie de surface de la technique, nous ont amené à proposer une procédure originale. Etablie de façon empirique, et élucidée par les travaux effectués dans le domaine de la nanoindentation, cette méthode nous a permis d'obtenir une reproductibilité suffisante pour pouvoir exploiter les mesures CR-AFM.

Le chapitre se poursuit ensuite sur les diverses optimisations que nous avons apportées sur le montage CR-AFM afin d'améliorer sa précision. Ainsi, le travail sur la méthode d'excitation employée est exposé, et l'intérêt du système électrostatique démontré. Capable de différencier clairement les différentes fréquences de résonance mesurées, il évite l'écueil des pics parasites que provoquent les transducteurs piézoélectriques et sera donc préféré par la suite. Puis nous avons exposé les avantages qu'un environnement contrôlé nous a apporté, en particulier sur l'influence des forces d'adhésion qui a été fortement réduite. De même, l'impact de l'usure des pointes AFM très négatif pour les expériences de CR-AFM a été limité grâce au choix de leviers récents. Renforcé par du diamant, ils se sont avérés indispensables pour toute mesure quantitative. Enfin, cette partie se conclut par l'étude de la rigidité des leviers afin d'estimer correctement la force qui est imposée sur le levier. En effet, une connaissance précise de cette grandeur est nécessaire pour la plupart des modèles reliant les modes de résonance aux propriétés mécaniques des matériaux étudiés. A cette occasion, nous développons brièvement un montage totalement original de mesure de la constante de raideur des cantilevers.

Le troisième chapitre s'attache quant à lui à présenter et à analyser les résultats obtenus sur différentes familles d'échantillons. Dans un premier temps, il se consacre à des échantillons modèles constitués de films minces de silice déposés sur un substrat de silicium. Ces empilements serviront d'échantillons de référence pour la suite de nos travaux. En effet, ce sont ces derniers qui serviront de référence dans nos modélisations. A l'analyse des données récupérées avec deux pointes différentes, l'aptitude de la technique contact résonant à sonder à très faibles forces des films de quelques dizaines de nanomètres est mise en évidence. L'évolution des fréquences de résonance en fonction de l'épaisseur des films est cohérente avec celle prédite, les positions des matériaux massifs de référence peuvent d'ailleurs le confirmer. De façon semblable, l'évolution des fréquences avec la force imposée rejoint nos attentes, et semble indiquer un profil sphérique pour nos pointes. Une

étude comparative au nanoindenteur a pu être menée sur ces échantillons, et nous montrer les limites de cette technique sur des films aussi fins.

Par la suite, les résultats obtenus sur d'autres empilements et structures complexes sont présentés sous forme de spectrométrie et de cartographie en mode contact résonant. Nous retiendrons en particulier les images obtenues sur les films de silice nanoporeuse. Des cavités présentes sous la surface des échantillons apparaissent distinctement, attestant de la capacité du CR-AFM à imager des défauts subsurfaces. De manière analogue, les résultats produits sur les interconnexions cuivre/silice sont remarquables de précision. Le contraste entre les lignes conductrices et le diélectrique est clairement marqué. De plus, ces cartographies ne sont pas de simples images, mais elles contiennent des informations sur la position des premiers modes de résonances qui permettent d'identifier très clairement chaque élément présent. Il est par contre apparu que sur des films rigides déposés sur des couches plus souples, le CR-AFM ne parvenait pas à établir des résultats pertinents. Évalué tardivement, ce résultat requiert des études complémentaires pour vraiment être confirmé et expliqué.

A partir de ces résultats bruts, il nous a fallu (pour remonter aux propriétés mécaniques des matériaux) s'intéresser aux modèles de l'ensemble levier-échantillon. C'est l'objet du chapitre 4, dans lequel nous évaluons la pertinence de chaque modèle. L'idée est de proposer ainsi une solution valable pour le traitement des données CR-AFM en fonction de l'attente et de la précision recherchée. Pour démarrer cette étude, nous avons pris le modèle analytique le plus utilisé dans la littérature. Après une étude approfondie, il apparaît que les hypothèses simplificatrices qui affectent ce modèle nous imposent l'utilisation d'échantillons de référence pour nous permettre de faire le lien avec le module élastique apparent de chaque film. Cette solution efficace dans le cas de matériaux de référence proches de ceux analysés s'avère insuffisante lorsque davantage de précision est recherchée.

Le chapitre 4 se poursuit donc par une étude d'un modèle analytique beaucoup plus complet, décrivant avec de nombreux paramètres les spécificités des leviers employés. Une solution d'optimisation sous Matlab s'est donc avérée nécessaire et nous a apporté la preuve de l'importance de la rigidité latérale du contact dans de telles modélisations. Il est intéressant de noter qu'une telle prise en compte se développe actuellement dans des équipes travaillant sur le mode contact résonant (Hurley, Stan).

Enfin, en parallèle, nous avons développé des modélisations par la méthode des éléments finis. Des résultats prometteurs ont été obtenus à cette occasion avec une simulation complète de système levier-échantillon qui a abouti à une corrélation pertinente avec nos résultats expérimentaux. Sa représentation du contact nous permet de vérifier l'évolution en fonction de la force imposée que nous avons relevée sur nos films de silice. Puis nous avons établi les limites des différentes approches en fonction des hypothèses que chacune a pris en compte. Enfin, nous avons entrepris le développement d'un modèle de levier novateur ouvrant la voie à des études

approfondies du comportement vibratoire d'un levier en contact avec différents échantillons (forme de la pointe complexe, échantillon structuré).

Finalement, nous retiendrons de ce manuscrit qu'il retrace l'ensemble des développements permettant désormais de disposer au sein du laboratoire d'une technique fiable capable d'imager avec la résolution du microscope à force atomique les propriétés mécaniques des matériaux. De nombreuses perspectives sont ouvertes sur le plan expérimental comme sur celui de la modélisation. Ainsi, le montage CR-AFM utilisant une table piézoélectrique (déplacements X, Y, Z) pourrait faire l'objet d'améliorations supplémentaires (mesures à multiples forces, diminution des vibrations). Un autre axe d'étude viserait à réaliser un montage capable d'enregistrer des modes de résonance supérieurs, dont l'exploitation pourrait aider à obtenir les propriétés mécaniques locales des matériaux avec une bien meilleure précision. Enfin, la cartographie CR-AFM d'échantillons « mous » tels que des polymères ou des échantillons biologiques constitue un défi captivant. Au niveau de la modélisation, avec la mise au point d'un modèle par la méthode des éléments finis décrivant le système tridimensionnel levier-échantillon, de nombreuses possibilités s'ouvrent pour améliorer cette approche. Une meilleure description du contact pointe surface peut ainsi être entreprise en tenant compte d'une géométrie plus complexe de la pointe et d'un milieu plus seulement élastique, mais élasto-plastique. En parallèle, la simulation de films minces sur substrat restera un challenge.

Les possibilités de développements du CR-AFM sont considérables, et l'intérêt que suscite cette technique s'avère croissant. Des projets d'intégration de ce mode au sein des AFM commercialisés sont étudiés. Le succès de cette technique de caractérisation dépend encore de travaux futurs, mais nul doute qu'elle saura s'imposer parmi les modes de références de la microscopie en champ proche.

Annexes

Ce qui suit est une partie du programme de simulation écrit avec des macros de « Scilab ». Le double slash indique le début des commentaires.

Script SCILAB « Simulation libre »

```
//fonction permettant de calculer les valeurs de klib //Calculs
function [klib]=fibre(x) I=(w*(t^3))/12;
klib=1+cos(x).*cosh(x); I1=(t^3*(w1^2+4*w1*w2+w2^2))/(36*(w1+w2));
endfunction A=w*t;
// A1=(t*(w1+w2))/2;
// Calculs libre //
r1=fsolve(1,fibre); // donne la racine autour de 1 //Fréquences en libre trapèze
r2=fsolve(4,fibre); // donne la racine autour de 4 f1=((r1^2)/(2*%pi*1^2))*((E*I1)/(p*A1))^(0.5)
r3=fsolve(8,fibre); // donne la racine autour de 8 f2=((r2^2)/(2*%pi*1^2))*((E*I1)/(p*A1))^(0.5)
// f3=((r3^2)/(2*%pi*1^2))*((E*I1)/(p*A1))^(0.5)
// Paramètres poutre encastree rectangulaire //Fréquences en libre rectangle
w=32E-6; // largeur poutre f1=((r1^2)/(2*%pi*1^2))*((E*I)/(p*A))^(0.5)
t=3.1875E-6; // épaisseur poutre f2=((r2^2)/(2*%pi*1^2))*((E*I)/(p*A))^(0.5)
l=232.2E-6; // longueur poutre f3=((r3^2)/(2*%pi*1^2))*((E*I)/(p*A))^(0.5)
w1=40.63E-6; //
w2=23.32E-6; //
//
p=2330; //masse volumique poutre
E=169E9; // module élastique
//
```

Script SCILAB « Conversion k en f »

```

clear; // efface toutes les définitions // Calculs préliminaires

// _____ LIBRAIRIE _____ r1=fsolve(1,flibre); // donne la racine autour de 1

// fonction dispersion knFree1=r1/L;

// fdisp=k*/kc r2=fsolve(4,flibre); // donne la racine autour de 4

function [fdisp]=Disp(kcn,L1,L2) knFree2=r2/L;

L=L1+L2; // Calculs

Aux1= 2/3*((kcn*L1)^3)*(1+cos(kcn*L)*cosh(kcn*L)); fd = mopen('ff0vkkc.kd','w'); // Open file

Aux2=(-(cosh(kcn*L1)*sin(kcn*L1)- n=0;
sinh(kcn*L1)*cos(kcn*L1)) *
(1+cos(kcn*L2)*cosh(kcn*L2))); for i=0.01:0.01:35; // Boucle sur le rapport fcn/flibre

Aux3=(cosh(kcn*L2)*sin(kcn*L2)- n=n+1;
sinh(kcn*L2)*cos(kcn*L2)) * (1-
cos(kcn*L1)*cosh(kcn*L1)); kn=knFree1*sqrt(i);

fdisp=Aux1/(Aux2+Aux3); y1=Disp(kcn,L1,L2);

endfunction kn=knFree2*sqrt(i);

// fonction permettant de calculer les valeurs de klibre y2=Disp(kcn,L1,L2);

function [klib]=flibre(x) A=[i y1 y2];

klib=1+cos(x).*cosh(x); mfprintf(fd, '%f %f %f\n', A);

endfunction end

// Inputs mclose(fd); // Close the file

// Géométrie pointe //

L1= 219.34E-6; // en m

L2= 21.31E-6; // en m

L=L1+L2;

//

```


Bibliographie

- [Andricacos2010] PC Andricacos, C. Uzoh, JO Dukovic, J. Horkans, and H. Deligianni. Damascene copper electroplating for chip interconnections. *IBM Journal of Research and Development*, 42(5):567–574, 2010.
- [Arinero2003] R. Arinero and G. Leveque. Vibration of the cantilever in force modulation microscopy analysis by a finite element model. *Review of Scientific Instruments*, 74(1):104–111, 2003.
- [Akamine1990] S. Akamine, RC Barrett, and CF Quate. Improved atomic force microscope images using microcantilevers with sharp tips. *Applied Physics Letters*, 57(3):316–318, 1990.
- [Bartel2004] E. Barthel and A. Perriot. Elastic contact to a coated half-space-effective elastic modulus and real penetration. *Arxiv preprint cond-mat/0404048*, 2004.
- [Barthel2008] Perriot A. Barthel, E. *Coated Contact Algorithm - A manual*. Laboratoire CNRS/St Gobain, Octobre 2008.
- [Bandwidth2005] W. Bandwidth and D.S.P.L. Amplifier. *Model 7280*, 2005.
- [Beltran2007] FJE Beltrán, T Scholz, GA Schneider, J Muñoz-Saldaña, U Rabe, and W Arnold. Finite-element simulation of cantilever vibrations in atomic force acoustic microscopy. volume 61, pages 293–297. Institute of Physics Publishing, 2007.
- [Beltran2009] FJ Espinoza-Beltran, K. Geng, J.M. Saldaña, U. Rabe, S. Hirsekorn, and W. Arnold. Simulation of vibrational resonances of stiff afm cantilevers by finite element methods. *New Journal of Physics*, 11:083034, 2009.
- [Blanchard1996] C.R. Blanchard. Atomic force microscopy. *The Chemical Educator*, 1(5):1–8, 1996.
- [Binnig1982] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel. Surface studies by scanning tunneling microscopy. *Physical Review Letters*, 49(1):57–61, 1982.
- [Binnig1986] G. Binnig, C.F. Quate, and C. Gerber. Atomic force microscopy. *Phys. Rev. Lett*, 56(9):930–933, 1986.
- [Binnig1987] G. Binnig, C. Gerber, E. Stoll, TR Albrecht, and CF Quate. Atomic resolution with atomic force microscope. *Surface Science*, 189:1–6, 1987.
- [Briggs2009] A. Briggs and O. Kolosov. *Acoustic microscopy*. Oxford Univ Pr, 2009.
- [Buckle1973] H. Buckle. *The science of hardness testing and its research applications*. 1973.
- [Burnham1996] NA Burnham, G. Gremaud, AJ Kulik, P.J. Gallo, and F. Oulevey. Materials’ properties measurements: Choosing the optimal scanning probe microscope configuration. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, 14:1308, 1996.
- [Butt1995] H. Butt et al. Calculation of thermal noise in atomic force microscopy. *Nanotechnology*, 6:1, 1995.
- [Cantrell2007] Sean A. Cantrell, John H. Cantrell, and Peter T. Lillehei. Nanoscale subsurface imaging via resonant difference-frequency atomic force ultrasonic microscopy. *Journal of Applied Physics*, 101(11):114324, 2007.
- [Cantrell2008] JH Cantrell and SA Cantrell. Analytical model of the nonlinear dynamics of cantilever tip-sample surface interactions for various acoustic atomic force microscopies. *PHYSICAL REVIEW B Phys Rev B*, 77:165409, 2008.

- [Carreau2007] V. Carreau, S. Matrejean, M. Verdier, Y. Bréchet, A. Roule, A. Toffoli, V. Delaye, and G. Passemard. Evolution of cu microstructure and resistivity during thermal treatment of damascene line: Influence of line width and temperature. *Microelectronic Engineering*, 84(11):2723–2728, 2007.
- [Chen2001] X. Chen and J.J. Vlassak. Numerical study on the measurement of thin film mechanical properties by means of nanoindentation. *Journal of Materials Research*, 16(10):2974–2982, 2001.
- [Chen2005] S. Chen, L. Liu, and T. Wang. Investigation of the mechanical properties of thin films by nanoindentation, considering the effects of thickness and different coating-substrate combinations. *Surface and Coatings Technology*, 191(1):25–32, 2005.
- [Chen2007] SH Chen, L. Liu, and TC Wang. Small scale, grain size and substrate effects in nano-indentation experiment of film-substrate systems. *International Journal of Solids and Structures*, 44(13):4492–4504, 2007.
- [Clair2003] B. Clair, R. Arinero, G. Lévêque, M. Ramonda, and B. Thibaut. *Imaging the mechanical properties of wood cell layers by atomic force modulation microscopy*. *IAWA J*, 24:223–230, 2003.
- [Cleveland1993] JP Cleveland, S. Manne, D. Bocek, and PK Hansma. A nondestructive method for determining the spring constant of cantilevers for scanning force microscopy. *Review of Scientific Instruments*, 64:403, 1993.
- [Clifford2005] C.A. Clifford and M.P. Seah. The determination of atomic force microscope cantilever spring constants via dimensional methods for nanomechanical analysis. *Nanotechnology*, 16:1666, 2005.
- [Crassous1997] J. Crassous, E. Charlaix, and J.L. Loubet. Nanoscale investigation of wetting dynamics with a surface force apparatus. *Physical Review Letters*, 78(12):2425–2428, 1997.
- [Curie 1881] J. Curie and P. Curie. Contractions et dilatations produites par des tensions électriques dans les cristaux hémihédres à faces inclinées. *CR Acad. Sci*, 93:1137–1140, 1881.
- [Cuberes2000] MT Cuberes, HE Assender, GAD Briggs, and OV Kolosov. Heterodyne force microscopy of pmma/rubber nanocomposites: nanomapping of viscoelastic response at ultrasonic frequencies. *JOURNAL OF PHYSICS-LONDON-D APPLIED PHYSICS*, 33(19):2347–2355, 2000.
- [Derjaguin1975] BV Derjaguin, VM Muller, and YP Toporov. Effect of contact deformation on the adhesion of elastic solids. *J. Colloid Interface Sci*, 53:314–26, 1975.
- [Dianoux2004] R. Dianoux. *Injection et detection de charges dans des nanostructures semiconductrices par Microscopiea Force Atomique*. PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2004.
- [DeSalvo2009] B. De Salvo. Silicon non-volatile memories: Paths of innovation. 2009.
- [Deal1965] Grove AS Deal, BE. General relationship for the thermal oxidation of silicon(thermal oxidation kinetics of silicon, describing diffusion process, oxide layer boundary reactions and space charge effects on initial phase). *Journal of Applied Physics*, 36:3770–3778, 1965.
- [Dinelli2000] F Dinelli, SK Biswas, GAD Briggs, and OV Kolosov. Measurements of stiff-material compliance on the nanoscale using ultrasonic force microscopy. *PHYSICAL REVIEW-SERIES B-*, 61(20):13995–14006, 2000.
- [Doering2007] R. Doering and Y. Nishi. *Handbook of semiconductor manufacturing technology*. CRC, 2007.
- [Dunn1959] F. Dunn and W.J. Fry. Ultrasonic absorption microscope. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 31:120, 1959.
- [Dupas2000] E. Dupas. *Cartographie et spectroscopie des propriétés mécaniques à l'échelle du nanomètre par spectrométrie acoustique locale à fréquence variable*. PhD thesis, ECOLE POLYTECHNIQUE FEDERALE DE LAUSANNE, 2000.

- [Dupas2001] E. Dupas, G. Gremaud, A. Kulik, and J.-L. Loubet. High-frequency mechanical spectroscopy with an atomic force microscope. *Review of Scientific Instruments*, 72(10):3891–3897, 2001.
- [Dupraz2010] Dupraz Maxime. Microscopie acoustique à force atomique : Cartographie nanométrique du module de young. Master's thesis, 2eme année PHELMA Filière Science et Ingénierie des Matériaux (SIM) Option MME, 2010.
- [Feinberg1970] G. Feinberg and J. Sucher. General theory of the van der waals interaction: a model-independent approach. *Physical Review A*, 2(6):2395–2415, 1970.
- [Fisher-Cripps1997] AC Fisher-Cripps. Elastic–plastic behaviour in materials loaded with a spherical indenter. *J. Mater. Sci*, 32:727–736, 1997.
- [Gaillard2006] N. Gaillard, M. Gros-Jean, D. Mariolle, F. Bertin, and A. Bsiesy. Method to assess the grain crystallographic orientation with a submicronic spatial resolution using kelvin probe force microscope. *Applied Physics Letters*, 89:154101, 2006.
- [Gao1992] H. Gao, C.H. CHIU, and J. Lee. Elastic contact versus indentation modeling of multi-layered materials. *International journal of solids and structures*, 29(20):2471–2492, 1992.
- [Gartland1972] PO Gartland, S. Berge, and BJ Slagsvold. Photoelectric work function of a copper single crystal for the (100),(110),(111), and (112) faces. *Physical Review Letters*, 28(12):738–739, 1972.
- [Giessibl1995] FJ Giessibl. Atomic resolution of the silicon (111)-(7 times 7) surface by atomic force microscopy. *Science*, 267(5194):68–71, 1995.
- [Giessibl1998] F.J. Giessibl. High-speed force sensor for force microscopy and profilometry utilizing a quartz tuning fork. *Applied Physics Letters*, 73:3956, 1998.
- [Giessibl2003] F.J. Giessibl. Advances in atomic force microscopy. *Reviews of modern physics*, 75(3):949–983, 2003.
- [Goldstein2003] J. Goldstein, D.E. Newbury, D.C. Joy, P. Echlin, C.E. Lyman, and E. Lifshin. *Scanning electron microscopy and X-ray microanalysis*. Springer Us, 2003.
- [Grosse2008] C. Grosse and M. Ohtsu. *Acoustic Emission Testing: Basics for Research-Applications in Civil Engineering*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Germany, 2008.
- [Guenther1989] U.C. Dransfeld K. Günther, P. Fischer. *Scanning near-field acoustic microscopy*, volume 48, pages 89–92. Springer, 1989.
- [Hadimioglu1983] B. Hadimioglu and CF Quate. Water acoustic microscopy at suboptical wavelengths. *Applied Physics Letters*, 43:1006, 1983.
- [Hamaker1937] HC Hamaker. The london–van der waals attraction between spherical particles. *physica*, 4(10):1058–1072, 1937.
- [Hansma1994] PK Hansma, JP Cleveland, M. Radmacher, DA Walters, PE Hillner, M. Bezanilla, M. Fritz, D. Vie, HG Hansma, CB Prater, et al. Tapping mode atomic force microscopy in liquids. *Applied Physics Letters*, 64:1738, 1994.
- [Hauschildt2006] M. Hauschildt, M. Gall, S. Thrasher, P. Justison, L. Michaelson, R. Hernandez, H. Kawasaki, and PS Ho. Analysis of electromigration statistics for cu interconnects. *Applied Physics Letters*, 88:211907, 2006.
- [Herbert2001] EG Herbert, GM Pharr, WC Oliver, BN Lucas, and JL Hay. On the measurement of stress-strain curves by spherical indentation. *Thin Solid Films*, 398:331–335, 2001.
- [Hertz1881] H. Hertz. On the contact of elastic solids. *J. reine angew. Math*, 92:156, 1881.

- [Hopcroft2010] M.A. Hopcroft, W.D. Nix, and T.W. Kenny. What is the Young's Modulus of Silicon? *Microelectromechanical Systems, Journal of*, 19(2):229–238, 2010.
- [Hurley2003] D. C. Hurley, K. Shen, N. M. Jennett, and J. A. Turner. Atomic force acoustic microscopy methods to determine thin-film elastic properties. *Journal of Applied Physics*, 94(4):2347–2354, 2003.
- [Hurley2006] D.C. Hurley, M. Kopycinska-Müller, D. Julthongpiput, and M.J. Fasolka. Influence of surface energy and relative humidity on afm nanomechanical contact stiffness. *Applied Surface Science*, 253(3):1274 – 1281, 2006.
- [Hurley2006a] D. Hurley, M. Kopycinska-Müller, and A. Kos. Mapping mechanical properties on the nanoscale using atomic-force acoustic microscopy. *JOM Journal of the Minerals, Metals and Materials Society*, 59(1):23–29, January 2007
- [Hurley2007] D. Hurley, M. Kopycinska-Müller, and A. Kos. Mapping mechanical properties on the nanoscale using atomic-force acoustic microscopy. *JOM Journal of the Minerals, Metals and Materials Society*, 59(1):23–29, January 2007.
- [Hurley2009] D.C. Hurley. Contact resonance force microscopy techniques for nanomechanical measurements. *Applied Scanning Probe Methods XI*, pages 97–138, 2009.
- [Hutter1993] J.L. Hutter and J. Bechhoefer. Calibration of atomic-force microscope tips. *Review of Scientific Instruments*, 64:1868, 1993.
- [Israelachvili1991] J. Israelachvili. Intermolecular and surface forces. *P. Zhao and W. J. Li. Surface Stability of Exfoliated Elastic Films by Casimir Force, Chinese Physics Letter*, 19(8), 1991.
- [Jauffres2010] David Jauffrès, Christelle Yacou, Marc Verdier, Rémy Dendievel, and André Ayral. Mechanical properties of hierarchical porous silica thin films: Experimental characterization by nanoindentation and finite element modeling. *Microporous and Mesoporous Materials*, In Press, Corrected Proof:–, 2010.
- [Johnson1987] K.L. Johnson. *Contact mechanics*. Cambridge Univ Pr, 1987.
- [Jung2004] Y.G. Jung, B.R. Lawn, M. Martyniuk, H. Huang, and X.Z. Hu. Evaluation of elastic modulus and hardness of thin films by nanoindentation. *Journal of Materials Research*, 19(10):3076–3080, 2004.
- [Kessler1979] LW Kessler and DE Yuhas. Acoustic microscopy. 67:526–536, 1979.
- [Kim2005] K.H. Kim, N. Moldovan, C. Ke, H.D. Espinosa, X. Xiao, J.A. Carlisle, and O. Auciello. Novel ultrananocrystalline diamond probes for high-resolution low-wear nanolithographic techniques. *small*, 1(8-9):866–874, 2005.
- [Koiter1959] W.T. Koiter. A consistent first approximation in the general theory of thin elastic shells. 1959.
- [Kolosov1993] O. Kolosov and K. Yamanaka. Nonlinear detection of ultrasonic vibrations in an atomic force microscope. *Japanese journal of applied physics. Pt. 2, Letters*, 32(8A):L1095–L1098, 1993.
- [Kolosov1996] O. Kolosov, A. Briggs, K. Yamanaka, W. Arnold, and F. Publica. Nanoscale imaging of mechanical properties by ultrasonic force microscopy (ufm). *Acoustical Imaging*, 22:665–8, 1996.
- [Korpel1971] A. Korpel, LW Kessler, and PR Palermo. Acoustic microscope operating at 100 mhz. 1971.
- [Kopycinska-Müller2006] Malgorzata Kopycinska-Müller, Roy H. Geiss, and Donna C. Hurley. Contact mechanics and tip shape in afm-based nanomechanical measurements. *Ultramicroscopy*, 106(6):466 – 474, 2006
- [Kopycinska-Mueller2006a] M. Kopycinska-Mueller, R.H. Geiss, and D.C. Hurley. Size-related plasticity effects in afm silicon cantilever tips. 2006.

- [Kos2008] AB Kos and DC Hurley. Nanomechanical mapping with resonance tracking scanned probe microscope. *Measurement Science and Technology*, 19(1):15504–15504, 2008.
- [Law2002a] BM Law and F. Rieutord. Electrostatic forces in atomic force microscopy. *Physical Review B*, 66(3):35402, 2002.
- [Lacaita2006] AL Lacaita. Phase change memories: State-of-the-art, challenges and perspectives. *Solid-State Electronics*, 50(1):24–31, 2006.
- [Lemons1974] RA Lemons and CF Quate. Acoustic microscope—scanning version. *Applied Physics Letters*, 24:163, 1974.
- [Loubriat2010] F. Fillot A. Roule M. Veillerot J.P. Barnes P. Gergaud L. Vandroux M. Verdier S. Loubriat, D. Muiyard and S. Maitrejean. Gete phase change material and ti based electrode: Study of thermal stability and adhesion. *Microelectronic Engineering*, 2010.
- [Louarn2008] G. Louarn and S. Cuenot. Finite Element Modelling of Micro-cantilevers Used as Chemical Sensors. *Recent Advances in Modelling and Simulation*, 207:220, 2008.
- [Love1939] AEH Love. Boussinesq’s problem for a rigid cone. *The Quarterly Journal of Mathematics*, 10:161–175, 1939.
- [Maier2001] G. Maier. Low dielectric constant polymers for microelectronics. *Progress in Polymer Science*, 26(1):3 – 65, 2001.
- [Martin1987] Y. Martin, CC Williams, and HK Wickramasinghe. Atomic force microscope–force mapping and profiling on a sub 100 a scale. *Journal of Applied Physics*, 61:4723, 1987.
- [Martin1987a] Y. Martin and HK Wickramasinghe. Magnetic imaging by “force microscopy” with 1000 a resolution. *Applied Physics Letters*, 50:1455, 1987.
- [Mason1980] W.P. Mason. Piezoelectricity, its history and applications. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 68:S39, 1980.
- [Mercier2010] D. Mercier, *Thesis*, CEA LETI, 2009-2012.
- [Mencik1997] J. Mencik, D. Munz, E. Quandt, ER Weppelmann, and MV Swain. Determination of elastic modulus of thin layers using nanoindentation. *J. Mater. Res*, 12(9), 1997.
- [Mercier2010] D. Mercier, *Thesis*, CEA LETI, 2009-2012.
- [Muha1990] MS Muha, AA Moulthrop, GC Kozlowski, and B. Hadimioglu. Acoustic microscopy at 15.3 ghz in pressurized superfluid helium. *Applied Physics Letters*, 56:1019, 1990.
- [Nanotools2010] Nanotools. Afm probes : ball b1-b150, 2010.
- [Nonnenmacher2009] M. Nonnenmacher, MP Oboyle, and HK Wickramasinghe. Kelvin probe force microscopy. *Applied physics letters*, 58(25):2921–2923, 2009.
- [Ohler] B. Ohler. Practical advice on the determination of cantilever spring constants. *Veeco Application Notes*.
- [Oliver1992] WC Oliver, GM Pharr, et al. Improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments. *Journal of Materials Research*, 7(6):1564–1583, 1992.
- [Oliver2004] WC Oliver and GM Pharr. Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation: Advances in understanding and refinements to methodology. *J. Mater. Res*, 19(3), 2004.
- [Ouisse2005] T. Ouisse, M. Stark, F. Rodrigues-Martins, B. Bercu, S. Huant, and J. Chevrier. Theory of electric force microscopy in the parametric amplification regime. *Physical Review B*, 71(20):205404, 2005.

- [Parry2008] Guillaume Parry, Anthony G. Evans, and John W. Hutchinson. Initiation of geometric roughening in polycrystalline metal films. *Comptes Rendus Mécanique*, 336(1-2):224 – 231, 2008. Duality, inverse problems and nonlinear problems in solid mechanics.
- [Parker2010] NG Parker, PV Nelson, and MJW Povey. A versatile scanning acoustic platform. *Measurement Science and Technology*, 21:045901, 2010.
- [Pelletier2006] H. Pelletier, J. Krier, and P. Mille. Characterization of mechanical properties of thin films using nanoindentation test. *Mechanics of materials*, 38(12):1182–1198, 2006.
- [Quate1994] C.F. Quate, B.T. Khuri-Yakub, S. Akamine, and B.B. Hadimioglu. Near field acoustic ultrasonic microscope system and method, june 1994. US Patent 5,319,977.
- [Rabe1994] U. Rabe and W. Arnold. Acoustic microscopy by atomic force microscopy. *Applied Physics Letters*, 64(12):1493–1495, 1994.
- [Rabe1996] U. Rabe, K. Janser, and W. Arnold. Vibrations of free and surface-coupled atomic force microscope cantilevers: Theory and experiment. *Review of Scientific Instruments*, 67(9):3281–3293, 1996.
- [Rabe2000] U. Rabe, S. Amelio, E. Kester, V. Scherer, S. Hirsekorn, and W. Arnold. Quantitative determination of contact stiffness using atomic force acoustic microscopy. *Ultrasonics*, 38(1-8):430 – 437, 2000
- [Rabe2002] U. Rabe, S. Amelio, M. Kopycinska, S. Hirsekorn, M. Kempf, M. Göken, and W. Arnold. Imaging and measurement of local mechanical material properties by atomic force acoustic microscopy. *Surface and Interface Analysis*, 33(2):65–70, 2002.
- [Rabe2006] Ute Rabe. *Atomic Force Acoustic Microscopy Applied Scanning Probe Methods II: Scanning Probe Microscopy Techniques*, chapter 2. Springer, 2006.
- [Rajakumar1992] C. Rajakumar, A. Ali, and S.M. Yunus. Lanczos algorithm for acoustic boundary element eigenvalue problems. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 91:939, 1992.
- [Rezek1999] Bohuslav Rezek, Christoph E. Nebel, and Martin Stutzmann. Polycrystalline silicon thin films produced by interference laser crystallization of amorphous silicon. *Japanese Journal of Applied Physics*, 38(Part 2, No. 10A):L1083–L1084, 1999.
- [Rigaud2008] F. Rigaud, JM Portal, H. Aziza, D. Nee, J. Vast, F. Argoud, and B. Borot. Mixed test structure for soft and hard defect detection. pages 52–55, 2008.
- [Rugar1990] D. Rugar and P. Hansma. Atomic force microscopy. *Physics Today*, 43(10):23–30, 1990.
- [Parlak2008] Zehra Parlak and F. Levent Degertekin. Contact stiffness of finite size subsurface defects for atomic force microscopy: Three-dimensional finite element modeling and experimental verification. *Journal of Applied Physics*, 103(11):114910, 2008.
- [Pharr1992] GM Pharr, WC Oliver, FR Brotzen, et al. On the generality of the relationship among contact stiffness, contact area, and elastic modulus during indentation. *Journal of Materials Research*, 7(3):613–617, 1992.
- [Sader2010] J.E Sader. Atomic force microscope cantilevers (calibration method of sader), Février 2010.
- [Safari2008] A. Safari and E.K. Akdogan. *Piezoelectric and acoustic materials for transducer applications*. Springer Verlag, 2008.
- [Sarid1991] D. Sarid, R. Coratger, F. Ajustron, and J. Beauvillain. Scanning force microscopy-with applications to electric, magnetic and atomic forces. *Microscopy Microanalysis Microstructures*, 2(6):649–649, 1991.

- [Saha2002] R. Saha and W.D. Nix. Effects of the substrate on the determination of thin film mechanical properties by nanoindentation. *Acta Materialia*, 50(1):23–38, 2002.
- [Schirmeisen2003] A. Schirmeisen, D. Weiner, and H. Fuchs. Measurements of metal-polymer adhesion properties with dynamic force spectroscopy. *Surface Science*, 545(3):155–162, 2003.
- [Shekhawat2005] G. Shekhawat and V.P. Dravid. Near-field acoustic holography as a high resolution sub-surface imaging system on scanning probe microscopy platform: Seeing the invisible. *Microscopy and Microanalysis*, 11(S02):362–363, 2005.
- [Simmons1971] G. Simmons and H. Wang. *Single crystal elastic constants and calculated aggregate properties*. 1971.
- [Smith1995] D.L. Smith. *Thin-film deposition: principles and practice*. McGraw-Hill Professional, 1995.
- [Sneddon1965] I.N. Sneddon. The relation between load and penetration in the axisymmetric boussinesq problem for a punch of arbitrary profile. *Int. J. Eng. Sci*, 3(1):47–57, 1965.
- [Sokolov1936] S Sokolov. U.s.s.r. patent no. 49 (31 august, 1936). british patent 477139 (1937). u.s. patent no. 2164125 (1939). 1936.
- [Sokolov1949] S Sokolov. The ultrasonic microscope. *Doklady Akademii Nauk SSSR*, 64:333, 1949.
- [Song2006] Y. Song and B. Bhushan. Simulation of dynamic modes of atomic force microscopy using a 3d finite element model. *Ultramicroscopy*, 106(8-9):847–873, 2006.
- [Stokey1976] W.F. Stokey. Vibration of systems having distributed mass and elasticity. *Shock and vibration Handbook*, pages 7–1, 1976.
- [Stan2008] G. Stan, S. Krylyuk, A. V. Davydov, M. Vaudin, L. A. Bendersky, and R. F. Cook. Surface effects on the elastic modulus of te nanowires. *Applied Physics Letters*, 92(24):241908, 2008.
- [Stan2008a] G. Stan, S. Krylyuk, A. V. Davydov, M. Vaudin, L. A. Bendersky, and R. F. Cook. Surface effects on the elastic modulus of te nanowires. *Applied Physics Letters*, 92(24):241908, 2008.
- [Stan2009] G. Stan, S. Krylyuk, A.V. Davydov, M.D. Vaudin, L.A. Bendersky, and R.F. Cook. Contact-resonance atomic force microscopy for nanoscale elastic property measurements: Spectroscopy and imaging. *Ultramicroscopy*, 109(8):929 – 936, 2009. Proceedings of the 10th International Scanning Probe Microscopy Conference.
- [Stan2009a] G. Stan and RF Cook. Elastic modulus of low-k dielectric thin films measured by load-dependent contact-resonance atomic force microscopy. *J. Mater. Res*, 24(9):2961, 2009.
- [Tabor1977] D. Tabor. Surface forces and surface interactions. *J. Colloid Interface Sci*, 58(2), 1977.
- [Technologies2010] Advanced Diamond Technologies. Nadiaprobos — all-diamond afm probes, 2010.
- [Tompkins2005] H.G. Tompkins and E.A. Irene. *Handbook of ellipsometry*. William Andrew, 2005.
- [Thundat1993] T. Thundat, X.Y. Zheng, GY Chen, SL Sharp, RJ Warmack, and LJ Schowalter. Characterization of atomic force microscope tips by adhesion force measurements. *Applied Physics Letters*, 63:2150, 1993.
- [Truner1997] J.A. Turner, S. Hirsekorn, U. Rabe, and W. Arnold. High-frequency response of atomic-force microscope cantilevers. *Journal of applied physics*, 82:966, 1997.
- [Tsuji2001] T. Tsuji and K. Yamanaka. Observation by ultrasonic atomic force microscopy of reversible displacement of subsurface dislocations in highly oriented pyrolytic graphite. *Nanotechnology*, 12(3):301–307, 2001.

- [Tsuji2007] Toshihiro Tsuji, Kentaro Kobari, Seishiro Ide, and Kazushi Yamanaka. Suppression of spurious vibration of cantilever in atomic force microscopy by enhancement of bending rigidity of cantilever chip substrate. *Review of Scientific Instruments*, 78(10):103703, 2007.
- [Urbanowicz2010] AM Urbanowicz, K. Vanstreels, P. Verdonck, D. Shamiryman, S. De Gendt, and MR Baklanov. Improving mechanical robustness of ultralow-k sioch plasma enhanced chemical vapor deposition glasses by controlled porogen decomposition prior to uv-hardening. *Journal of Applied Physics*, 107(10):104122–104122, 2010.
- [Veeco2004] Veeco. *Dimension 3100 Manual Revision D*, 2004.
- [Verdier2006] M. Verdier, H. Huang, F. Spaepen, JD Embury, and H. Kung. Microstructure, indentation and work hardening of cu/ag multilayers. *Philosophical Magazine*, 86(32):5009–5016, 2006.
- [Vlassak1992] JJ Vlassak and W.D. Nix. New bulge test technique for the determination of young's modulus and poisson's ratio of thin films. *Journal of Materials Research*, 7(12):3242–3249, 1992.
- [Vlassak1993] JJ Vlassak and WD Nix. Indentation modulus of elastically anisotropic half spaces. *Philosophical Magazine A*, 67(5):1045–1056, 1993.
- [Wade2000] Glen Wade. Human uses of ultrasound: ancient and modern. *Ultrasonics*, 38(1-8):1 – 5, 2000
- [Wolter1991] O. Wolter, T. Bayer, and J. Greschner. Micromachined silicon sensors for scanning force microscopy. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, 9:1353, 1991.
- [Yacou2008] Christelle Yacou, André Ayrat, Anne Giroir-Fendler, Marie-Laure Fontaine, and Anne Julbe. Hierarchical porous silica membranes with dispersed pt nanoparticles. *Microporous and Mesoporous Materials*, 126(3):222 – 227, 2009.
- [Yamanaka1994a] K. Yamanaka, H. Ogiso, and O. Kolosov. Ultrasonic force microscopy for nanometer resolution subsurface imaging. *Applied Physics Letters*, 64(2):178, 1994.
- [Yamanaka1996] K. Yamanaka and S. Nakano. Ultrasonic atomic force microscope with overtone excitation of cantilever. *Jpn. J. Appl. Phys. Vol*, 35(6B Pt 1):3787–3792, 1996.
- [Yamanaka 1998] K. Yamanaka and S. Nakano. Quantitative elasticity evaluation by contact resonance in an atomic force microscope. *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, 66(0):S313–S317, March 1998.
- [Yamanaka1999] K. Yamanaka, A. Noguchi, T. Tsuji, T. Koike, and T. Goto. Quantitative material characterization by ultrasonic afm. *Surface and Interface Analysis*, 27(5-6):600–606, 1999.
- [Yu1995] Z. Yu and S. Boseck. Scanning acoustic microscopy and its applications to material characterization. *Reviews of Modern Physics*, 67(4):863–891, 1995.
- [Zhang2007] W. Zhang, SH Brongersma, Z. Li, D. Li, O. Richard, and K. Maex. Analysis of the size effect in electroplated fine copper wires and a realistic assessment to model copper resistivity. *Journal of Applied Physics*, 101:063703, 2007.
- [Zhong1993a] Q. Zhong, D. Inniss, K. Kjoller, and VB Elings. Fractured polymer/silica fiber surface studied by tapping mode atomic force microscopy. *Surface Science Letters*, 290(1-2):L688–L692, 1993.

Contact resonant AFM : Development and Modeling

The reduction of feature size in integrated circuits has raised an increasing need for characterization tools displaying small-scale resolution. Reliability issues taking place in these structures with dimensions below 100 nm require the development of innovative instruments. This thesis has first focused on the development of near field apparatus displaying sensitivity to surface mechanical properties. Afterwards analytical and numerical modelings have been developed to analyze the obtained experimental data.

Known as contact resonance atomic force microscope (CR-AFM), this apparatus is sensitive to the effective stiffness of thin film on substrate, allowing the mapping of the mechanical stiffness.

A significant work on the apparatus setting-up and procedure has been done to obtain repeatable and reliable experimental data, which is a prerequisite for quantitative analysis. Then CR-AFM experiments have been done on various samples: model stacks (silica thin films on silicon with varying silica thickness), silica films with tuned porosity, Damascene copper interconnect structures,... The mapping of elastic stiffness of such samples has been built-up.

In order to quantify these contrasts, our experimental results have been analyzed through different models (analytical and numerical). Finite element simulations were also performed to support these results.

Keywords : Atomic force microscope, contact resonant, CR-AFM, elastic modulus, nanostructures, thin films

AFM à contact résonnant : Développement et Modélisation

Avec l'intégration de circuits intégrés de plus en plus denses, le besoin d'outils de caractérisation adaptés à ces échelles se fait ressentir. Identifier et analyser les problèmes de fiabilité survenant dans ces structures à des dimensions inférieures à 100 nm demande la mise au point d'instruments innovants. Ce travail de thèse a consisté dans un premier temps à développer un appareil à champs proches sensible aux propriétés mécaniques de surface, et dans un second temps à analyser les résultats expérimentaux en s'appuyant sur des approches analytiques et/ou numériques.

Désigné sous le nom de microscope à force atomique à résonance de contact (CR-AFM), cet appareil est sensible à la rigidité effective de films minces sur substrat, ce qui lui permet de cartographier la rigidité mécanique de films minces.

Nous avons mené un important travail de développement instrumental afin d'obtenir des résultats expérimentaux répétables et fiables, condition indispensable à une analyse quantitative. Puis nous avons utilisé le CR-AFM sur divers échantillons : empilements modèles (films de silice sur silicium, avec épaisseurs variables de silice), films de silice avec porosité variable, structures damascènes d'interconnexion cuivre,... Des images traduisant les variations d'élasticité de surface ont ainsi pu être construites.

Pour quantifier ces variations, nous avons analysé nos résultats à l'aide de différents modèles (approches analytiques et numériques). Des simulations par éléments finis ont été réalisées pour étayer ces résultats.

Mots clés : Microscope à force atomique, résonance en contact, CR-AFM, module d'élasticité, nanostructures, films minces.
