



Grégory Wurtz

Développement d'un microscope optique en champ proche utilisant une sonde métallique :
Application à l'étude de composants de l'optoélectronique et à la mise en évidence de l'effet de pointe optique.

Thèse présentée
Pour l'obtention du grade
De Docteur de l'UTC

Renaud Bachelot

Jean-Charles Bolomey

Daniel Courjon

Carole Ecoffet

Jean-Marc Laval

Roger Rimet

Pascal Royer

Directeur de thèse

Président

Rapporteur

Examineur

Examineur

Rapporteur

Directeur de Thèse

SPÉCIALITÉ: Nanotechnologie à l'Université de Technologie de Troyes

Résumé

La compréhension des mécanismes physiques qui régissent la formation des images SNOM est l'idée directrice de ce manuscrit. Nous abordons ce problème dans le cas particulier d'un microscope SNOM utilisant une sonde diffusante en tungstène travaillant dans le mode AFM contact intermittent. Nous décrivons d'abord les potentialités du microscope que nous avons développé ainsi que les différentes étapes qui mènent à la formation de l'image SNOM dans le mode vibrant que nous utilisons. Cette partie nous permet également de discuter de la dépendance du signal optique avec le comportement mécanique de la sonde au cours de l'imagerie. Nous présentons ensuite deux études particulières qui nous ont permis d'établir la sensibilité de la sonde aux caractéristiques du champ électromagnétique auquel elle est soumise. L'étude de composants de l'optoélectronique en émission fait l'objet de la première étude. L'instrumentation optique polyvalente, dont est doté notre microscope, nous a permis d'étudier l'influence de l'amplitude de vibration de la sonde, de la direction de collection du signal optique ainsi que de la fréquence de démodulation synchrone sur le contenu de l'image SNOM. Nous avons ainsi pu définir une configuration expérimentale optimale dans la description du mode émis par une diode laser. Dans cette étude, nous avons mis en valeur la capacité de la sonde à se comporter comme un *détecteur local de lumière*.

La seconde étude présente une expérience de photopolymérisation sub- λ qui nous a permis de démontrer la capacité d'une sonde métallique à se comporter comme une *source lumineuse locale*. Nous utilisons une sonde en tungstène dans les conditions d'exaltation du champ pour photoinduire localement le processus de polymérisation. Nous présentons deux configurations expérimentales pour lesquelles une exaltation locale a donné lieu à la création d'un objet polymère de taille nanométrique et discutons des résultats sous leur aspect optique et physico-chimique.

Mots clés : microscopie à force atomique, microscopie optique en champ proche, sonde diffusante en tungstène, nano-antenne électromagnétique, semi-conducteur, diode laser, fibre optique, photo-polymérisation par ondes évanescentes, effet de pointe optique.

Summary

Title : 'Development of a near-field optical microscope using a conducting probe:

Use for the local study of components in optoelectronic and demonstration of the lightning-rod effect.'

The understanding of the physical processes governing the image formation in near-field optics is the central concern of this work. We approach this subject in the special case of a microscope using a tungsten tip working in an atomic force intermittent contact regulation. This tip acts simultaneously as both a mechanical and an optical probe. First, we describe the experimental set-up that we have developed as well as the different stages leading to the image formation in the vibrating mode used. In particular, we discuss the consequences of the probe mechanical behavior in the features of the optical signal simultaneously diffracted by the probe. Second, we present two different studies displaying the optical sensitivity of the tungsten probe to the features of an illuminating electromagnetic field. The first study concerns the optical characterization of opto-electronic devices in operation. The versatility of our SNOM permitted us to show and comment on the influence of the probe vibration amplitude, the far-field detection angle and the lock-in amplifier detection frequency in the SNOM image content. Thus, a suitable experimental configuration has been defined allowing the near-field characterization of the mode emitted by a commercial laser diode (spatial features and polarization state of this mode). So, a chemical composition of the laser crystal cladding layers has been proposed. In this study, we have shown the *local optical detector* behavior of the tungsten probe.

The second study presents a sub- λ photo-polymerization experiment demonstrating the *local optical source* behavior of the metallic probe. We use the tungsten probe, in the field enhancement conditions, to locally initiate the polymerization process. We present two different experimental configurations for which this effect has led to the formation of a nanometric size polymer object. We discuss these results in both an optical and a photochemical point of view.

Keywords : atomic force microscopy, near-field optical microscopy, tungsten diffracting probe, electromagnetic nano-antenna, semi-conductor, laser diode, optical fiber, photo-polymerization by evanescent waves, lightning rod effect.

A mes parents
Marguerite et Clément

A mes sœurs
Bénédicte et Camille

Remerciements

Les travaux qui font l'objet de ce mémoire ont été effectués au sein du Laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique de l'Université de Technologie de Troyes. J'adresse mes remerciements à M. Pascal ROYER, directeur du laboratoire, et à toute son équipe pour m'avoir accueilli dans le laboratoire.

Je tiens particulièrement à remercier M. Renaud BACHELOT qui a dirigé ce travail avec enthousiasme, dynamisme (les superlatifs me manquent)...et surtout avec la patience indispensable à mon épanouissement !

J'adresse l'expression de mes sentiments les plus sincères à messieurs Daniel COURJON et Roger RIMET pour avoir bien voulu rapporter cette thèse. Je remercie également M. Jean-Charles BOLOMEY et M. Jean-Marc LAVAL d'avoir accepté de participer au jury. Je n'oublie pas M^{me} Carole ECOFFET avec qui j'ai eu le plaisir de travailler au cours de ma thèse et qui a fortement contribué à donner à ce manuscrit une forme 'lisible'.

Enfin, je remercie tous ceux (enseignants-chercheurs, étudiants, doctorants et tous les membres du personnel) qui de près ou de loin m'ont permis de travailler ou de me détendre dans les meilleures conditions au cours de ces trois dernières années.

Sommaire

Introduction.

Chapitre I : Présentation du contexte scientifique.

A Introduction.	11
B La microscopie optique en champ proche.	12
1. Les limites de la microscopie optique conventionnelle.	12
2. Les microscopes optiques en champ proche.	16
2.1. Principe.	16
2.2. Les sondes optiques.	18
2.2.1. Les sondes à ouverture.	18
2.2.2. Les sondes diffusantes.	21
2.3. Principe physique de la détection des ondes évanescentes.	24
3. Les méthodes d'asservissement.	28
3.1. L'asservissement électronique tunnel (STM).	29
3.2. L'asservissement optique.	30
3.3. L'asservissement sur les forces de surface.	32
C Conclusion.	35
D Références.	37

Chapitre II : Développement du microscope.

A Introduction.	45
B La microscopie à force atomique.	48
1. Introduction.	48
2. Généralités.	48
3. Champ de force d'une surface.	49
4. Mesure de l'interaction sonde – échantillon / Principe de fonctionnement d'un AFM.	51
5. Les différents modes de travail.	52
6. Le mode contact intermittent (C-I).	53

6.1. Principe.	53
6.2. Interaction sonde –échantillon.	57
6.3. Interdépendance des mesures AFM et SNOM.	59
C Les sondes utilisées.	65
1. Les sondes commerciales.	65
2. Les sondes en tungstène.	67
2.1. Fabrication.	67
3. Les premières images AFM.	77
4. Importance de la géométrie de la pointe dans l'image SNOM.	79
D Instrumentation optique.	83
1. Introduction.	83
2. L'éclairage.	84
2.1. Dispositifs d'éclairage.	85
3. La détection du champ proche : formation de l'image SNOM.	87
3.1. Généralités.	87
3.2. Dispositif expérimental.	88
4. Conclusion.	92
E Conclusion.	95
F Références.	97

Chapitre III : Etude de composants de l'optoélectronique.

A Introduction.	103
B Champ proche optique d'une diode laser.	104
1. Introduction.	104
2. Description de la diode laser.	105
3. Etude de la diode laser en fonctionnement.	107
3.1. Configuration expérimentale.	107
3.2. Etude du contraste SNOM en fonction des conditions de détection en champ lointain.	110
3.3. Effet de l'amplitude de vibration de la sonde sur le contenu de l'image SNOM.	115
3.4. Effet de l'amplitude de vibration de la sonde sur le contenu de l'image SNOM.	119

3.5. Etude SNOM de la diode laser en fonctionnement.	125
3.6. Analyse des images de forces acquises lors du fonctionnement de la diode.	133
4. Réponse diélectrique de la surface du cristal laser à une excitation lumineuse externe.	138
4.1. Configuration expérimentale.	138
4.2. Résultats expérimentaux.	142
5. Conclusion.	146
C Etude SNOM des guides d'ondes en émission.	147
1. Introduction.	147
2. Configuration expérimentale.	148
3. Résultats et discussion.	149
4. Conclusion.	151
D Conclusion.	153
E Références.	155

Chapitre IV : Mise en évidence de l'effet de pointe optique par photo-polymérisation locale

A Introduction.	159
B L'effet de pointe.	160
1. Introduction.	160
2. L'effet de pointe en électrostatique classique.	160
3. L'effet de pointe en microscopie optique en champ proche.	162
4. Conclusion.	164
C La formulation photosensible.	166
1. Introduction.	166
2. Composition de la résine.	166
2.1. L'amorceur.	166
2.2. Le co-amorceur	167
2.3. Le monomère	167
3. Mécanisme réactionnel.	168
4. Conclusion.	172
D Mise en évidence de l'effet de pointe optique.	173
1. Introduction.	173

2. Montage expérimental.	173
3. Procédure expérimentale.	176
4. Notion de seuil de polymérisation.	177
5. Résultats et discussion.	178
5.1. Effet de pointe: excitation radiative.	178
5.2. Effet de pointe: excitation évanescente.	183
5.3. Expérience complémentaire.	185
6. Conclusion.	187
E Conclusion et perspectives.	189
F Références.	191
Conclusion générale et perspectives	193
Annexe 1 : <i>"A reflection-mode apertureless scanning near-field optical microscope developed from a commercial scanning probe microscope"</i> R.S.I, 1998. 69 (4), 1735-1743	197
Annexe 2 : Caractéristiques du photomultiplicateur Hamamatsu R5600P-04	207

Introduction.

Ce travail de thèse s'inscrit dans une dynamique de recherche récente : *la microscopie optique en champ proche* (couramment désignée par l'acronyme SNOM, de l'anglais Scanning Near-field Optical Microscopy). L'intérêt grandissant porté à cette microscopie est motivé par l'étude des phénomènes optiques à l'échelle sub-micronique. Le principe d'un microscope optique en champ proche repose sur la détection locale par une sonde du champ électromagnétique diffracté au voisinage immédiat d'une surface. Nous avons développé un microscope optique à sonde locale utilisant une sonde métallique avec, pour objectif, d'étudier cette interaction en fonction des paramètres expérimentaux qui la régissent et de ceux qui permettent de l'analyser. Nous nous sommes notamment intéressés à la *dualité* des propriétés d'une telle sonde, qui peut jouer le rôle de *détecteur local* (c. f. chapitre III) autant que celui de *source locale* (c. f. chapitre IV).

Le chapitre premier introduira le principe de fonctionnement de la microscopie optique en champ proche, en tenant compte des limites physiques auxquelles la microscopie optique classique est astreinte. Nous mettrons en évidence le mécanisme physique sur lequel repose la détection d'un champ de nature évanescente, et présenterons les moyens techniques mis en œuvre par les chercheurs pour illustrer ce principe de détection. Nous ferons une analyse de ces moyens et nous tenterons de mettre en valeur les potentialités associées à chacune des configurations développées.

Nous concluons ce premier chapitre en justifiant la configuration que nous avons choisie et en motivant le travail qui fait l'objet de ce manuscrit.

Le chapitre II sera consacré à la présentation du microscope optique en champ proche que nous avons développé. Ce chapitre décrit successivement les trois éléments 'clés' du microscope, à savoir : le système d'asservissement, la sonde et l'instrumentation optique environnante. Cette dernière est utilisée pour éclairer la surface de l'échantillon et pour détecter l'interaction locale *sonde-champ électromagnétique-surface*. Au cours de chacune de ces trois parties, nous mettrons en valeur l'importance de chacun de ces éléments dans les mesures que nous désirons effectuer. Pour expliciter les rôles respectifs du système d'asservissement et de la sonde dans la mesure SNOM, nous nous aiderons d'exemples concrets que nous avons mis en évidence lors de nos études. La polyvalence des conditions d'éclairage et de détection en champ lointain sera, quant à elle, justifiée par une littérature riche sur le sujet. Nous insisterons notamment sur le principe de mesure que nous utilisons dans la caractérisation du champ diffracté au voisinage immédiat de la surface, en faisant un descriptif schématique du processus de formation de l'image SNOM. Pour finir, nous expliciterons les conditions qui nous paraissent indispensables à satisfaire pour accéder aux propriétés optiques locales d'un objet de taille $\text{sub-}\lambda$.

Les chapitres III et IV présentent deux applications qui trouvent leur motivation première dans la compréhension du contenu des images SNOM et du processus de formation de ces images.

Le chapitre III, principalement consacré à l'étude d'une diode laser en fonctionnement, nous permettra de mettre clairement en évidence l'influence des conditions de détection sur le contraste révélé par l'image SNOM. Nous déterminerons ainsi les conditions pour lesquelles, la mesure SNOM nous a permis d'accéder aux propriétés optiques en champ proche de l'échantillon dans le cas particulier de ce type de source (la diode laser en émission). Ce chapitre nous permettra également de discuter le contenu de l'image SNOM dans le cas où la surface de la diode est éclairée par une source externe. Nous essayerons alors de montrer l'importance du choix des conditions d'éclairage et de détection dans la mise en évidence d'un contraste optique de champ proche. Cette étude nous permettra en particulier de discuter du contenu du signal optique diffusé par la sonde, en fonction de la direction suivant laquelle ce signal est analysé en champ lointain. Une troisième étude est présentée dans ce chapitre. Il s'agit d'une étude très préliminaire qui concerne la caractérisation, en champ proche, du champ émis par une fibre optique monomode. Les conclusions de l'étude effectuée sur la diode laser nous aideront à interpréter les premiers résultats que nous jugeons intéressants tant sur le plan de la compréhension de la mesure SNOM, que sur celui de la caractérisation du guide en lui-même.

Au cours du chapitre IV, nous décrivons une expérience de polymérisation photoinduite à l'échelle sub-micronique. Nous utilisons une sonde métallique comme source lumineuse locale pour amorcer la réaction de polymérisation. Nous discuterons, en particulier, des conditions d'excitation optique de cette source locale.

Chapitre I : Présentation du contexte scientifique.

A Introduction.	11
B La microscopie optique en champ proche.	12
1. Les limites de la microscopie optique conventionnelle.	12
2. Les microscopes optiques en champ proche.	16
2.1. Principe.	16
2.2. Les sondes optiques.	18
1.2.2. Les sondes à ouverture.	18
2.2.2. Les sondes diffusantes.	21
2.3. Principe physique de la détection des ondes évanescentes.	24
3. Les méthodes d'asservissement.	28
3.1. L'asservissement électronique tunnel (STM).	29
3.2. L'asservissement optique.	30
3.3. L'asservissement sur les forces de surface.	31
C Conclusion.	35
D Références	37

Chapitre I : Présentation du contexte scientifique

A Introduction.

Dans la première partie de ce chapitre, nous rappellerons brièvement les bases théoriques qui permettent d'introduire la microscopie optique en champ proche. Nous mettrons en évidence les limites physiques de la microscopie optique conventionnelle et définirons les principes de la microscopie optique à sonde locale.

Nous ferons ensuite une analyse des moyens mis en œuvre par les chercheurs du domaine pour mettre en pratique ces principes. Nous mettrons principalement l'accent sur leur diversité, significative des potentialités de ce moyen de caractérisation dans la variété des phénomènes physiques étudiés.

Nous concluons ce premier chapitre en décrivant succinctement les choix que nous avons faits pour mener à bien nos études en les justifiant.

B La microscopie optique en champ proche.

1. Les limites de la microscopie optique conventionnelle.

L'analyse optique des objets par un système grossissant de lentilles a vu le jour au 17^{ième} siècle [1]. Depuis, cette microscopie a été largement utilisée dans les domaines d'activité les plus variés, contribuant à la découverte ainsi qu'à la compréhension de nombreux phénomènes en physique, chimie, biologie..... C'est le phénomène de diffraction, lié à la nature ondulatoire de la lumière, qui permet, il y a deux siècles, de déterminer la résolution limite théorique (encore appelé : pouvoir de résolution) de ces microscopes. Cette limite fondamentale, fixée par le Physicien allemand E. Abbe, peut s'exprimer par le critère de Rayleigh [2]:

$$\Delta\delta = \frac{1.22.\lambda}{2.n.\sin(\theta)} \quad (I.1)$$

- où :
- λ est la longueur d'onde d'analyse,
 - n est l'indice de réfraction du milieu où se trouve l'échantillon,
 - $n.\sin(\theta)$ représente l'ouverture numérique (ON) de l'objectif du microscope utilisé ; θ étant le demi angle d'ouverture de l'objectif imageur.

Cette relation, valide en lumière incohérente et pour un système imageur utilisant une pupille d'entrée circulaire, s'interprète de la manière suivante : chacune des images de deux points sources, de même intensité, formée dans le plan focal d'un système centré est la figure de diffraction de Fraunhofer de la pupille d'entrée du système. Ainsi, ces deux points image apparaîtront sous la forme de deux taches d'Airy dans ce plan. La formulation de Rayleigh indique que ces deux points image ne peuvent être résolus que si la distance $\Delta\delta'$ qui les sépare est

au moins égale à la distance $\Delta\delta$ qui fait coïncider le maximum central de la tache de diffraction de l'un avec le premier minimum de la tache de diffraction de l'autre. La figure 1 illustre cette limite dans le cas où elle est atteinte ($\Delta\delta' = \Delta\delta$) :

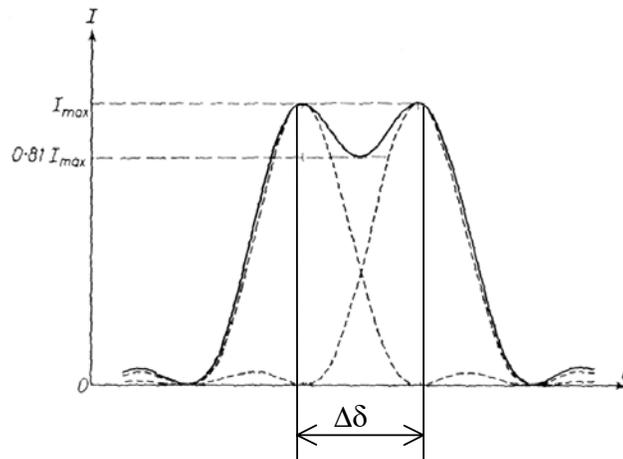


Figure 1 : Illustration graphique du critère de Rayleigh. Les taches de diffraction, correspondant aux deux composantes spectrales imagées, sont tout juste résolues [1].

Si on applique à la relation I.1. les paramètres expérimentaux habituellement utilisés ($ON=0,8$ et $\lambda \approx 500$ nm), on trouve une résolution latérale de l'ordre du micromètre. Les technologies actuelles permettent, cependant, d'atteindre des résolutions latérales de l'ordre de quelques centaines de nanomètres en augmentant l'ouverture numérique du système ($ON=1,5$ pour les objectifs à immersion), en travaillant à des longueurs d'onde proches de l'ultraviolet ou encore en isolant spatialement l'information provenant de la zone de focalisation de l'objectif (microscope confocal). Cependant, quelque soit le moyen utilisé par ces microscopes pour accroître leur pouvoir résolvant, ils se heurtent à une limite physique fondamentale.

En effet, la raison sous-jacente de cette limite de résolution est liée au principe même de caractérisation optique de l'objet étudié. Les microscopes classiques détectent l'interaction entre la lumière d'illumination et l'objet étudié à, au mieux, quelques dizaines de microns de celui-ci. L'information qui parvient à l'objectif correspondant à la résultante de nature progressive de cette interaction. L'analyse du spectre angulaire de la lumière diffractée par un réseau sinusoïdal de période Λ , parfaitement réfléchissant nous permet de démontrer, simplement, les limitations de la

microscopie conventionnelle en introduisant le concept d'ondes inhomogènes, encore dites évanescentes, définies comme étant des ondes diffractées dans des ordres non progressifs du réseau.

La figure 2 schématise l'observation de ce réseau de période Λ par un objectif de microscope (représenté par une double flèche) possédant un demi angle d'ouverture θ :

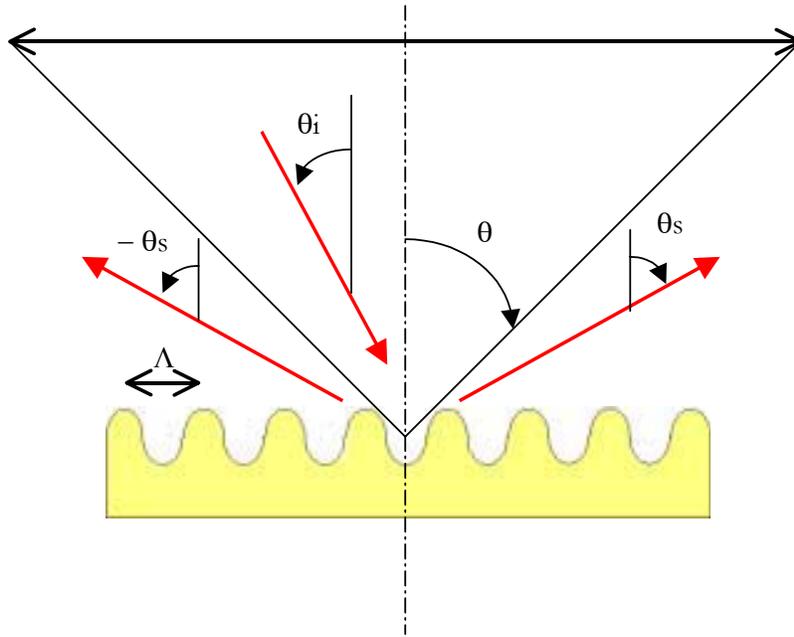


Figure 2 : Observation d'un réseau de période Λ par un objectif de microscope.

Lorsque ce réseau est éclairé en réflexion, son spectre angulaire de diffraction est défini par la formule connue [2] :

$$\frac{2\pi}{\lambda} \cdot \sin(\theta_s) = -\frac{2\pi}{\lambda} \cdot \sin(\theta_i) + q \cdot \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (I.2)$$

- où :
- λ est la longueur d'onde du rayonnement incident,
 - θ_s et θ_i sont, respectivement, les angles de diffraction et d'incidence,
 - q est un entier relatif,
 - Λ est la période du réseau.

en isolant Λ dans (I.2), on obtient :

$$\Lambda = \frac{q \cdot \lambda}{(\sin(\theta_s) + \sin(\theta_i))} \quad (I.3)$$

on en déduit facilement que si la période Λ du réseau est inférieure à $\lambda/2$, aucune combinaison des angles de détection (θ_s) et d'incidence (θ_i) ne satisfait l'équation (I.3). En conséquence, les ordres diffractés par un réseau de période $\Lambda < \lambda/2$ (c. à. d. les ordres porteurs des informations relatives à ce réseau) ne peuvent se propager vers l'objectif du microscope (mis à part l'ordre zéro de diffraction ($\theta_s = \theta_i$) qui correspond au champ spéculaire ne contenant aucune information sur la géométrie du réseau), rendant ainsi ces informations inaccessibles aux techniques conventionnelles de la microscopie optique. On définit ces ondes non progressives comme ayant une nature *inhomogène* ou *évanescence*. L'objectif de microscope, qui nous sert à étudier ce réseau, n'est de ce fait pas uniquement restreint à collecter des ordres diffractés selon un angle $\theta_s \leq \theta$, mais la nature même de ces ondes lui en interdit l'accès.

D'une manière plus générale, lorsqu'une surface est éclairée par une onde plane de longueur d'onde λ , deux types d'ondes sont générées: des ondes homogènes, progressives, et des ondes inhomogènes dites évanescentes[3]. Les ondes progressives résultent de l'interaction du champ incident avec les objets dont la taille est supérieure à $\lambda/2$ (plus précisément avec les fréquences spatiales $\leq 2/\lambda$ de la surface). Elles sont porteuses de l'information concernant les basses fréquences spatiales de l'échantillon. Les ondes évanescentes, elles, sont diffractées par les hautes fréquences spatiales de l'échantillon ($f > 2/\lambda$), elles ont une nature progressive dans le plan de la surface et une intensité qui décroît exponentiellement lorsqu'on s'en éloigne. La diffraction de la lumière joue donc le rôle de filtre passe-bas vis à vis des fréquences spatiales de l'échantillon, car seules les ondes homogènes peuvent atteindre le détecteur placé loin de l'échantillon alors que les informations relatives aux détails optiques sub-longueur d'onde restent confinées aux abords immédiats de la surface. Cette zone de confinement de la lumière est appelée zone de champ proche optique. C'est dans cette région que le champ électromagnétique évanescent contribue de manière significative au champ total [4].

Les références [3, 4] donnent une analyse formelle complète qui décrit le comportement d'une onde électromagnétique résultant de son interaction avec des objets dont l'étendue spatiale latérale est sub-longueur d'onde.

2. Les microscopes optiques en champ proche.

Au cours de ce paragraphe nous ferons une description succincte des principaux moyens technologiques développés par les chercheurs pour étudier les propriétés optiques des objets de taille sub- λ en champ proche. Cette description nous semble nécessaire pour situer notre travail dans le contexte actuel du domaine et nous permettra de motiver nos préoccupations. Une présentation plus complète mettant d'avantage l'accent sur la description de configurations existantes est proposée en référence [5].

2.1. Principe.

La conséquence principale du raisonnement développé dans le précédent paragraphe est sans équivoque ! La caractérisation optique d'un objet de taille sub- λ ne peut être réalisée qu'à l'aide d'un détecteur petit devant λ placé dans le champ lumineux créé au voisinage immédiat de l'objet, c'est à dire dans sa zone de champ proche optique ($d_{\text{sonde-objet}} \ll \lambda$). Le premier article scientifique relatant d'une approche expérimentale qui permettrait l'analyse optique d'une surface, s'affranchissant des effets de 'moyennage' dus à la diffraction, a été publié en 1928 [6]. L'auteur, E.H. Synge, propose alors de limiter la zone d'éclairage de l'échantillon par une ouverture de dimension petite devant λ réalisée dans un écran opaque. En plaçant ce petit trou diffractant à une distance $d \ll \lambda$ de la surface de l'échantillon, celle-ci serait principalement éclairée par des ondes évanescentes, de confinement spatial sub- λ dans les trois directions de l'espace. La lumière diffusée par l'échantillon résulterait alors de la conversion d'une partie de ces ondes évanescentes en ondes propagatives détectables classiquement en champ lointain. En observant ainsi chaque point de la surface, on obtiendrait une image optique contenant des informations relatives aux

objets de taille sub-longueur d'onde qui la composent. C'est sur ce principe que reposent les techniques expérimentales modernes de la microscopie optique en champ proche.

En s'affranchissant ainsi des limitations dues à la diffraction, cette méthode de caractérisation rend obsolètes les critères de résolution tels qu'ils ont été définis dans le paragraphe précédent, introduisant intuitivement la taille de la sonde et la distance sonde - échantillon comme nouveaux facteurs limitatifs. Bien entendu, la longueur d'onde reste un paramètre important en microscopie optique en champ proche puisque la 'morphologie' du champ que nous désirons étudier en dépend.

C'est en 1984, se basant sur ce principe, que D.W. Pohl et *al.* [7] proposent l'architecture du premier microscope optique en champ proche (SNOM: Scanning Near-field Optical Microscope). Ce microscope permit aux auteurs d'atteindre une résolution optique latérale de $\lambda/20$ (la longueur d'onde d'analyse étant de $\lambda = 488$ nm) en approchant une ouverture optique nanométrique à quelques nanomètres de la surface étudiée, pour éclairer localement l'échantillon. L'approche de Syngge a donc du attendre la fin de ce siècle pour se concrétiser. En effet, deux difficultés techniques majeures ont du être surmontées :

- la fabrication de la sonde optique ; D.W. Pohl et *al.* [7] utilisèrent une pointe de quartz taillée à l'acide fluorhydrique dont les flancs recouverts d'aluminium permettent de confiner la zone d'éclairage de l'échantillon,
- l'approche et le maintien de la sonde dans la zone de champ proche optique de l'échantillon ; D.W. Pohl et *al.* [7] y sont parvenus en contrôlant cette distance par un système de régulation électronique à effet tunnel (STM: Scanning Tunneling Microscope) [8, 9] récemment développé à l'époque.

De nombreuses configurations ont depuis montré leurs potentialités dans la mise en évidence de contrastes optiques nanométriques, dans l'étude locale de champs confinés (spectroscopie Raman, spectroscopie de fluorescence, plasmons de surface...) ainsi que dans la modification locale photo-induite des surfaces, démontrant par la même l'intérêt et l'enjeu scientifique de la compréhension des phénomènes optiques agissant à cette échelle. L'originalité de chaque configuration réside principalement dans le choix de la sonde utilisée et dans la manière de contrôler la distance sonde - échantillon. Ce sont certainement deux paramètres clés de la

microscopie optique à sonde locale : d'une part, parce qu'ils contribuent fortement au processus de formation des images optiques en champ proche, et d'autre part, parce qu'une caractérisation locale des champs impose l'utilisation d'une sonde optique de taille minimale approchée au plus près de la surface. Le choix de ces paramètres puis leur maîtrise lors d'une mesure SNOM deviennent dès lors déterminant dans l'interprétation et la compréhension des résultats.

2.2. Les sondes optiques.

La sonde tient, à juste titre, le premier rôle au cœur du dispositif expérimental d'un microscope optique à sonde locale. Ses caractéristiques géométriques (rayon de courbure terminal, géométrie du corps de la pointe) ainsi que sa composition chimique vont déterminer en grande partie ses qualités de détecteur optique. Il n'existe donc pas de sonde universelle adaptée à toutes les études dans ce domaine. Chacune d'entre elles aura un champ d'investigation défini dans lequel ses qualités de détecteur optique local seront optimales.

On classifie généralement les sondes SNOM en deux catégories : les sondes dites 'à ouverture' et les sondes 'sans ouverture' (ces dernières sont encore appelées sondes diffusantes ou perturbatives, illustrant ainsi le processus de conversion du champ évanescentes en ondes propagatives).

Ces deux familles de sondes sont présentées ci-dessous.

2.2.1. Les sondes à ouverture.

Le concept de la sonde à ouverture reprend l'idée du nano-trou suggérée par Synge au début du siècle [6]. Le rôle de cette ouverture optique, telle qu'elle a été décrite par [6], est de se comporter comme un filtre spatial capable de confiner la lumière sur une zone très localisée de l'échantillon. Actuellement, cette nano-ouverture est généralement obtenue en métallisant une fibre optique monomode dont l'extrémité a été préalablement effilée [10, 11](voir figure 3).

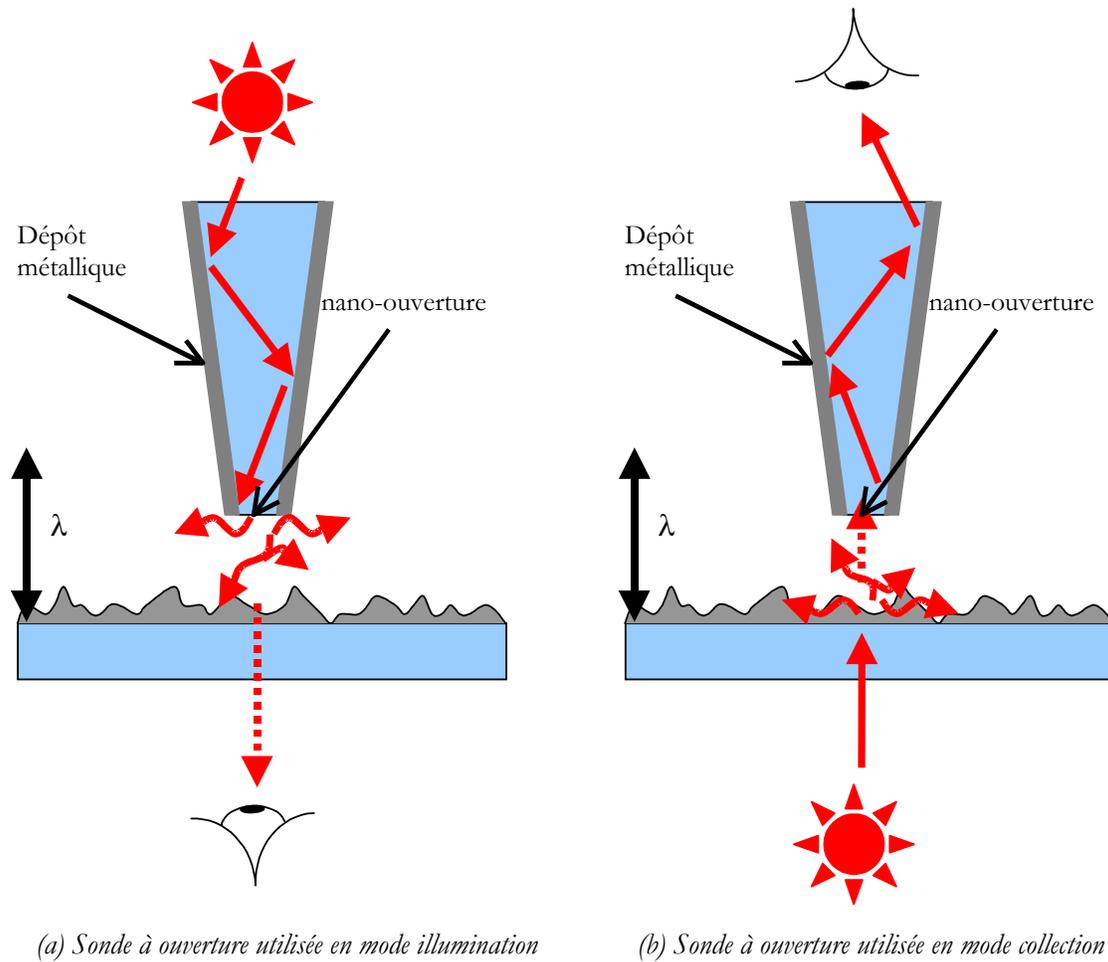


Figure 3 : Sondes SNOM 'à ouverture'.

Elle présente alors à son extrémité une ouverture optique (milieu diélectrique) de quelques dizaines de nanomètres de diamètre entourée d'un écran métallique opaque à la lumière visible. Cette ouverture optique peut être utilisée pour éclairer localement l'échantillon (c'est le mode illumination), on détecte alors le champ propagatif résultant de cette interaction locale, en champ lointain généralement en transmission par un objectif de microscope (figure 3 (a)) [7, 12]. Elle peut aussi être utilisée pour détecter localement les ondes évanescentes générées à la surface de l'échantillon éclairée en champ lointain (mode collection) (figure 3 (b)) [13, 14]. Une partie du signal champ proche collecté par l'ouverture optique est alors guidée vers l'autre extrémité de la fibre où elle est détectée par un photomultiplicateur avant d'être analysée.

Historiquement, les sondes à ouverture sont les premières sondes optiques utilisées en microscopie optique en champ proche [7]. Leur avantage réside principalement dans leur capacité à confiner spatialement, soit la zone éclairée (mode illumination), soit la zone de ‘capture’ du champ à détecter (mode collection), minimisant ainsi les sources de bruit liées à la diffusion des zones adjacentes. De plus, le signal optique étant directement analysé en extrémité de fibre, les images obtenues sont ‘à priori’ moins complexes à interpréter que lors de l’utilisation d’une sonde diffusante (voir §A 2.2.2) bien que dans les deux cas la connaissance des mécanismes qui sont à l’origine de la formation des images SNOM, indispensable à leurs interprétation, constitue un sujet de recherche d’actualité.

Les inconvénients de ces sondes (fibres monomodes étirées et métallisées) sont principalement d’ordre technologique, pour leur conception, et géométrique pour l’imagerie SNOM. En effet leur fabrication doit satisfaire un cahier des charges contraignant entraînant des sondes dont les caractéristiques géométriques sont souvent peu reproductibles. :

- création d’une sonde effilée à partir d’une fibre clivée (étirage à chaud puis attaque chimique par exemple [15]),
- dépôt d’une couche de métal (épaisseur du dépôt > épaisseur de peau du métal déposé : ~15 nm pour l’aluminium) à l’extrémité de la pointe tout en laissant subsister une nano-ouverture optique.

Par ailleurs, la couronne métallique et ses éventuelles imperfections morphologiques (rugosité ponctuelle de quelques nm de hauteur), peuvent être à l’origine d’un contraste optique artificiel dans l’image SNOM car elle empêche le maintien de la nano-ouverture à une distance constante d’une surface rugueuse au cours du balayage [16, 17]. De plus, des études ont montré une certaine sensibilité de la couche métallique à l’égard d’une élévation de température, celle-ci pouvant entraîner sa destruction [18-21].

Une autre limitation importante de ces sondes réside dans la faible gamme spectrale qui leur est accessible. Deux facteurs contribuent à cette limitation :

- la fréquence de coupure de la partie guidante de la fibre optique qui réduit la gamme spectrale détectable au visible et au proche infrarouge,
- la taille de la nano-ouverture : le taux de conversion de l'ouverture diminue rapidement lorsque la longueur d'onde d'analyse augmente.

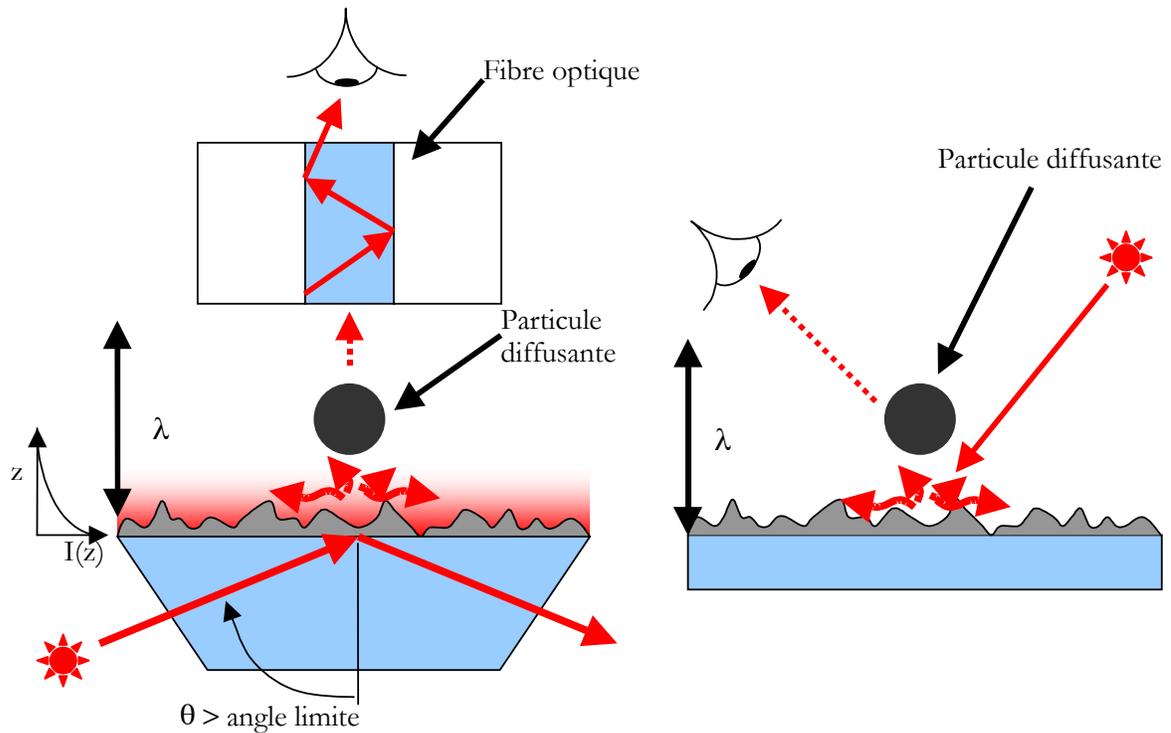
Remarque : On peut d'ailleurs se demander si le concept d'ouverture optique, tel qu'on l'entend quand on parle de sonde à ouverture (i. e. un filtre spatial) a toujours un sens physique lorsque son 'diamètre' devient petit devant l'épaisseur de la couche métallique qui l'entoure, et plus précisément devant l'épaisseur de peau du métal de la couche... !

2.2.2 Les sondes diffusantes.

L'approche 'sonde diffusante' généralise et applique le concept, décrit au paragraphe 2.1, de nano-diffuseur plongé dans le champ proche de l'objet. La famille des sondes diffusantes regroupe les sondes homogènes chimiquement (a contrario des sondes à ouverture composées d'un cœur diélectrique recouvert de métal). On peut classer dans cette catégorie les fibres optiques effilées et les sondes utilisées d'une manière générale en microscopie à sonde locale (AFM : Atomic Force Microscope, STM : Scanning Tunneling Microscope, MFM : Magnetic Force Microscope, ...). Les fibres optiques effilées sont dans ce cas exclusivement utilisées en mode collection dans des configurations expérimentales ou dans l'étude d'échantillons pour lesquels les sources de lumière parasites sont minimales. On peut citer, par exemple, les configurations où l'échantillon est éclairé en réflexion totale interne* [22-26] (figure 4(a)) ou encore les études d'échantillons émetteurs de lumière (échantillons fluorescents [27] ou photoluminescents [28], étude de la propagation dans les guides d'ondes [29] etc...). Comme pour les sondes à ouverture, le signal optique en champ proche est issu du couplage d'une partie des ondes diffusées par la sonde avec les modes de propagation de la fibre. La figure 4 (a) donne le schéma de principe de l'architecture d'un microscope utilisant ces sondes optiques effilées dans

* Ces configurations sont désignées par les acronymes PSTM (Photon Scanning Tunneling Microscope) et STOM (Scanning Tunneling Optical Microscope) en analogie avec l'effet tunnel électronique mis en évidence expérimentalement par G. Binnig et *al* en 1986 [8].

le cas particulier où l'échantillon est éclairé par une onde évanescente de Fresnel générée par réflexion totale interne, la figure 4(b) schématise l'approche générale de la sonde diffusante.



(a) Schéma de principe de la détection du champ lumineux à proximité de la surface par une fibre optique effilée : Cas particulier où la surface est éclairée en réflexion totale interne.

(b) Schéma de principe de la détection du champ lumineux à proximité de la surface par une sonde diffusante. Une particule diffusante (extrémité de la pointe) est plongée dans le champ proche de l'échantillon. Cas général.

Figure 4 : Sondes SNOM 'sans ouverture' ou diffusantes.

Les sondes diffusantes sont cependant généralement des sondes propres aux microscopies AFM et STM. Des pointes métalliques, semi-conductrices ou isolantes, commerciales pour la plupart, sont disponibles et permettent l'utilisation de sources sur une large gamme spectrale allant du proche UV à l'infrarouge thermique [30]. Leur fabrication, assez aisée (fabrication en grande série

pour les pointes commerciales), permet d'obtenir des sondes ayant des géométries variées (conique, tétraédrique, pyramidale, hyperbolique) avec un rayon de courbure terminal de ~ 10 nm. Leur grande diversité physico-chimique rend également possible l'emploi d'un grand nombre de systèmes d'approche et de régulation de la distance sonde – échantillon.

Les premiers microscopes optiques utilisant de telles sondes ont été développés au début de la décennie par M. Specht et *al* (Laboratoire de Physique, Université de Munich, Allemagne) [31], N.F. Van Hulst et *al* (Département de Physique Appliquée, Université de Twente, Hollande) [32-34], l'équipe de S. Kawata (Département de Physique Appliquée, Université d'Osaka, Japon) [35-39], l'équipe de A.C. Boccard (Laboratoire d'Optique Physique, ESPCI, France) [40, 41], l'équipe de D. Courjon (Laboratoire d'Optique, Université de Franche-Comté, France) [42] et l'équipe de H.K. Wickramasinghe (Centre de recherche T.J. Watson, IBM Yorktown, USA) [43, 44]. D'un point de vue optique physique, la communauté scientifique assimile souvent l'extrémité de la sonde à une particule de Rayleigh ($a \ll \lambda/2\pi$ et $a \cdot \text{Re}(\tilde{n}) \ll \lambda/2\pi$, a étant la taille de la particule et $\text{Re}(\tilde{n})$ la partie réelle de son indice complexe [45]) agissant comme un diffuseur local de lumière.

L'architecture typique d'un tel microscope est illustrée par la figure 4(b). La surface étudiée est éclairée en champ lointain par des techniques classiques de microscopie optique. L'interaction de ce champ incident avec les objets de taille sub-micronique, qui composent la surface, est détectée en champ proche par l'extrémité de la sonde. Le champ perturbé localement, est ainsi partiellement rendu progressif et peut être collecté en champ lointain par un photodétecteur via un objectif de microscope par exemple. L'échantillon étant éclairé en champ lointain (tache de diffraction $\geq 1\mu\text{m}$ de diamètre), le signal optique diffusé par la sonde doit être isolé de la lumière parasite que constitue le champ d'éclairage. Pour ce faire, la sonde est habituellement animée d'un mouvement de vibration verticale (perpendiculaire à la surface) de fréquence f permettant de moduler le champ diffusé par la sonde. Ce signal optique de fréquence f est extrait de l'intégralité du signal optique, détecté en champ lointain, par détection synchrone à la même fréquence f . Cette modulation n'est cependant pas la seule technique permettant de filtrer le signal provenant de l'extrémité de la sonde en interaction avec l'échantillon. Un autre moyen d'accéder à l'information optique en champ proche consiste à analyser (à l'aide d'un polariseur) le champ détecté par la sonde pour éliminer les éventuelles contributions des sources progressives au signal SNOM [46].

Dans la pratique, cette distinction champ proche / champ lointain n'est malheureusement pas aussi évidente qu'elle y paraît et les recherches, en cours ces dernières années, tendent à démontrer ce fait. En réalité, la connaissance du processus de formation de l'image constitue un véritable challenge pour les chercheurs au même titre que la compréhension des phénomènes optiques en champ proche proprement dits. **L'objectif principal de cette thèse est d'apporter une meilleure compréhension dans le processus de formation des images SNOM obtenues par cette technique.**

2.3. Principe physique de la détection des ondes évanescentes.

Avant tout, il est important de noter que la classification des sondes en deux familles distinctes, comme nous l'avons faite dans le paragraphe précédent, n'a de sens que d'un point de vue technologique. Le mécanisme physique à l'origine de la conversion du champ évanescent en ondes progressives par une sonde optique, est dans les deux cas un mécanisme de *diffusion*. Afin de décrire ce mécanisme, considérons le champ émis par un dipôle isolé et plongé dans un milieu de constante diélectrique ϵ_1 et d'indice de réfraction n_1 . Le champ créé par ce dipôle lorsqu'il est excité par une onde plane de pulsation ω est, en coordonnées sphériques (voir figure 5) [2] :

$$\begin{cases} E_R = 2.P.\cos(\theta) \left(\frac{1}{R^3} - i.\frac{2.\pi}{\lambda.R^2} \right) \\ E_\theta = P.\sin(\theta) \left(\frac{1}{R^3} - i.\frac{2.\pi}{\lambda.R^2} - \frac{(2.\pi)^2}{\lambda^2.R} \right) \\ H_\psi = P.\sin(\theta) \left(-i.\frac{2.\pi}{\lambda.R^2} - \frac{(2.\pi)^2}{\lambda^2.R} \right) \end{cases} \quad (I.4)$$

avec - $P = P_0.e^{-i.\omega.t}$ le moment dipolaire du dipôle,

- $R = |\overrightarrow{OP}|$ (voir figure 5),

- $\lambda = \frac{2.\pi.c}{n_1.\omega}$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide.

Les champs E_R , E_θ et H_ψ sont définis par la figure 5. Le dipôle est placé à l'origine du repère et vibre selon l'axe Oz.

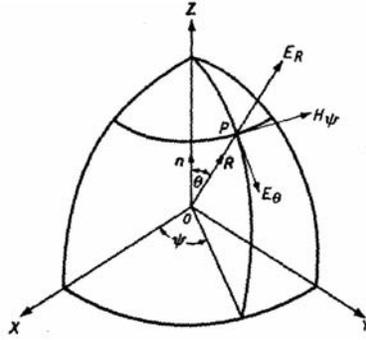


Figure 5 : Décomposition des champs créés par un dipôle en coordonnées sphériques. D'après [2].

Ces équations nous permettent de faire plusieurs remarques :

- 1/ Lorsqu'on s'éloigne du dipôle ($R > \lambda$), les composantes des champs variant en $1/R^2$ et en $1/R^3$ s'annulent très vite. Dans cette région :

$$E_{\theta} \approx H_{\varphi} \approx -\frac{(2\pi)^2}{\lambda^2 R} P \cdot \sin(\theta) \quad (\text{I.5})$$

On retrouve l'expression classique du champ rayonné par un dipôle de Hertz en champ lointain. On en déduit la valeur moyenne du flux du vecteur de Poynting à travers la surface d'une sphère $R \gg \lambda$ dans une direction θ :

$$\langle S_{R,\theta} \rangle = \frac{|P_0|^2}{8\pi} \cdot \frac{\omega^4}{c^3} \cdot \frac{n^3}{R^2} \cdot \sin^2(\theta) \quad (\text{I.6})$$

Les composantes variant en $1/R^2$ et en $1/R^3$ ne participent pas à cette émission, elles représentent les contributions évanescentes des champs dans (I.4).

- 2/ Lorsqu'on se place dans la zone de champ proche du dipôle ($R < \lambda/2$), les composantes évanescentes (variant en $1/R^2$ et en $1/R^3$) des champs dominent largement l'amplitude des champs progressifs.
- 3/ Contrairement aux composantes champ lointain du dipôle, on note une contribution des composantes évanescentes des champs dans l'axe du dipôle.
- 4/ Les composantes évanescentes variant en R^2 présentent un déphasage de $\pi/2$ par rapport aux autres composantes des champs.

Supposons à présent que ce dipôle représente notre sonde optique. Approchons ce dipôle à une distance d finie d'un ensemble de dipôles constituant une surface parfaitement plane qui est celle de l'échantillon que nous désirons étudier et éclairons l'ensemble en champ lointain par une onde plane de pulsation ω . Dans ces conditions, le diagramme de rayonnement du dipôle sonde, tel qu'il est défini par (I.4), est modifié par la présence de la surface [47]. Le calcul complet du champ électromagnétique dans ce cas a été effectué par W. Lukosz et *al* dans une publication de 1977 [47] dans laquelle les auteurs calculent l'énergie émise par le dipôle, plongé dans un milieu d'indice n_1 , lorsqu'il est placé dans le champ proche d'une surface d'indice de réfraction $n_2 > n_1$. Ils calculent en particulier le rapport $\langle S_{d<\lambda} \rangle / \langle S_{d>\lambda} \rangle$ des énergies moyennes rayonnées par le dipôle pour $d < \lambda$ ($\langle S_{d<\lambda} \rangle$) et $d > \lambda$ ($\langle S_{d>\lambda} \rangle$) :

$$\frac{\langle S_{d<\lambda} \rangle}{\langle S_{d>\lambda} \rangle} = \cos^2(\alpha) \cdot \left[\frac{\langle S_{d<\lambda} \rangle}{\langle S_{d>\lambda} \rangle} \right]_{\perp} + \sin^2(\alpha) \cdot \left[\frac{\langle S_{d<\lambda} \rangle}{\langle S_{d>\lambda} \rangle} \right]_{//} \quad (I.7)$$

$$\text{avec } \frac{\langle S_{d<\lambda} \rangle}{\langle S_{d>\lambda} \rangle} = 1 + \frac{r_{1,2} \cdot \text{Im}\{E_i(d)\}}{\text{Im}\{E_i(d)\}} \quad (I.8)$$

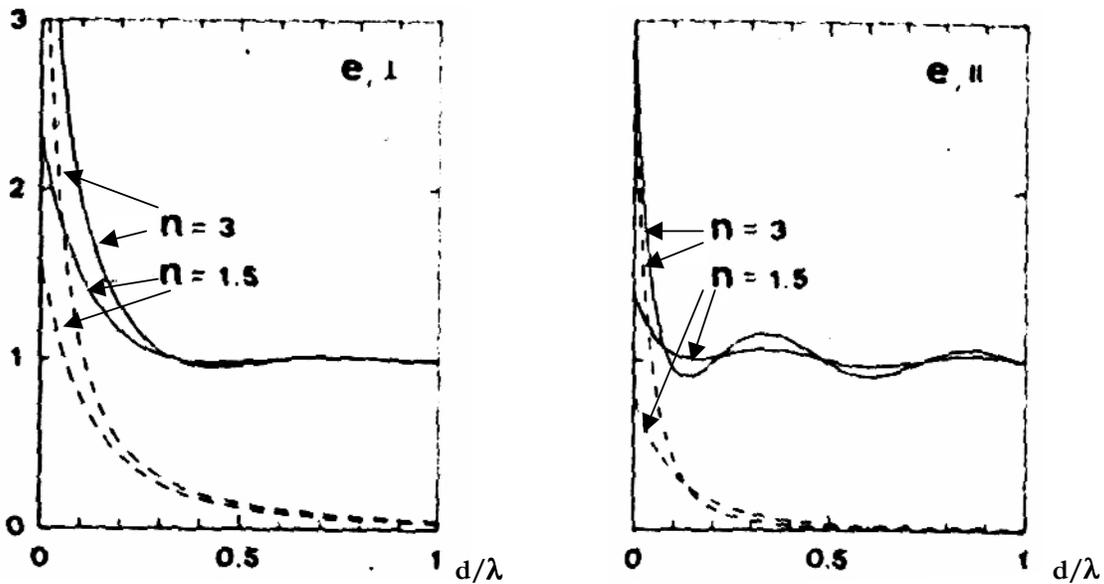
- où :
- α représente l'angle formé par l'axe du dipôle et la perpendiculaire à la surface de l'échantillon,
 - $\text{Im}\{E_i(d)\}$ représente la partie imaginaire du champ incident en d ,
 - $r_{1,2}$ le coefficient de réflexion de Fresnel du milieu 1 vers le milieu 2.

L'expression (I.7) met en évidence la contribution du rayonnement du dipôle dans les cas où l'axe de ce dernier est perpendiculaire à la surface (noté \perp) et parallèle à la surface (noté $//$).

Les courbes de la figure 6, extraites du même article, donnent la puissance normalisée $\langle S_{d<\lambda} \rangle / \langle S_{d>\lambda} \rangle$ du champ électrique en fonction de d/λ dans les cas particuliers où le dipôle vibre perpendiculairement ($\alpha=0$) (figure 6(a)) où parallèlement ($\alpha=\pi/2$) (figure 6(b)) à la surface. La contribution énergétique des ondes évanescentes à cette émission est tracée en pointillés.

L'indice n représente le rapport n_2/n_1 , choisi supérieur à 1, conformément à la situation rencontrée lors d'une expérience SNOM dans laquelle la sonde baigne généralement dans l'air.

Pour une distance $d > \lambda/2$, donc, l'expression (I.7) représentée par la figure 6 nous montre que seules les composantes propagatives des champs créées par le dipôle sonde et réfléchies par les dipôles qui constituent la surface (voir aussi § 1.) contribuent à l'énergie rayonnée par le dipôle sonde. En effet, la figure 6(a), pour laquelle le dipôle rayonne principalement parallèlement à la surface, nous indique que le champ émis par le dipôle dans ces conditions est comparable au champ émis par le dipôle isolé. De même, lorsque le dipôle rayonne vers la surface ($\alpha = \pi/2$), seules les interférences dues à la réflexion 'spéculaire' de ce rayonnement sur la surface sont présentes. Dans ces deux cas, seules les informations relatives au plan moyen de la surface étudiée, contribuent à l'énergie collectée en champ lointain.



(a) : Puissance rayonnée par le dipôle oscillant perpendiculairement à la surface en fonction du rapport d/λ .

(b) : Puissance rayonnée par le dipôle oscillant parallèlement à la surface en fonction du rapport d/λ .

Figure 6 : Energie rayonnée par un dipôle oscillant en fonction du rapport d/λ ; d représente la distance dipôle – surface et λ la longueur d'onde d'excitation. Cette énergie est normalisée par rapport à l'énergie moyennée rayonnée par le dipôle isolé. D'après W. Lukosz et al [47].

Si maintenant nous rapprochons le dipôle sonde de la surface à une distance d inférieure à $\lambda/2$, les figures 6 montrent une contribution nette des composantes évanescentes du champ à la puissance totale rayonnée en champ lointain. Ceci est dû au fait, que le milieu le plus dense (la surface dans ce cas) frustre le champ évanescent du dipôle sonde, augmentant ainsi son rayonnement total. Si, comme nous l'avons explicité au paragraphe 1 de ce chapitre, ces composantes évanescentes sont caractéristiques des propriétés optiques locales de la surface, ce rayonnement traduira le comportement optique local de la surface.

Les microscopes optiques à sonde locale mettent à profit la résultante de cette interaction locale *champ électromagnétique incident / sonde / surface* pour décrire les propriétés optiques des surfaces en s'affranchissant des effets de la *diffraction en champ lointain*. Comme nous l'avons indiqué au début du paragraphe, ce processus physique, présenté ici d'une manière très rudimentaire, efface les différences technologiques que nous avons volontairement introduites lors de la présentation des principaux types de sondes utilisées par les SNOMs. Malgré tout, si à présent nous nous remplaçons, à nouveau, dans une vision purement technologique de la microscopie optique en champ proche nous pourrions être tenté, intuitivement, de trouver à la sonde à ouverture une qualité que, à priori, la sonde diffusante ne possède pas : la capacité d'éclairer localement l'échantillon (mode illumination au § 2.2.1.). Là encore notre intuition serait trompeuse ! En effet, de nombreux modèles théoriques (par exemple : [4, 48, 49]) démontrant que l'interaction *champ électromagnétique incident / sonde diffusante / surface* pouvait également amener une sonde diffusante à se comporter comme une source locale de lumière, ont depuis été confirmés expérimentalement par des études utilisant cette propriété surprenante de la sonde diffusante [50-52]. Cet effet sera mis en évidence au chapitre IV.

Une partie du travail de thèse que nous présentons dans ce document a été consacrée à l'étude de cette dualité *nanodétecteur – nanosource* que possède la sonde diffusante dans certaines conditions. Nous serons amenés à développer ce concept au cours de ce manuscrit.

3. Les méthodes d'asservissement.

Pour accéder aux propriétés optiques sub- λ d'une surface, il est indispensable (voir conditions données au § B 2.) d'amener le détecteur optique dans la zone de champ proche optique de la surface et de pouvoir contrôler, en permanence, la distance qui sépare ces deux entités en

interaction. Ce dernier point est d'autant plus important qu'il conditionne, en partie, les interprétations qui sont faites lors de l'analyse des résultats. En outre, l'asservissement est effectué sur la base d'une interaction physique entre la surface et la sonde (interaction électrostatique par exemple). Cette interaction compose avec l'interaction électromagnétique qui nous intéresse, et peut même, dans certains cas, entrer en compétition avec celle-ci, pour finalement influencer, pour beaucoup, le contraste obtenu dans l'image optique. L'asservissement est donc un paramètre primordial dans le processus d'imagerie, peut-être tout autant que la mesure optique elle-même.

Dans cette partie nous décrivons les principaux asservissements utilisés en microscopie optique à sonde locale, nous exposons leur principe de fonctionnement et discutons leurs particularités. Nous reviendrons en détail sur l'asservissement que nous avons utilisé pour effectuer nos études optiques dans la partie B du chapitre II de ce manuscrit.

3.1. L'asservissement par effet tunnel électronique.

Cette technique (STM : Scanning Tunneling Microscopy), dont le développement valut le prix Nobel de Physique à G. Binnig et H. Rohrer en 1986 [8], révolutionna la physique des surfaces tant elle apparut indispensable pour leur étude à l'échelle atomique. En effet, le phénomène physique (l'effet tunnel électronique) sur lequel repose son principe de mesure lui permet d'atteindre des résolutions verticale (perpendiculairement à la surface) de 0,01 nm et latérale de 0,1 nm [9, 53]. Cette limite latérale étant principalement due à la taille ainsi qu'à la forme de la sonde utilisée (dans le cas où la rugosité de la surface étudiée dépasse la rugosité atomique). Le développement du STM fut aussi le point de départ de la microscopie optique en champ proche expérimentale. En effet, en 1984 D. Pohl et *al* [7] utilisent le métal déposé sur leur sonde à ouverture pour profiter d'un asservissement par effet tunnel électronique.

Ce type d'asservissement apporte une solution efficace et précise à la microscopie optique à sonde locale dans le positionnement de la sonde par rapport à la surface de l'échantillon. Il répond ainsi à l'un des critères de résolution imposé par le SNOM (§ B 2.). Par contre, l'utilisation d'un asservissement sur le courant tunnel électronique impose à la sonde et à la surface d'être conductrices ou partiellement conductrices. Ceci implique le dépôt d'une fine couche métallique sur les échantillons non conducteurs et seules les sondes à ouverture [54, 55] et

les sondes diffusantes métalliques [31, 56] ou semi-conductrices dopées [57] peuvent bénéficier de ce type d'asservissement.

3.2. L'asservissement optique.

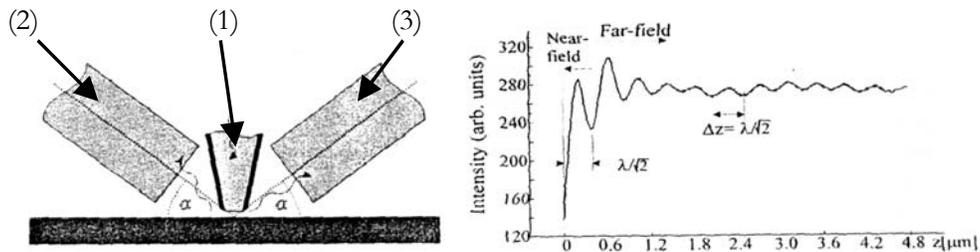
On recense deux configurations expérimentales types pour lesquelles la distance sonde - échantillon est déterminée par un signal purement optique. Ces configurations utilisent l'interaction optique entre la surface de l'échantillon et le champ électromagnétique qui l'éclaire pour réguler la position de la sonde au-dessus de l'échantillon. En d'autres termes, la sonde devant baigner dans la zone de champ proche optique de la surface, c'est le signal optique diffusé par la sonde au cours de l'approche qui est utilisé pour l'asservissement. L'altitude de la pointe au cours du balayage est donc une fonction du signal SNOM.

Le système optique de contrôle de la distance sonde - échantillon le plus répandu, connu sous l'acronyme PSTM (Photon Scanning Tunneling Microscope), ou STOM (Scanning Tunneling Optical Microscope) à été proposé par R.C. Reddick et *al* [26], F. De Fornel et *al* [58] et D. Courjon et *al* en 1989 [25]. L'échantillon, forcément transparent ou semi-transparent, y est éclairé en transmission par une onde évanescente de Fresnel. C'est l'onde de Fresnel, perturbée par la présence de la surface qui est prise pour référence dans l'estimation de la distance sonde - échantillon au cours du balayage. La figure 4(a) décrit cette configuration 'type' dans le cas particulier où la sonde est une fibre optique non métallisée [25, 26, 58]. Le détecteur champ proche est généralement dans ce cas une sonde diffusante (fibre optique non métallisée [22], pointe métallique [36]) ou plus rarement une sonde à ouverture [59]. Lors de l'approche de la sonde vers la surface, le champ diffusé par la sonde optique est détecté en champ lointain (après propagation dans la fibre pour la fibre optique ou par le biais d'un objectif de microscope par exemple pour une sonde opaque). Une première courbe d'approche $I(z)$ permet de calibrer la distance sonde - échantillon et sert de référence pour le choix d'une intensité de consigne pour l'asservissement. Deux modes de balayage sont alors possibles :

- le mode intensité constante : le système d'asservissement du microscope ajuste la distance sonde - échantillon de manière à maintenir constant le signal optique diffusé par la pointe et détecté en champ lointain,

- le mode ‘hauteur constante’ dans lequel la sonde balaye l’échantillon à une altitude constante. La variation de signal optique détectée en champ lointain est à l’origine du contraste optique dans l’image.

Une autre approche, plus originale, développée par G. Gutoff et *al* [60] utilise l’intensité d’une onde stationnaire pour réguler la distance sonde -échantillon. Dans cette configuration, décrite par la figure 7(a), une sonde à ouverture (notée 1 sur la figure) éclaire l’échantillon en réflexion.



(a) : Configuration expérimentale développée par G. Gutoff et *al*.

(b) : Intensité collectée par la fibre (2) en fonction de la distance sonde (noté 1) – surface.
Par G. Gutoff et *al*.

Figure 7 : Asservissement de la distance sonde – échantillon dans le cas où la surface est éclairée par un champ propagatif. D’après G. Gutoff et *al* [60].

La surface de l’échantillon et la sonde forment alors une cavité Fabry-Perot ce qui se traduit par l’apparition de franges d’interférences dans le demi-espace où se trouve la sonde. Une fibre de collection de grande ouverture numérique (par exemple la fibre (2) sur la figure 7(a)) détecte ce signal interférentiel diffusé par la sonde au cours de l’approche. Lorsque la sonde entre dans le champ proche optique de la surface, ce système de frange est modifié par la proximité de cette dernière (figure 7(b)). Cette perturbation est détectée par la fibre (2) et utilisée pour réguler la distance sonde – échantillon. Parallèlement le couple de fibres (1, 3) assure la configuration SNOM. Notons que dans ce cas, l’extrémité de la sonde est nécessairement recouverte d’un film métallique (sonde à ouverture) pour confiner au maximum la zone d’éclairage.

3.3. L'asservissement sur les forces de surface.

Une alternative aux asservissements STM et optique a été développée au début des années 90 pour permettre l'étude optique des échantillons isolants et non transparents [61, 62]. La microscopie à force atomique (AFM) semblait être la solution idéale en raison de la diversité des échantillons qui s'y prêtent. Cependant, la géométrie particulière des fibres optiques effilées (métallisées ou non) empêchant leur utilisation comme sonde classique de microscopie à force atomique [en effet, les leviers AFM présentent un levier horizontal au bout duquel se trouve la pointe et l'on mesure la déflexion verticale de ce levier (voir partie B du chapitre II) alors que les fibres sont verticales ce qui ne permet plus cette mesure], leurs utilisateurs développèrent un mode résonnant sensible aux forces de cisaillement de la surface : le 'Shear Force'. Pour sensibiliser la sonde à ces forces, l'extrémité de la sonde est animée d'un mouvement de vibration latéral (parallèle à la surface de l'échantillon) de quelques nanomètres d'amplitude (5 nm typiquement) à une fréquence proche de sa fréquence de résonance. Lorsque la sonde est approchée de la surface, l'interaction entre l'extrémité de la fibre et les couches de contaminant adsorbées à la surface de l'échantillon provoque un amortissement de l'oscillateur [60, 63]. Cet amortissement, significatif de la proximité de la surface offre un moyen de contrôle de la distance qui sépare la sonde de l'échantillon. Cette technique d'asservissement a été depuis largement utilisée par les SNOM munis de fibre optique métallisée [18, 27, 64] ou diffusantes [65].

Malgré l'avantage indéniable qu'apporte le Shear Force à la microscopie optique en champ proche en étendant sa gamme d'échantillons observables aux surfaces non conductrices (voir STM) ou opaques (voir PSTM), cette méthode d'asservissement souffre tout de même de quelques maux pouvant nuire à la 'qualité' des images SNOM :

- la vibration de la sonde durant le balayage induit une perte de résolution latérale,
- l'estimation de la distance sonde - échantillon est incertaine car elle dépend fortement de la nature chimique de la couche adsorbée et conséquemment de la nature de l'échantillon étudié et des conditions environnementales au cours de l'expérience. Ce paramètre peut également affecter la résolution latérale dans la mesure où pour une même amplitude de vibration mesurée, la distance

réelle qui sépare la sonde de l'échantillon dépend fortement de la nature et de l'épaisseur de la couche adsorbée [65]. Notons par ailleurs que la nature des forces en jeu est encore peu connue et que la connaissance de ces forces constitue un thème de recherche d'actualité,

- enfin, l'intensité des forces de cisaillement qui peut atteindre quelques centaines de nN peut facilement détériorer la sonde (raideur typique ≈ 100 N/m) si celle-ci est excitée à une amplitude de plus d'une trentaine de nanomètres entraînant également une perte de résolution [65].

Pour les sondes diffusantes autres que les fibres optiques étirées, l'asservissement sur les forces de surface est généralement effectué dans un mode vibratoire vertical : mode résonant [43] ou mode contact intermittent [40] et plus rarement en mode contact [33, 42] (nous reviendrons en détail sur ces différents modes de travail au cours de la partie B du chapitre II).

C Conclusion – objectifs de la thèse

Nous avons fait un rapide état de l'art des principales configurations qui ont été développées jusqu'à ce jour en microscopie optique à sonde locale. Nous avons pu constater que chacune d'entre elles présente des avantages et des inconvénients qui ne sont pas forcément du domaine de l'optique mais sont principalement d'ordre technologique. La sonde paraît être l'élément principal sur lequel repose la différenciation de ces configurations. Aussi, les différentes études réalisées jusqu'à présent dans ce domaine nous permettent de définir une certaine complémentarité entre les microscopes utilisant des sondes à ouverture et ceux utilisant des sondes diffusantes (pour exemple : les sondes diffusantes seront plutôt adaptées à des études effectuées dans l'infrarouge thermique alors que les sondes possédant une nano – ouverture optique semblent mieux convenir lors de l'étude de la propagation de la lumière dans les guides d'onde).

En conséquence, nous avons choisi une configuration utilisant une sonde diffusante. Plus récente, moins connue et plus complexe, cette configuration semble cependant avoir des potentialités plus importantes que celles qui utilisent des sondes à ouverture.

La configuration expérimentale que nous avons mise en place est comparable à celle développée par Renaud Bachelot au cours de sa thèse (1996) [66-68] à savoir : un dispositif expérimental dans lequel l'échantillon est éclairé en réflexion, la sonde est métallique et la distance sonde – échantillon est contrôlée par microscopie AFM en mode vibrant. Les raisons qui motivent ces choix sont liées aux résultats encourageants présentés référence [66] auxquels s'ajoute la diversité des échantillons accessibles à ce microscope et la facilité (relative) de produire les sondes optiques (en comparaison avec les sondes à ouverture).

Néanmoins, nous sommes conscients des nombreuses interrogations que soulèvent encore les résultats obtenus par ces dispositifs. Aussi, nous leurs porterons une attention particulière en essayant de mettre notre travail à contribution dans la compréhension des mécanismes physiques qui sont à l'origine du contraste dans les images. Nous avons abordé deux axes de recherche lors de ce travail de thèse : l'étude des composants de l'optoélectronique et la nanophotopolymérisation. Ces études, respectivement présentées aux chapitres III et IV, nous ont permis de montrer l'influence qu'ont certains paramètres expérimentaux sur le contraste dans l'image optique en champ proche.

D Références

1. Chevalier A., *L'étudiant Micrographe: Traité théorique et pratique du microscope*. 1865, Paris: Adrien Delahaye. 555 pages.
2. Born M. and Wolf E., *Principles of Optics*. 6 ed. Vol. 1. 1980, Cambridge: Cambridge University Press. 808 pages.
3. Bryngdahl O., *Evanescent waves in optical imaging*. Progress in Optics, 1973, 169-218.
4. Greffet J.J. and Carminati R., *Image formation in near-field optics*. Progress in Surface Science, 1997. **56**(3), 133-237.
5. Thèse de Laddada R., *Réalisation d'un microscope optique en champ proche à sonde sans ouverture : étude expérimentale et théorique du contraste des images optiques*, Compiègne. 1999, Université de Technologie de Troyes: Troyes.
6. Synge E.H., *A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra- microscopic region*. Philosophical Magazine, 1928. **6**, 356-362.
7. Pohl D.W., Denk W., and Lanz M., *Optical stehoscopy : Image recording with resolution 1/20*. Applied Physics Letters, 1984. **44**(7), 651-653.
8. Binnig G., *et al.*, *Tunneling through a controllable vacuum gap*. Applied Physics Letters, 1982. **40**(2), 178-180.
9. Binnig G., *et al.*, *Surface studies by scanning tunneling microscopy*. Physical Review Letters, 1982. **49**(1), 57-61.
10. Jalocha A., Leblanc S., and Spajer M. . in *OPTO'90*. 1990. Paris: ESI Publications.
11. Betzig E. and Trautman J.K., *Near-field optics: microscopy, spectroscopy, and surface modification beyond the diffraction limit*. Science, 1992. **257**, 189-195.
12. Hecht B., *et al.*, *Influence of detection conditions on near-field optical imaging*. Journal of Applied Physics, 1998. **84**(11), 5873-5881.
13. Betzig E., Isaacson M., and Lewis A., *Collection mode near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letters, 1987. **51**(25), 2088-2091.
14. Vaez-Iravani M., Toledo-Crow R., and Chen Y., *Correlative imaging in scanning near-field optical microscopy*. Journal of Vacuum Science Techechnology A, 1993. **11**(4), 742-747.
15. Betzig E., *et al.*, *Breaking the diffraction barrier: optical microscopy on nanometric scale*. Science, 1991. **251**, 1468-1470.

16. Hecht B., *et al.*, *Facts and artefacts in near-field optical microscopy*. Journal of Applied Physics, 1997. **81**(6), 2492-2497.
17. Durkan C. and Shvets I. V., *Reflection-mode scanning near-field optical microscopy : Influence of sample type, tip shape, and polarization of light*. Journal of Applied Physics, 1998. **83**(3), 1171-1176.
18. Lienau Ch., Richter A., and Elsaesser T., *Light-induced expansion of fiber tips in near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letter, 1996. **69**(3), 325-327.
19. Yakobson B.I., *et al.*, *Thermal/ optical effects in NSOM probes*. Ultramicroscopy, 1995. **61**, 179-185.
20. Kurpas V., Libenson M., and Martsinovsky G., *Laser heating of near-field tips*. Ultramicroscopy, 1995. **61**, 187-190.
21. Kavaldjiev D L., Toledo-Crow R., and Vaez-Iravani M., *On the heating of the fiber tip in a near-field scanning optical microscope*. Applied Physics Letters, 1995. **67**(19), 2771-2773.
22. De Fornel F., *et al.*, *Analysis of image with photon scanning tunneling microscope*. Journal of Optical Society of America A, 1996. **13**(1), 35-46.
23. Coello V. and Bozhevolnyi S. I., *Near-field optical microscopy of fractal structures*. Nanotechnology, 1999. **10**, 108-112.
24. Tsai D.P., *et al.*, *Imaging local index variations in an optical waveguide using a tapping-mode near-field scanning optical microscope*. Applied Physics Letters, 1999. **75**(8), 1039-1041.
25. Courjon D., Sarayedine K., and Spajer M., *Scanning tunneling optical microscopy*. Optics Communications, 1989. **71**(1,2), 23-29.
26. Reddick R.C., Warmack R.J., and Ferrel T.L., *New form of scanning optical microscopy*. Physical Review B, 1989. **39**(1), 767-770.
27. Song K.B., *et al.*, *Near-field scanning photoluminescence measurements using an uncoated fiber tip: A potential high resolution diagnostic technique for semiconductor devices*. Applied Physics Letters, 1998. **73**(16), 2260-2262.
28. Finnie C.M. and Bohn P.W., *Near-field photoluminescence of microcrystalline arsenic oxides produced in anodically processed gallium arsenide*. Applied Physics Letters, 1999. **74**(8), 1096-1098.
29. Thèse de Mignard F., *Microscopie optique en champ proche de dispositifs optoélectroniques intégrés.*, Versailles. 1999, Paris 7: Paris.
30. Lahrech A., *et al.*, *Infrared-reflection-mode near-field microscopy using an apertureless probe with a resolution of $\lambda/600$* . Optics Letters, 1996. **21**(17), 1315-1317.

31. Specht M., *et al.*, *Scanning plasmon Near-field microscope*. Physical Review Letters., 1992. **68**(4), 476-479.
32. Van Hulst N.F., *et al.*, *Operation of scanning near-field optical microscope in reflection in combination with a scanning force microscope*. SPIE Scanning Probe Microscopies, 1992. **1639**, 36-43.
33. Van Hulst N.F., *et al.*, *Near-field optical microscope using a silicon nitride probe*. Applied Physics Letters, 1992. **62**(5), 461-463.
34. Van Hulst N.F., *et al.*, *Combined scanning near-field optical and force microscopy*. Microscopy research and technique., 1993. **25**, 177-178.
35. Nakano T. and Kawata S., *Infrared evanescent-field microscope using CO2 laser for reflectance measurement*. Optics Communications, 1993. **4**, 159-162.
36. Inouye Y. and Kawata S., *Near-field scanning optical microscope with a metallic probe tip*. Optics Letters, 1994. **19**(3), 159-161.
37. Inouye Y. and Kawata S., *A scanning near-field optical microscope having scanning electron tunneling microscope capability using a single metallic probe tip*. Journal of Microscopy, 1994. **178**(pt1), 14-19.
38. Kawata S., Inouye Y., and Sugiura T., *Near-Field Scanning Optical Microscope with a Laser Trapped Probe*. Jpn. J. Appl. Phys., 1994. **33**, L 1725-L 1727.
39. Kawata S. and Inouye Y., *Scanning probe optical microscopy using a metallic probe tip*. Ultramicroscopy, 1995. **57**, 313-317.
40. Bachelot R., Gleyzes P., and Boccara A.C., *Near-field optical microscopy by local perturbation of a diffraction spot*. Microsc.Microanal.Microstruct., 1994. **5**, 389-397.
41. Gleyzes P., Boccara A.C., and Bachelot R., *Near-field optical microscopy using a metallic vibrating tip*. Ultramicroscopy, 1995. **57**, 318-322.
42. Baida F., Courjon D., and Tribillon G., *Combinaison of a fiber and a silicon nitride tip as a bifunctional detector: first results and perspectives*, in *Near-field optics (NFO'1)*, D.W.P.D. Courjon, Editor. 1992, Kluwer Academic Publishers. p. 71-78.
43. Zenhausern F., O'Boyle M.P., and Wickramasinghe H.K., *Apertureless near-field optical microscope*. Applied Physics Letters, 1994. **66**(13), 1623-1625.
44. Zenhausern F., Martin Y., and Wickramasinghe H.K., *Scanning interferometric apertureless microscopy: optical imaging at 10 Angström resolution*. Science, 1995. **269**, 1083-1085.
45. Van de Hulst H.C., *Light Scattering by Small Particles*. Dover ed. 1981, New-York: General Publishing Company. 470 pages.

46. Adelman Ch., *et al.*, *Experiments on the depolarization near-field scanning optical microscope*. Applied Physics Letters, 1999. **74**(2), 179-181.
47. Lukosz W. and Kunz R.E., *Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. I. Total radiated power*. J. Opt. Soc. Am., 1977. **67**(12), 1607-1615.
48. Martin O.J.F. and Girard C., *Controlling and tuning strong optical field gradients at a local probe microscope tip apex*. Applied Physics Letters, 1997. **70**(6), 705-707.
49. Novotny L., Bian R. X., and Sunney Xie X., *Theory of Nanometric Optical Tweezers*. Physical Review Letters, 1997. **79**(4), 645-648.
50. Aigouy L., *et al.*, *Polarisation effects in apertureless scanning near-field optical microscopy: an experimental study*. Optics Letters, 1999. **24**(4), 187-189.
51. Sanchez E.J., Novotny L., and Sunney Xie X., *Near-Field Fluorescence Microscopy Based on Two-Photon Excitation with Metal Tips*. Physical Review Letters, 1999. **82**(20), 4014-4017.
52. Grésillon S., *et al.*, *Experimental Observation of Localized Optical Excitations in Random Metal-Dielectric Films*. Physical Review Letters, 1999. **82**(22), 4520-4523.
53. Binnig G., *et al.*, *7x7 Reconstruction on Si(111) resolved in real space*. Physical Review Letters, 1982. **50**(178).
54. Garcia-Parajo M., Cambriel E., and Chen Y., *Simultaneous scanning tunneling microscope and collection mode scanning near-field optical microscope using gold optical fiber probes*. Applied Physics Letters, 1994. **65**(12), 1498-1500.
55. Lieberman K. and Lewis A., *Simultaneous scanning tunneling and optical near-field imaging with a micropipette*. Applied Physics Letters, 1993. **62**(12), 1335-1337.
56. Inouye Y. and Kawata S., *Reflection-mode near-field optical microscope with a metallic probe tip for observing fine structures in semiconductor materials*. Optics Communications, 1997. **134**, 31-35.
57. Schad R., *et al.*, *Wavelength dependence of the magnetic resolution of the magneto-optical near-field scanning tunneling microscope*. Applied Physics Letters, 1998. **73**(18), 2669-2671.
58. De Fornel F., *et al.* *An evanescent field microscope*. 1989.
59. Tsai D.P., Kovacs J., and Moscovits M., *Applications of apertured photon scanning tunneling microscopy (APSTM)*. Ultramicroscopy, 1995. **57**, 130-140.
60. Guttroff G., *et al.*, *A design of reflection scanning near-field optical microscope and its application to AlGaAs/GaAs heterostructures*. Applied Physics Letters, 1996. **68**(25), 3620-3622.
61. Toledo-Crow R., *et al.*, *Near-field differential scanning optical microscope with atomic regulation*. Applied Physics letters, 1992. **60**(24), 2957-2960.

62. Betzig E., Finn P.L., and Weiner J.S., *Combined shear force and near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letters, 1992. **60**(20), 2484-2486.
63. Okajima T. and Hirotsu S., *Study of shear force between microprobe and mica surface under controlled humidity*. Applied Physics Letters, 1997. **71**(4), 545-547.
64. Jalocha A. and Van Hulst N.F., *Dielectric and fluorescent samples imaged by scanning near-field optical microscopy in reflection*. Optics Communications, 1995. **119**, 17-22.
65. Durkan C. and Shvets I. V., *Method for increasing shear-force detection sensitivity with uncoated fiber tips*. 1997.
66. Thèse de Bachelot R., *Etude et réalisation d'un microscope optique en champ proche utilisant une sonde sans ouverture*, Paris. 1996, Université Paris 7: Paris.
67. Thèse de Grésillon S., *Microscopie optique en champ proche en transmission avec une sonde métallique: exaltation de champ et spectroscopie de nanoparticules.*, Paris VI. 1999, Paris VI: Paris.
68. Thèse de Lahrech A., *Imagerie infrarouge par microscopie en champ proche optique.*, Paris XI. 1999, Paris XI: Orsay.

Chapitre II : Développement du microscope.

A Introduction.	45
B La microscopie à force atomique.	48
1. Introduction.	48
2. Généralités.	48
3. Champ de force d'une surface.	49
4. Mesure de l'interaction sonde – échantillon / Principe de fonctionnement d'un AFM.	51
5. Les différents modes de travail.	52
6. Le mode contact intermittent (C-I)	53
6.1. Principe.	53
6.2. Interaction sonde –échantillon.	57
6.3. Interdépendance des mesures AFM et SNOM.	59
C Les sondes utilisées.	65
1. Les sondes commerciales.	65
2. Les sondes en tungstène.	67
2.1. Fabrication.	67
3. Les premières images AFM.	77
4. Importance de la géométrie de la pointe dans l'image SNOM.	79
D Instrumentation optique.	83
1. Introduction.	83
2. L'éclairage.	84
2.1. Dispositifs d'éclairage.	85
3. La détection du champ proche : formation de l'image SNOM.	87
3.1. Généralités.	87
3.2. Dispositif expérimental.	88
4. Conclusion.	92
E Conclusion.	95
F Références.	97

Chapitre II : Développement du microscope.

A Introduction.

Nous avons développé notre microscope optique à sonde locale sur la base d'un microscope à sonde locale (SPM : Scanning Probe Microscope) commercial du modèle M5 de *Park Scientific Instruments*. Ce système répond à plusieurs critères importants :

- i. son architecture offre une ouverture mécanique suffisante au développement de l'instrumentation optique nécessaire à l'illumination de l'échantillon ainsi qu'à la détection du signal optique résultant de l'interaction *sonde -champ lumineux incident -surface*,
- ii. son électronique permet l'acquisition de signaux externes dont le signal issu du détecteur optique par exemple,
- iii. il est suffisamment évolutif pour supporter les modifications éventuelles (électronique, mécanique,...) qu'exigent nos études.

Nous utilisons ce système pour :

- i. réguler la distance sonde /échantillon,
- ii. gérer le déplacement relatif de la sonde par rapport à l'échantillon au cours de l'imagerie,
- iii. faire l'acquisition des données relatives aux différents signaux que nous désirons étudier (signal AFM, signal optique diffusé par la sonde et collecté en champ lointain, mouvement vibratoire de la sonde au cours de l'imagerie,...).

Nous consacrerons ce chapitre à la présentation du microscope optique que nous avons développé. Cette présentation s'articulera autour de trois parties qui correspondent aux trois principaux éléments dont notre microscope est constitué. Ces trois parties sont schématisées par la figure 1. Il s'agit du microscope AFM, de la sonde et de l'instrumentation optique. Le lecteur est invité à consulter cette figure tout au long de la description de ces trois éléments qui sera effectuée au cours des parties B, C et D de ce chapitre.

A la fin du chapitre I nous avons explicité et justifié le type de sonde ainsi que le système d'asservissement que nous utilisons : sonde diffusante asservie sur les forces de surface. Nous consacrerons la partie B à une description générale de la microscopie à force atomique. Nous nous intéresserons en particulier au mode de travail 'contact intermittent' sur lequel se basent nos mesures optiques. Nous nous efforcerons de mettre en valeur l'importance qu'a ce mode de caractérisation des surfaces dans les mesures optiques que nous désirons effectuer.

Nous présenterons ensuite les caractéristiques des sondes que nous avons utilisées dans nos études en mettant en évidence l'intérêt que peut avoir la géométrie du corps de la sonde dans certaines études. Ce sera le sujet de la partie C.

Aux deux premiers éléments (AFM et sonde) de notre SNOM présentés dans les parties B et C se rajoute l'instrumentation optique que nous avons développée pour permettre l'éclairage de l'échantillon et la détection du signal SNOM. Le microscope SNOM que nous avons développé travaille en réflexion (voir figure 1). La troisième partie (partie D) de ce chapitre nous permettra de décrire ce dispositif optique.

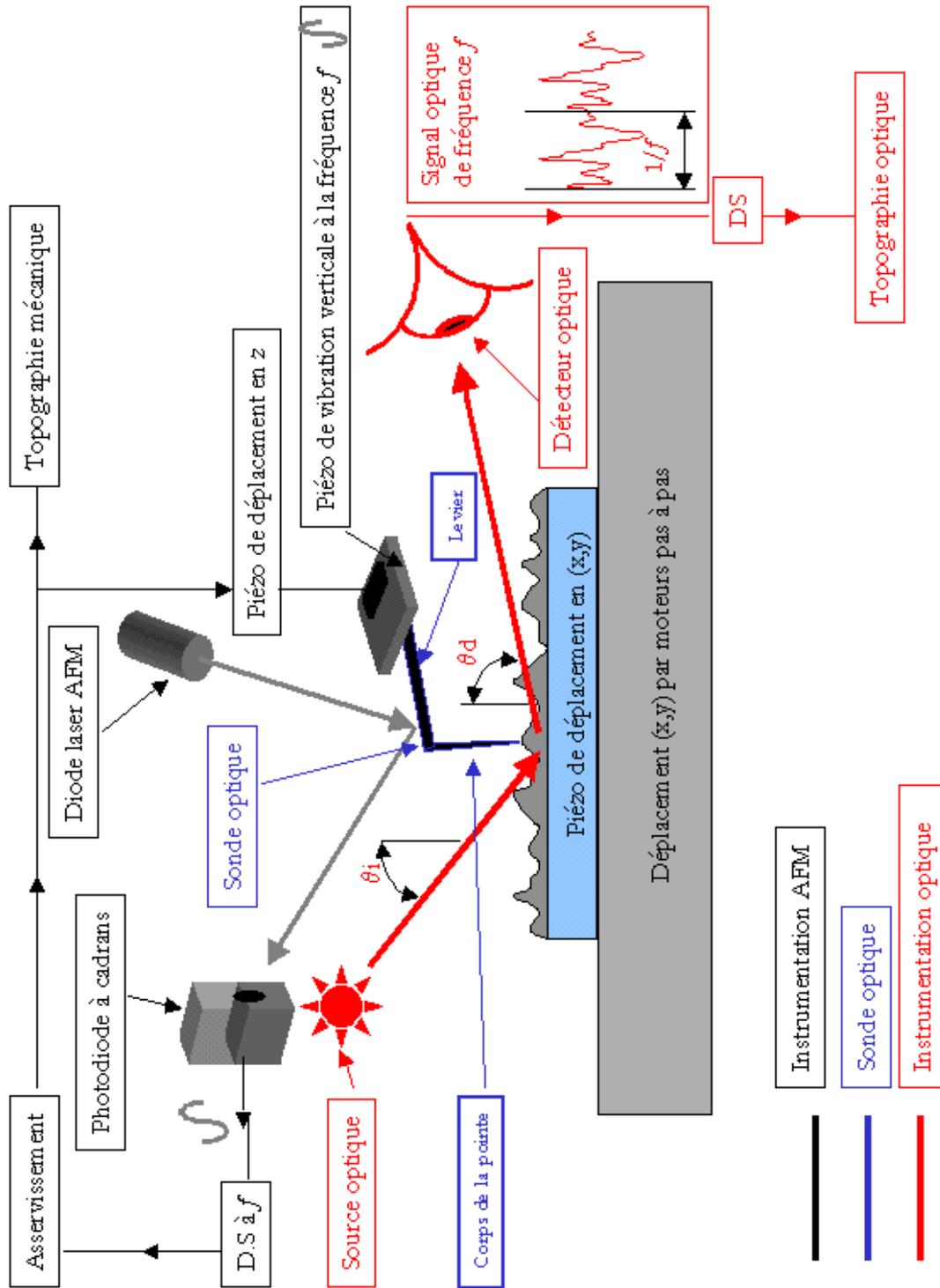


Figure 1 : Schéma général du microscope optique en champ proche développé.

B La microscopie à force atomique.

1. Introduction.

Cette partie nous permettra de donner quelques idées de base concernant les forces de surface et de décrire le principe de fonctionnement d'un microscope à force atomique (AFM). Nous détaillerons en particulier le comportement d'une sonde AFM lorsqu'elle interagit avec une surface en contact intermittent. Ce comportement est d'autant plus important qu'il conditionne en grande partie le contenu de l'image optique en champ proche (image SNOM). Nous donnerons, à ce sujet, quelques exemples où cette interdépendance entre interaction mécanique et mesure optique peut apparaître dans l'image optique.

2. Généralités.

Mise au point en 1986 par Gerd Binnig et *al.*, la microscopie à force atomique (AFM) [1] fait suite à l'invention remarquable du microscope à effet tunnel électronique [2, 3]. Cette microscopie a, depuis cette date, montré ses aptitudes dans l'étude locale des propriétés mécaniques des surfaces. Ainsi dans la famille grandissante des microscopes à sonde locale, la microscopie à force atomique tient une place prépondérante tant elle a su s'imposer comme système de caractérisation des surfaces que cela soit dans l'industrie ou la recherche [4]. Son intérêt est principalement dû à la grande variété d'échantillons qui peuvent être étudiés (échantillons solides, échantillons organiques...) et aux conditions environnementales dans lesquelles ces mesures sont possibles (ultravide, liquide, air). Comme la microscopie optique en champ proche, décrite dans le précédent chapitre, la microscopie à force atomique utilise une sonde de taille nanométrique qui interagit avec la surface de l'échantillon. On différencie ces deux microscopies par la nature de

cette interaction qui est mécanique pour l'AFM et optique pour le SNOM. Différents modes de travail ont été développés permettant de donner une cartographie de la topographie d'une surface ou /et d'accéder à une grande variété de propriétés physiques liées aux forces de surface telles que l'élasticité ou la viscosité par exemple.

3. Champ de force d'une surface.

Le champ de force d'une surface (ou interface solide - gaz ou liquide) est fonction de la nature chimique ainsi que de l'arrangement dans l'espace de l'ensemble des atomes qui la constitue. La classification complète de ces forces ne présente pas un intérêt majeur dans le présent document, aussi les forces interagissant avec la sonde sont communément regroupées en deux familles : les forces attractives et les forces répulsives. Les forces attractives, sont les premières que rencontre la sonde mécanique lorsqu'elle est mise en présence de la surface à étudier. Ces forces, qu'on regroupe souvent sous le nom générique de forces de Van-der-Waals, sont prédominantes dans les premières dizaines de nanomètres de la surface. Leur forte étendue spatiale ne permet en général l'étude topographique des surfaces qu'à l'échelle du nanomètre. Les forces répulsives souvent appelées 'forces atomiques', quant à elles, contrebalancent l'effet des forces attractives à quelques dixièmes de nanomètres de la surface. Elles traduisent le principe d'exclusion de Pauli, en limitant le recouvrement des nuages électroniques des atomes de la pointe et de la surface, et en rendant possible la formation de liaisons covalentes entre la pointe et la surface durant la 'visualisation' de cette dernière par la sonde. Les forces répulsives décrivent la rugosité de la surface à l'échelle atomique. Le champ de force total dérive du potentiel de la surface, obtenu en sommant les contributions respectives du potentiel de Van-der-Waals (attractif) et du potentiel atomique (répulsif). Le modèle qu'on rencontre souvent dans la littérature, connu sous le nom de potentiel de Lennard-Jones, prend la forme suivante [5] :

$$w(z) = -\frac{A}{z^6} + \frac{B}{z^{12}}$$

où :

- $w(z)$ décrit la variation du potentiel électrostatique en fonction de z ,
- z est la distance qui sépare les deux atomes en interaction,

- A et B des constantes dépendant des entités en interaction.

Les termes en z^{-6} et en z^{-12} représentent respectivement les contributions attractives et répulsives au potentiel d'interaction. La figure 2 donne l'allure typique de la courbe de potentiel pour l'interaction entre deux atomes (Les constantes A et B prennent les valeurs suivantes : $A=10^{77}\text{Jm}^6$, $B=10^{-134}\text{Jm}^{12}$).

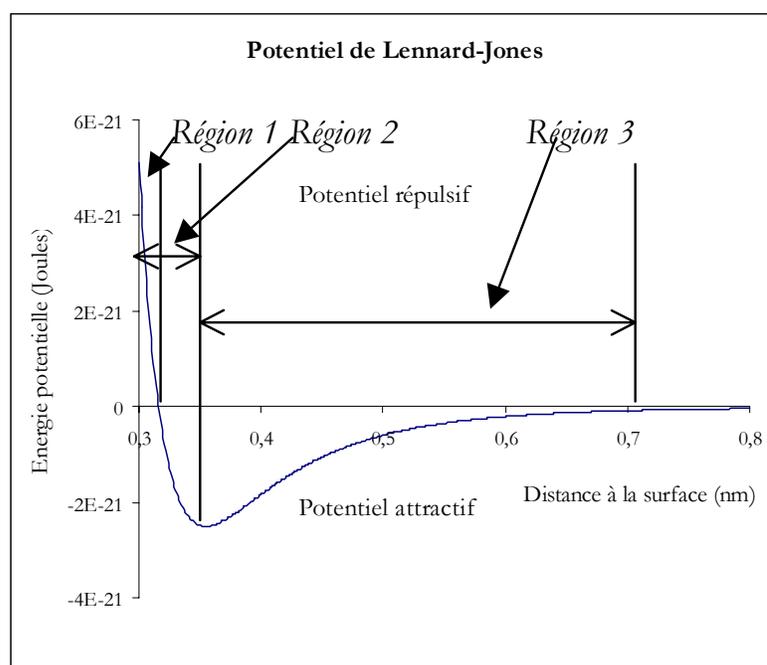


Figure 2 : Potentiel de Lennard-Jones dans le cas de l'interaction entre deux atomes.

Lors de l'étude topographique d'une surface en contact avec l'air ambiant, comme c'est le cas pour le microscope avec lequel nous travaillons, le potentiel de surface est souvent fortement modifié par l'adsorption d'une couche d'eau sur la surface. Elle donne lieu à l'apparition de forces de capillarité ($\sim 10^{-8}$ N [6]) et de cisaillement qui tendent à piéger la sonde sur la surface lors de l'imagerie. Cependant, le mode opératoire choisi pour effectuer les mesures topographiques, privilégiera l'une ou l'autre de ces familles de forces. En particulier, nous verrons dans le paragraphe 4, que le mode 'contact intermittent' (encore appelé 'Tapping-mode' dans la

littérature), que nous avons choisi d'utiliser pour nos mesures, est beaucoup moins sensible aux forces de capillarité et de cisaillement que le sont les modes contact et résonant (ces modes sont définis au §5. de ce chapitre).

4. Mesure de l'interaction sonde – échantillon / Principe de fonctionnement d'un AFM.

Le principe de mesure généralement utilisé est schématisé sur la figure 1. Les microscopes à force atomique sont composés des organes suivants :

- d'une sonde d'extrémité nanométrique solidaire d'un levier,
- un détecteur permettant la mesure de la déflexion du levier,
- un système piézoélectrique qui assure le déplacement relatif, dans les trois directions de l'espace, de la sonde par rapport à l'échantillon. Un système piézo-électrique supplémentaire, dont la description est donnée au paragraphe 5, est utilisé dans les modes vibrants pour faire vibrer la sonde perpendiculairement à la surface.

La détection des forces agissant sur la sonde se fait par l'intermédiaire du levier, solidaire de la sonde, dont la déflexion retranscrit l'intensité de l'interaction sonde-échantillon. Un balayage de la sonde dans le plan de la surface de l'échantillon permet ainsi d'établir une cartographie des forces auxquelles la sonde a été sensible au cours du balayage.

Sur la figure 1 est décrit schématiquement le principe de mesure de la déflexion du levier AFM dans le cas particulier de notre configuration expérimentale. Le mouvement vertical du levier est contrôlé par un faisceau laser ($\lambda=670$ nm, diamètre du spot sur le levier ~ 30 μm) qui frappe une photodiode à cadrans (photodiode sensible à la position du spot sur sa surface) après réflexion sur le levier.

5. Les différents modes de travail.

On dénombre une multitude de modes opératoires qui doivent leur existence à la diversité des effets mécaniques ainsi qu'à la grande variété physico-chimique des échantillons étudiés. Sans faire un descriptif exhaustif de ces modes, on distingue trois approches :

1/ le mode contact [1], dans lequel la sonde est constamment au 'contact' de l'échantillon lors de l'imagerie. La sonde est alors sensible aux forces atomiques de la surface. Ce mode de travail souffre de l'effet des forces de capillarité et de cisaillement qui contribuent fortement au contraste de forces obtenu. Dans ce mode de travail, la sonde, dont la raideur typique est de quelques dixièmes de N/m, est en interaction avec la zone répulsive du potentiel de Lennard – Jones (région 1 dans la figure 2),

2/ le mode non contact (encore appelé mode résonant ou attractif), introduit en 1987 [7], utilise le potentiel de Van-derWaals pour déterminer la morphologie mécanique de la surface. Le levier, dont la raideur typique est comprise dans la gamme [0,5 – 3N/m] est excité verticalement à une fréquence proche de sa fréquence de résonance avec une amplitude de vibration de quelques dixièmes de nanomètres permettant à la sonde d'être sensible au gradient de force de Van-der-Waals. Ce gradient a pour effet de modifier la raideur effective du levier (et donc sa fréquence de résonance), provoquant une modification de l'amplitude d'oscillation du levier [7].

La sonde est, dans ce cas là également, assujettie aux forces de capillarité et de cisaillement, entraînant parfois même l'immobilisation de la sonde au cours de l'imagerie. Dans ce mode de travail, la sonde est en interaction avec la zone attractive de pente positive du potentiel de Lennard – Jones (région 3 dans la figure 2),

3/ le mode contact-intermittent, développé en détail dans le prochain paragraphe, est un mode vibratoire comme le mode non-contact. Les conditions d'excitation du levier ainsi que ses propriétés mécaniques permettent à la sonde d'interagir avec les forces atomiques de la surface [8-11]. Dans ce mode de travail, la sonde est principalement sensible à la résultante répulsive du gradient du potentiel de Lennard – Jones (région 2 dans la figure 2).

Dans la suite du chapitre nous nous intéresserons plus particulièrement au mode contact intermittent, souvent appelé « tapping mode » dans la littérature, qui est le mode de travail que nous avons choisi pour l'approche et le contrôle de la distance sonde-échantillon durant les mesures optiques.

6. Le mode contact intermittent (C-I)

Dans ce paragraphe nous décrirons brièvement le comportement de la sonde lorsqu'elle est soumise aux forces de surface dans le mode contact - intermittent. Nous essayerons de mettre en évidence les sources artificielles de contraste optique qui peuvent résulter de cette interaction dans le cas particulier de notre dispositif expérimental. Nous tenterons d'analyser qualitativement leurs impacts sur la mesure SNOM.

6.1. Principe.

Dans le mode contact intermittent, le levier est excité à une fréquence proche de sa fréquence de résonance par un cristal piézoélectrique. Ce mouvement de vibration vertical, généralement sinusoïdal, est transmis à la sonde qui entre en interaction avec la surface de l'échantillon. Elle subit alors l'influence composée des potentiels attractif et répulsif : elle vient périodiquement au 'contact' de l'échantillon en étant soumise, simultanément, au potentiel attractif à grande distance de l'échantillon. L'amplitude de vibration moyenne de la sonde au cours de l'imagerie est mesurée par détection synchrone (voir figure 1) nous permettant de remonter à la morphologie mécanique de la surface, soit en détectant ses variations d'amplitude de vibration, soit en enregistrant les corrections apportées par le système de régulation AFM pour maintenir cette amplitude constante.

La modélisation du comportement de la sonde dans cette configuration peut prendre la forme de l'équation différentielle inhomogène suivante [12] par exemple :

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \frac{1}{\tau} \frac{dz}{dt} + \omega_0^2 \left(z + \frac{F(z)}{k} \right) = \omega_0^2 u_0 \cdot \cos(\omega_c \cdot t) \quad (\text{II.1})$$

- où
- t est la variable temporelle,
 - z est la variable spatiale,
 - ω_0 est la pulsation propre de l'oscillateur libre (le levier libre),
 - ω_c est la pulsation d'excitation imposée par le cristal piézoélectrique,
 - u_0 est l'amplitude d'excitation imposée par le cristal piézoélectrique,
 - $F(z)$ étant une fonction de z définissant les forces de surface qui agissent sur le levier,
 - k est la raideur du levier,
 - τ est le temps de réponse du levier.

Lorsque la sonde est placée loin de l'échantillon, $F(z) = 0$. L'équation (1) prend alors la forme simplifiée :

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \frac{1}{\tau} \frac{dz}{dt} + \omega_0^2 z = \omega_0^2 u_0 \cdot \cos(\omega_c \cdot t) \quad (\text{II.2})$$

qui a pour solution :

$$z(t) = B \cdot e^{-\frac{1}{2}\tau} \cdot \sin \sqrt{\omega_0^2 - \frac{1}{4\tau^2}} \cdot t + A(\omega_c) \cdot \cos(\omega_c \cdot t + \varphi) \quad (\text{II.3})$$

- $\omega_0 \cdot \tau$ représente le facteur de qualité Q de l'oscillateur ($\tau = 1/\Delta\omega$; $\Delta\omega$ représentant la largeur du pic de résonance à $\frac{A(\omega_c)}{\sqrt{2}}$),
- $A(\omega_c)$ représente l'amplitude de l'oscillateur en fonction de la fréquence pour une amplitude d'excitation u_0 donnée :

$$A(\omega_c) = \frac{\omega_0^2 \cdot u_0}{\sqrt{\frac{\omega_c^2}{\tau^2} + (\omega_0^2 - \omega_c^2)^2}} \quad (\text{II.4})$$

- dans laquelle la pulsation de résonance ω_r du levier a été remplacée par sa pulsation propre ω_0 :

$$\omega_r = \omega_0 \cdot \sqrt{1 - \frac{1}{4 \cdot \omega_0^2 \cdot \tau^2}} \approx \omega_0 \quad (\text{II.5})$$

- φ représente le retard de phase de l'oscillateur par rapport à l'excitation :

$$\text{tg}\varphi = \frac{\omega_c}{\tau \cdot (\omega_0^2 - \omega_c^2)} \quad (\text{II.6})$$

Les figures 3 (a) et 3 (b) donne l'allure de $\varphi(\omega_c)$ et $A(\omega_c)$ (courbe bleue) pour $\omega_0 = 2 \cdot \pi \cdot 5$ kHz et $Q=100$:

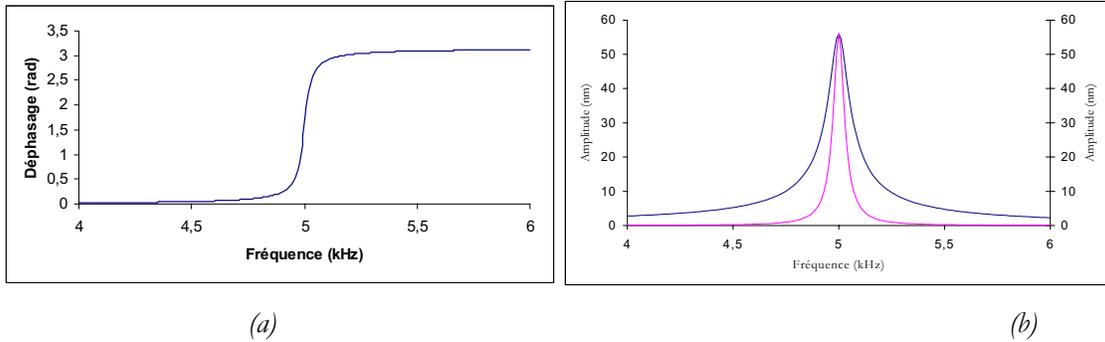


Figure 3 : Oscillateur ayant une fréquence de résonance de 5 kHz et un facteur de qualité égal à 100.

(a) Variation du déphasage φ de l'oscillateur par rapport au signal exciteur en fonction de la fréquence d'excitation.

(b) Variation de l'amplitude de vibration A de l'oscillateur (courbe bleue) et variation du terme $A \cdot \cos(\varphi)$ en fonction de la fréquence d'excitation (courbe rouge).

La solution (3) fait apparaître deux régimes. Le premier terme, transitoire, reflète le temps de réponse de l'oscillateur à une perturbation externe. Le second terme, solution particulière de l'équation (3), définit le régime permanent de l'oscillateur soumis à l'excitation d'amplitude $\omega_0^2 u_0 \cos(\omega_c \cdot t)$ générée par le cristal piézoélectrique.

Expérimentalement, le choix de ω_c et $A(\omega_c)$ est effectué en cherchant le pic de résonance correspondant à la solution particulière de (3). Pour cela on excite le levier avec un signal d'amplitude constante dont on fait varier la fréquence ω_c . La mesure de $A(\omega_c)$, par détection synchrone (DS), nous permet d'identifier les différentes résonances propres au levier. Le facteur de qualité du pic choisi ainsi que la fréquence de travail peuvent alors être déterminés. Cette étape est importante dans la procédure de réalisation d'une image AFM principalement pour deux raisons : tout d'abord, le facteur de qualité nous renseigne sur la qualité de l'oscillateur, ensuite parce que cette courbe de résonance nous sert de référence dans le choix du point de fonctionnement ($A(\omega_c)$, ω_c) de l'oscillateur. Ce couple de valeurs, ajustable, conditionne le comportement de l'oscillateur lors de son interaction avec les forces de surface (sa sensibilité au gradient de force au cours de l'imagerie ainsi que la sensibilité du système de régulation du microscope durant la mesure de l'amplitude de vibration du levier) [13]. En effet, on observe souvent qu'un mauvais choix de ces valeurs peut entraîner un comportement chaotique de l'oscillateur, entraînant un conflit avec la boucle d'asservissement, incapable de le stabiliser dans un état stationnaire. De plus, il est préférable, pour faciliter l'interprétation des images SNOM de choisir des conditions d'excitation qui permettent à la sonde de garder un comportement harmonique lors de l'imagerie optique (voir § D 3. de ce chapitre).

Le choix du couple ($A(\omega_c)$, ω_c) s'avère d'autant plus délicat dans notre configuration. En effet, la DS de notre microscope AFM mesure l'amplitude de l'oscillateur pondéré du terme de phase $\cos\varphi$. Pour compenser le retard φ de l'oscillateur par rapport à l'excitation (figure 3 (a) à comparer avec la figure 3(b) courbe bleue), retard qui tendrait à annuler la sortie DS à la résonance du levier, une phase additionnelle de $\pi/2$ est ajoutée au signal de référence de la DS. Ceci entraîne la déformation du pic de résonance masquant son profil réel et rendant ainsi plus approximatif le choix de la fréquence de travail. D'autre part, les leviers utilisés peuvent présenter plusieurs fréquences de résonance relatives aux différents modes de vibration du levier. Il est important, tant pour assurer la stabilité AFM de la sonde que pour faciliter l'interprétation du signal optique diffusé par la pointe lors d'études SNOM, d'exciter le mode fondamental de vibration verticale du levier (mode de forme sinusoïdale). Pour les leviers commerciaux, généralement de géométrie complexe, le constructeur donne la fréquence correspondante.

Cependant, ce choix peut s'avérer complexe, plusieurs modes pouvant être excités quasi simultanément.

6.2. Interaction sonde –échantillon.

La figure 4 décrit les variations d'amplitude de la sonde lors d'une approche de la sonde vers la surface d'un échantillon. Pour cette expérience nous avons utilisé une sonde en tungstène (décrite § C.2) de raideur $k \approx 100\text{N/m}$ excitée à une pulsation de travail fixe $\omega_e = 2\pi \cdot 4\text{ kHz}$ (pulsation de résonance du levier mesurée à $2\pi \cdot 4,015\text{ kHz}$). Son amplitude maximale de vibration est mesurée par détection synchrone. Sa valeur lorsque la sonde est placée loin de la surface a été choisie égale à $22^{\pm 1}\text{ nm}$ (amplitude de vibration libre).

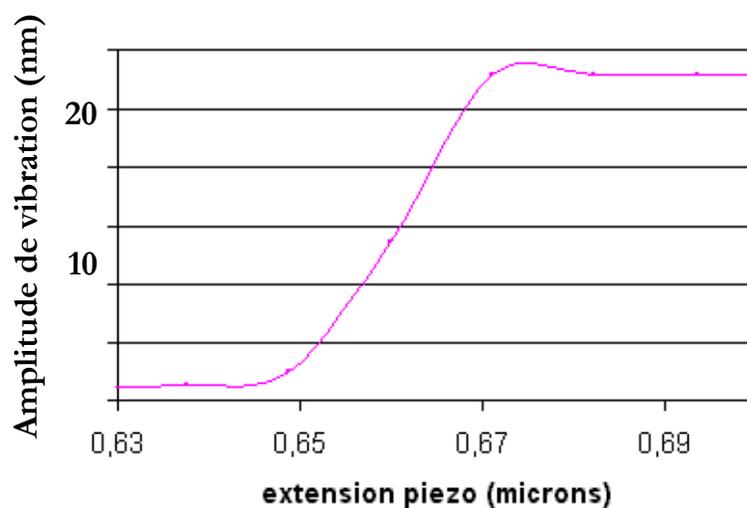


Figure 4 : Courbe d'approche : variation de l'amplitude de vibration de la sonde en fonction de la distance sonde –échantillon.

Sur cet exemple, quatre zones apparaissent (c. f. figure 5). Dans la zone 1, la sonde est loin de la surface de l'échantillon, son amplitude de vibration est constante et est égale à son amplitude de vibration libre. Dans la zone 2, son amplitude de vibration augmente sensiblement, se stabilise et décroît dans les zones 3 et 4 jusqu'à s'annuler. Une interprétation qualitative de l'évolution de l'amplitude de vibration de la sonde au cours de l'approche peut être faite en s'aidant du potentiel de Lennard-Jones pour caractériser la surface de l'échantillon et de la courbe de résonance $A(\omega)$ pour caractériser le système vibrant. La figure 5 schématise les quatre scénarios :

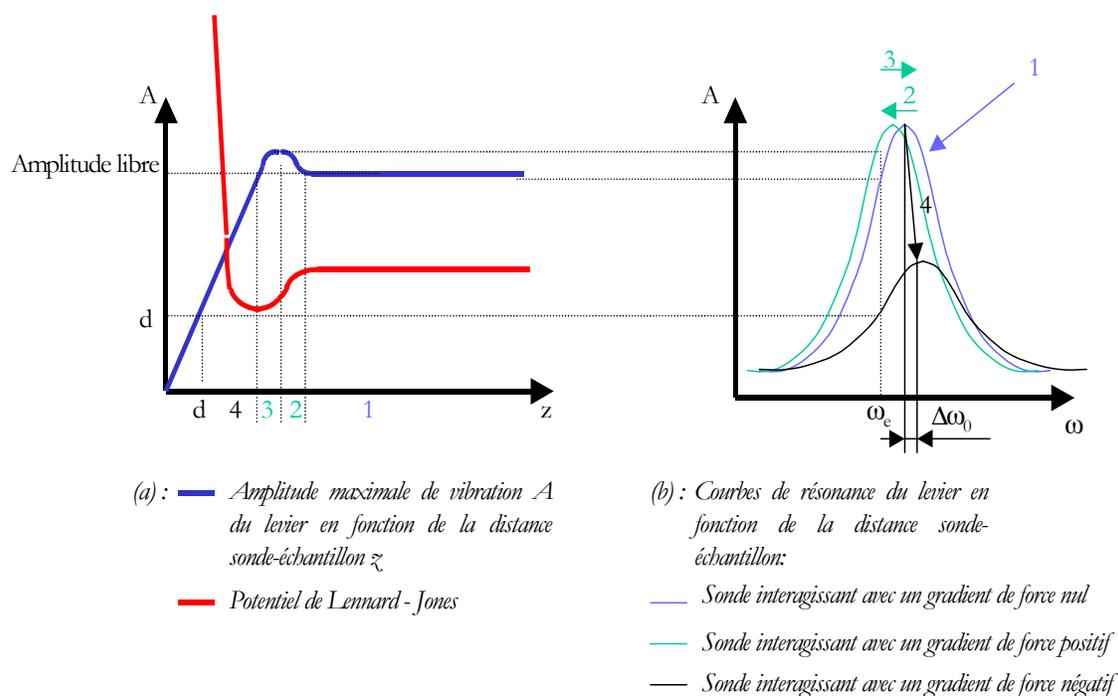


Figure 5 : Description schématique du comportement de la sonde lors de son approche d'une surface.

Loin de l'échantillon ($z \gg A$: zone 1 sur la figure 5(a)) l'amplitude de vibration de la sonde est constante ($= 22$ nm (c. f. figure 4)) et sa courbe de résonance $A(\omega)$ est représentée en bleu sur la figure 5(b). La proximité de la surface se traduit dans un premier temps par une augmentation de l'amplitude de vibration du levier (zone 2 sur la figure 5(a)) liée à l'entrée de la sonde dans le potentiel attractif de la surface ce qui induit une diminution de la pulsation propre ω_0 du levier

(courbe $A(\omega)$ en vert sur la figure 5 (b)) [7]. L'amplitude de vibration du levier décroît ensuite jusqu'à atteindre son amplitude de vibration libre (zone 3 sur la figure 5(a)). Nous pouvons expliquer cette évolution de l'amplitude de vibration de la sonde par une augmentation de la pulsation de résonance du levier qui tend vers sa valeur originale mesurée loin de la surface de l'échantillon (courbe bleue sur la figure 5(b)). Lorsque l'on diminue encore la distance séparant la sonde de la surface, l'interaction sonde – surface devient répulsive causant une diminution linéaire de son amplitude de vibration en fonction de la distance sonde – échantillon (zone 4 sur la figure 5(a)) [14, 15]. Cette chute de l'amplitude traduit un élargissement du pic de résonance du levier et une augmentation simultanée $\Delta\omega_0$ de la pulsation propre du levier (courbe noire sur la figure 5(b)) [13] par exemple.

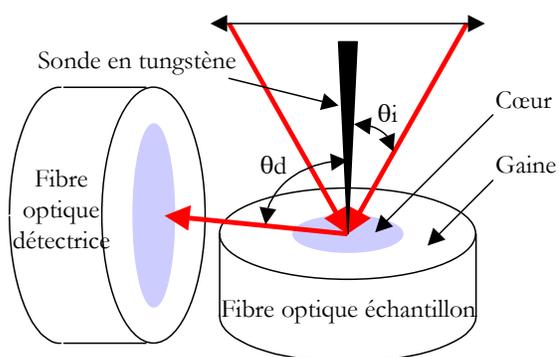
L'allure de la courbe d'approche (figure 4) dépend du point de fonctionnement $(A(\omega_0), \omega_0)$ choisi et des propriétés mécaniques de la surface étudiée. Nous ne discuterons pas ici de ces modifications sachant que nous travaillons généralement dans des conditions qui permettent d'observer un comportement de l'oscillateur similaire à celui décrit par la figure 4.

6.3. Interdépendance des mesures AFM et SNOM.

Nous effectuons nos mesures SNOM par l'intermédiaire d'une interaction mécanique entre la sonde et la surface. Cette interaction mécanique, comme nous l'avons expliqué à plusieurs reprises, nous permet de contrôler la distance séparant la sonde de la surface de l'échantillon au cours de l'imagerie optique. Nous décrirons précisément au paragraphe D.3. de ce chapitre comment nous procédons pour obtenir cette image optique, cependant, nous pouvons montrer dès à présent, à l'aide de quelques exemples simples, dans quelle mesure les informations contenues dans l'image optique peuvent être induites par un comportement purement mécanique de la sonde optique et donc constituer des 'artéfacts'.

6.3.1 Influence de l'amplitude et de la phase de l'oscillateur.

Nous verrons au paragraphe D.3. de ce chapitre que le signal SNOM est obtenu par démodulation du signal optique diffusé par la sonde en vibration. Une variation du signal SNOM peut ainsi être la conséquence d'une variation de l'amplitude de vibration de la sonde et /ou du déphasage mécanique qui peut survenir lors de l'interaction mécanique de la sonde avec l'échantillon. La figure 7 illustre cet artéfact. L'échantillon étudié est la face de sortie d'une fibre optique clivée (diamètre du cœur 3 μm / diamètre de la gaine 125 μm). Il s'agit d'une image SNOM que nous avons faite à l'aide de notre microscope avec la configuration expérimentale décrite figure 6. L'éclairage de l'échantillon ainsi que la détection de la lumière diffusée est mesurée par l'instrumentation optique décrite paragraphe D et la sonde est une pointe en tungstène fabriquée au laboratoire (c. f. paragraphe C.2). L'imagerie SNOM est, dans ce cas, sensée décrire les variations de réponse diélectrique entre le cœur et la gaine optique de la fibre ($\Delta n = 5.10^{-3}$). Pour ce faire, la face avant de la fibre est éclairée en éclairage focalisé par le dessus et la lumière diffusée par la sonde au cours de l'imagerie AFM est collectée en détection rasante par une fibre optique de grande ouverture numérique (100/140 μm , ON = 0,48). L'image topographique et l'image SNOM ainsi obtenues sont représentées respectivement par les figures 7 (a) et 7 (b). La distance sonde -échantillon a été maintenue constante au cours de l'imagerie par le système d'asservissement AFM. L'image AFM met en évidence un contraste de force lié à la rugosité laissée par l'outil de clivage. Cependant, aucune correction de l'asservissement ne correspond au contraste optique révélé par l'image SNOM (contraste indiqué par les flèches blanches figure 7 (b)). Ce contraste optique se situe justement à l'emplacement du cœur de la fibre [préalablement repéré en injectant de la lumière dans la fibre et en visualisant la zone d'émission] et pourrait être interprété comme ayant une origine purement optique (contraste entre le cœur et la gaine). Malgré tout, une analyse fine de l'information contenue dans l'image d'erreur AFM (figure 7 (c) : agrandissement de la zone qui nous intéresse) nous indique que ce contraste optique a, dans ce cas, certainement été induit par une petite perturbation mécanique de l'oscillateur (~ 1 nm de variation de l'amplitude de vibration de l'oscillateur).



θ_i : angle d'incidence (16°)
 θ_d : angle de détection (=ON de la fibre)

Figure 6 : Etude SNOM d'une fibre optique clivée.

Configuration expérimentale

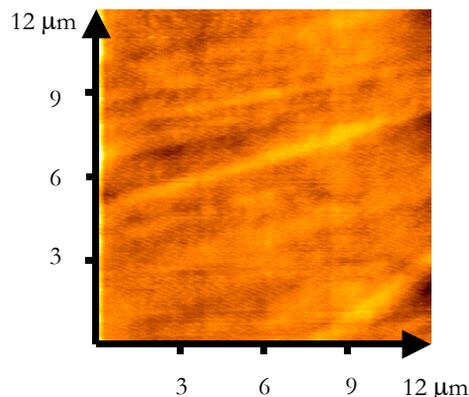


Figure 7 (a) : Image AFM de la fibre.

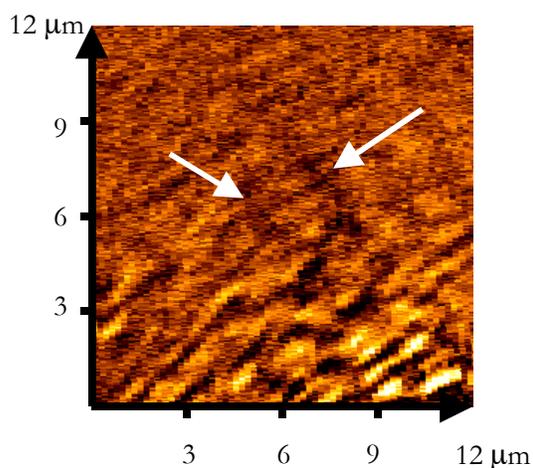


Figure 7 (b) : Image SNOM.

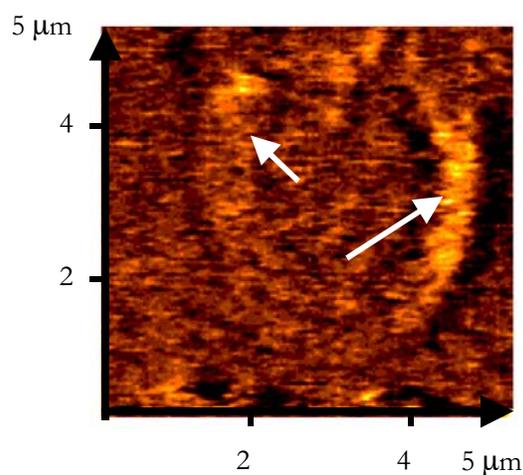


Figure 7 (c) : Image d'erreur AFM.

Un deuxième type d'artéfact peut provenir de ce que notre asservissement est effectué sur $x = A \cdot \cos(\varphi)$. Dans ces conditions, une variation de l'amplitude A compensée par une variation simultanée du terme $\cos(\varphi)$ n'apparaîtrait ni dans l'image de force ni dans l'image d'erreur et pourrait être faussement interprétée comme une variation des propriétés optiques locales de l'échantillon. Cet effet est notable lors de l'étude AFM d'échantillons ayant un contraste

d'élasticité comme les échantillons polymères par exemple. Les figures 8 (a), 8 (b) et 8 (c) représentent le comportement de l'oscillateur en interaction mécanique avec un polymère déposé sur un substrat de quartz. Ces images ont été effectuées à l'aide de notre microscope AFM muni d'une pointe en tungstène fabriquée au laboratoire.

L'image 8 (a) décrit le contraste AFM obtenu en mesurant les corrections apportées par l'asservissement sur x au cours du balayage. Les figures 8 (b) et 8 (c) représentent, respectivement, les mesures simultanées des variations de l'amplitude et de la phase de l'oscillateur lors de l'obtention de l'image 8 (a).



Figure 8(a) : Image AFM obtenue en maintenant le terme $x = A.\cos(\varphi)$ constant.

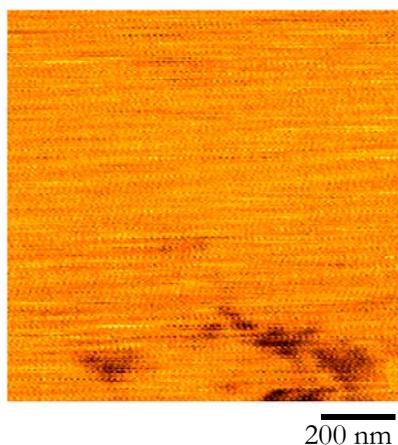


Figure 8(b) : Variations de l'amplitude A .

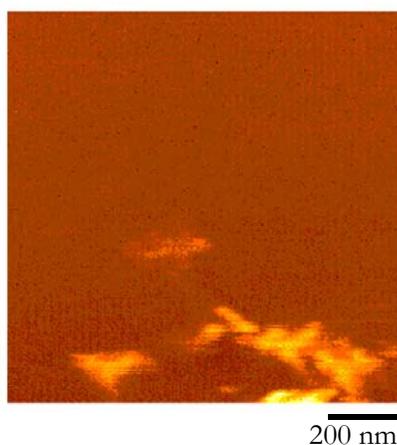


Figure 8(c) : Variations de la phase φ .

L'image 8 (a) présente de faibles corrections apportées à x (rugosité RMS de l'ordre du nm) dues au fait que bien que A et φ aient varié (figures 8(b) et 8(c)), le produit $A \cdot \cos(\varphi)$ ($=x$) a été peu modifié. Au vu de la sensibilité de la mesure optique à ce type de variations de A et de φ (voir figure 7 montrant un contraste optique associé à de légères perturbations de l'oscillateur mécanique), on peut s'attendre à ce que le contraste SNOM puisse, dans ces conditions d'asservissement, trouver son origine dans des phénomènes purement mécaniques.

6.3.2 Influence du spot laser de détection AFM.

La distribution de l'intensité du faisceau laser AFM, réfléchi par le levier, sur la photodiode AFM peut avoir une incidence directe sur le contraste optique dans l'image SNOM au cours de l'imagerie. En effet, à la réflexion spéculaire du faisceau laser AFM sur le levier peut s'ajouter des tavelures (speckle) dues à de la diffusion d'une partie du spot laser sur les bords du levier. Ces imperfections, à l'origine de variations d'intensité sur les deux cadrans de la photodiode au cours du balayage de la sonde dans le plan moyen de l'échantillon, ont des répercussions sur le mouvement de la sonde via l'asservissement. Ces corrections apportées par le système d'asservissement pour suivre le plan moyen de l'échantillon sont généralement d'une amplitude trop faible d'une ligne de balayage à l'autre pour être visibles dans l'image AFM. Néanmoins, elles peuvent introduire des variations dans l'intensité du champ diffusé par la sonde et collecté en champ lointain. La figure 9 permet de mettre cet artéfact en évidence. Ces images ont été effectuées à l'aide d'une sonde en nitrure de silicium (décrite au paragraphe C. 1. de ce chapitre). L'échantillon est une face avant de diode laser éclairée en incidence normale par un objectif de microscope simultanément utilisé pour collecter le champ diffusé par la sonde à travers le levier de la sonde. Une description complète de l'instrumentation optique utilisée est effectuée au paragraphe D de ce chapitre.

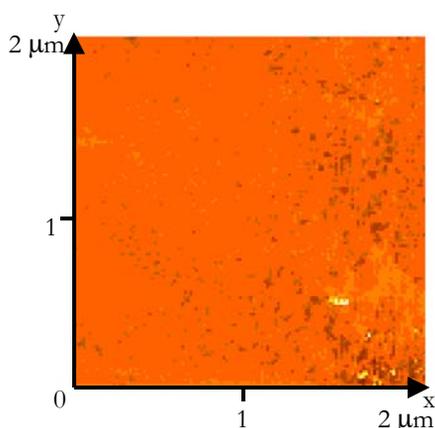


Figure 9 (a) : Image AFM de la face avant d'un cristal laser.

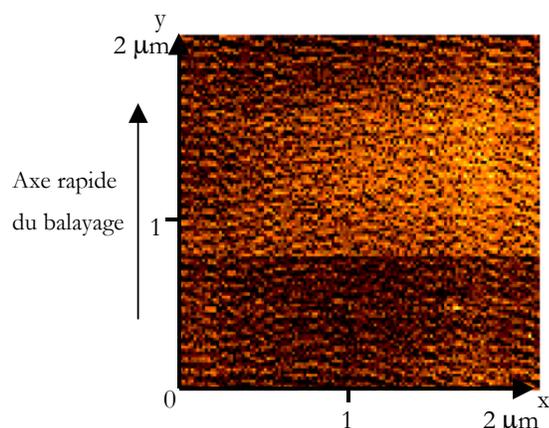


Figure 9 (b) : Image SNOM associée à 9(a).

La figure 9 (a) est l'image AFM de la face avant du cristal laser. Elle met en évidence une rugosité moyenne de quelques nanomètres sans décrire une topographie mécanique particulière. Par contre, dans l'image SNOM (figure 9 (b)), on distingue clairement une bande claire de 1 micron de large entre les ordonnées $y = 0,8 \mu\text{m}$ et $y = 1,8 \mu\text{m}$. Cette dernière n'est pas due à une subite instabilité de l'AFM dans la mesure où, l'axe lent de balayage étant parallèle à l'axe OX , cette variation de contraste optique a été enregistrée 256 fois (image 256×256 lignes).

Il faut ajouter que nous obtenons un contraste analogue lorsque la sonde n'est plus en interaction mécanique avec l'échantillon mais est balayée à distance constante de la surface. Cette contribution mécanique au contraste dans l'image SNOM ne semble donc pouvoir être corrigée qu'en diminuant les diffusions du spot laser AFM atteignant le photo-détecteur à cadrans.

C Les sondes utilisées.

Comme nous l'avons souligné dans le premier chapitre, la sonde constitue l'élément clef de notre dispositif expérimental. Son choix est délicat car elle doit remplir le rôle de diffuseur de lumière tout en restant sensible aux forces de surface.

Sa nature chimique va déterminer sa capacité à agir comme détecteur de lumière et la raideur du levier va en grande partie définir sa sensibilité et sa stabilité mécanique. Ce ne sont pas là les seuls critères qui nous poussent à choisir une sonde plutôt qu'une autre, sa géométrie 'macroscopique', par exemple, est également un paramètre qui peut fortement influencer le contenu du signal optique que nous recueillons en champ lointain. Dans ce paragraphe, nous concentrerons notre attention sur ces qualités pour les sondes que nous avons utilisées au cours de ce travail de thèse.

Les sondes dont nous disposons sont diélectriques (nitrure de silicium, Si_3N_4), semi-conductrices (silicium, Si dopé 'p') ou métalliques (tungstène, W). Les deux premiers types de sonde (Si_3N_4 et Si dopé 'p') sont commerciales, alors que les sondes en tungstène correspondent à des pointes fabriquées au laboratoire. Nous avons choisi d'utiliser préférentiellement ces dernières pour des raisons tant mécaniques qu'optiques. Les raisons de ce choix sont détaillées au paragraphe 2.

1. Les sondes commerciales.

La figure 10 présente les deux types de sondes commerciales utilisées au cours de ce travail.

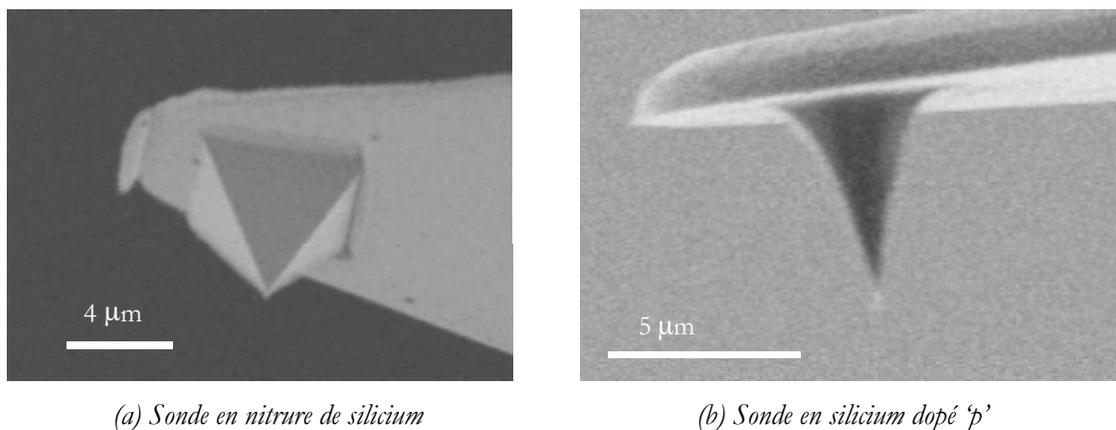


Figure 10 : Images de sondes commerciales obtenues par Microscopie Electronique à Balayage (MEB).

Les sondes en nitrure de silicium (figure 10 (a)), ont un corps de pointe pyramidal à base carrée. La distance séparant l'extrémité de la pointe et le levier est de $4\ \mu\text{m}$. Le levier est de forme triangulaire et a une raideur de $0,58\ \text{N/m}$ (donnée constructeur), sa fréquence de résonance est de l'ordre de $100\ \text{kHz}$ pour un facteur de qualité de 80 environ. Malgré la faible raideur du levier, ce type de sonde peut être utilisé en mode contact - intermittent sur des surfaces peu ou pas contaminées par des couches d'adsorption (d'eau par exemple). Dans le cas contraire, un traitement chimique au dichlorodiméthylsilane (DCMS) [ce traitement permet de rendre la pointe hydrophobe] est nécessaire pour minimiser les forces d'adhésion entre l'extrémité de la pointe et la surface, ces forces ($\sim 100\ \text{nN}$) pouvant être à l'origine d'un comportement chaotique du système *sonde vibrante – asservissement* [16]. Ce comportement chaotique peut également être minimisé en ajustant de façon convenable les paramètres de fonctionnement AFM (amplitude de consigne, gain de l'asservissement, vitesse de balayage et le rapport amplitude d'oscillation libre / amplitude de consigne) mais dans ces conditions le mouvement de l'oscillateur n'est plus harmonique (modulation de l'amplitude au cours du temps). Nous ne recommandons pas de travailler dans ces conditions, car l'amplitude de vibration ainsi que l'allure du mouvement de la pointe ont une répercussion directe sur le contraste dans l'image SNOM. Ces sondes ont néanmoins l'avantage d'être translucides dans le visible ce qui facilite, vu leur géométrie (extrémité de la pointe proche du levier), la collection de champ diffusé par la sonde en détection normale (i. e. à travers le levier).

Les sondes en silicium (figure 10 (b)) ont l'avantage d'avoir une raideur suffisante ($\sim 20\ \text{N/m}$) pour interagir proprement avec la surface en contact-intermittent. Leur nature chimique leur confère également de meilleures qualités de diffusion optique que les sondes diélectriques. Cependant, l'intensité d'une partie de la lumière diffusée par l'extrémité de la pointe est fortement atténuée lors de la traversée du levier, rendant plus difficile encore la détection du signal optique en champ proche lorsque celle-ci est effectuée en transmission par le levier. De plus, on conçoit aisément que la géométrie massive de la sonde (en particulier la distance *extrémité de la sonde – levier* de $4\ \mu\text{m}$) rend les conditions d'éclairage de l'extrémité de la sonde difficiles sans induire simultanément des diffusions parasites dues à l'illumination d'une partie du levier (comparaison figure 10 (b) du chapitre 2 et figure 4 (b) du chapitre 1).

2. Les sondes en tungstène.

Plusieurs raisons justifient le choix de ces sondes :

- le fil de tungstène (fils rigide de diamètre 125 μm), à partir duquel la sonde est fabriquée, est disponible dans le commerce (Goodfellow),
- la littérature propose plusieurs méthodes qui permettent d'obtenir des sondes dont l'extrémité présente un rayon de courbure de l'ordre d'une vingtaine de nanomètres[17-20],
- le tungstène possède de bonnes qualités de diffuseur optique (comparé au silicium ou au nitrure de silicium, matériaux à partir desquels les sondes AFM commerciales sont généralement fabriquées). Une autre qualité optique du tungstène provient de ce que sa polarisabilité varie très peu dans la gamme spectrale qui nous intéresse. En outre, l'utilisation d'une pointe métallique s'avère indispensable pour générer l'exaltation du champ en extrémité de sonde comme l'a montré [21] par exemple. L'étude de ce phénomène est en effet l'un de nos objectifs principaux (c. f. chapitre IV),
- de plus, la géométrie de ces sondes (sonde très effilée), et principalement la distance qui sépare le levier de l'extrémité de la sonde, contribue à diminuer les sources de diffusions parasites dues à la présence du levier dans la zone éclairée (illustration au § C 2.3.).

2.1. Fabrication.

i. Remarques générales.

La méthode que nous employons pour mesurer les forces auxquelles la sonde est soumise lors de son interaction avec la surface de l'échantillon impose à la sonde d'être composée de deux parties :

- une partie verticale appelée le corps de la pointe (Partie A),
- le levier (Partie B) dont la déflexion retranscrit les forces que rencontrent l'extrémité de la pointe.

La figure 11 donne l'allure typique d'une sonde dont l'extrémité n'a pas encore été usinée en pointe.

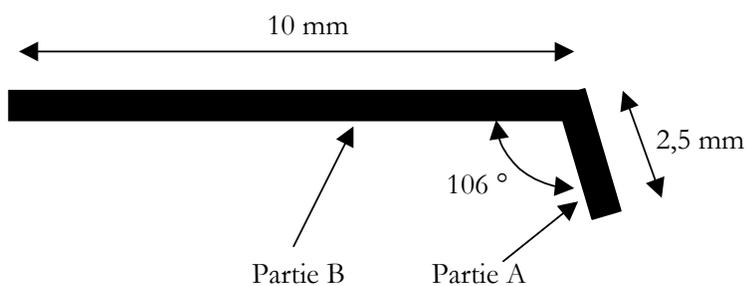


Figure 11 : Tige de tungstène cylindrique de 125 μm de diamètre pliée pour former le levier (partie B) et le corps de la pointe (partie A).

On obtient ces deux parties par pliage du fil de tungstène brut. L'angle de pliage est imposé par la géométrie de la tête AFM de notre microscope et ajusté à 106° par rapport à l'horizontale de façon à ce que la partie A soit perpendiculaire à la surface au cours de l'imagerie. La figure 12 représente une telle sonde montée sur son porte pointe et prête à prendre place sur la tête du microscope AFM. Les différentes opérations qui permettent de passer du fil de tungstène brut à la sonde prête à l'emploi (figure 12) sont décrites au cours des paragraphes suivants (II C 2.1. i.i. et 2.1. i.i.i.).

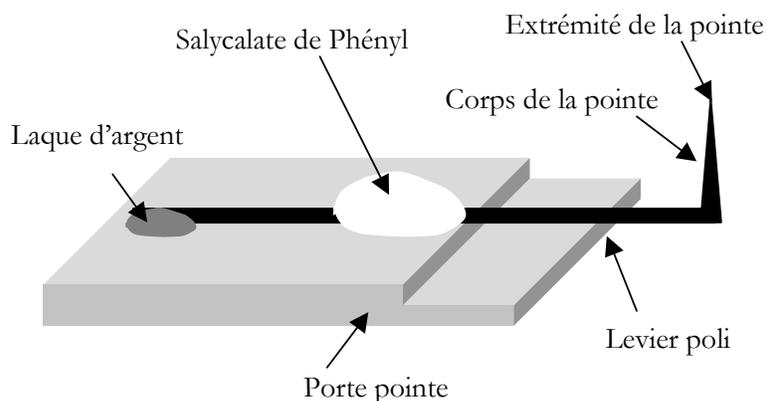


Figure 12 : Sonde en tungstène montée sur son porte pointe et prête à être utilisée comme sonde AFM/SNOM sur notre microscope.

La figure 12 représente une sonde de caractéristiques géométriques typiques. Le corps de la pointe à une longueur de 1,5 mm environ. La longueur du levier quant à elle peut varier entre 3,5 mm et 5,5 mm ce qui permet d'ajuster la fréquence de résonance de la sonde entre 2,5 kHz et 5,5 kHz. Cette dépendance de la fréquence de résonance en fonction de la longueur du levier a été mesurée et est représentée par la figure 13 (cette mesure a été rendue possible par le polissage du levier de la sonde, décrit au §2.1.ii, permettant la réflexion du faisceau laser AFM sur le levier) :

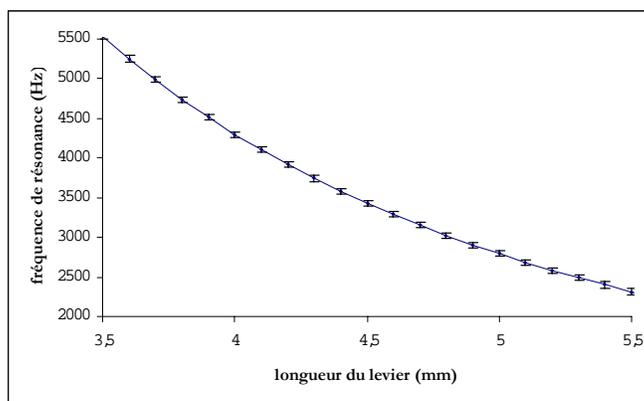


Figure 13 : Variation de la fréquence de résonance de la sonde en fonction de la longueur du levier ; les points représentent les mesures expérimentales et la courbe pleine est obtenue en utilisant la relation théorique (7) tirée de [22].

Cette dépendance de la fréquence de résonance du levier en fonction de sa longueur suit la relation théorique suivante [22] :

$$f_r = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{3.E.I}{(m'+c.m)l^3}} \quad (\text{II.7})$$

avec

- E, le module d'Young du tungstène (411 Gpa),
- I, le moment d'inertie du levier pour des charges verticales ($=\pi.R^4/4$, R étant le rayon du levier cylindrique),
- m', la masse de la charge appliquée au levier (corps de la pointe),
- c, constante < 1 égale à la proportion de la masse du levier utilisée comme charge appliquée de masse m'.
c est estimée à 33/140 dans notre cas [22],
- m, la masse du levier,
- l, la longueur du levier.

La relation (7), tracée en figure 13 (ligne continue), montre que la fréquence de résonance du levier ne dépend pas uniquement de sa longueur mais aussi de la masse associée au corps de la pointe qui peut varier en fonction de l'usinage électrochimique effectué (§ C 2.1. i.i.i). Cette dépendance est traduite par la constante c dans (7).

Notons, dans la figure 13, que la bonne correspondance expérience / théorie justifie l'utilisation des relations de la référence [22].

La variation de la raideur du levier peut être déterminée par la relation suivante :

$$k = (2\pi.f_r)^2.(m'+c.m), \quad [\text{22}] \quad (\text{II.8})$$

avec :

- f_r , la fréquence de résonance du levier donnée par la courbe 13,
- m', la masse de la charge appliquée au levier (corps de la pointe),
- c, constante < 1 égale à la proportion de la masse du levier comparée à la masse de la charge appliquée. c est estimée à 33/140 dans notre cas [22],

- m , la masse du levier.

Les valeurs de la raideur k de la sonde ont été tracées en fonction de la longueur du levier (figure 14) à l'aide de (8) pour les fréquences de résonances f_r mesurées expérimentalement (figure 13).

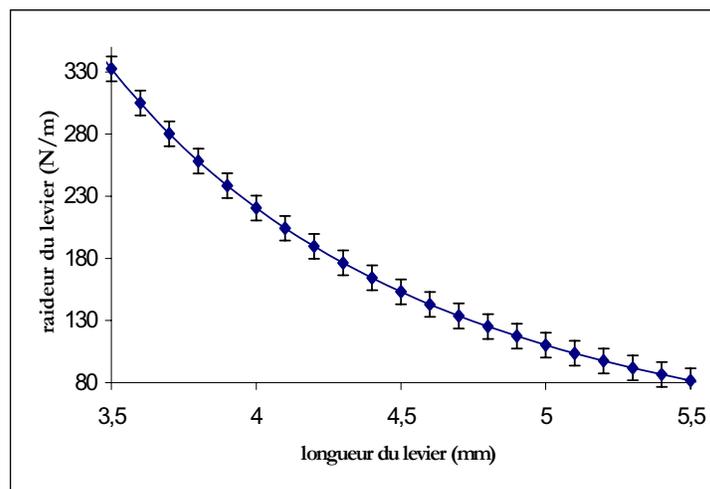


Figure 14 : Variation de la raideur du levier en fonction de sa longueur (calculée à partir de la relation (8) en utilisant les valeurs expérimentales de la figure 13).

L'importance des raideurs obtenues implique que ces sondes fonctionnent exclusivement en mode contact - intermittent. Cependant, nous avons pu constater que pour des oscillateurs ayant une fréquence de résonance supérieure à 6 kHz (i. e. $k > 300$ N/m) l'interaction de l'extrémité de la pointe avec la surface lors de l'imagerie est souvent destructive. Il convient, tout de même, de travailler à des fréquences se rapprochant de cette fréquence limite et ceci pour plusieurs raisons :

- les fréquences de fonctionnement de ces pointes les rendent très sensibles aux bruits acoustiques environnants. On exprime généralement l'amplitude de vibration de fréquence f_0 et d'amplitude a_0 transmise à l'oscillateur de fréquence de résonance f_r par la relation [23] :

$$a_{\text{transmis}} = a_0 \left(\frac{f_0}{f_r} \right)^2 \quad (\text{II.9})$$

pour minimiser ce bruit au maximum, notre microscope a été placé dans une enceinte close en Plexiglas. Ceci nous permet de réduire l'amplitude de ce bruit à quelques dixièmes de nanomètres (ce qui correspond à la sensibilité de notre détection AFM),

- la fréquence de résonance du levier détermine le temps de réponse τ' de l'oscillateur à une perturbation externe ($\tau' = \frac{Q}{\pi \cdot f_r}$, Q étant le facteur de qualité de l'oscillateur et f_r sa fréquence de résonance). Pendant ce temps τ' , l'oscillateur est dans un régime transitoire pendant lequel son amplitude diffère de l'amplitude de consigne, entraînant des contrastes optiques artificiels dans l'image SNOM lorsque la vitesse de balayage est excessive. Augmenter la fréquence de résonance du levier nous permet de diminuer le temps d'acquisition de l'image SNOM,
- leur forte raideur leur permet d'être très peu sensibles aux forces de capillarité dont nous avons parlé au § B [24].

i.i. Polissage.

Cette étape intervient après le pliage de la pointe AFM et concerne exclusivement le levier. Elle permet la création d'un méplat sur la partie supérieure du levier (partie B sur la figure 11) qui assurera la réflexion du spot laser AFM (voir figure 1). Les caractéristiques de ce polissage doivent remplir deux critères importants :

- perpendicularité du plan de polissage par rapport à l'axe de la pointe pour que le faisceau laser atteigne le photo-détecteur après réflexion sur le levier,
- rugosité moyenne de la partie polie inférieure au micron pour éviter les diffusions parasites qui pourraient entraîner des artefacts d'asservissement AFM (c. f. § B 6.3.2.).

Le respect de ces critères se traduit par un spot de forme circulaire après réflexion sur le levier, dont l'intensité produit une tension égale à environ 1V aux bornes de la photodiode AFM. Ces caractéristiques du spot sont typiques de celles obtenues lors de réflexion du faisceau laser AFM sur des leviers commerciaux.

La technique de polissage que nous employons a été développée par Hervé Wioland qui en donne une description complète dans son manuscrit de thèse [25]. Elle consiste à abraser le levier de la sonde en tungstène sur un disque de polissage enduit d'une pâte diamantée. On peut noter qu'une autre technique, développée par S. Sounilhac, permet de réaliser ce méplat par compression de la partie B [26].

i.i.i. Electrolyse

Avant l'électrolyse de la partie A en pointe, le levier est collé sur un porte pointe (figure 12) qui permet son installation sur la céramique piézoélectrique d'excitation verticale du microscope AFM (figure 1). Ce collage est effectué avec de la Salicylate de Phényle (Salole) qui a la particularité d'assurer un bon couplage acoustique entre le cristal piézoélectrique exciteur et le levier de l'oscillateur par l'intermédiaire du porte - pointe. La longueur du levier laissée libre (distance qui sépare le point de collage à l'extrémité du levier) est comprise entre 3,5 mm et 5,5 mm ce qui permet d'ajuster sa fréquence de résonance entre 2,5 kHz et 5 kHz correspondant à une raideur du levier comprise entre 300 et 80 N/m (voir figures 13 et 14). La Salole étant isolante, il est impératif, pour permettre l'électrolyse, d'assurer un contact électrique, à l'aide d'une laque d'argent par exemple, entre la sonde et le porte pointe métallique (voir figure 12) car c'est ce dernier qui sera relié directement à l'anode du montage électrolytique (c. f. figure 15).

Une fois le levier fixé sur son porte - pointe, l'électrolyse de la partie A peut être effectuée. Elle permet l'élaboration du corps ainsi que de l'extrémité de la pointe. Le montage expérimental d'électrochimie est présenté par la figure 15 :

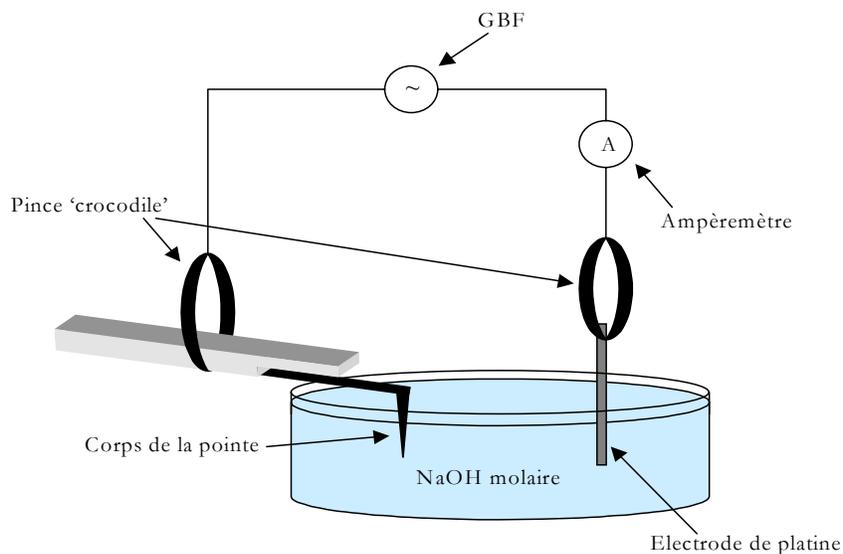


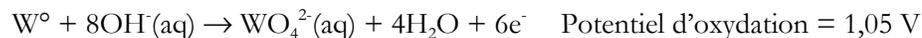
Figure 15 : Représentation schématique du montage permettant l'attaque électrochimique du corps de la pointe (Partie A sur la figure 11) en sonde effilée d'extrémité nanométrique.

La procédure expérimentale utilisée est identique à celle présentée en référence [27]. Trois étapes sont nécessaires pour obtenir la sonde :

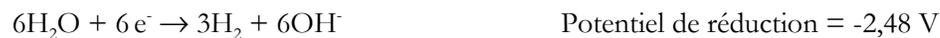
- nettoyage du fil de tungstène dans un bain d'acétone puis d'eau distillée (seul le corps de la pointe y est immergé pour éviter la dissolution de la Salole au contact de l'acétone),
- la partie A (~ 2 mm) de la pointe est alors plongée dans une solution molaire de soude (1Mol/l). Ce fil de tungstène, qui après électrolyse formera la pointe, sert d'anode dans la réaction. La cathode est un fil de platine (diamètre $500 \mu\text{m}$) plongé dans la soude et placé à environ 2 cm de l'anode,
- une tension de 1V RMS et de fréquence 100 Hz est alors appliquée entre les électrodes. Ces paramètres d'électrolyse ont été déterminés par un plan d'expérience et nous permettent d'obtenir des sondes dont l'extrémité présente un rayon terminal inférieur à 50 nm avec une reproductibilité de 75% [28].

Dans ces conditions, les demi - réactions aux électrodes s'écrivent :

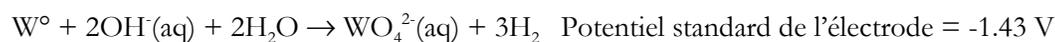
à l'anode :



à la cathode :



La réaction bilan s'écrit :



La réaction correspond à une oxydation du tungstène en anion tungstate à l'anode, l'eau se réduisant en ion hydroxyde et en hydrogène sous forme gazeuse à la cathode. La réaction est effective lorsque le potentiel de la réaction excède $-1,43 \text{ V}$. La tension alternative choisie permet de minimiser le risque de formation d'une couche de passivation isolante sur le tungstène, couche de passivation qui stopperait la réaction [26].

La courbe 16 décrit la variation du courant d'électrolyse en fonction du temps pour les paramètres donnés ci avant :

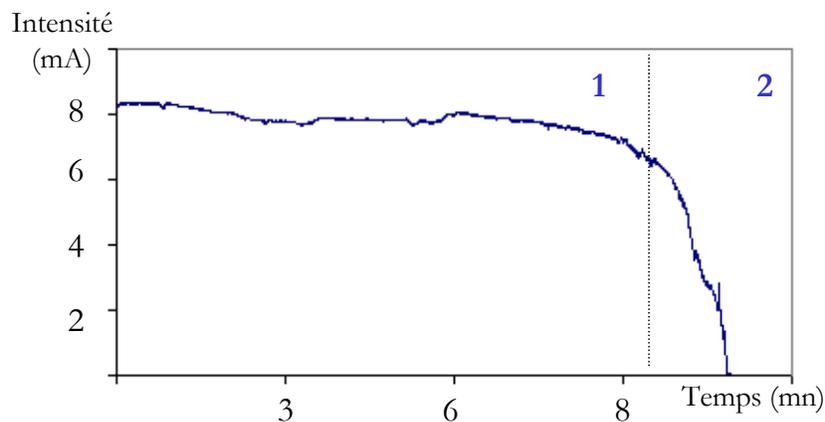


Figure 16 : Variation du courant d'électrolyse en fonction du temps ($U_0 = 1\text{V RMS}$, $f = 100 \text{ Hz}$).

On distingue 2 étapes intéressantes au cours de cette réaction :

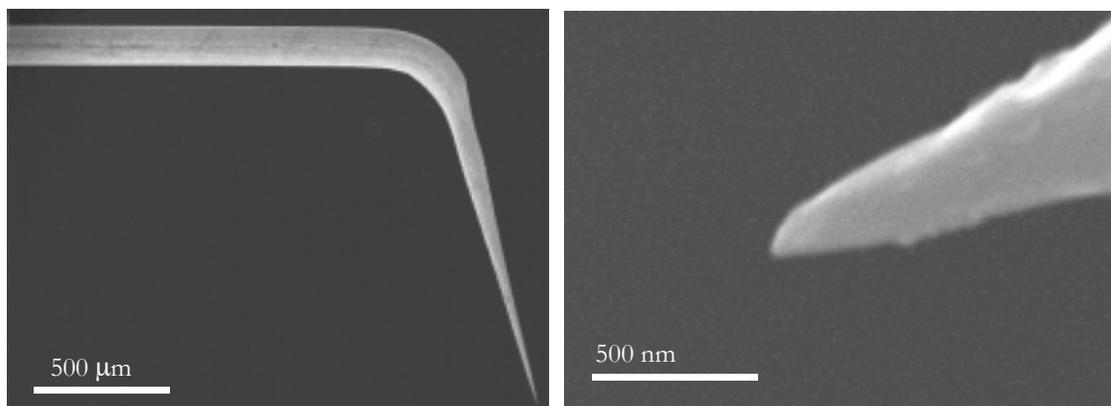
1/ durant la première étape, le courant d'électrolyse chute lentement (partie 1 sur la figure 16). Le ménisque formé à l'interface *air - soude - fil* de tungstène donne sa forme conique à la pointe après électrolyse. Le dégagement d'hydrogène, visible le long de la tige de tungstène, est significatif de la qualité finale de l'état de surface de la pointe (rugosité faible) (l'absence de se dégagement est toujours annonciateur d'un mauvais résultat),

2/ la seconde étape est caractérisée par une chute brutale du courant d'électrolyse. Si on laisse la réaction se poursuivre jusqu'à son terme, la sonde se présentera sous la forme d'un cône d'angle au sommet très ouvert avec un rayon terminal d'une dizaine de microns.

Stopper la réaction artificiellement lorsque le courant d'électrolyse $I \cong I_0,2/3$ (I_0 étant le courant d'électrolyse à $t = 5$ secondes : ce temps correspond au temps que met le système pour atteindre le régime 'permanent' lors de l'application de la ddp aux bornes du circuit) permet d'obtenir une sonde conique de 1,5 mm de long et dont le rayon terminal est compris entre 10 et 50 nm.

La réaction est définitivement stoppée lors du nettoyage du corps de la pointe dans un bain d'acétone.

Les caractéristiques géométriques de la sonde sont ensuite déterminées à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB). La figure 17 (a) représente une sonde (levier et corps de la pointe) et la figure 17 (b) est un agrandissement de l'extrémité du corps de la pointe. La figure 17 (b) permet d'estimer son rayon de courbure terminal à une vingtaine de nanomètres.



(a) Sonde en tungstène (levier et corps de la pointe)

(b) Extrémité du corps de la pointe

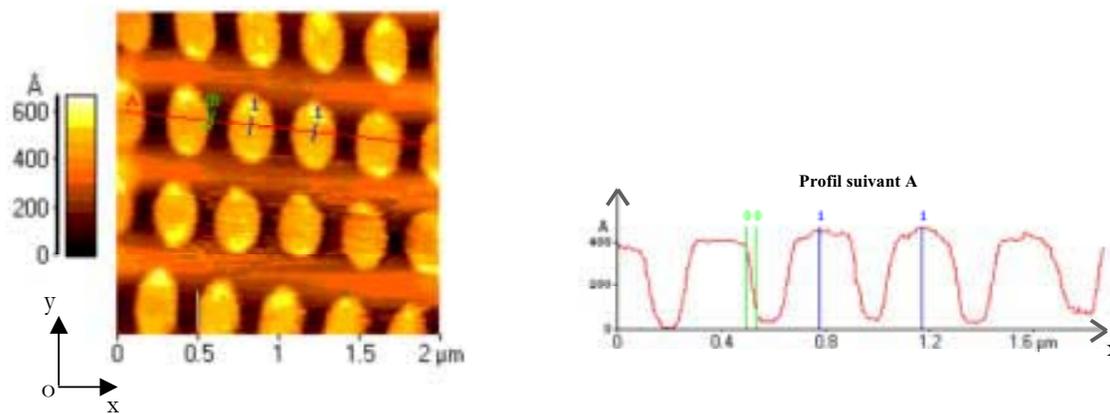
Figure 17 : Images réalisées par MEB d'une sonde métallique en tungstène (W).

Dans la mesure ou l'électrolyse du corps de la pointe est effectuée alors que la sonde est déjà placée sur son porte – pointe, nous avons la possibilité de ré-usiner le corps de la pointe afin de 'réparer' les éventuelles dégradations qu'aurait subi son extrémité durant l'imagerie. On peut ainsi réitérer l'électrolyse une à six fois (notre record actuellement) en fonction de l'ampleur des dommages constatés. Le rayon de courbure obtenu à chacune des opérations se situe dans la même échelle que lors d'un premier usinage.

3. Les premières images AFM.

Une modification électronique mineure a été apportée à la détection synchrone de notre AFM pour que le système puisse mesurer l'amplitude de vibration de la sonde en tungstène. La gamme fréquentielle de fonctionnement initialement comprise entre 10 kHz et 400 kHz (optimale pour les sondes commerciales) a été élargie aux fréquences comprises entre 200 Hz et 50 kHz. Ainsi les sondes AFM faites 'maison' (sondes en tungstène) de même que les sondes commerciales peuvent être utilisées dans des conditions optimales dans le mode de travail qui nous intéresse (mode contact – intermittent).

La figure 18(a) montre la courbe de résonance d'une sonde en tungstène telle qu'elle est mesurée par notre microscope (mesure du terme $x=A.\cos(\varphi)$ dans notre cas). Elle nous permet, en

(b) Image AFM $2 \times 2 \mu\text{m}$.

(c) Profil du réseau suivant la coupe A.

Figure 18 : (b) Image AFM $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ d'un réseau de plots cylindriques d'aluminium déposés sur un substrat de quartz obtenue à l'aide d'une sonde en tungstène. L'imagerie a été effectuée avec une amplitude de travail de 50 nm et une vitesse de balayage de 3 secondes par ligne (256 points de mesure par ligne). (c) Profil du réseau suivant la coupe notée A sue (a). Les indicateurs notés '0' permettent d'estimer une résolution latérale à mi-hauteur de 20 nm. Les indicateur notés '1' permettent d'évaluer le pas du réseau à 200 nm.

Ces mesures (figure 18), prises comme exemple, démontrent le bon comportement mécanique (stabilité et résolution) de ces sondes en tungstène lorsqu'elles sont utilisées par notre microscope AFM commercial. Notons que la courbe d'approche (figure 4 de ce chapitre) nous avait déjà permis de vérifier la bonne sensibilité de notre système de détection AFM lors de l'utilisation de ces sondes.

4. Importance de la géométrie de la pointe dans l'image SNOM.

L'une des raisons qui nous a poussés à adapter les sondes en tungstène sur notre AFM est liée à la géométrie du corps de la sonde. Les figures 10 (a) et 17 (a) présentent, respectivement, les images MEB d'une sonde commerciale et d'une sonde en tungstène. La sonde commerciale, étudiée pour un fonctionnement optimal en AFM est plus massive (angle d'ouverture du corps de

la pointe de l'ordre de 20 degrés) et est caractérisée par une distance levier - extrémité de la sonde de quelques microns (2 à 10 μm sont des valeurs typiques). Cette géométrie est inadaptée dans l'étude des échantillons émetteurs de lumière comme par exemple la caractérisation du mode émis en champ proche par une diode laser en fonctionnement. Les figure 19(b) et 19(c) nous montrent la distribution de lumière diffusée par la sonde, et recueillie en champ lointain, lors de l'étude du champ émis par une diode laser en émission stimulée. La configuration expérimentale utilisée pour cette expérience est représentée par la figure 19(a). L'instrumentation optique s'y rapportant sera décrite au cours du sous-chapitre suivant (§ D.). Nous ne donnons pas ici une description détaillée de cette diode, seules nous importent les dimensions du mode que nous voulons reproduire par le l'intermédiaire d'une mesure SNOM i. e. 1,5 μm x 3 μm . Les images 19(b) et 19 (c) ont été réalisées, respectivement, avec une pointe commerciale en silicium (dont la géométrie est donnée par la figure 10 (b)) et une sonde en tungstène (Figure 17 (a) et (b)). Les conditions expérimentales dans chacun des cas sont indiquées en légende de la figure 19. L'angle de détection en champ lointain est identique pour les deux images et consiste à collecter l'intensité du champ diffusé par la sonde en interaction avec la source de lumière par le biais d'une fibre optique (diamètre du cœur : 100 μm , ON : 0,48) en détection rasante (c. f. figure 19(a)).

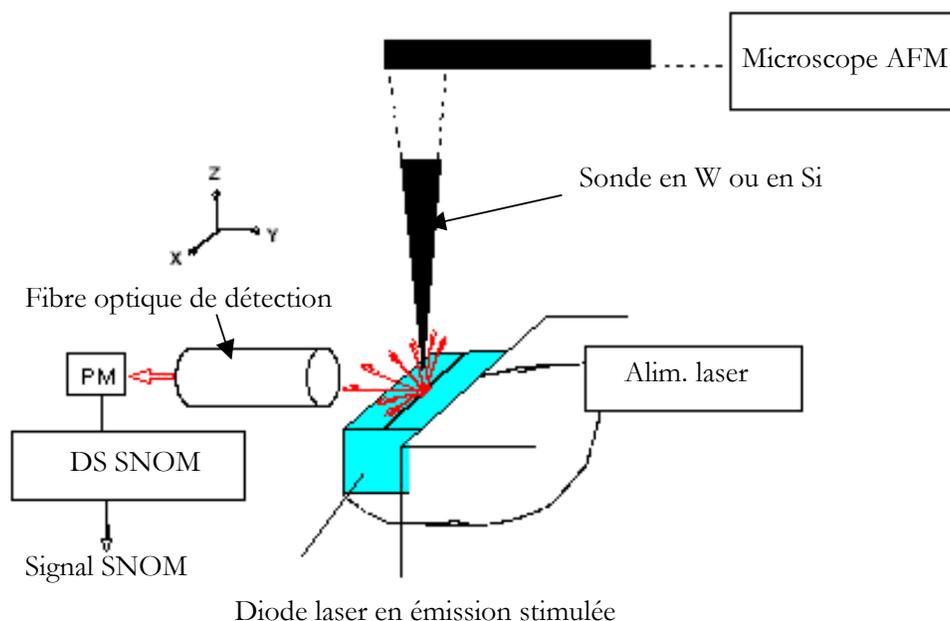
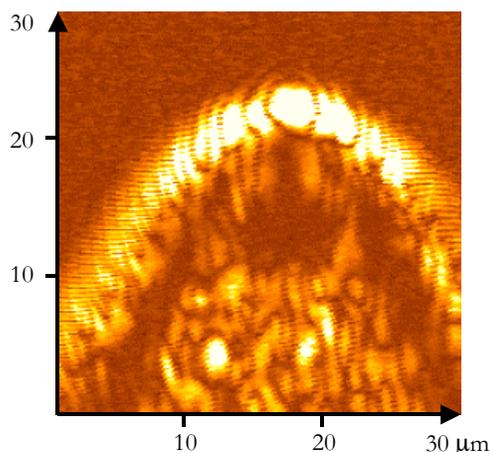
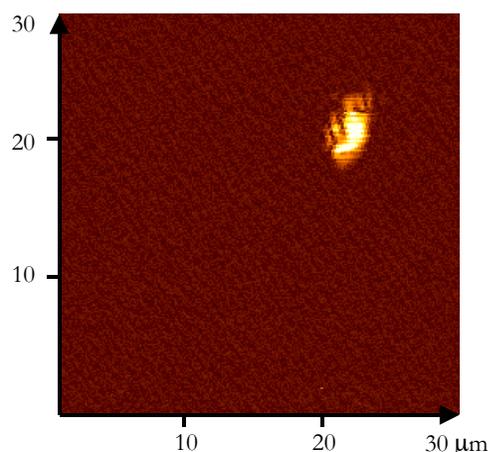


Figure 19(a) : Configuration expérimentale utilisée dans l'étude SNOM d'une diode laser en émission.



(b) Image effectuée avec une sonde en Si
 Amplitude de vibration = 100 nm
 Vitesse de balayage = 3 s/ligne



(c) Image effectuée avec une sonde en tungstène
 Amplitude de vibration = 120 nm
 Vitesse de balayage = 10 s/ligne

Figure 19 : Images SNOM d'une diode laser en émission stimulée.

La figure 19 (b) montre une nette contribution du levier dans la distribution de l'intensité collectée par la fibre. Dans ce cas, ce n'est pas l'extrémité de la sonde qui image les variations d'intensité de la lumière émise par la diode mais c'est le spot laser qui nous donne une image de la géométrie de la sonde et en particulier de son levier. Si nous analysons précisément cette image, on s'aperçoit que la contribution de l'intensité provenant de l'extrémité de la sonde est, pour une position donnée de la sonde au cours de l'imagerie, négligeable devant l'intensité totale diffusée par chacun des points du bord du levier. En revanche, bien que les conditions expérimentales ne soient pas encore optimales pour décrire la distribution spatiale du mode émis par la diode, l'image obtenue à l'aide de la sonde en tungstène se rapproche plus du résultat attendu. La géométrie macroscopique de cette sonde semble donc mieux à même de décrire ce mode.

Cette expérience montre que la géométrie globale de la sonde contribue au champ diffusé par l'interaction *sonde – surface* et collecté en champ lointain. La géométrie particulière des sondes en tungstène ressemble, plus que la géométrie des sondes commerciales, à l'image que nous nous

faisons du détecteur optique en champ proche tel que nous l'avons défini au chapitre I (voir pour exemple la figure 4 du chapitre 1).

Malgré tout, le corps de la sonde en tungstène a, dans une plus faible mesure, une influence 'néfaste' sur le signal optique collecté en champ lointain. Nous reviendrons sur l'importance de cette contribution au cours du chapitre III, où nous présenterons une étude plus poussée de cette diode laser.

D. Instrumentation optique.

Avertissement : Au cours de ce sous-chapitre nous décrirons les fonctionnalités optiques du SNOM que nous avons développé en mettant l'accent sur l'intérêt de celles-ci. Le lecteur pourra se référer à tout moment à l'annexe 1 de ce manuscrit pour trouver tous les 'détails' concernant l'instrumentation optique de notre SNOM [29].

1. Introduction.

Depuis le développement des premiers SNOM, en particulier ceux munis de sondes diffusantes, les études expérimentales et théoriques des surfaces montrent que le champ lumineux à proximité d'une surface dépend fortement des conditions d'éclairage de la surface [30, 31]. D'autre part, dans des conditions d'éclairage données, le contraste dans l'image SNOM résultant de l'interaction *sonde – champ électromagnétique – surface* dépend également des conditions dans lesquelles cette interaction locale est détectée [32, 33]. En conséquence, il apparaît indispensable, pour la compréhension de l'origine du contraste dans l'image SNOM, de doter notre microscope d'un maximum de souplesse dans les moyens qui permettent d'éclairer l'échantillon et de détecter l'interaction locale *sonde – champ électromagnétique – surface*.

Nous consacrerons le paragraphe 2 de ce sous-chapitre à la description des moyens que nous avons développés pour éclairer l'échantillon. Nous insisterons sur leurs potentialités et donnerons leurs limitations.

Nous définirons, au cours du paragraphe 3 de cette partie, les moyens qui nous permettent de détecter l'interaction locale *sonde – champ électromagnétique – surface* en champ lointain et nous analyserons les différentes étapes qui génèrent l'image SNOM dans notre mode de mesure.

2. L'éclairage.

Nous définirons comme suit les modes d'éclairage en transmission et en réflexion (c. f. figure 20) : un SNOM est dit travaillant en réflexion si le détecteur champ proche (la sonde) et l'éclairage sont placés dans le même demi-espace. Ce demi-espace étant défini par la surface de l'échantillon. On parlera de SNOM en transmission dans le cas contraire.

La figure 20 schématise les configurations fonctionnant en réflexion (a) et en transmission (b).

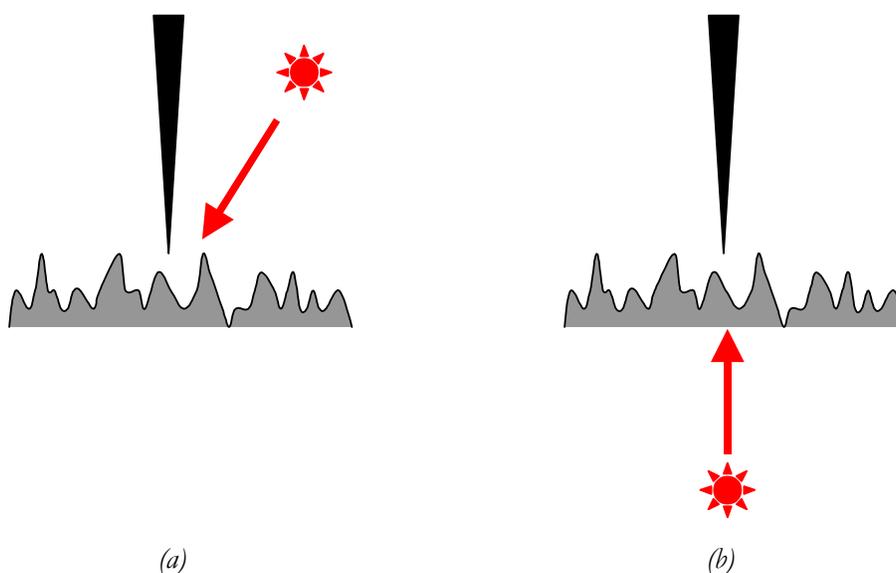


Figure 20 : Deux configurations types : (a) SNOM en réflexion ; (b) SNOM en transmission.

Comme le schématise la figure 1, notre microscope travaille en réflexion.

Notons que la position du détecteur placé en champ lointain (§ 3 de ce sous-chapitre) n'intervient pas dans la notion 'réflexion - transmission' que nous donnons. Nous verrons cependant, au paragraphe 3, que cette position est un paramètre expérimental important.

2.1. Dispositifs d'éclairage.

Les dispositifs qui nous permettent d'éclairer l'échantillon sont caractérisés par quatre paramètres : la direction (θ_i, ϕ_i) , la longueur d'onde λ_i , l'intensité et l'état de polarisation 'Pi' du rayonnement incident. La figure 21 représente ces paramètres :

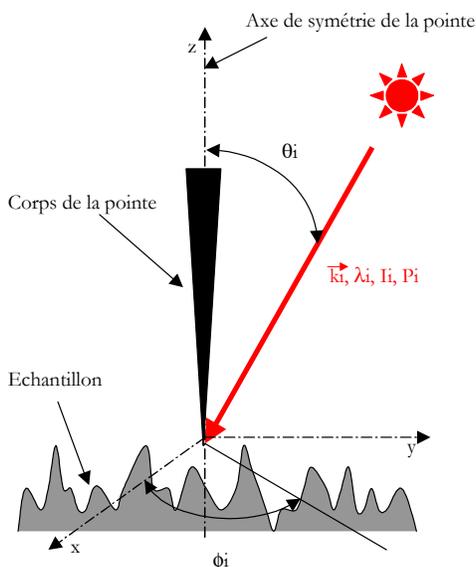


Figure 21 : Description schématique des paramètres caractéristiques de l'éclairage.

Les sources que nous utilisons sont :

- la raie rouge d'un laser Helium-Néon : $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ ($P = 10 \text{ mW}$),
- la raie verte d'un laser Hélium-Néon : $\lambda = 543 \text{ nm}$ ($P = 1 \text{ mW}$),
- une diode laser à $\lambda = 635 \text{ nm}$ ($P = 5 \text{ mW}$),
- une diode laser à $\lambda = 1550 \text{ nm}$ ($P = 5 \text{ mW}$).

Pour ces longueurs d'onde, des dispositifs (polariseurs, lames de phase, ...) permettant de contrôler la puissance incidente sur la surface ainsi que l'état de polarisation incident (rectiligne, circulaire ou elliptique) ont été développés.

La géométrie de notre système nous permet d'ajuster, à l'aide d'une mécanique précise, les angles θ_i et ϕ_i entre $[0 \text{ et } \pi/2]$ lorsque la surface est éclairée dans le visible. La surface peut ainsi être

éclairée soit par le biais d'un objectif de microscope ayant une distance de travail supérieure à deux centimètres, soit par le biais d'une fibre optique (munie ou non d'une micro-lentille en son extrémité). Ceci nous permet d'obtenir une tache de focalisation de diamètre au mieux égal à ~ 3 microns (objectif Mitutoyo LWD, X20 ON = 0,28). Les fibres optiques sont principalement utilisées pour des raisons d'encombrement mécanique, lorsque la symétrie du système étudié nous oblige à élargir ϕ_i aux angles compris entre $\pi/2$ et π . C'est en particulier le cas lorsqu'on utilise des sondes commerciales pour lesquelles le levier (éclairé lors de la mesure) brise la symétrie axiale imposée par le corps de la pointe en tungstène (symétries de la surface étudiée mises à part). Il faut noter que ce gain de place se fait au détriment de la qualité de l'éclairage (principalement la polarisation), rendant ainsi plus complexe encore l'analyse des résultats obtenus.

L'importance du choix des conditions d'éclairage ($\theta_i, \phi_i, \lambda_i, P_i$), que nous venons de décrire, a été montrée à plusieurs reprises par la littérature. On peut citer par exemple les travaux théoriques de A. Madrazo et *al* [31] ou M. Xiao [34] et les travaux expérimentaux effectués par P.M. Adam et *al* [35] démontrant l'importance de la direction d'incidence du rayonnement sur le contenu de l'image SNOM. L'influence du choix de la polarisation dans l'étude d'un échantillon donné sur le contraste SNOM a également été démontrée [35, 36].

Au cours de ce travail de thèse, nous avons pu profiter de la polyvalence de ces moyens d'éclairage pour étudier leur incidence dans le contraste optique mis en évidence dans l'image SNOM. Nous donnerons une analyse de quelques-uns de ces résultats dans le chapitre III.

La flexibilité des conditions d'éclairage ainsi que l'ouverture mécanique de notre microscope commercial nous ont également permis d'utiliser la sonde optique [une sonde en tungstène dans ce cas] pour 'éclairer' localement un échantillon dans le but d'étudier l'exaltation du champ électromagnétique en extrémité d'une sonde métallique [21, 37]. Des travaux théoriques et expérimentaux ont, dans ce cas là également, montré l'importance des conditions d'éclairage ($\theta_i, \phi_i, \lambda_i, P_i$) sur l'effet observé [37, 38], motivant la possibilité d'ajuster ces conditions dans une grande latitude. Nous avons, en particulier, été conduits à développer un éclairage du système *sonde - échantillon* en réflexion totale interne pour démontrer le confinement spatial de cet effet. Le chapitre IV présente cette étude.

3. La détection du champ proche : formation de l'image SNOM.

La détection de l'interaction locale *sonde – champ électromagnétique – surface* constitue la difficulté majeure de la microscopie optique en champ proche, en particulier des SNOM utilisant un mode vibrant au cours de leurs mesures. Ce paragraphe nous permettra de poser ce problème tout d'abord d'une manière générale et puis dans le cas précis d'une détection par modulation du champ proche optique.

3.1. Généralités.

Intéressons nous d'abord au principe général de la mesure, principe que nous avons déjà évoqué à la fin du chapitre premier. Nous comptons accéder aux propriétés optiques d'une surface à l'échelle $\text{sub-}\lambda$ en immergeant l'extrémité du corps de la pointe dans le champ proche optique de la surface éclairée en champ lointain. En d'autres termes, nous voulons étudier la résultante progressive de l'interaction entre trois éléments : l'extrémité de la sonde, la surface et le champ lumineux d'excitation. Nous collectons cette résultante en champ lointain à l'aide d'un objectif de microscope ou d'une fibre optique. La figure 22 représente schématiquement ces quatre éléments ainsi que les composantes radiatives résultantes de l'interaction locale. Comme le montre la figure 22, la direction de détection champ lointain est caractérisée par les angles θ_d et ϕ_d suivant lesquels nous analysons l'interaction locale. Fixer θ_d et ϕ_d revient à sélectionner une partie du diagramme de rayonnement résultant de cette interaction, diagramme qui à priori n'est pas isotrope. Pour compléter la caractérisation de ce rayonnement, il convient d'ajouter une analyse en polarisation 'Pd' au couple (θ_d, ϕ_d) préalablement défini. En conséquence, nous définirons la détection champ lointain par les paramètres (θ_d, ϕ_d, Pd) .

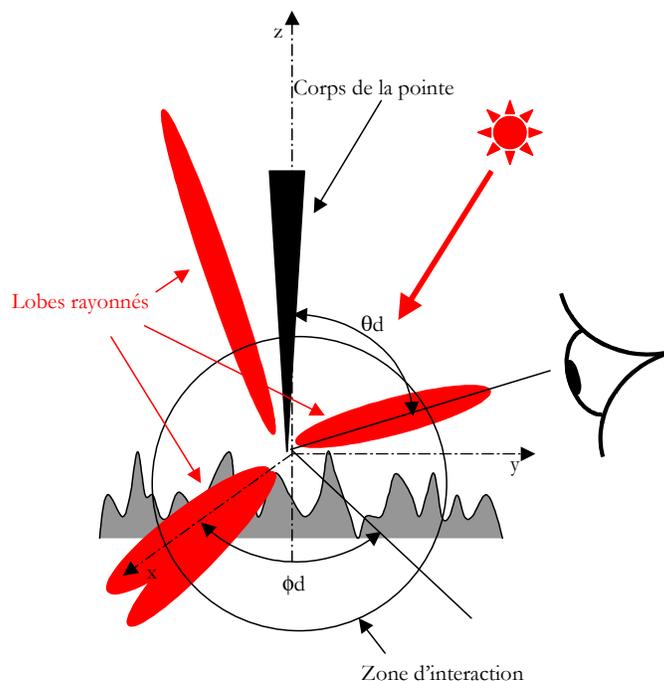


Figure 22 : Description schématique des notations utilisées pour définir les conditions de détection en champ lointain de l'interaction locale sonde – champ électromagnétique excitateur – échantillon.

3.2. Dispositif expérimental.

Dans la pratique, la chaîne de détection champ lointain ne se réduit pas uniquement à un simple détecteur optique. En effet, le système *sonde – surface* étant éclairé sur une zone de volume au mieux égal au micron cube, l'interaction *sonde – échantillon – champ lumineux d'excitation* doit être isolée de l'interaction qui aurait lieu en l'absence de la sonde. Pour cela, la sonde est animée d'un mouvement de vibration verticale d'amplitude A et de fréquence f (mode contact intermittent dans notre cas). Ce mouvement de vibration permet de moduler, à la fréquence f et sur une extension spatiale $2.A$ ($10 \text{ nm} \leq 2.A \leq 200 \text{ nm}$ sont des valeurs typiques en contact – intermittent), le champ électromagnétique ayant interagit avec la sonde. Une détection synchronisée à la fréquence f (en général) nous permet ainsi d'extraire, de la totalité du signal optique collecté dans une configuration (θ_d, ϕ_d, P_d) donnée, la composante optique de fréquence f qui nous intéresse. La figure 23 représente schématiquement les trois étapes qui mènent au signal SNOM

tel qu'il apparaît sur un 'pixel' dans l'image optique. Voyons comment se forme l'image optique sur une ligne de balayage. Pour cela analysons en détail les trois étapes décrites par la figure 23 :

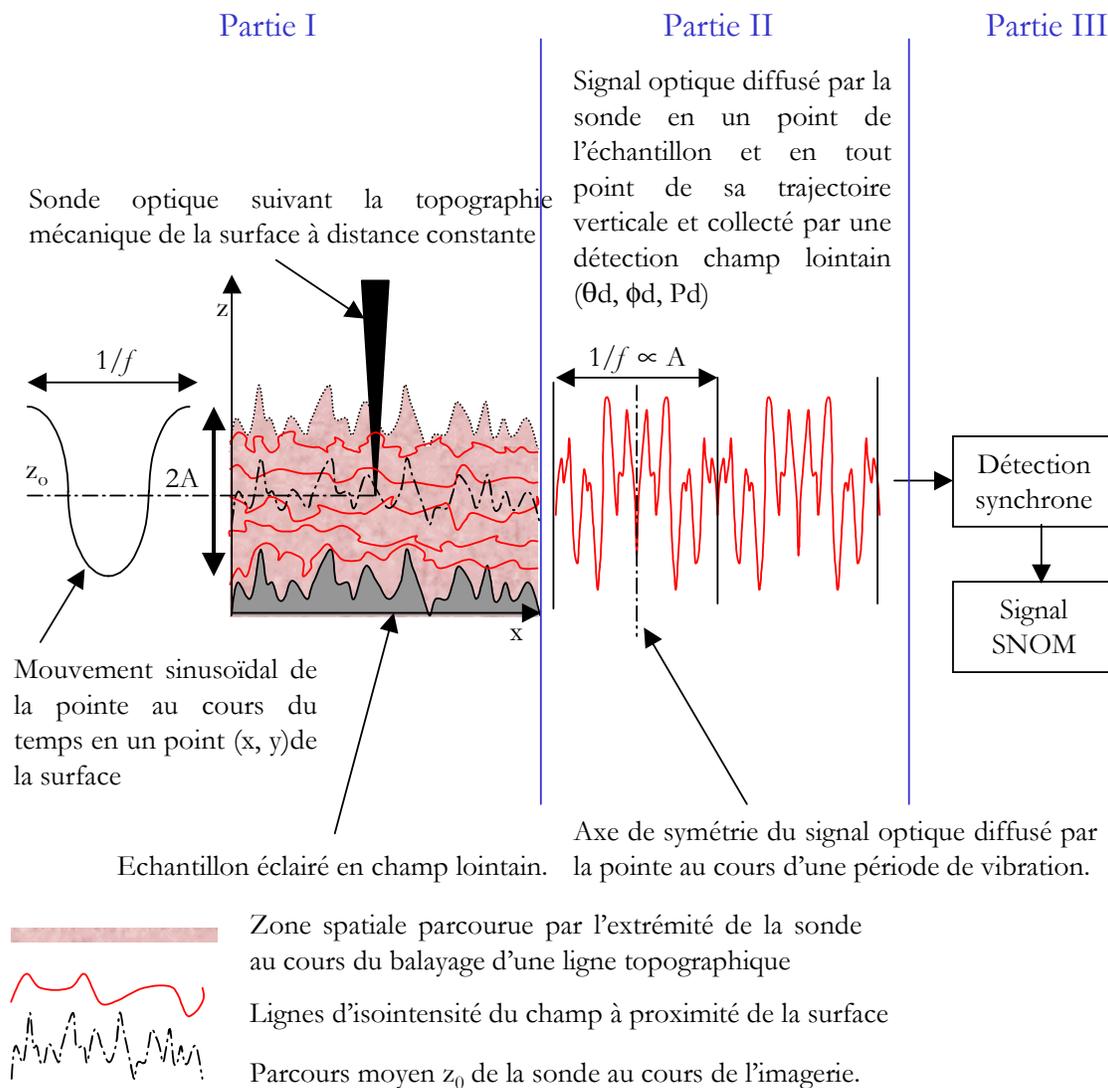


Figure 23 : Description schématique des différentes étapes qui permettent de générer une image SNOM.

Partie I : détection en champ proche ; le détecteur optique est la sonde.

Partie II : détection champ lointain ; le détecteur est un objectif de microscope ou une fibre optique précédant une photodiode ou un photomultiplicateur.

Partie III : détection synchrone du signal électrique résultant du signal optique détecté par la partie II.

Partie I :

La surface de l'échantillon est éclairée en champ lointain dans les conditions (θ_i, ϕ_i, P_i) . Une sonde optique est approchée de la surface de l'échantillon grâce à une régulation AFM dans le mode contact – intermittent (amplitude de consigne A , fréquence f). La distance moyenne sonde – échantillon est maintenue constante durant le balayage et est égale à z_0 ; $z_0 = f(\text{topographique mécanique})$ [un mode de balayage à hauteur constante aurait également pu être choisi : $z_0 = \text{constante}$]. La vitesse de balayage selon l'axe rapide (noté x sur la figure 23) est H_B (exprimée en nombre de lignes parcourues par secondes). Cette vitesse est choisie de manière à assurer la stabilité de la boucle d'asservissement de l'AFM mais doit également répondre à des contraintes d'imagerie (nombre de points de mesure par ligne). Généralement, la sonde parcourt une vingtaine de périodes de vibration verticale par point de mesure ce qui impose $H_B \leq \frac{f}{20 \times 256}$ Hz pour une image constituée de 256×256 points de mesures [comme le balayage est continu, ceci constitue un moyennage spatial, mais ce dernier est négligeable devant la taille de la sonde dans les conditions dans lesquelles nous travaillons]. En chaque point de sa trajectoire verticale [$x = \text{constante}$, $z(t) = z_0 + A \cdot \cos(2 \cdot \pi \cdot f \cdot t + \varphi)$; φ étant le déphasage de la réponse de la sonde à l'excitation imposée par le cristal piézoélectrique], le champ électromagnétique diffracté par la surface de l'échantillon est diffusé par l'effet de l'interaction *sonde optique – surface* au cours d'une période de vibration de la sonde. Ce signal optique de fréquence f contient des informations sur le champ électromagnétique diffracté par la surface de l'échantillon sur une extension spatiale verticale égale à $2A$ [la composante du champ diffracté à l'ordre zéro est aussi présente dans ce signal]. Les caractéristiques de ce signal optique (polarisation, direction de propagation, intensité...) dépendent bien entendu également des conditions d'éclairage, de la géométrie et de la nature chimique de la sonde ainsi que du mode opératoire AFM choisi [39].

Partie II.

Cette partie de la détection s'effectue en champ lointain. Son rôle est de détecter ce signal optique de fréquence f . L'instrumentation optique dont nous disposons à cet effet est identique à celle qui nous permet d'éclairer l'échantillon (c. f. § D. 2.1). Rappelons qu'une description exhaustive de ces moyens de détection a été faite en référence [29] dont une copie est donnée en annexe 1. Les

conditions de détection (θ_d, ϕ_d, Pd) sont, elles aussi, ajustables dans les mêmes magnitudes que (θ_i, ϕ_i, Pi).

Le choix de (θ_d, ϕ_d, Pd) est très souvent conditionné par les conditions d'éclairage (θ_i, ϕ_i, Pi). En effet, pour augmenter la dynamique du photodétecteur, la direction de la détection ne coïncide généralement pas avec les directions définies par le champ incident et sa réflexion sur la surface de l'échantillon. Dans le cas contraire, Pd est généralement croisé avec Pi . Le chapitre III permettra de montrer l'importance que peut avoir la direction de détection champ lointain sur le contraste obtenu dans l'image SNOM. Nous mettrons particulièrement en valeur son rôle d'analyse en polarisation qui peut résulter du choix de la direction de collection [40]. Plusieurs études théoriques et expérimentales montrent, en effet, la forte dépendance du signal optique collecté en champ lointain dans les conditions (θ_d, ϕ_d, Pd) données. Leurs auteurs présentent, en particulier, l'influence de la polarisation du signal détecté [40, 41] ou encore de sa direction de propagation [34, 40, 42-44].

Le signal optique collecté dans les conditions (θ_d, ϕ_d, Pd) est converti en signal électrique par l'intermédiaire d'un photomultiplicateur (PM). Celui que nous utilisons (Hamamatsu R5600P-04 : caractéristiques techniques données en annexe 2), peu encombrant, n'entrave en rien la flexibilité de notre détection optique. Ce signal électrique peut alors être traité par la partie III du dispositif de détection.

Partie III.

Le signal électrique provenant de la partie II est traité par détection synchrone. La figure 24 donne le synoptique d'une détection synchrone :

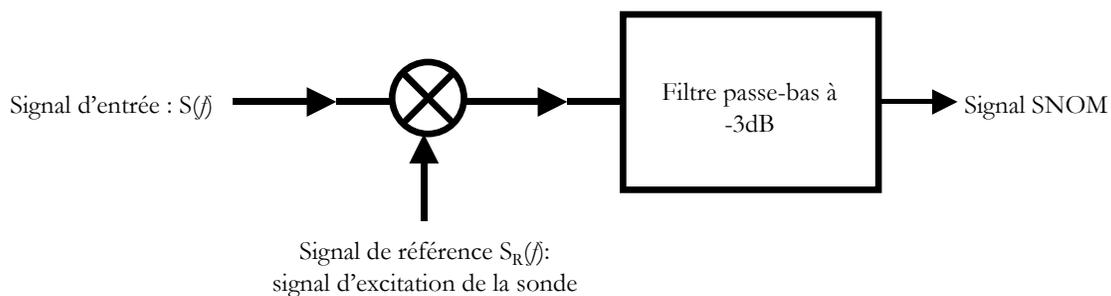


Figure 24 : Synoptique simplifié d'un amplificateur synchrone.

La détection synchrone est caractérisée par son temps d'intégration τ_{DS} , qui, une fois fixé, impose la fréquence de coupure du filtre passe bas de sortie. Le modèle que nous utilisons (EG&G 5210) permet d'acquérir directement l'amplitude R et la phase θ des composantes sinusoïdales de fréquences f et $2.f$ présentes dans le signal d'entrée lorsque $\tau_{DS} \geq 1\text{ms}$; τ_{DS} étant déterminé par la fréquence du signal d'entrée $S(f)$, i. e. par la fréquence de vibration f de la sonde utilisée (c'est la fréquence la plus faible présente dans le signal entrant dans la détection synchrone). Il doit être suffisamment élevé pour laisser le temps à la boucle de contre-réaction de l'asservissement AFM de se stabiliser dans son régime permanent et doit simultanément être inférieur au temps d'acquisition d'un point de mesure. En utilisant la relation utilisée dans la partie I, on peut exprimer τ_{DS} de la façon suivante : $\frac{n}{f} \leq \tau_{DS} \leq \frac{1}{256.H_B}$; n étant un entier ≥ 2 . Dans notre cas, pour s'affranchir au maximum des instabilités de l'asservissement AFM, le temps d'intégration τ_{DS} tend vers le temps d'échantillonnage défini par $1/(256.H_B)$. La phase θ quantifie le déphasage du signal $S(f)$ par rapport au signal de référence de la détection synchrone $S_R(f)$. $S_R(f)$ est un signal de forme carrée et de fréquence f . Il est utilisé pour générer le signal qui excite le mouvement vibratoire de la sonde. Son amplitude maximum n'est pas fonction de l'amplitude d'excitation de la céramique de vibration verticale (et donc de l'amplitude de vibration de la pointe), ce qui en fait une référence stable qui n'entraînera pas de fluctuations artificielles lors de la démodulation du signal d'entrée $S(f)$.

L'étude présentée au chapitre III nous permettra de montrer l'importance de la fréquence de démodulation synchrone lors de l'étude du champ proche optique d'un échantillon émetteur de lumière.

4. Conclusion.

Les informations contenues dans les images d'amplitude R et de phase θ , qui constituent les images SNOM, sont liées à la 'lecture' que la sonde fait du champ électromagnétique le long de son excursion verticale. Les grandeurs R et θ sont significatives des variations de la distribution

du champ diffusé par la sonde mais, comme nous l'avons montré (c. f. § B. 6.3. de ce chapitre), peuvent également retranscrire le comportement mécanique de l'oscillateur.

D'autre part, indépendamment des critères qui sont adoptés pour définir l'origine champ proche du contraste que présente une image SNOM, leur obtention implique :

- la capacité d'isoler le champ diffusé par l'extrémité de la sonde (lorsque celle-ci est au contact de l'échantillon ou non). La figure 19 (a) représente une situation extrême où le levier contribue de façon prédominante au champ diffusé par la sonde et collecté en champ lointain. Dans ce cas, aucune propriété optique relative au champ proche de l'échantillon n'est mise en évidence. Dans les autres cas, une étude du contraste dans l'image SNOM en fonction des conditions d'éclairage et de détection [détection champ proche : géométrie de la sonde, conditions de travail AFM ; détection champ lointain : (θ_d, ϕ_d, Pd) , fréquence de démodulation détection synchrone] paraît indispensable pour lever l'ambiguïté sur l'origine du contraste dans les images optiques,
- de plus, notons que, comme nous l'avons rappelé au chapitre premier (§2.3), le champ proche optique d'une surface est composé d'un champ de nature progressive (le champ spéculaire par exemple) et d'un champ de nature évanescente. Ainsi, l'extrémité de la sonde, plongée dans ce champ, diffuse simultanément ces deux contributions du champ électromagnétique diffracté par l'échantillon. En conséquence, un contraste SNOM ne peut être révélé que si les variations spatiales des contributions spéculaires du champ proche optique ne gomme pas celles des composantes diffractées aux ordres plus élevés qui nous intéressent [ces variations spatiales verticales du champ spéculaire résultent de l'interférence du champ incident avec le champ réfléchi par le plan moyen de l'échantillon]. De nombreux travaux traitent de cet artefact. Les auteurs de ces travaux montrent qu'il est possible d'en diminuer l'impact en faisant balayer la sonde à une altitude constante parallèlement au plan moyen de l'échantillon ou encore en éclairant la surface sous incidence normale dans le cas d'un éclairage en transmission [40, 45]. Cet artefact, d'origine purement optique, peut être rajouté à ceux décrits § B. 6.3. de ce chapitre.

E Conclusion.

Nous avons développé un microscope à sonde locale dédié à l'étude des propriétés optiques des surfaces à l'échelle du nanomètre. Nous avons profité, pour cela, des potentialités offertes par un microscope AFM commercial (M5 PSI) nous permettant de disposer d'un système performant tant sur le plan mécanique (stabilité vibratoire) qu'électronique. Son ouverture mécanique, en particulier, nous permet d'éclairer le système *sonde - surface* et de détecter l'interaction résultante avec une grande flexibilité répondant ainsi à la complexité, révélée par la littérature, des phénomènes que nous désirons étudier.

Des sondes métalliques, en tungstène, dont nous assurons la fabrication au laboratoire, ont été adaptées avec succès sur le microscope AFM. Les premières images optiques faites avec ces pointes nous ont permis de montrer que leur géométrie macroscopique présente un avantage, comparée aux sondes commerciales, dans l'étude des échantillons émetteurs de lumière. A cet avantage s'ajoute, bien entendu, leur faible prix de revient (~15 Frs/pointe) et la possibilité de contrôler leur géométrie et leurs caractéristiques mécaniques (raideur du levier).

Nous avons utilisé ce SNOM pour deux études particulières :

- 1/ l'étude de composants de l'optoélectronique (diode laser, guides d'ondes)
- 2/ l'étude de l'exaltation du champ électrique en extrémité de sonde métallique.

Nous présentons ces études, respectivement, au cours des chapitres III et IV. Notons que ces études constituent pour nous une occasion d'apporter des éléments supplémentaires dans la compréhension de ce type de microscopie récente.

F Références.

1. Binnig G. and Quate C.F., *Atomic force microscope*. Physical Review Letters., 1986. **56**(9), 930-933.
2. Binnig G., *et al.*, *Tunneling through a controllable vacuum gap*. Applied Physics Letters, 1982. **40**(2), 178-180.
3. Binnig G., *et al.*, *Surface studies by scanning tunneling microscopy*. Physical Review Letters, 1982. **49**(1), 57-61.
4. Karbach A. and Drechsler D., *Atomic Force Microscopy-a Powerful Tool for Industrial Applications*. Surface and Interface Analysis, 1999. **27**, 401-409.
5. Israelachvili J., *Intermolecular & Surface Forces*. Seconde ed, ed. A. Press. 1985, London: Harcourt Brace Jonanovich. 450 pages.
6. Burnham N.A. and Kulik A.J., *Surface Forces and Adhesion*, in *Handbook of Micro/Nanotribology*. 1997: Boca Raton.
7. Martin Y., Williams C.C., and Wickramasinghe H.K., *Atomic microscope-force mapping and profiling on a sub 100 Angstrom scale*. Journal of Applied Physics., 1987. **61**(10), 4723-4729.
8. Giessibl F.J., *Science*, 1995. **267**(68-71).
9. Chernoff D.A. *High resolution chemical mapping using tapping mode AFM with phase contrast*. 1995: Microscopy and Microanalysis.
10. Putman C.A.J., *et al.*, *Tapping mode atomic force microscopy in liquid*. Appl. Phys. Lett., 1994. **64**(18), 2454-2456.
11. Hansma P.K., *et al.*, *Tapping mode atomic force microscopy in liquids*. Appl. Phys. Lett., 1994. **64**(13), 1738-1740.
12. Thèse de Michel D., *Applications de la microscopie à force atomique en contact et contract intermittent à l'étude des polymères: contraste mécanique à l'échelle du nanomètre.*, Bordeaux. 1997, Bordeaux 1: Bordeaux.
13. Anczykowski B., Krüger D., and Fuchs H., *Physical Review B*, 1996. **53**, 15485.
14. Burnham N.A., *et al.*, *How Does a Tip Tap?* Nanotech., 1997. **8**, 67-75.
15. Bachelot R., Gleyzes P., and Boccara A.C., *Influence of Both Repulsive and Attractive Force Fields in Tapping Mode Atomic Force Microscopy*. Probe Microscopy, 1997. **1**, 89-97.
16. Van-Noort S.J.T., *et al.*, *Height anomalies in tapping mode atomic force microscopy in air caused by adhesion*. Ultramicroscopy, 1997. **69**, 117-127.

17. Melemed A.J., *The art and science and other aspects of making sharp tips*. Journal of Vacuum Science Technology B, 1991. **9**(2), 601-608.
18. Zhang B. and Erkang W., *Fabrication of STM tips with controlled geometry by electrochemical etching and ECSTM tips coated with paraffin*. Electrochimica Acta, 1994. **39**(1), 103-106.
19. Fotino M., *Nanotips by reverse electrochemical etching*. Applied Physics Letters, 1992. **60**(23), 2935-2937.
20. Lemke H., *et al.*, *Improved microtips for scanning probe microscopy*. Review of Scientific Instruments, 1990. **61**(10), 2538-2541.
21. Novotny L., Bian R. X., and Sunney Xie X., *Theory of Nanometric Optical Tweezers*. Physical Review Letters, 1997. **79**(4), 645-648.
22. Féodossiev V., *Résistance des matériaux*, ed. MIR. 1976, Moscou. 517 pages.
23. Hansma P.K., *et al.*, *Scanning Tunneling Microscopy and Atomic Force Microscopy : Application to Biology and Technology*. Sciences, 1988. **242**, 209-216.
24. Weisenhorn A.L., *et al.*, *Forces in atomic force microscopy in air and water*. Applied Physics Letters., 1989. **54**(26), 2651-2653.
25. Thèse de Wioland H., *Conception, réalisation et caractérisation d'un microscope optique en champ proche utilisant une sonde sans ouverture. Application à l'étude d'échantillons magnétique par effets magnéto-optiques.*, Université de Technologie de Compiègne. 2000, Université de Technologie de Troyes: Troyes.
26. Thèse de Sounilhac S., *Détermination des interactions metal/oxyde à longue portée par AFM.*, Versailles. 1998, Paris 11: Orsay.
27. Thèse de Bachelot R., *Etude et réalisation d'un microscope optique en champ proche utilisant une sonde sans ouverture*, Paris. 1996, Université Paris 7: Paris.
28. Leleu Y., *Détermination des paramètres électrochimiques optimaux à la réalisation de sondes en tungstène*, Troyes. 1999. Rapport interne.
29. Wurtz G., Bachelot R., and Royer P., *A reflection-mode apertureless scanning near-field optical microscope developed from a commercial scanning probe microscope*. Review of Scientific Instruments, 1998. **69**(4), 1735-1743.
30. Adam P.M., *et al.*, *Polarization contrast with an apertureless near-field optical microscope*. Ultramicroscopy, 1998. **71**, 327-331.
31. Madrazo A., *et al.*, *Polarization effects in the optical interaction between a nanoparticle and a corrugated surface: implications for apertureless near-field microscopy*. Journal of the Optical Society of America A, 1998. **15**(1), 109-119.

32. Hecht B., *et al.*, *Influence of detection conditions on near-field optical imaging*. Journal of Applied Physics, 1998. **84**(11), 5873-5881.
33. Heinzelmann H., *et al.*, *Forbidden light scanning near-field optical microscopy*. Journal of microscopy, 1995. **177**, 115-118.
34. Xiao M., *Theoretical treatment for scattering scanning near-field optical microscopy*. J. Opt. Soc. Am. A, 1997. **14**(11), 2977-2984.
35. Adam P.M., *et al.*, *Apertureless near-field optical microscopy: influence of the illumination conditions on the image contrast*. Applied Optics, 1998. **37**(10), 1814-1819.
36. Kobayashi K. and Watanuki O., *Polarization-dependent contrast in near-field optical microscopy*. Journal of Vacuum Science and Technology B, 1997. **15**(6), 1966-1970.
37. Martin O.J.F. and Girard C., *Controlling and tuning strong optical field gradients at a local probe microscope tip apex*. Applied Physics Letters, 1997. **70**(6), 705-707.
38. Aigouy L., *et al.*, *Polarisation effects in apertureless scanning near-field optical microscopy: an experimental study*. Optics Letters, 1999. **24**(4), 187-189.
39. Carminati R., *et al.*, *Optical content and resolution of near-field optical images: Influence of the operating mode*. Journal of Applied Physics, 1997. **82**(2), 501-509.
40. Greffet J.J. and Carminati R., *Image formation in near-field optics*. Progress in Surface Science, 1997. **56**(3), 133-237.
41. Jalocha A. and Van Hulst N.F., *Polarization contrast in fluorescence scanning near-field optical reflection microscopy*. Journal of Optical Society of America B, 1995. **12**(9), 1577-1589.
42. Madrazo A. and Nieto-Vesperinas M., *Scattering of light and other electromagnetic waves from a body buried beneath a highly random surface*. Journal of the Optical Society of America A, 1997. **14**(8), 1859-1866.
43. Novotny L., *Allowed and forbidden light near-field optics. I. A single dipolar light source*. J. Opt. Soc. Am. A, 1997. **14**(1), 91-104.
44. Novotny L., *Allowed and forbidden light near-field optics. II. Interacting dipolar particles*. J. Opt. Soc. Am. A, 1997. **14**(1), 105-113.
45. Hecht B., *et al.*, *Facts and artefacts in near-field optical microscopy*. Journal of Applied Physics, 1997. **81**(6), 2492-2497.

Chapitre III : Etude de composants de l'optoélectronique.

A Introduction.	103
B Champ proche optique d'une diode laser.	104
1. Introduction.	104
2. Description de la diode laser.....	105
3. Etude de la diode laser en fonctionnement.	107
3.1. Configuration expérimentale.....	107
3.2. Etude du contraste SNOM en fonction des conditions de détection en champ lointain.	110
3.3. Effet de l'amplitude de vibration de la sonde sur le contenu de l'image SNOM	115
3.4. Effet de l'amplitude de vibration de la sonde sur le contenu de l'image SNOM	119
3.5. Etude SNOM de la diode laser en fonctionnement	125
3.6. Analyse des images de forces acquises lors du fonctionnement de la diode.....	133
4. Réponse diélectrique de la surface du cristal laser à une excitation lumineuse externe	138
4.1. Configuration expérimentale.....	138
4.2. Résultats expérimentaux.	142
5. Conclusion.....	146
C Etude SNOM des guides d'ondes en émission.	147
1. Introduction.	147
2. Configuration expérimentale.	148
3. Résultats et discussion.	149
4. Conclusion.....	151
D Conclusion	153
E Références	155

Chapitre III : Etude de composants de l'optoélectronique.

A Introduction.

La caractérisation du champ diffracté par un objet de taille sub- λ suscite encore beaucoup de questions relatives à la physique qui gouverne l'optique à cette échelle ainsi qu'aux mécanismes qui interviennent dans l'étude de ces champs par les techniques de microscopie à sonde locale.

Ce chapitre présente deux études motivées par la compréhension du processus de formation de l'image SNOM. Nous nous sommes, plus exactement, intéressés à l'influence des conditions d'éclairage et de détection sur le contenu de l'image SNOM. Les échantillons, dont nous présentons l'étude optique en champ proche dans les parties B et C de ce chapitre, ont été choisis dans ce but.

La partie B sera consacrée à l'étude d'une diode laser commerciale. Dans le cas où la diode est en fonctionnement, nous avons profité des caractéristiques particulières (caractéristiques optiques du mode émis et géométrie spécifique de la zone active) de cette source pour identifier les paramètres expérimentaux susceptibles d'influencer favorablement le contenu de l'image SNOM. Nous avons, également, étudié la réponse diélectrique de la surface du cristal laser à une excitation lumineuse externe lorsque la diode n'est pas en fonctionnement. Cette seconde étude nous a permis de discuter le contenu de l'image SNOM en fonction de la direction suivant laquelle l'interaction *sonde – champ lumineux incident – surface du cristal laser* est analysée.

Nous présenterons, finalement, une étude SNOM du champ émis par une fibre optique monomode. La bonne connaissance des caractéristiques de ce champ nous ont permis de mettre en évidence l'incidence du processus de mesure, que nous utilisons pour étudier le champ proche optique d'une surface, sur le contenu de l'image optique. Cette étude sera présentée dans la partie C de ce chapitre.

B Champ proche optique d'une diode laser.

1. Introduction.

Du fait de la miniaturisation des diodes laser, les caractéristiques physiques de ces composants requièrent des méthodes de caractérisation locale de plus en plus performantes. La microscopie optique à sonde locale semble ainsi désignée pour faire partie de ces méthodes dans le cadre de leur caractérisation optique à l'échelle sub-micronique.

Les premières études optiques en champ proche de diodes laser en fonctionnement ont été effectuées à l'aide de fibres optiques métallisées [1-4]. Ces études ont permis, en particulier, de caractériser la distribution spatiale de la lumière émise en champ proche par une jonction laser mais aussi de détecter les imperfections de la structure semi-conductrice en mettant, par exemple, en évidence des fuites de porteurs dans les couches adjacentes à la couche active.

Dans cette partie, nous montrerons que l'étude d'échantillons émetteurs de lumière est également possible par les SNOM utilisant des sondes diffusantes. L'intérêt de cette étude ne réside pas uniquement dans la caractérisation optique du composant en lui-même, mais trouve également ses motivations dans l'étude des paramètres expérimentaux propres aux SNOM utilisant des sondes diffusantes dans un mode de vibration verticale.

Après une rapide description de la diode que nous avons étudiée, nous analyserons l'influence des paramètres expérimentaux, élémentaires, propres aux SNOM utilisant des sondes diffusantes sur le contraste dans l'image optique. Les conclusions de cette étude nous ont permis de caractériser localement les propriétés optiques de notre composant en fonctionnement.

Nous présenterons, ensuite, l'étude de la surface du cristal laser lorsque celle-ci est éclairée par le biais d'une source externe. Nous commenterons et analyserons alors l'importance de la configuration expérimentale choisie (éclairage, détection) sur le contenu de l'image SNOM.

Nous concluons finalement en faisant une synthèse de l'apport de cette étude dans la compréhension des processus physiques qui interviennent dans la formation des images optiques en champ proche.

2. Description de la diode laser.

La diode laser que nous avons étudiée est représentée schématiquement par la figure 1. Il s'agit d'une diode commerciale 'Sharp LT020MC V-Grooved Substrate Internal Stripe' (VSIS) [puissance optique maximale : 3mW, longueur d'onde d'émission $\lambda = 780$ nm, courant de seuil $I_0=40$ mA] dont nous avons retiré la fenêtre de protection (c. f. figure 1(a)) rendant ainsi sa face émettrice (c. f. figure 1(b)) accessible à une étude en champ proche. Elle est constituée d'une double hétéro-jonction [$\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}/\text{Ga}_{1-y}\text{Al}_y\text{As}/\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$: où x et y sont, respectivement, les fractions molaires d'aluminium dans les couches de confinement et dans la couche active] formant un puit de potentiel électrostatique dont la géométrie permet d'assurer un guidage optique par l'indice [5]. Notons, sur la figure 1(b), la forme particulière en 'V' (structure VSIS) de la couche de confinement dopée 'p'. Cette dernière assure simultanément le confinement latéral (selon Y : dû au puits de potentiel électrostatique qu'elle forme avec la couche de confinement dopée 'n') et longitudinal (selon X) des porteurs de charge à travers la jonction laser provoquant un confinement spatial micrométrique de la zone émettrice de lumière (représentée en rouge dans la figure 1(b)).



Figure 1(a) : Diode laser commerciale 'Sharp LT020MC VSIS' encapsulée.

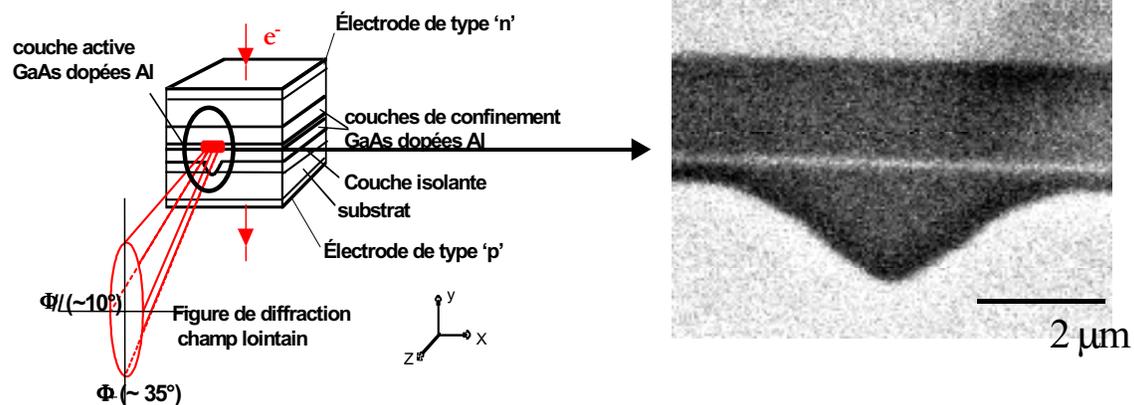


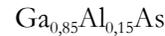
Figure 1(b) : Représentation schématique des différentes couches constituant le cristal laser. Un agrandissement (obtenu par MEB) de la zone active émettrice de lumière à été fait.

La longueur d'onde d'émission permet de déterminer la fraction molaire y d'aluminium contenue dans la couche active à l'aide de la relation suivante [6]:

$$\epsilon_g(y) = A + B.y \quad (\text{III.1})$$

- où :
- ϵ_g est l'énergie du gap du matériau constituant la zone active en eV,
 - y est la fraction molaire d'aluminium comprise dans la matrice GaAs,
 - A et B sont des constantes ($A = 1,424$, $B = 1,247$) [6].

Pour $0 < y < 0,37$ [6] la bande interdite du GaAlAs est toujours directe, le matériau pourra présenter une émission stimulée. Pour une longueur d'onde d'émission de 780 nm la relation (III.1) nous donne la composition suivante pour la zone active :



Les couches de confinement devant, en plus du confinement des porteurs de charge, assurer le guidage de la lumière dans la couche active, il est nécessaire qu'elle présente un indice de réfraction inférieur à celui de la couche active. L'indice de réfraction d'un matériau de composition $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ est déterminé par la relation [6] :

$$\tilde{n}(x) = 3,59 - 0,71.x + 0,091.x^2 \quad (\text{III.2})$$

$\tilde{n}(x)$ étant une fonction décroissante de x , nous permet d'établir, compte tenu de la condition d'émission stimulée ($0 < y < 0,37$), la condition à satisfaire sur la fraction molaire, x , d'aluminium contenue dans les couches de confinement :

$$0,15 < x < 0,37 \quad (\text{III.3})$$

Cette structure génère un mode transverse ayant une distribution en intensité pseudo-Gaussienne, comparable à celle émise par la plupart des laser à gaz (mode TEM_{00}), mais de forme elliptique. La figure de diffraction en champ lointain de la diode est une ellipse tournée de 90° par rapport à la distribution du champ à proximité de la source (c. f. figure 1(b)). L'état de polarisation de la lumière émise est également elliptique avec un champ électrique vibrant principalement parallèlement à la couche active (taux de polarisation : 1/10).

3. Etude de la diode laser en fonctionnement.

3.1. Configuration expérimentale.

La diode laser est solidaire d'une platine de translation piézoélectrique (déplacement x, y), surface émettrice orientée perpendiculairement à l'axe de la pointe (c. f. figure 2). Une alimentation laser commerciale faible bruit (Melles Griot 06DLD203) permet le contrôle du courant d'injection I_0 [les mesures présentées dans cette partie ont été effectuées pour $I_0=20$ mA (émission spontanée) et $I_0=45,5$ mA (émission stimulée)].

La sonde vibre perpendiculairement à la surface de l'échantillon et balaye, en champ proche, la zone active émettrice de lumière alors que la distance *sonde – échantillon* est réglée par le système d'asservissement du microscope AFM (mode contact – intermittent). L'acquisition de l'image AFM se fait simultanément à l'acquisition de l'image optique SNOM.

L'échantillon étant l'unique source de lumière dans cette expérience, seuls les paramètres relatifs au système de détection optique, disponibles sur notre SNOM ont été ajustés de manière à extraire la composante champ proche du signal diffusé par l'interaction *sonde – surface émettrice de lumière*. Avant de décrire plus précisément l'influence de chacun des paramètres utilisés au cours de la présente étude sur le contenu de l'image SNOM, nous allons faire un rapide inventaire de ces éléments :

- une sonde en tungstène (amplitude de vibration $\in [10$ nm, 400 nm]). Nous définirons dorénavant la grandeur $x = A.\cos(\varphi)$ mesurée par notre AFM comme étant l'amplitude de vibration A de l'oscillateur,
- un objectif de microscope (20X, ON = 0,28) placé en champ lointain pour détecter l'interaction *sonde – surface émettrice de lumière* dans la configuration $\theta_d=0^\circ$ (axe principal de collection), $\phi_d \in [0, 2.\pi]$ et $\rho_d \in [0, 2.\pi]$ (c. f. §D.3.1 du chapitre II pour les notations). Dans le cas de l'utilisation de cet objectif, la plage de collection suivant θ_d est restreinte aux angles compris entre 10° et 16° car la géométrie de la tête du microscope AFM nous impose de travailler en champ sombre [7] (configuration décrite par la figure 2 (a) où θ_d représente l'axe principal de collection). Un film polaroïd permet une analyse en polarisation de la lumière collectée par l'objectif. Un filtre spatial est placé à l'entrée du photomultiplicateur dans le plan focal image du

système optique de détection (objectif + lentille), de façon à sélectionner exclusivement le champ diffusé provenant de l'extrémité de la sonde en interaction avec la surface (zone de capture $\sim 10 \mu\text{m}^3$),

- une fibre optique ($100 \mu\text{m}$ de coeur/ $140 \mu\text{m}$ de gaine ; $ON = 0,48$) dont l'axe peut être confondu avec les directions de diffusion $\theta_d \in [15^\circ, 90^\circ]$, $\phi_d \in [0, 2.\pi]$ (configuration décrite par la figure 2(b)). La fibre est solidaire d'un système mécanique stable qui permet d'ajuster précisément l'angle de détection ($\pm 2^\circ$) ainsi que la distance *fibre – sonde* (distance $\sim 70^{\pm 1} \mu\text{m}$).
- une détection synchrone (EG&G 5210 notée 'DS SNOM' sur la figure 2) utilisée pour déterminer l'amplitude des composantes sinusoïdales de fréquence f et $2.f$ contenues dans le signal modulé par la sonde.

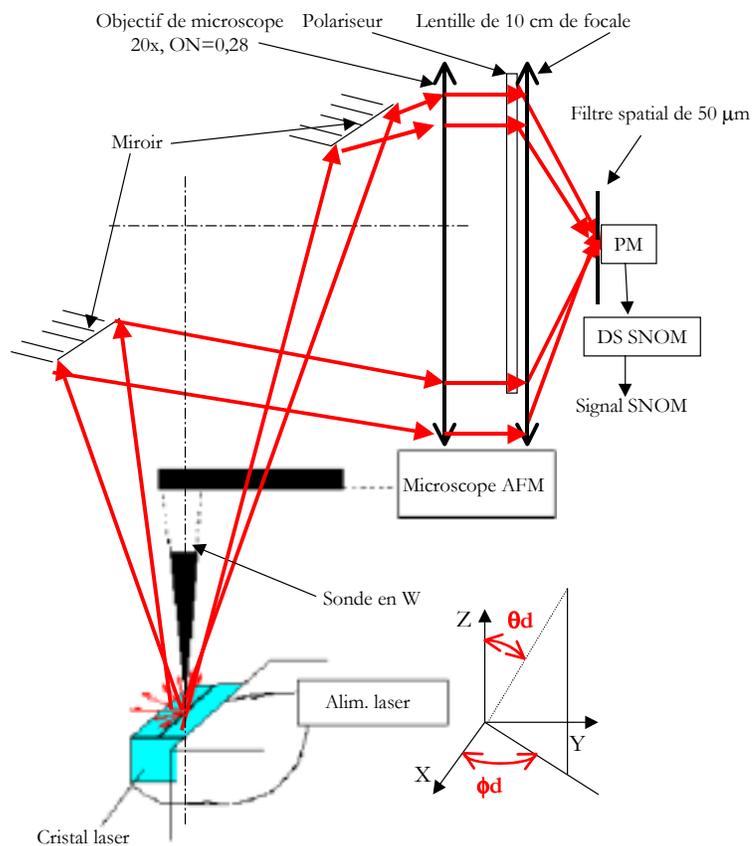


Figure 2(a) : Configuration expérimentale utilisée pour détecter l'interaction 'sonde –surface émettrice' dans l'axe principal de détection 'normale'.

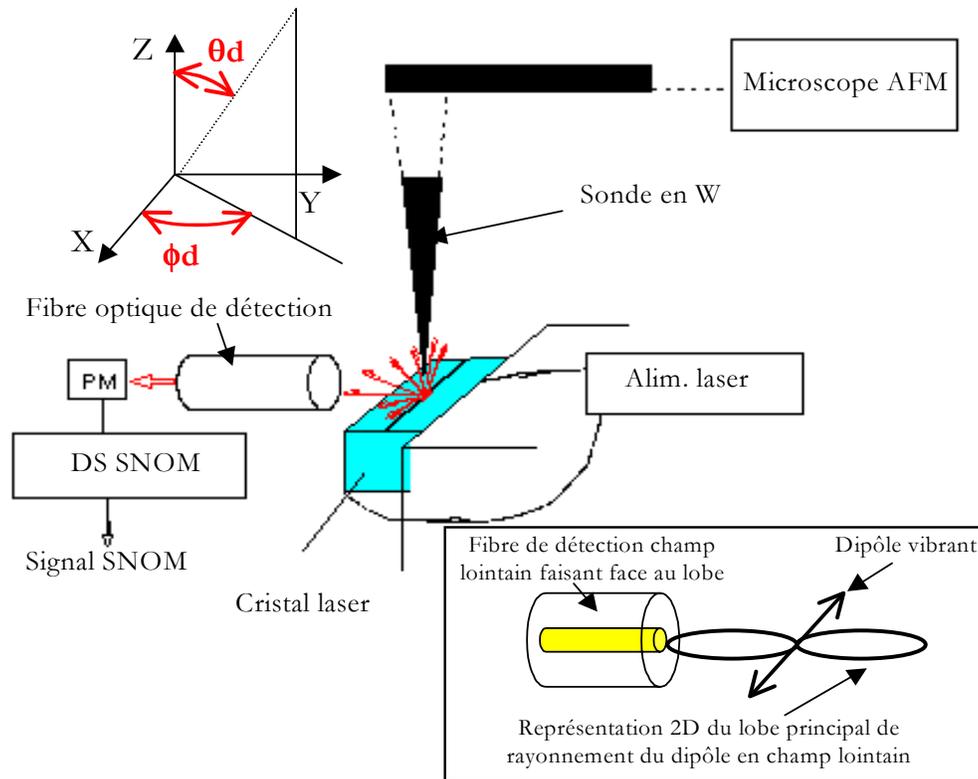


Figure 2(b) : Configuration expérimentale utilisée pour détecter l'interaction 'sonde – surface émettrice' dans le cas particulier d'une détection 'rasante' ($\theta_d = \pi/2$).

Encadré : Représentation 2D du lobe principal de rayonnement d'un dipôle vibrant. Conformément à la configuration décrite par la figure 2(b), la fibre de détection, placée en champ lointain, collecte ce rayonnement.

Nous ne présenterons dans ce chapitre que les résultats obtenus dans les configurations ayant montré des différences notables sur le contraste résultant dans l'image SNOM. Nous commencerons par étudier qualitativement l'influence de l'angle de détection, puis nous nous placerons dans les conditions de détection qui nous ont permis d'obtenir le meilleur rapport signal sur bruit pour étudier l'influence de la fréquence de démodulation synchrone et de l'amplitude de vibration de la sonde au cours du balayage sur le contenu de l'image SNOM. Nous définissons par le terme 'signal', la composante du champ modulé, à la fréquence f , par l'extrémité de la sonde, le bruit est donc constitué des composantes modulées à f par les autres parties de la sonde (corps de la pointe et levier) ainsi que le champ, n'ayant pas interagi avec la sonde et

collecté par l'objectif de microscope ou par la fibre, dont l'intensité diminue la dynamique du photodétecteur placé en champ lointain.

Nous présenterons, finalement, les images SNOM obtenues dans les conditions que nous avons définies comme optimales pour l'étude de ce composant (amplitude de vibration de la sonde, fréquence de démodulation synchrone et direction de détection champ lointain). Ces mesures, bien que préliminaires, nous ont permis de déterminer la fraction molaire d'aluminium contenue dans les couches de confinement (dans le cas de la diode fonctionnant en émission stimulée) et de discuter qualitativement le processus d'émission de la diode lorsque cette dernière fonctionne en émission spontanée.

Dans les paragraphes 3.2, 3.3 et 3.4 nous étudions l'influence de trois paramètres expérimentaux : les conditions de détection en champ lointain, l'amplitude de vibration de la sonde et la fréquence de démodulation synchrone. Un quatrième paramètre est important : la forme géométrique de la sonde. Ce paramètre a été discuté au chapitre II (c. f. figure 19) où nous avons justifié le choix des sondes effilées en W pour cette étude de diode laser.

3.2. Etude du contraste SNOM en fonction des conditions de détection en champ lointain.

Comme nous l'avons exposé au cours du paragraphe §D 3 du chapitre II, le choix de $[\theta_d, \phi_d, Pd]$ constitue une analyse du diagramme de rayonnement optique résultant de l'interaction *sonde – surface émettrice de lumière*. Ce choix peut ainsi être à l'origine du contraste observé dans l'image SNOM et représente à ce titre un paramètre expérimental d'importance. Nous avons étudié le contenu de l'image SNOM dans les conditions $\theta_d \in [0, \pi/2]$, $\phi_d \in [0, 2\pi]$ et $Pd \in [0, 2\pi]$. Nous avons ainsi clairement mis en évidence la sensibilité de ces paramètres à la mesure SNOM.

Dans ce paragraphe, nous présentons uniquement les images SNOM, obtenues dans les configurations particulières schématisées par les figures 2(a) et 2(b).

Les figures 3(a) et 3(c) représentent les images SNOM acquises simultanément (deux DS identiques sont utilisées dans ce cas) dans les conditions de détection décrites, respectivement, par les figures 2(a) et 2(b). La diode fonctionne en émission stimulée. L'amplitude de vibration de la sonde, au cours de la mesure, est de 150 nm et le signal SNOM représente l'amplitude R de la

composante sinusoïdale de fréquence f contenue dans le signal collecté en champ lointain par l'objectif de microscope (figures 2(a)) ou la fibre (figure 2(b)). Ces deux exemples illustrent les deux cas extrêmes de contraste observés dans les images SNOM.

Dans la figure 3(a), formée de trois zones claires qui s'étendent sur plusieurs dizaines de μm^2 de surface, l'amplitude R du signal recueilli par l'objectif de microscope contribue principalement au contraste dans l'image dans des régions où l'émission laser n'a pas lieu. Le signal modulé à la fréquence f proviendrait, dans ce cas, pour une grande partie, de la lumière émise par la diode et ayant interagi avec le corps et le levier de la sonde plutôt qu'avec son extrémité. Notons que nous avons déjà observé un effet similaire sur cet échantillon lors de l'utilisation de sondes commerciales en Si (voir figure 19(b) §C 4 du chapitre II). Trois remarques relatives au contenu de cette image peuvent être faites :

- dans cette configuration (figure 2(a)), malgré le filtrage spatial assuré par le diaphragme ($\sim 10 \mu\text{m}^3$), les contributions des champs modulés par les parties autres que l'extrémité de la sonde prédominent celles qui pourraient décrire les propriétés optiques en champ proche de la source laser (c. f. description schématique donnée par la figure 3(d)). La répartition de l'intensité dans l'image, et en particulier son extension spatiale, permet de conclure sur l'impossibilité d'étudier le diagramme de rayonnement relatif à l'interaction en champ proche *sonde – échantillon émetteur de lumière* à l'aide la configuration de la figure 2(a),
- l'origine champ lointain de ce contraste a été confirmée en faisant varier la distance moyenne sonde – échantillon de 110 nm à 3000 nm tout en maintenant l'amplitude de vibration de la sonde constante à 150 nm. En effet, la figure 3(b), obtenue dans ces conditions, ne montre pas de changement notable de la distribution de l'intensité par rapport à l'image figure 3(a) démontrant ainsi la faible sensibilité de ces informations avec la distance sonde – échantillon (c'est l'un des critères qui peut être retenu pour déterminer le poids des composantes champ proche dans une image SNOM [8]),
- de plus, aucun effet sur le contraste de l'image 3(a) n'a été observé en variant la direction d'analyse imposée au champ collecté par le polariseur (c. f. configuration

expérimentale figure 2(a)). Ceci pourrait également être révélateur de l'origine champ lointain du signal contenu dans l'image 3(a) dans la mesure où il résulte vraisemblablement de multiples diffusions sur les différentes parties de la sonde, faisant perdre ses caractéristiques premières à la source laser étudiée (source polarisée principalement suivant la couche active).

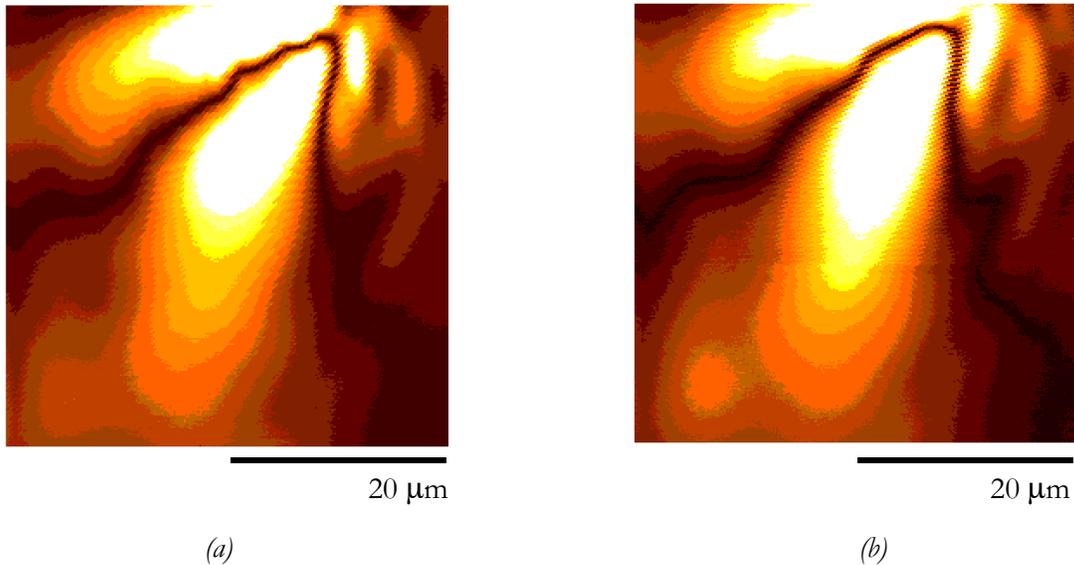


Figure 3 : Influence de l'angle de collection en champ lointain sur le contraste dans l'image optique de la diode fonctionnant en émission stimulée. La sonde est en W , la fréquence de démodulation synchrone est f .
 (a) *Contraste SNOM en 'détection normale'. La sonde interagit avec la surface de l'échantillon. Le champ modulé par le corps et le levier de la sonde contribue au contraste dans l'image.*
 (b) *Contraste 'SNOM' en détection normale. La sonde n'interagit pas avec la surface de l'échantillon (distance moyenne sonde – échantillon de $3 \mu\text{m}$. Un contraste similaire à (a) est observé.*

Lorsque nous détectons, à l'aide de la configuration 2(b), l'interaction *sonde – surface émettrice de lumière* selon un angle $\theta_d = \pi/2$ par l'intermédiaire de la fibre [compte tenu de l'ouverture numérique de la fibre, la zone de collection s'étend en réalité sur les cent premiers microns de la sonde], le motif observé dans l'image figure 3(a) disparaît pour laisser place à un contraste optique dont la surface est réduite à quelques μm^2 dans la figure 3(c). Les contributions du champ modulé par le corps et le levier de la sonde semblent, dans ce cas, avoir été fortement atténuées pour favoriser exclusivement l'expression du champ ayant interagi avec l'extrémité de la sonde. Nous

verrons dans la suite de cette partie que ce contraste n'est pas vierge de toute composante du champ modulé par le corps de la pointe et que des paramètres expérimentaux, tels que l'amplitude de vibration de la sonde et la fréquence de démodulation synchrone (f ou $2f$), permettent également de diminuer la contribution de ces composantes champ lointain au contraste dans l'image SNOM.

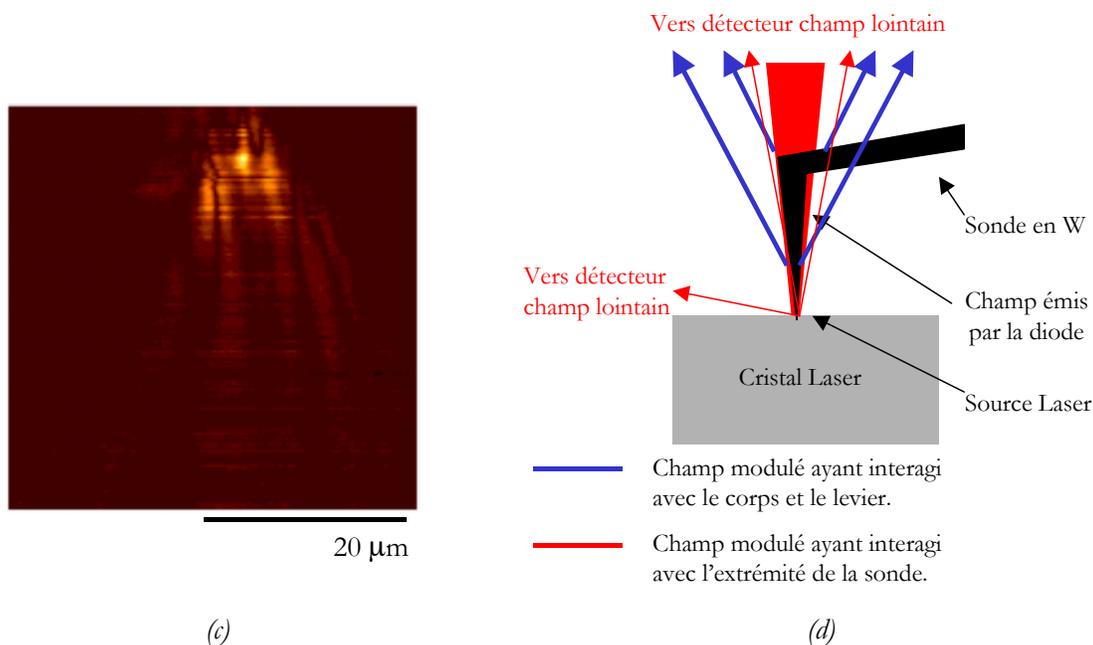


Figure 3 : Influence de l'angle de collection en champ lointain sur le contraste dans l'image optique. La sonde est en W, la fréquence de démodulation synchrone est f .

(c) Contraste SNOM en détection rasante. Les contributions du corps et du levier sur le contraste ont été nettement diminuées.

(d) Description schématique de la sonde imageant la source laser. La géométrie du système favorise les diffusions parasites vers le détecteur champ lointain qui collecte le champ modulé en normal ; cette direction correspondant à la direction de propagation champ lointain du mode émis par la diode.

Il est toutefois important de noter que pour un angle $\theta_d = \pi/2$ fixé, le contraste résultant dans l'image SNOM dépend également de l'angle ϕ_d suivant lequel l'interaction sonde – échantillon est détectée en champ lointain. En effet, dans la configuration où la fibre est positionnée perpendiculairement à la couche active ($\theta_d = \pi/2$, $\phi_d = -\pi/2$, c. f. figure 2(b)), l'amplitude de la composante sinusoïdale de fréquence f ou $2f$ du signal collecté par la fibre présente un maximum

comparée aux angles de collection ($\theta_d = \pi/2$, $-\pi/2 < \phi_d \leq 0$). Il nous est, pour le moment, difficile de quantifier précisément l'influence de ϕ_d sur ce contraste, et en particulier son influence sur les informations contenues dans l'image SNOM, plusieurs paramètres expérimentaux délicats à maîtriser intervenant lors de telles expériences (en particulier la forme du corps de la pointe et son rayon terminal). Il est néanmoins possible de rendre compte de ce phénomène en faisant une interprétation qualitative de la sensibilité de la mesure SNOM à la polarisation du champ auquel la sonde est soumise au cours de l'interaction *sonde - surface*. Elle se base sur l'orientation respective des dipôles émetteurs de la surface de la diode et des dipôles, induits par ce rayonnement, qui forment l'extrémité de la sonde. En effet, si nous supposons que les dipôles qui constituent la surface de l'échantillon retranscrivent le champ émis par la diode (intensité et polarisation de ce champ) et si on suppose également que l'émission des dipôles de la sonde retranscrit ce champ, alors le diagramme de rayonnement résultant de l'interaction *sonde - échantillon* aurait un lobe principal de rayonnement orienté dans la direction de la fibre lorsque celle-ci est positionnée perpendiculairement aux couches qui forment l'hétéro-jonction ($\theta_d = \pi/2$, $\phi_d = -\pi/2$, c. f. encadré figure 2(b)). Ainsi, la sonde se comporterait comme un 'nanodétecteur', émettant en champ lointain les propriétés locales du champ auquel elle est soumise et permettrait, ainsi, une analyse en polarisation du champ proche de l'échantillon en fonction de la direction de collection choisie en champ lointain [9]. Ceci n'est, cependant, pas forcément synonyme d'une quelconque sensibilité de notre mesure aux ondes évanescentes générées à la surface du cristal laser. En effet, si nous tenons compte du diagramme de rayonnement d'un dipôle, tel qu'il a été établi au § 2.3 du chapitre I de ce manuscrit, nous remarquons que la détection des ondes évanescentes serait, a priori, moins perturbée par l'existence d'un champ de nature progressive dans la direction de vibration du dipôle, direction suivant laquelle elles seules sont susceptibles de contribuer à l'émission résultante de l'interaction *sonde - échantillon*. L'importance du comportement de la sonde vis à vis d'une telle source nous apparaît dès lors comme étant capitale dans la compréhension du mécanisme de 'détection' du champ proche par une sonde diffusante. Ce sujet, est encore à l'heure actuelle, au cœur de nos projets.

En conclusion, les conditions de détection que nous avons retenues pour la suite de l'étude sont les suivantes : utilisation d'une fibre optique dont l'axe est placé perpendiculairement à la couche active en détection rasante (configuration présentée par la figure 2(b)).

3.3. Effet de l'amplitude de vibration de la sonde sur le contenu de l'image SNOM.

La composante du champ électromagnétique diffractée lors de l'interaction *sonde – surface* est modulée à la fréquence de vibration de la sonde. Elle est ainsi extraite de la totalité du champ émis par la diode et collectée par la fibre. Cette technique, propre à la majorité des SNOMs utilisant des sondes diffusantes, a été décrite § D 3 du chapitre II. Nous avons conclu ce paragraphe en évoquant les conditions qu'il nous semblait indispensables de respecter pour obtenir des informations optiques provenant du champ proche de l'échantillon. Une amplitude de vibration appropriée de la sonde est l'une de ces conditions. Intuitivement, une diminution de l'amplitude de vibration devrait permettre d'augmenter le rapport signal sur bruit, dans la mesure où l'extrémité de cette dernière resterait dans le champ proche optique de la surface pendant un temps non négligeable par rapport à la période d'oscillation de la sonde. Mais ce raisonnement n'est pas forcément valable pour tous les échantillons et doit dépendre et de la cartographie du champ diffracté par la surface et des caractéristiques de ce champ qui veulent être mises en évidence. Le lecteur pourra trouver en référence [10] un exemple d'étude portant sur la dépendance du champ diffusé par la sonde, collecté en champ lointain et démodulé par détection synchrone, en fonction de l'amplitude de vibration de la sonde dans la caractérisation de la longueur de décroissance d'une onde évanescente de Fresnel à la surface (supposée parfaite) d'un prisme. Les auteurs concluent, en estimant, par une analyse numérique du signal délivré en sortie de détection synchrone SNOM, une amplitude de vibration optimale à cette étude égale à $\sim 0,77.d_p$ (dans le cas précis où le champ est modulé par une sonde ayant un mouvement de vibration verticale sinusoïdal) ; d_p étant la profondeur de pénétration de l'onde de Fresnel obtenue par réflexion totale à l'interface prisme / air.

L'objet de ce paragraphe est de montrer, qu'en effet, une diminution de l'amplitude de vibration de la sonde permet de diminuer l'intensité totale du champ modulé par le corps de la sonde comparée à celle qui provient de l'extrémité de la sonde en interaction avec la surface. La quantification d'une amplitude de vibration optimale reste cependant difficile, et ceci, essentiellement pour deux raisons :

- les caractéristiques du mode émis en champ proche par la diode ne sont pas connues,

- la sensibilité de la chaîne de détection est finie, la taille de la sonde ainsi que les performances des détecteurs champ lointain étant finies.

Nous avons, néanmoins, pu déterminer expérimentalement une amplitude de vibration qui nous permettait de mettre au mieux en valeur les propriétés optiques en champ proche du cristal laser en émission.

Les images que nous présentons ont été effectuées alors que la diode fonctionnait en émission stimulée (courant d'injection : $I_0 = 45,5$ mA). L'interaction *sonde - surface émettrice* est détectée en champ lointain par une fibre optique en détection rasante orientée perpendiculairement à la couche active (configuration décrite par la figure 2(b)). L'image SNOM représente l'amplitude R de la composante sinusoïdale de fréquence f contenue dans le signal optique collecté par la fibre. L'effet de l'amplitude de vibration de la sonde sur le contenu de l'image SNOM a été analysé dans la gamme [20 nm, 400 nm]. Alors que les caractéristiques de l'image SNOM sont fortement modifiées lorsqu'on fait varier l'amplitude de vibration dans la plage [400 nm à 200 nm], nous avons noté que l'emploi d'amplitudes de vibration dans la gamme [200 nm, 50 nm] n'avait d'effet que sur le contraste déjà existant dans l'image. La figure 4 montre cet effet. Les figures 4(a) et 4(b) présentent les images SNOM obtenues pour des amplitudes de vibration de la sonde respectivement égales à 400 nm et 120 nm. Ces images, représentatives du phénomène que nous désirons mettre en évidence, illustrent une augmentation du confinement spatial du contraste SNOM induit par la diminution de l'amplitude de vibration. L'image 4(b) présente un contraste optique défini dans une région dont la surface n'excède pas quelques μm^2 . A l'opposé, dans l'image obtenue avec une amplitude de vibration de 400 nm on observe clairement un contraste optique dans des régions autres que la zone d'émission du cristal laser. En particulier, des 'traînées' apparaissent dans les directions perpendiculaires et parallèles à la couche active. Ces 'traînées' correspondent à un signal optique modulé par le corps de la pointe éclairé par la source laser au cours du balayage. Leur distribution spatiale peut être expliquée par la configuration expérimentale utilisée pour détecter le signal optique diffusé en champ lointain (c. f. figure 5). En effet, elles sont dues à la lumière diffusée par le corps de la pointe (lorsque cette dernière se trouve dans la position 1), en direction de la fibre de collection champ lointain, alors que l'extrémité de la sonde n'interagit pas encore avec la zone active de taille micrométrique. Lorsque la pointe est dans la position 2 de la figure 5, la fibre ne détecte que la lumière rétrodiffusée par le

corps de la pointe, ce qui explique la faible intensité des traînées dans les travées à droite de l'image dans la figure 4(a).

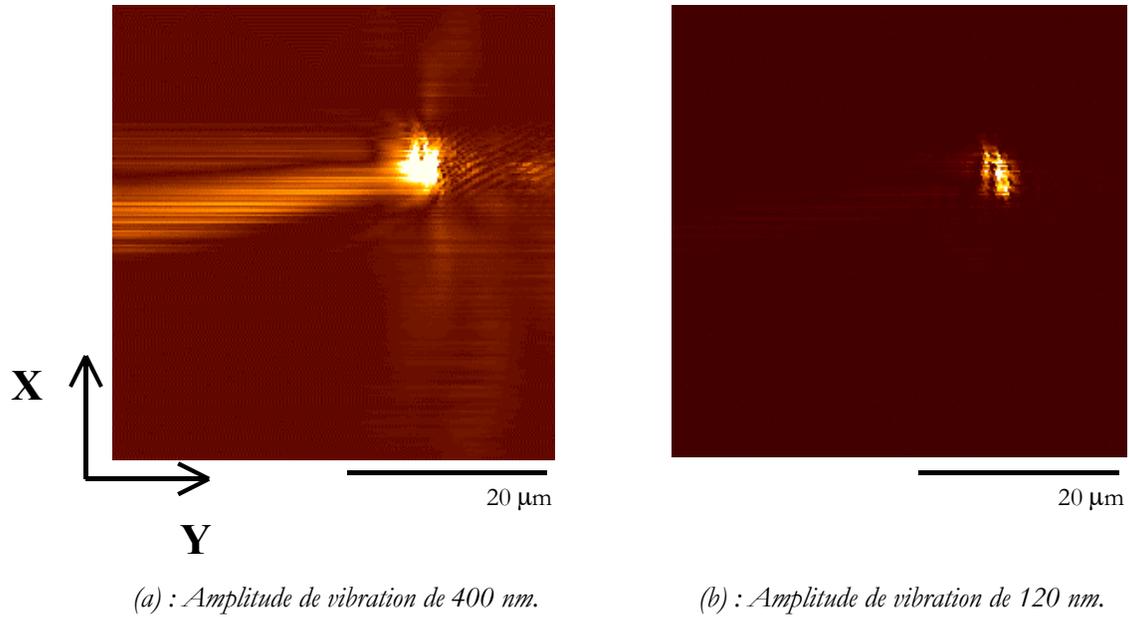


Figure 4 : Diode fonctionnant en émission stimulée ($I_0 = 45,5 \text{ mA}$). Mise en évidence de l'influence de l'amplitude de vibration de la sonde sur le contraste dans l'image SNOM.

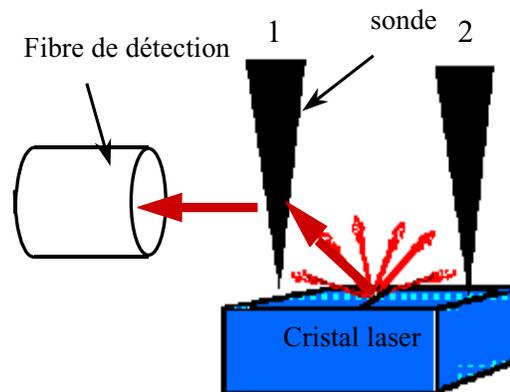


Figure 5 : Dissymétrie du contraste dans l'image 3(a) causée par la dissymétrie de la détection champ lointain. Dans la position 1, la diffusion vers l'avant de la sonde au cours de l'imagerie provoque un signal modulé, collecté en champ lointain par la fibre alors que l'extrémité de la sonde n'interagit pas avec la source laser. Ce phénomène explique la 'travée' à gauche de la source dans l'image 4(a).

Cet effet de diffusion par le corps de la pointe a une origine champ lointain indésirable dans l'étude qui nous intéresse. La diminution de l'amplitude de vibration de la sonde permet, ainsi, d'agir comme un filtre spatial vis à vis de ces contributions sans pour autant nuire au contraste optique en champ proche lui-même, celui-ci restant inchangé dans la gamme d'amplitude de vibration comprise entre 50 nm et 120 nm. Cependant, une baisse trop brutale de l'amplitude de vibration de la sonde peut également être la cause d'une résolution artificielle dans l'image SNOM, induite par la limite de sensibilité du système de détection champ lointain. En effet, si l'amplitude de la composante sinusoïdale de fréquence f contenue dans le signal diffusé est inférieure au seuil de détection, le confinement résultant dans l'image SNOM pourrait être faussement interprété comme un gain du rapport signal sur bruit. Cette situation pourrait se présenter dans le cas où le rayon terminal de la sonde est grand devant les variations spatiales du champ diffracté par la surface. En effet, si cette variation spatiale (perpendiculairement à la surface, en particulier, mais également dans un plan parallèle à la surface) est faible devant la taille de la sonde et/ou devant son amplitude de vibration, l'amplitude du signal optique diffracté par l'extrémité de la sonde en champ lointain tendrait alors vers zéro.

Comme nous l'avons montré expérimentalement dans ce paragraphe, une baisse de l'amplitude de vibration de la sonde nous permet de diminuer la contribution, dans l'image SNOM, du champ modulé par le corps de la sonde et ainsi favoriser le champ modulé par l'extrémité de la pointe. Une décomposition du champ émis par la diode en un champ de variation perpendiculaire à la surface lente ('champ lointain') et d'un champ dont la gradient est plus important ('champ proche' de la surface) pourrait expliquer cette non linéarité de la variation du contraste optique dans l'image SNOM avec l'amplitude de vibration de la sonde. Dans ce cas, une chute de l'amplitude de vibration induirait une chute notable de l'intensité du champ lointain tout en affectant que peu, celle liée au champ proche de l'échantillon, démontrant ainsi également l'origine champ proche du contraste présenté par l'image 4(b). Cette non linéarité peut également trouver sa justification dans l'étude présentée dans le paragraphe suivant qui concerne l'évolution de ce contraste en fonction de la fréquence de démodulation du signal optique collecté en champ lointain.

Une amplitude de vibration d'environ 120 nm a donc été retenue pour cette étude.

3.4. Effet de la fréquence de démodulation synchrone sur le contenu de l'image SNOM.

Le signal optique modulé à la fréquence f par la sonde, en un point (x, y) de la surface de l'échantillon, est porteur de l'information concernant les variations de l'amplitude du champ qu'elle diffuse lors de son interaction avec l'échantillon. Ainsi, pour une amplitude donnée de vibration de la sonde (supposée sinusoïdale par exemple), le champ proche de la surface, 'vu' par la sonde dans son excursion verticale, apparaîtra, dans ce signal de fréquence f , comme la somme de signaux sinusoïdaux dont la fréquence f , $2f$, ou $3f$...et l'amplitude $A(f)$, $A(2f)$, ou $A(3f)$ sont caractéristiques de sa distribution spatiale sur le trajet parcouru par la sonde. L'analyse fréquentielle du signal modulé par la sonde semble donc être un moyen qui pourrait être efficace dans la caractérisation du champ électrique diffracté au voisinage d'une surface.

Dans ce paragraphe, nous montrons l'influence de la fréquence de démodulation synchrone du signal optique modulé par la sonde sur le contraste dans l'image SNOM. Nous donnerons, également, une interprétation qualitative susceptible d'expliquer cette influence. Un modèle élémentaire nous permettra de justifier cette interprétation.

Les figures 6(a) et 6(b) montrent les images SNOM obtenues en enregistrant l'amplitude des composantes sinusoïdales de fréquence f (figure 6(a)) et $2f$ (figure 6(b)) contenues dans le signal diffusé lors de l'interaction *sonde – surface émettrice* dans la configuration expérimentale décrite par la figure 2(b) ; f étant la fréquence de vibration de la pointe. Ces images ont été obtenues alors que la diode laser fonctionnait en émission spontanée (courant d'injection : $I_0 = 20$ mA). L'amplitude de vibration de la sonde a été choisie égale à 120 nm conformément aux conclusions faites au paragraphe précédent. La différence des contrastes optiques révélés par ces images est similaire à celle observée dans les images figure 4(a) et 4(b) présentées au paragraphe précédent et des conclusions analogues s'imposent. En conséquence, l'amplitude de la composante sinusoïdale de fréquence $2f$ semble plus à même que la composante à la fréquence de vibration de la sonde, à retranscrire la distribution optique du mode émis en champ proche par la diode laser en fonctionnement.

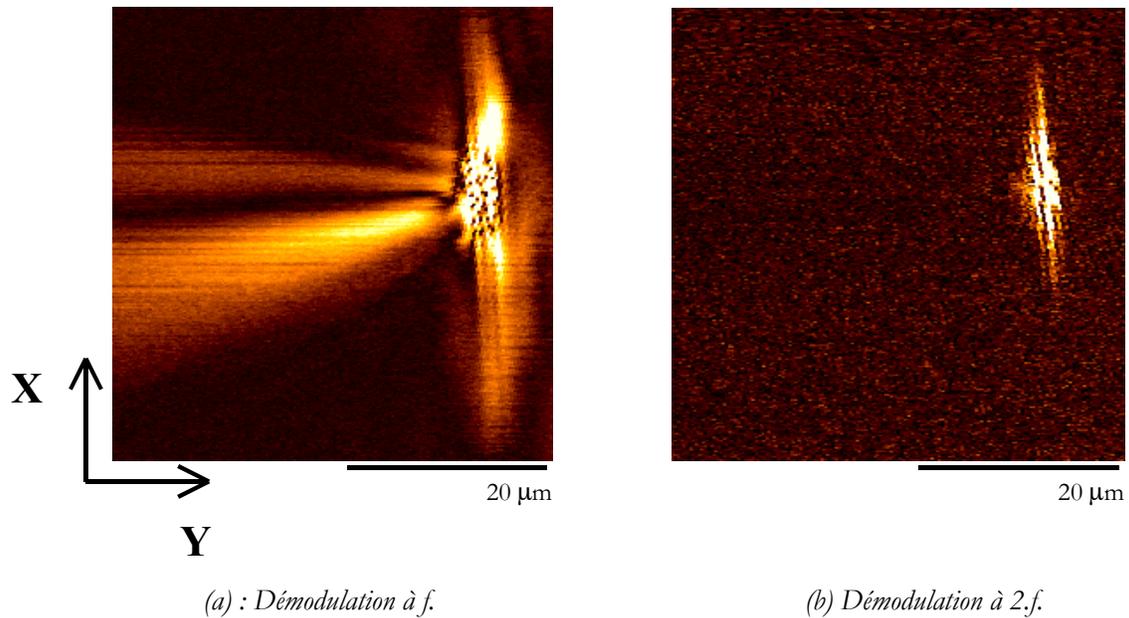


Figure 6 : Influence de la fréquence de démodulation synchrone sur le contenu de l'image SNOM. La fréquence de vibration de la sonde est f . La diode laser fonctionne en émission spontanée ($I_0 = 20 \text{ mA}$)

Nous pouvons donner une interprétation qualitative à cette sensibilité de la détection aux harmoniques de la fréquence de vibration de la pointe :

Soit z la position, selon la verticale, de la sonde en tungstène exprimée par une fonction sinusoïdale du temps (et conséquemment de l'espace). Elle diffuse simultanément les composantes progressives et évanescentes de ce champ au cours de chacune de ces oscillations sinusoïdales. Les composantes progressives de décroissance verticale lente (décroissance des ondes sphériques en $\sim 1/z$ suivant oz c. f. figure 7) génèrent principalement un signal modulé à la fréquence f . Lorsque nous effectuons une détection synchrone à la fréquence f , ce terme domine et détermine le contraste dans l'image SNOM (c. f. figure 6(a)). Les composantes du champ qui nous intéressent, c'est à dire celles issues de la diffraction par la couche active (épaisseur $\sim 200 \text{ nm}$) et les ondes évanescentes générées par diffraction par les hautes fréquences spatiales de la surface du cristal (c. f. chapitre I) du champ émis par la diode, ont un fort gradient vertical. Ce fort gradient vertical, comparé à l'amplitude de vibration de la sonde ($\sim 100 \text{ nm}$), donnerait ainsi naissance à des harmoniques, d'ordre deux et plus, dans le signal optique diffusé en champ lointain. Ce raisonnement qualitatif pourrait expliquer la sensibilité d'une détection aux

harmoniques de la fréquence de vibration de la sonde au champ qu'elle diffuse lorsque son extrémité est proche de la surface de la diode en émission.

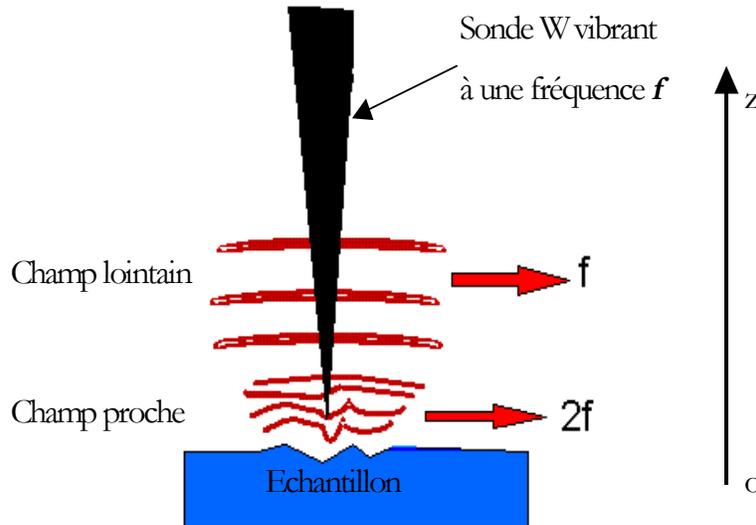


Figure 7 : Sonde en vibration dans un champ composé d'un terme variant peu verticalement (champ lointain) et d'un terme de variation spatiale rapide (champ proche).

Afin de montrer l'efficacité d'une détection synchrone effectuée à $2f$ dans l'extraction de la composante champ proche du signal collecté par la fibre, nous avons analysé l'allure temporelle, par simulation numérique, du signal optique diffusé en champ lointain lorsque la sonde est immergée dans les composantes radiatives et évanescentes du champ qui pourrait être émis par la diode. Ce travail a été effectué lors d'un stage DEA et peut être consulté dans son intégralité en référence [11]. Cette simulation n'a pas la prétention de décrire le champ résultant de l'interaction *sonde – champ émis par la diode – surface du cristal laser*, ce travail pouvant, à lui seul, faire l'objet de plusieurs travaux de thèse ! Malgré tout, des considérations simples nous ont permis de retrouver le comportement expérimental révélé par les figures 6.

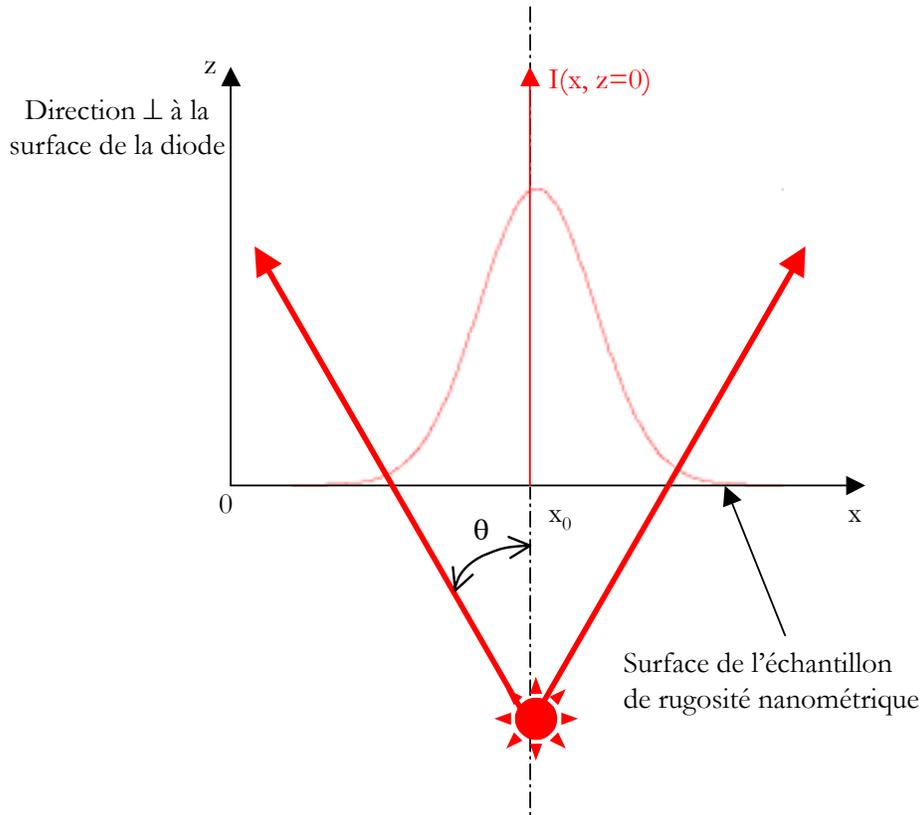


Figure 8 : Description schématique de la géométrie du système étudié.

La figure 8 schématise le système étudié. On suppose ici que la surface est homogène chimiquement et présente une rugosité sinusoidale de pas $\ll \lambda$. Ceci génère une onde évanescente de profondeur de pénétration de l'ordre du nm lorsque la surface est éclairée en transmission par une source de nature progressive de faible divergence. La distribution latérale de son intensité suit un profil gaussien donné par la relation suivante :

$$I(z, x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \cdot e^{-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma^2}}$$

où : - $I(z, x)$ représente l'intensité du champ au point de coordonnées (z, x) ,

$$- \sigma(z) = \frac{r_c + z \cdot \text{tg}(\theta)}{\sqrt{2 \cdot \ln(1/p)}}$$

- r_c représente le rayon du faisceau incident en $z=0$ (sur la surface) ;
 $r_c = x_0 - x(2\sigma_0 \cdot I_{(x_0, z=0)})$,
- p représente le rapport $I(r_c, 0)/I(x_0, 0)$ qui permet d'ajuster l'écart type de la distribution,
- θ représente le demi - angle de divergence du faisceau.

La divergence du faisceau incident assure une variation verticale en $\sim 1/z$ de son intensité. Son interaction avec le réseau sinusoïdal de pas $\ll \lambda$ génère une onde évanescente dont l'intensité, supposons le, se superpose en chaque point de manière cohérente (i. e. on suppose que les champs interfèrent) à l'intensité du faisceau incident. L'intensité de l'onde évanescente créée au point d'abscisse x s'exprime de la manière suivante :

$$I_e(z) = I_0(x) \cdot e^{-\frac{z}{d_p}}$$

où - $I_0(x)$ est l'intensité du faisceau incident dans le plan moyen $z = 0$ de la surface de l'échantillon. $I_0(x)$ prend la forme gaussienne suivante :

$$I_0(x) = \frac{1}{\sigma_0 \cdot \sqrt{2\pi}} \cdot e^{-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma_0^2}}$$

- z est une variable spatiale (c. f. figure 7),
- d_p est la profondeur de pénétration de l'onde évanescente dépendant de la fréquence spatiale responsable de sa génération [12] (prenons $d_p=1$ nm dans notre cas).

La sonde est supposée être un détecteur ponctuel qui retranscrit fidèlement l'intensité du champ en chaque point de sa trajectoire verticale (suivant la direction z dans la figure 8). L'équation horaire de sa trajectoire a la forme suivante :

$$z(t) = B + A \cdot \cos(\omega \cdot t)$$

- où :
- B représente la distance moyenne sonde – surface $B \in [100 \text{ nm}, 1000 \text{ nm}]$,
 - A représente l'amplitude de vibration de la sonde ; $A=100 \text{ nm}$ (la boucle de l'asservissement est opérationnelle dans le cas où $B=A=100 \text{ nm}$),
 - $\omega.t \in [0, 2\pi]$; où $\omega=2.\pi.f$, f étant la fréquence de vibration de la sonde.

La représentation du trajet de la pointe sous forme d'une suite de positions discrètes est la première étape de la simulation. Regarder l'intensité $i(z)$ que 'voit' la sonde en chacune de ces discrétisations est la seconde étape de la simulation. Une transformée de Fourier de ce signal, calculée pour le couple de valeur ($x=\text{constante}=x_0$, $z(t)$) nous permet de déterminer le poids respectif des différentes harmoniques contenues dans le signal $i(z)$. Nous nous sommes intéressés à l'amplitude des composantes de fréquences f et $2.f$ contenues dans $i(z)$. Une comparaison de ces résultats avec le même calcul effectué en annulant la contribution des ondes évanescentes à l'intensité totale du champ nous permet de conclure sur l'effet des ondes évanescentes sur la forme de $i(z)$. Le tableau suivant donne les résultats des calculs pour une amplitude de vibration de la sonde $A = 100 \text{ nm}$ et pour une distance moyenne *sonde – échantillon* B variant entre 100 nm et 1 μm . Sont notés 'L' les cas où le rapport des intensités $i_{\text{homogène}}(z)$ et $i_{\text{inhomogène}}(z)$ (des composantes de fréquence f ou $2.f$) calculées, respectivement, en l'absence d'une composante évanescente dans l'intensité totale du champ i. e. en absence de $I_e(z)$ ($i_{\text{homogène}}(z)$) et en présence de $I_e(z)$ ($i_{\text{inhomogène}}(z)$) dans l'intensité du champ, est supérieur à 0,9. Sont notés 'P' les cas où $\frac{i_{\text{homogène}}}{i_{\text{inhomogène}}} < 0,1$, et sont notés 'L/P' les cas intermédiaires : $0,1 < \frac{i_{\text{homogène}}}{i_{\text{inhomogène}}} < 0,9$.

B (μm)	f	$2.f$
1	L	L
0,500	L	L
0,200	L	L
0,120	L	L
0,105	L	L/P
0,102	L/P	P
0,101	L/P	P
0,100	P	P

Trois remarques importantes peuvent être faites sur les données présentées dans ce tableau :

- 1/ La contribution évanescente du champ est clairement mise en évidence dans les composantes de fréquences f et $2f$ du signal modulé par le détecteur lorsque $A = B$ et ceci malgré une amplitude de modulation (100 nm) bien plus importante que la profondeur de pénétration de l'onde évanescente (1 nm).
- 2/ Le fait que le champ évanescent ait une intensité qui soit perturbée par la composante progressive du champ ne semble pas empêcher sa détection. La modulation semblerait, en conséquence, être sensible à une variation du champ, cette dernière étant bien plus prononcée pour une décroissance exponentielle.
- 3/ Lorsque B augmente (éloignement de la sonde de la surface) la sensibilité de la composante de fréquence f au champ évanescent chute rapidement contrairement à celle de fréquence $2f$ qui y reste sensible jusqu'à une distance *sonde – échantillon* cinq fois égale à la profondeur de pénétration de l'onde.

Bien entendu, ce calcul effectué sur la base d'hypothèses élémentaires, n'a pas vocation à refléter, même grossièrement, la réalité physique de la mesure SNOM. Cependant, la comparaison des effets respectifs des termes progressifs et évanescents sur les composantes du signal modulé sinusoidalement à une fréquence f permet de montrer, qualitativement, l'effet observé expérimentalement i. e. la sensibilité champ proche d'une détection effectuée à $2f$.

Notons que l'influence de l'amplitude de vibration de la sonde ainsi que l'influence de la fréquence de démodulation synchrone sur le signal SNOM ont été mises en évidence théoriquement par P.M. Adam et al. [13]. Les auteurs y constatent également une sensibilité importante des harmoniques de la fréquence de modulation sur la présence d'informations champ proche dans l'image SNOM.

3.5. Etude SNOM de la diode laser en fonctionnement.

Les études que nous présentons ici nous ont permis de décrire, en champ proche, la distribution de l'intensité du champ émis par la diode en émission spontanée et en émission stimulée. Nous montrons, en particulier, que lorsque la diode fonctionne en émission stimulée, la mesure SNOM nous permet de caractériser le mode émis par la diode et ainsi de déterminer la composition

chimique des couches de confinement ($\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$). Les mesures SNOM effectuées en émission spontanée nous ont, quant à elles, donné des informations relatives au contraste diélectrique de la surface du cristal laser.

La configuration expérimentale choisie pour cette étude tient compte des conclusions faites dans les paragraphes précédents : *l'amplitude d'oscillation de la sonde est maintenue constante à 120 nm au cours de l'imagerie, la collection en champ lointain est assurée en détection rasante par une fibre optique orientée perpendiculairement à la couche active (c. f. figure 2(b)) et le signal SNOM représente l'amplitude de la seconde harmonique (à $2f$; f étant la fréquence de vibration de la sonde) du signal optique diffusé en champ proche lors de l'interaction sonde - surface émettrice.*

3.5.1. Diode laser fonctionnant en émission stimulée.

La figure 9 nous montre l'image SNOM obtenue en émission stimulée ($I_0=45,5$ mA).

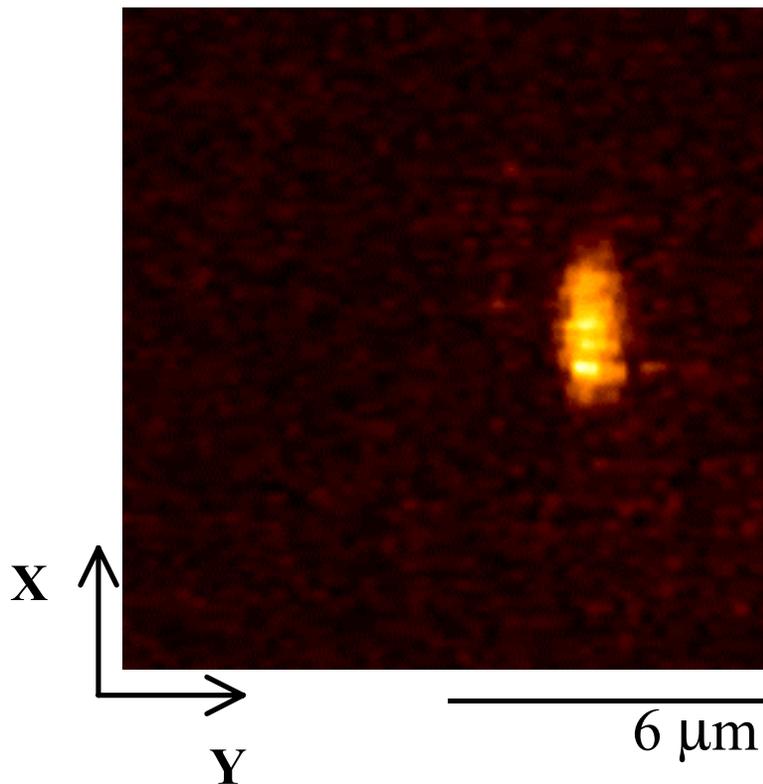


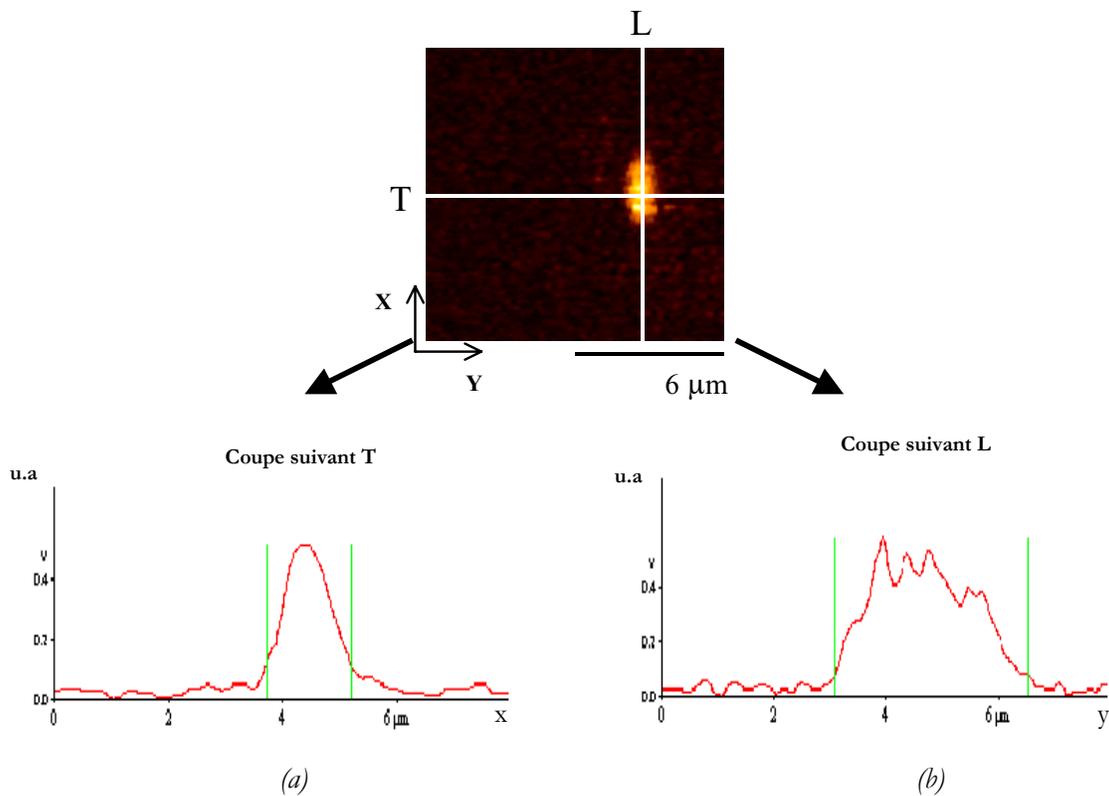
Figure 9 : Image SNOM, faite à la surface du cristal laser, du mode émis par la diode laser en émission stimulée.

Nous proposons deux hypothèses susceptibles d'expliquer ce contraste. La première est de considérer que l'image SNOM coïncide en termes géométriques et dimensionnels avec celles de la zone active de la diode i. e. rectangulaire de dimensions $3,5 \mu\text{m} \times 0,2 \mu\text{m}$. Dans ce cas, cette ouverture optique rectangulaire agirait comme la source. Une seconde hypothèse consisterait à supposer que la source réelle est placée à une distance plus grande de la surface de sortie de la diode laser (la figure 8 pourrait illustrer cette image) et que la lumière émise serait dans un premier temps guidée dans la couche active avant d'être finalement diffractée par l'ouverture rectangulaire (épaisseur de la couche active de 200 nm, longueur d'onde émise de 780 nm). Dans ce cas, si nous considérons que le guide optique (constitué par la zone active et des couches de confinement qui jouent le rôle de gaine optique) n'est pas 'parfait' (le facteur de confinement Γ est inférieur à 1. Γ définit la fraction de l'onde guidée dans la couche active : Γ vaut 1 pour un guide massif [5]), l'image de la source juste en sortie de guide serait alors de forme ovale avec les dimensions du mode.

La figure 9 présente un contraste unique ressemblant au mode unique généré par la diode et dont la forme pourrait être expliquée par la seconde hypothèse que nous avons faite. En effet, la distribution de l'intensité apparaît de forme ovale ($\sim 3,7 \mu\text{m} \times 1,5 \mu\text{m}$) masquant ainsi complètement la géométrie de la zone active (rectangulaire). Les figures 10(a) et 10(b) montrent que le contraste observé dans l'image 8 est en bon accord avec des considérations théoriques et les données constructeur.

En effet, les coupes, représentées par les figures 10(b) et 10(a), révèlent la largeur du mode, mesurée à I_{max}/e^2 , de $3,7 \times 1,5 \mu\text{m}^2$ ($d_x \times d_y$) suivant les directions x et y respectivement. Les courbes théoriques présentées par la figure 11 permettent d'évaluer le facteur de confinement du guide ainsi que la composition chimique associée des couches de confinement dans le cas où la couche active est en GaAs et a une épaisseur de 200 nm [6]. Si nous supposons être dans ce cas (la diode aurait alors une longueur d'onde d'émission $\lambda=870$ nm), une comparaison des dimensions du mode que nous mesurons, avec ces courbes théoriques (c. f. figure 11) nous donnerait un facteur de confinement transverse Γ_y (relatif à l'extension latérale du mode suivant la direction y) de 0,4 et une fraction molaire d'aluminium dans les couches de confinement $x=0,15$. Comme la couche active de notre diode contient également une certaine fraction d'aluminium ($y=0,15$ pour $\lambda=780\text{nm}$) cette valeur de 0,15 représente, en fait, la différence entre la fraction molaire d'aluminium contenue dans la couche active et celle contenue dans les couches

de confinement. En effet, sachant que la largeur de la bande interdite ainsi que l'indice de réfraction d'un alliage du type $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ varient linéairement dans la plage $x \in]0, 0.37[$, le confinement optique dans la couche active est inchangé si la différence $\Delta = x - y$ reste constante [6]. En conséquence, les structures $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}/\text{Ga}_{1-y}\text{Al}_y\text{As}/\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ et $\text{Ga}_{1-\Delta}\text{Al}_\Delta\text{As}/\text{GaAl}/\text{Ga}_{1-\Delta}\text{Al}_\Delta\text{As}$ imposeraient un facteur de confinement identique. **Dans notre cas, nos mesures nous permettent de définir la composition suivante de la double hétéro-jonction étudiée : $\text{Ga}_{0,7}\text{Al}_{0,3}\text{As}/\text{Ga}_{0,85}\text{Al}_{0,15}\text{As}/\text{Ga}_{0,7}\text{Al}_{0,3}\text{As}$.**



*Figure 10 : (a) Profil de l'intensité du mode émis par la diode ($I_0=45,5 \text{ mA}$) suivant la coupe T (direction y sur la figure 1(b)) montrant une largeur à I_{max}/e^2 égale à $1,5 \mu\text{m}$.
(b) Profil de l'intensité du mode émis par la diode ($I_0=45,5 \text{ mA}$) suivant la coupe L (direction x sur la figure 1(b)) montrant une largeur à I_{max}/e^2 égale à $3,7 \mu\text{m}$.*

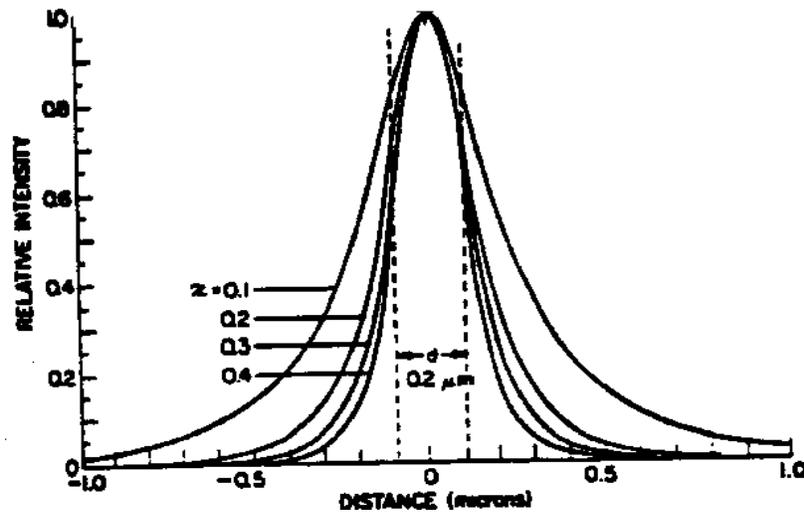


Figure 11 : Profil de l'intensité du mode pour une couche active composée de GaAs en fonction de la fraction molaire x d'aluminium dans les couches de confinement. Courbes tirées de 'Heterostructures lasers', H.C. Casey & M.B. Panish, Academic-Press-1978.

On évalue habituellement la taille du mode émis en champ proche à l'aide de méthodes numériques basées sur la transformée de Fourier inverse de la distribution de l'intensité mesurée en champ lointain. Ceci permet de déterminer la taille (d_x , d_y) du mode émis en champ proche en mesurant les angles de diffraction $\phi_{//}$ et ϕ_{\perp} par les expressions : $d_x = \lambda / \phi_{//}$, $d_y = \lambda / \phi_{\perp}$; λ étant la longueur d'onde émise par la diode. Dans notre cas, l'utilisation des valeurs expérimentales de d_x et d_y nous permet de calculer les angles de diffraction en champ lointain suivants : $\phi_{//} = 12^\circ$ et $\phi_{\perp} = 30^\circ$. Ces valeurs sont proches de celles qui nous ont été données par le constructeur, i. e. $11^\circ \times 35^\circ$.

3.5.2. Diode laser fonctionnant en émission spontanée.

La figure 12(a) montre le contraste optique obtenu lorsque la diode fonctionne en émission spontanée ($I_0 = 20$ mA).

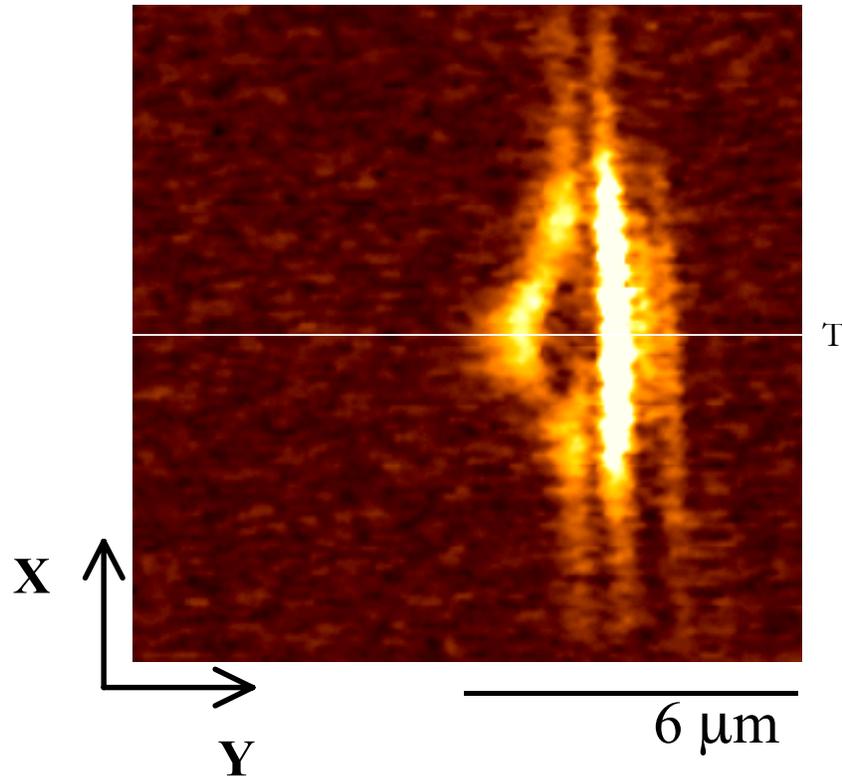


Figure 12 (a) : Image SNOM de la répartition du champ émis par la diode en émission spontanée à la surface du cristal laser.

Dans ce cas, on peut remarquer que le contraste optique ne provient pas uniquement de la zone d'émission définie au cours du paragraphe précédent mais également de régions adjacentes. Plusieurs bandes sont, en effet, clairement mises en évidence. La géométrie respective de ces différentes bandes correspond à la géométrie des différentes couches formant la double hétéro-jonction. En particulier, on peut distinguer trois bandes. L'une d'entre elles présente une forme en 'V' similaire à la forme de la couche de confinement dopée 'p' (c. f. figure 1(b)). Les deux autres bandes correspondraient alors respectivement à la couche active et à la couche de confinement dopée 'n'. En conséquence, dans le cas de l'émission spontanée, une région plus importante que prévue de la face de sortie du cristal laser semble être éclairée par la source. Nous interprétons ce comportement par le fait que le processus d'émission spontanée génère des photons dont le vecteur d'onde est compris dans un angle solide plus ouvert que dans le cas d'une émission stimulée. Un certain nombre de ces photons ne satisfont plus alors les conditions angulaires de guidage dans la couche active. Ils sont ainsi à l'origine d'une fuite de lumière dans les couches de confinement provoquant l'illumination de ces couches et permettant à la mesure

SNOM de les décrire. Dans le cas de l'émission stimulée, les photons sont beaucoup plus directifs et ce phénomène de perte est moins important. Notons que ces fuites de lumière peuvent également être dues à des recombinaisons radiatives dans les couches de confinement. Ceci pourrait être mis en évidence par une analyse chromatique locale lors de l'émission de la diode.

La figure 12(b) donne le contraste de l'image 12(a) suivant la coupe T. Ce profil met clairement en évidence l'influence de la structure d'indice du cristal laser sur le champ émis par la diode (en supposant que la surface que nous étudions est éclairée par une source laser fictive, placée à l'intérieur du cristal ; la figure 8 pourrait décrire ce phénomène). En effet, ce contraste serait dû (nous employons ici le conditionnel dans la mesure ou ce contraste particulier pourrait également être induit par la mesure SNOM proprement dite) à la diffraction de la source laser par les interfaces (comparaison image SNOM 12(a) et image MEB 1(b)) des couches de confinement alors que pour la couche active, le mode émis par la diode serait déjà partiellement établi par l'effet du guidage optique et masquerait l'effet de la diffraction aux interfaces *couches de confinement-couche active*. Ceci expliquerait en particulier l'intensité relative des différents pics présents dans le profil 12(b).

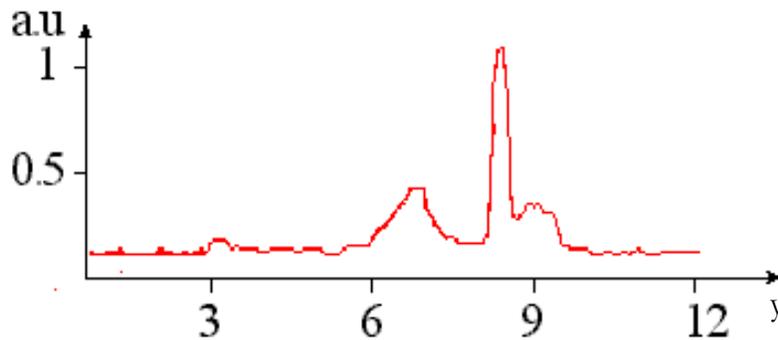


Figure 12(b) : Profil du contraste SNOM suivant la coupe T dans l'image 12 (a).

Dans le profil 12(b), remarquons que le pic principal, correspondant à la couche active à une largeur de 300 nm. Sachant que la couche active fait 200 nm et que le champ est partiellement guidé dans la couche, cette largeur apparente laisse soupçonner une zone de détection très confinée de l'apex de la sonde.

L'origine champ proche du contraste qui apparaît dans les images présentées dans le paragraphe 3.5 a été confirmée en éloignant la sonde de la surface de l'échantillon. Cette expérience a été réalisée sans modifier l'amplitude de vibration de la sonde et en faisant fonctionner la diode en émission stimulée. Les figures 13(a) et 13(b) ont ainsi été obtenues respectivement pour une distance moyenne *sonde-échantillon* de 120 nm (sonde en interaction mécanique avec la surface) et de 3 μm . Dans le cas de l'image 13(a) la sonde interagit alternativement avec la surface de l'échantillon, son amplitude de vibration étant égale à 120 nm, une composante optique champ proche est diffusée localement et collectée en champ lointain. Le contraste résultant dans l'image 13(a) est similaire à celui observé dans l'image 9 et reflète, approximativement, le mode émis en champ proche par la diode.

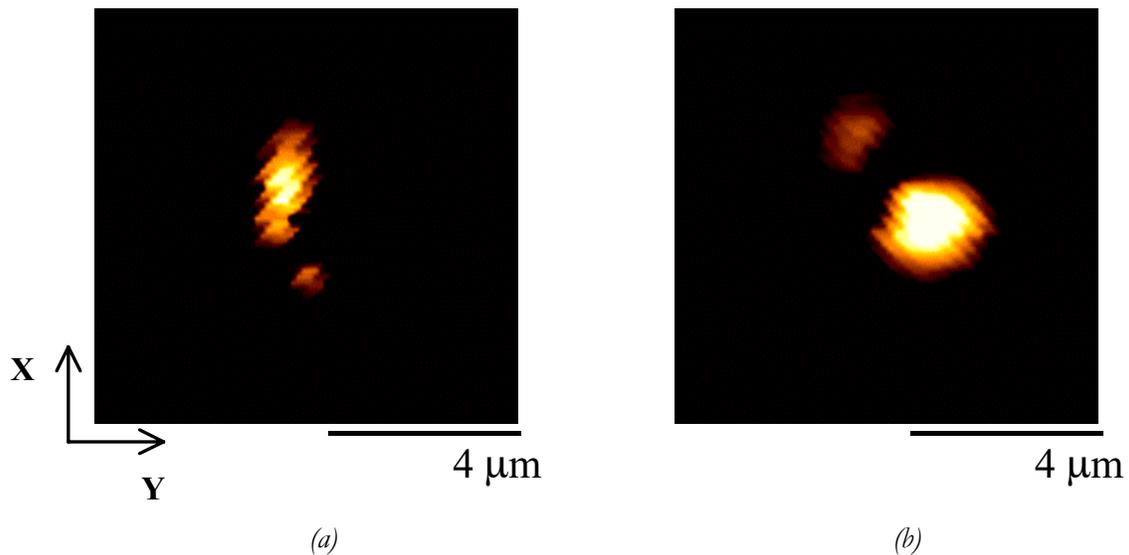


Figure 13 : Influence de la distance moyenne sonde – surface sur le contraste dans l'image SNOM. L'amplitude de vibration de la sonde est de 120 nm. La diode fonctionne en émission stimulée ($I_0=45,5 \text{ mA}$).

(a) La distance moyenne sonde – surface est de 120 nm : la sonde est en interaction mécanique avec la surface de la diode. Le contraste optique contient des informations relatives aux propriétés optiques du mode émis par la diode en champ proche.

(b) La distance moyenne sonde – échantillon est de 3000 nm. On observe à cette distance un contraste optique assimilable à la figure de diffraction de Fresnel de la source laser.

Lorsqu'on éloigne la sonde de l'échantillon (figure 13(b)), seules les composantes champ lointain émises par la diode sont diffusées par la sonde. La distribution de l'intensité ainsi collectée par la fibre durant l'imagerie consiste en un spot de forme circulaire dont le diamètre, mesuré à I_{\max}/e^2 , est de $3,6 \mu\text{m}$. Cette forme circulaire est en accord avec la figure de diffraction de Fresnel du mode émis en champ proche par la diode. En effet, la figure de diffraction de Fraunhofer est une ellipse orientée à 90° par rapport à la distribution en champ proche de l'intensité du mode (elliptique également, c. f. figure 1(b)). La figure de diffraction intermédiaire est alors circulaire, comme l'est celle que décrit la figure 13(b).

3.6. Analyse des images de forces acquises lors du fonctionnement de la diode.

Nous allons à présent étudier le contenu des images AFM obtenues au cours de cette étude et qui, rappelons-le, sont acquises simultanément aux images optiques. Nous avons négligé leur importance lors de la présentation des images optiques car elles en sont complètement décorrélatées assurant ainsi la faible dépendance du comportement mécanique de l'oscillateur sur le contraste donné par l'image optique et les artefacts qui en découlent (c. f. § 6.3 du chapitre II). Elles présentent, cependant, un contraste intéressant qui mérite une interprétation.

Le cristal laser est recouvert d'une couche de protection (d'une épaisseur de 5 nm environ) dont le contraste AFM est représenté par la figure 14(a). D'après 14(a), la rugosité moyenne de cette couche est de l'ordre du nanomètre. Quelques poussières sont visibles dans cette image mais le contraste de force ne reflète pas la géométrie des différentes couches qui forment la jonction laser (comparaison figure 1(b) et 14 (a)).

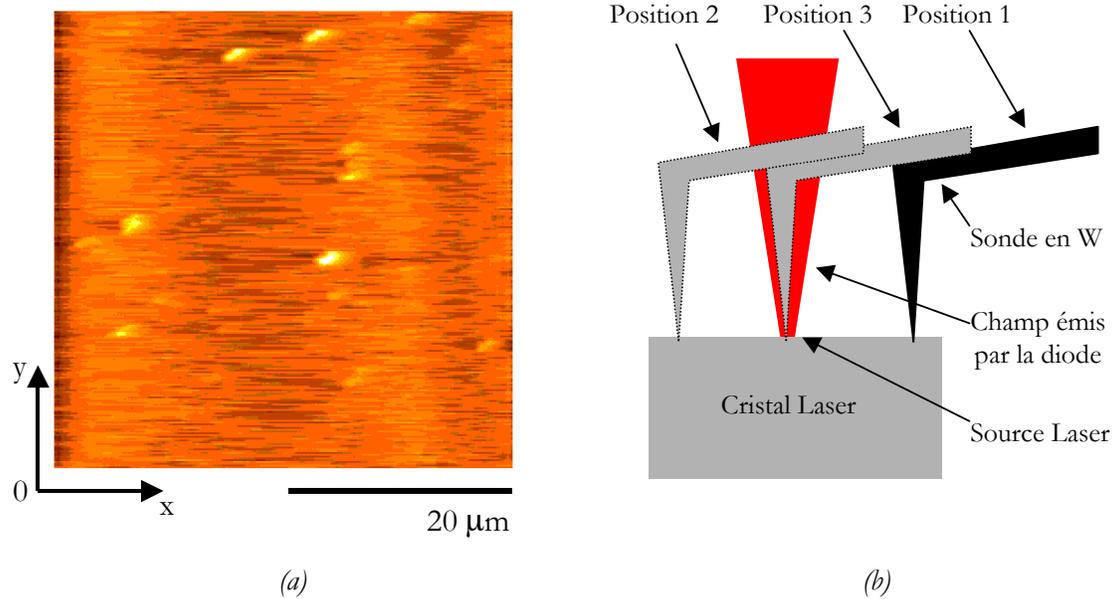


Figure 14 : (a) Image AFM de la surface émettrice de la diode laser. Dans ce cas, la diode n'émet pas de lumière.

(b) Lorsque la diode est en fonctionnement, on peut distinguer 3 situations rencontrées par la sonde au cours du balayage :

Position 1 : ni le corps de la sonde, ni le levier ne sont éclairés par la source laser. La sonde est dans la zone 1 sur la figure 14(d).

Position 2 : seul le levier de l'oscillateur est éclairé dans cette position. La sonde est dans la zone 2 sur la figure 14(d).

Position 3 : le corps de la sonde (et son extrémité en particulier) ainsi qu'une partie du levier sont éclairés par la source laser. La sonde est dans la zone 3 sur la figure 14(d).

Lorsque la diode fonctionne en émission spontanée, l'image AFM de la surface reste inchangée mais subit des modifications importantes lors d'une émission stimulée. Les figures 14(c) et 14(d) présentent le contraste AFM observé dans ce cas ($I_0=45,5$ mA). Ces deux images ont été acquises avec des amplitudes de vibration de la sonde de 40 nm. Dans les deux cas, seul l'amortissement [défini ici comme le rapport de l'amplitude de vibration de la sonde au cours de l'imagerie et de son amplitude de vibration libre] de l'oscillateur a été modifié et pourrait ainsi expliquer les différences entre les images 14(c) et 14(d). On distingue trois zones principales dans l'image 14(d). Dans la zone notée 1, le contraste a été très peu modifié en comparaison du contraste donné par la figure 14(a). Dans la zone notée 2, des fluctuations d'une dizaine de nanomètres

d'amplitude de la distance moyenne *sonde – plan moyen* de l'échantillon sont visibles. Ces fluctuations s'amplifient à mesure que l'extrémité de la sonde approche la zone active (notée 3 sur la figure 14(d)) où elles atteignent un maximum absolu. Lorsque l'amortissement de l'oscillateur est augmenté (c. f. figure 14(c)), seule la zone 3 dans la figure 14(d) produit encore une modification notable de l'amplitude de vibration de la sonde au cours du balayage, les autres zones présentant alors un contraste identique à la figure 14(a).

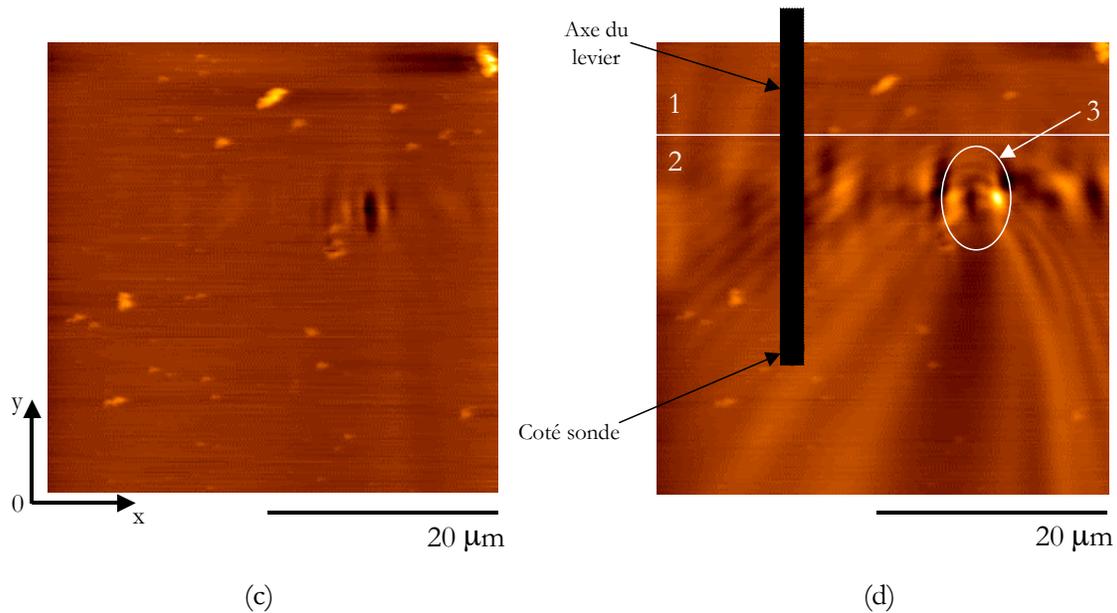


Figure 14 (suite) : Images AFM de la source laser. Le laser fonctionne en émission stimulée ($I_0=45,5 \text{ mA}$).

L'amplitude de vibration de la sonde en West de 40 nm.

(c) L'amortissement du levier est de 50%.

(d) L'amortissement du levier est de 10%.

La répartition spatiale des motifs présents dans l'image 14(d) peut être liée à la position du levier et de la pointe de l'oscillateur au cours du balayage. Les fluctuations observées dans la zone 3 peuvent être attribuées à l'interaction en champ proche de l'extrémité de la sonde avec la source laser (sonde en position 3 sur la figure 14(b)), alors que les fluctuations apparaissant dans les autres régions [zone 2 dans 14(d)] où la sonde est en position 2 sur 14(b)] de 14(d) ne peuvent être attribuées qu'à l'illumination du levier par le champ émis par la diode au cours du balayage,

L'extrémité de la sonde étant alors à quelques microns de la source. L'absence de motif dans la zone 1 (sonde en position 1 sur 14(b)) confirmerait ce constat, le levier n'étant pas éclairé par la source lorsque la sonde image cette zone. L'image SNOM 14(e) (conditions expérimentales indiquées en légende de cette figure) nous permet de déterminer les régions où le levier interagit notablement avec le champ émis par la diode. Cette image confirme également l'analyse que nous avons faite de l'image 14(d) dans la mesure où nous retrouvons dans cette image les contours du motif observé dans la figure 14(d) (forme \sim en 'V').

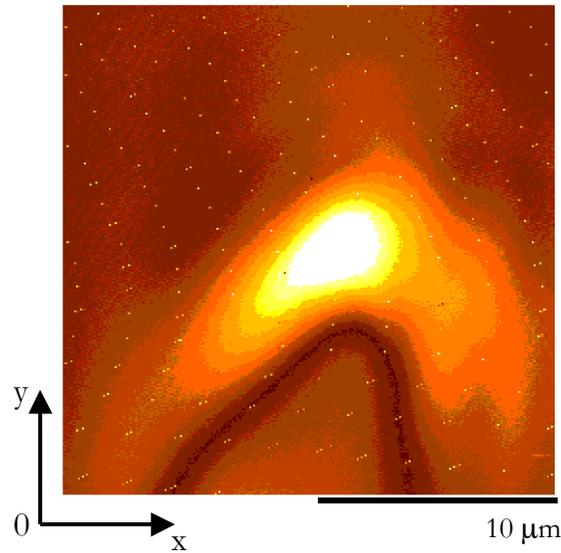


Figure 14(e) : Image SNOM de la diode laser fonctionnant en émission stimulée ($I_0=45,5$ mA). La configuration expérimentale utilisée est décrite par la figure 2(a). Le polariseur ainsi que le filtre spatial ont été retirés du banc de détection pour mettre, clairement, en évidence la répartition spatiale du champ modulé par le levier au cours de l'imagerie. L'image SNOM représente l'amplitude de la composante modulée à la fréquence de vibration de la sonde sensée atteindre, en partie, la photodiode AFM.

Deux hypothèses pourraient expliquer ces variations de l'amplitude de vibration de l'oscillateur (levier et/ou pointe) alors qu'il se trouve éclairé par la source laser.

La première consiste à supposer que la lumière modulée par le levier atteint la photodiode à cadrans du microscope AFM. Ce signal, modulé par la sonde, viendrait alors s'ajouter au faisceau laser permettant la détection de la déflexion du levier au cours de l'imagerie. Les variations de l'amplitude de vibration de l'oscillateur (aussitôt corrigées par l'asservissement AFM) seraient ainsi une fonction de la position relative du levier par rapport à la source laser durant le balayage et suivrait grossièrement le contraste optique donné par la figure 14(e). Toutefois, une augmentation de l'amortissement (c. f. figure 14(c)) de l'oscillateur ne devrait pas, dans ce cas, modifier le contraste de la figure 14(d). Dans les deux cas, l'amplitude de vibration de la sonde et l'intensité émise par le laser restant échangées, l'amplitude du signal optique modulé par le levier et atteignant la photodiode à cadrans serait identique dans 14(c) et 14 (d), provoquant ainsi les mêmes effets. Les images 14(c) et 14(d) n'étant pas similaires, cette hypothèse semble peu crédible.

Une seconde hypothèse consiste à considérer une modification des propriétés mécaniques de l'oscillateur avec le flux thermique auquel il est exposé lors de son illumination. Dans ce cas, une variation de la quantité de chaleur reçue par le levier induirait une variation de son module d'Young et conséquemment de sa raideur, de sa fréquence de résonance et de son amplitude de vibration. Pour attester cette hypothèse, voyons comment réagit l'oscillateur lorsque l'extrémité de la sonde interagit avec la source (position 3 sur la figure 14(b)) i. e. lorsque la sonde est dans une situation où il y a apport de chaleur par la source. Dans ce cas, la rigidité du levier (augmentation de la température du levier par conduction via le corps de la pointe) chuterait, entraînant une chute de sa raideur, de sa fréquence de résonance et conséquemment une augmentation de son amplitude de vibration (nous rappelons que ceci est vrai si la fréquence d'excitation du levier est inférieure à la fréquence propre de l'oscillateur). L'image AFM 14(d) met en évidence une cavité à cet endroit (en 3), révélatrice d'une correction apportée par le système d'asservissement AFM à une augmentation de l'amplitude de vibration de la sonde lors de son passage à proximité de la source. Le contraste dans l'image 14(d) serait donc en accord avec cette dernière hypothèse. Remarquons qu'une dilatation de la sonde et/ou de l'échantillon aurait pu participer au contraste de la zone 3 des figures 14 (c) et 14 (d) [14-16]. Dans la mesure où le contraste des images 14(c) et 14(d) reste identique pour une distance moyenne sonde-surface de l'ordre de 3 μm (la sonde n'est plus en interaction mécanique avec la surface de la diode), cet effet ne semble pas participer de façon significative à la topographie mécanique des figures 14(c) et 14(d). Notons que dans le cas d'une dilatation de la sonde, ce phénomène aurait compensé, en partie, l'effet du comportement mécanique du levier visible en 3.

4. Réponse diélectrique de la surface du cristal laser à une excitation lumineuse externe.

En complément de l'étude que nous venons de présenter, nous avons également éclairé la surface du cristal laser à l'aide d'une source externe pour mettre en évidence sa réponse diélectrique locale. Nous nous attendons ainsi, à observer un contraste optique lié à la structure d'indice (qui correspond également à la structure géométrique des trois couches qui forment le guide optique) des couches de confinement (largeur $\sim 2 \mu\text{m}$) et de la couche active (largeur $\sim 200 \text{ nm}$) comparable au contraste obtenu à l'aide d'une imagerie effectuée par microscopie électronique à balayage, le contraste étant dans ce cas là, lié aux propriétés électroniques de la surface (c. f. figure 1(b)). Dans le cas d'une mesure SNOM, telle que nous l'effectuons (c. f. §D 3 du chapitre II), il est cependant possible que ce lien ne soit pas aussi direct que dans le cas de l'imagerie MEB, la sonde ainsi que le processus de mesure ayant certainement un effet sur le contraste SNOM. C'est, en particulier, ce dernier point qui donne toute sa motivation à cette étude.

Cet échantillon présente deux caractéristiques intéressantes. La première est optique et la seconde mécanique. Ses caractéristiques optiques en font un échantillon test simple pour l'optique en champ proche. Il présente des propriétés accessibles en champ lointain (l'observation des couches de confinement par microscopie optique conventionnelle) et simultanément, une zone active dont l'épaisseur est caractéristique de l'optique en champ proche compte tenu de ses dimensions $\text{sub-}\lambda$. D'un point de vue mécanique, la surface est homogène, minimisant ainsi une éventuelle corrélation entre les structures mécanique et optique de la double hétéro-jonction (corrélation évoquée au §B 6.3 du chapitre II). En effet, la surface est recouverte d'une couche de protection ($\sim 5 \text{ nm}$ d'épaisseur) qui ne permet pas à la mesure AFM d'être sensible à un éventuel contraste mécanique relatif aux différentes couches qui forment la double hétéro – jonction (c. f. figure 14(a)).

4.1. Configuration expérimentale.

4.1.1. Eclairage du système sonde - surface.

La géométrie de l'échantillon (cristal laser de $60 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ fixé sur un support, visible figure 15, qui surplombe de $15 \mu\text{m}$ environ la surface étudiée) ne nous laisse que peu de latitude dans

l'éclairage du système *sonde - surface*. En fait, la seule possibilité que nous avons d'éclairer l'échantillon dans ces conditions est un éclairage dont l'axe principal est normal à la surface de la diode ($\theta_i=0^\circ$, $0^\circ < \phi_i < 2\pi$; c. f. figure 15) par le biais de l'objectif de microscope (20X, ON=0,28) dont le spot de diffraction, au plan focal, a un diamètre de l'ordre de 3 microns. Dans toutes les autres combinaisons de θ_i et ϕ_i que nous avons testées, le balayage de l'échantillon (dans le plan (x, y) sur la figure 15) introduit des variations importantes du signal optique diffusé périodiquement (du fait du balayage) par le support de la diode et collecté en champ lointain. Cette diffusion parasite pourrait, éventuellement, être filtrée par détection synchrone à la fréquence de vibration de la sonde si elle n'interagissait pas avec la sonde. En réalité, une fraction de cette lumière est rétro-diffusée par le support vers la pointe (corps et extrémité de la pointe), est modulée par cette dernière et provoque une variation du signal SNOM lors du balayage de l'échantillon, variation ne correspondant pas à des modifications locales des propriétés optiques de la surface. En outre, ces retro-diffusions sont susceptibles de modifier les conditions d'éclairage du système *sonde - surface* au cours du balayage.

En conséquence, les images que nous présentons dans ce paragraphe ont été obtenues dans les conditions d'éclairage ($\theta_i = 0^\circ$, $\phi_i = 2\pi$). La source est une diode laser (Puissance=2 mW) émettant à $\lambda=635$ nm. A cette longueur d'onde d'analyse, le saut d'indice *couche active-couches de confinement* est $\Delta n \sim 0,1$. De plus, ces résultats ont été obtenus pour un champ incident orienté perpendiculairement aux couches qui forment l'hétéro-jonction (direction OX sur la figure 15; taux de polarisation de l'ordre de 1/3000). Seules ces conditions de polarisation incidente nous ont permis de révéler un contraste relatif à la structure diélectrique de la surface de la diode. Le raisonnement suivant pourrait expliquer cette sensibilité de la mesure SNOM à la polarisation incidente. Examinons pour cela, les deux cas extrêmes de polarisation envisageables : le cas où l'onde incidente serait polarisée parallèlement (notée 'p') aux plans des couches qui forment la double hétéro-jonction et le cas où le champ incident vibrerait perpendiculairement (notée 's') à ces derniers. Dans ces deux configurations, le champ proche diffracté par la surface est déterminé, en partie, par les conditions de continuité du champ aux différentes interfaces qui composent la double hétéro-jonction. En particulier, en polarisation 's', les discontinuités du champ aux interfaces génèrent localement un champ diffracté intense et confiné (dû à la variation brutale de constante diélectrique que représente l'interface) à quelques nanomètres de la surface [l'amplitude du champ diffracté par un objet de taille d reste importante dans une région spatiale

$\sim d$ au voisinage de cet objet]. Inversement, dans le cas où le champ d'excitation est en polarisation 'p', l'effet des interfaces sur le signal SNOM sera moins notable, rendant ainsi prédominante les contributions du champ diffracté par les couches de confinement et la couche active. L'épaisseur des couches de confinement étant micrométrique, le champ diffracté au voisinage de la surface serait alors principalement dominé par des composantes radiatives susceptibles de diminuer la sensibilité de la mesure SNOM aux caractéristiques locales du champ proche diffracté par les différentes couches de la surface. L'une, des principales difficultés, que nous impose l'étude en champ proche d'une surface, est associée à l'obligation de détecter, en champ lointain, le champ modulé par l'extrémité de la sonde (et non le champ modulé par le corps de la sonde, également collecté en champ lointain puisque la résolution maximale des objectifs que nous utilisons est de l'ordre de $3 \mu\text{m}$). En conséquence, éclairer la structure de surface en polarisation 's' permettrait d'augmenter l'intensité relative des composantes évanescentes du champ diffracté par les interfaces par rapport à un éclairage en polarisation 'p' et de contribuer ainsi à la mise en évidence de ces structures lors de nos mesures.

Ce sont ces conditions d'éclairage (champ incident orienté perpendiculairement aux couches qui forment le cristal : direction ox sur la figure 15) que nous avons choisies dans l'étude que nous présentons.

4.1.2. Système de détection.

i. Détection en champ proche.

La détection en champ proche est assurée par une sonde en tungstène de géométrie similaire à celle présentée par la figure 17 du chapitre II. L'amplitude de vibration de la sonde a été maintenue constante à 120 nm au cours du balayage. L'amortissement de l'oscillateur au cours de l'imagerie est typiquement de l'ordre de 5%.

Le repérage de la zone d'étude s'effectue aisément en faisant fonctionner la diode laser en émission spontanée.

i.i. Détection champ lointain.

Les conditions de détection (θ_d , ϕ_d) sont liées aux mêmes contraintes que les conditions d'éclairage. Cependant, dans ce cas, l'intensité des signaux optiques, modulés par l'extrémité de la

sonde vers le support du cristal laser et rétro-diffusés vers le détecteur champ lointain, s'est avérée suffisamment faible pour pouvoir mettre en évidence un contraste optique de champ proche lié à la structure d'indice de la surface du cristal laser. Nous sommes néanmoins conscients que ces diffusions parasites par le support du cristal laser ne peuvent être sans effet sur le contenu de l'image SNOM, et compliquent de ce fait leur interprétation. Malgré cela, nous avons pu mettre en évidence la sensibilité du signal SNOM à la direction suivant laquelle ce dernier est analysé.

Nous avons enregistré l'amplitude de la composante sinusoïdale de fréquence f (f étant la fréquence de vibration de la sonde) contenue dans le signal optique résultant de l'interaction *sonde – champ incident – surface* suivant trois directions de collection en champ lointain. Ces trois configurations sont représentées par la figure 15. La première coïncide avec la direction d'incidence du champ qui éclaire la surface ($\theta_d=0^\circ$, $0<\phi_d<2\pi$). Dans ce cas, une analyse en polarisation Pd, effectuée suivant la direction oy, permet de s'affranchir du champ spéculaire réfléchi par la surface et polarisé suivant ox (rappelons que le champ excitateur est // ox), un filtre spatial (50 μm de diamètre) permet d'isoler le champ modulé exclusivement par l'extrémité de la sonde (sur une zone de 10 μm^3 environ). Cette configuration sera notée A (c. f. figure 15). Une seconde direction d'étude est assurée par un second objectif de microscope 20X d'ouverture numérique 0,28. Sa direction de collection est définie par ($\theta_d=70^\circ$, $\phi_d=\pi/2$). Une fibre optique de 9 μm de cœur, placée au foyer image du système L_1, L_2 (c. f. figure 15) permet, comme dans la configuration en détection normale, d'isoler le champ modulé par l'extrémité de la sonde sur une zone de 10 μm^3 environ. Cette configuration sera notée B. La configuration C est identique à celle employée lors de l'étude du composant en émission. Une fibre de 100 μm de cœur (ON=0,48) collecte le signal optique modulé dans la direction définie par ($\theta_d=\pi/2$, $\phi_d=0^\circ$). C'est la moins contraignante des trois configurations de détection dans la mesure où la zone de collection ($\sim 100 \mu\text{m}$, due à l'ouverture numérique de la fibre ainsi qu'à la distance la séparant de la sonde) ne nécessite aucun réglage précis et est peu tributaire d'éventuelles instabilités mécaniques (dérives et vibrations).

Dans ces trois cas, le signal optique ainsi collecté en tout point de la surface parcourue par la sonde, est recueilli par un photomultiplicateur (PM), démodulé par détection synchrone pour former l'image SNOM.

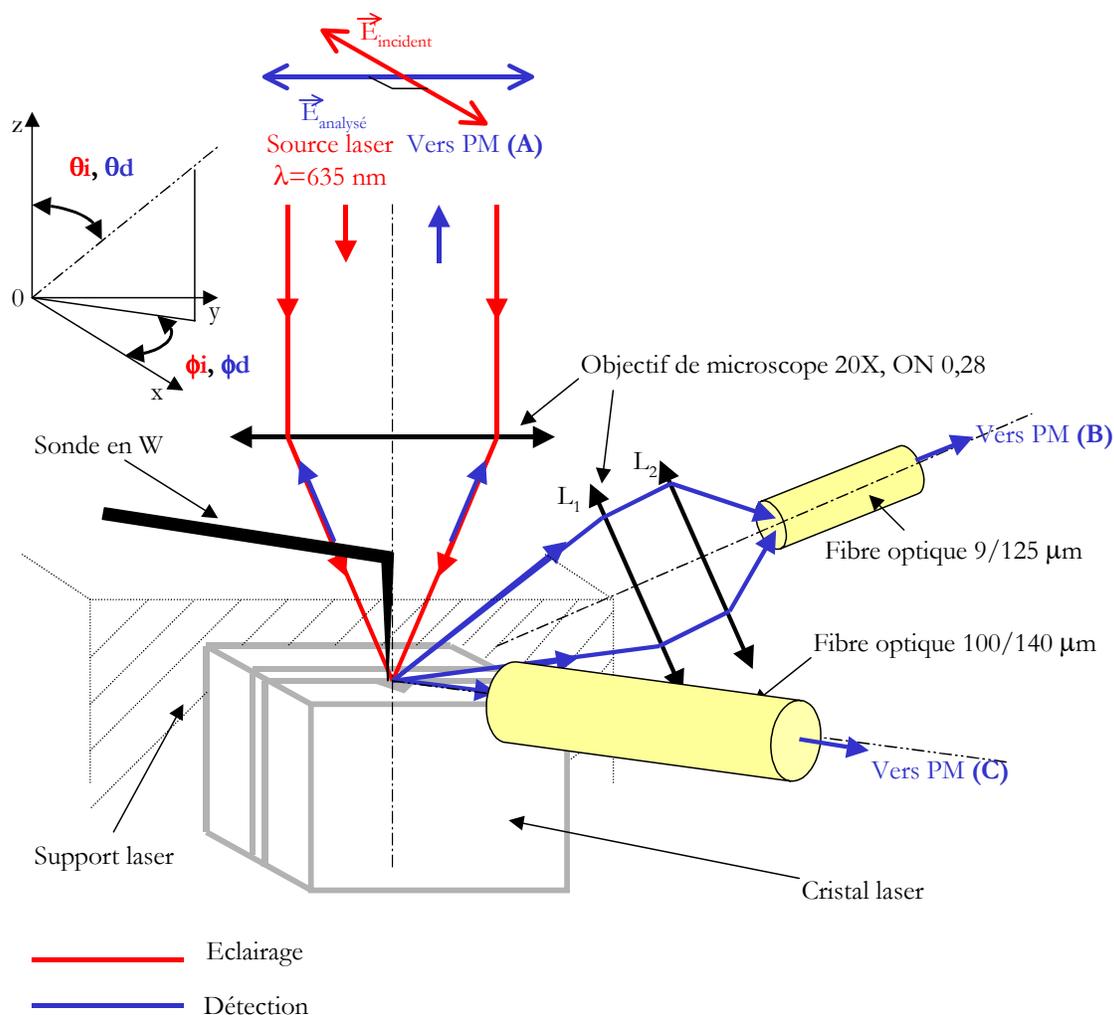


Figure 15 : Configuration expérimentale utilisée dans l'étude SNOM de la surface du cristal laser. La sonde est en W. La fréquence de démodulation détection synchrone est f . La longueur d'onde d'analyse est de 632,8 nm.

- Voie de collection A : ($\theta_d = 0^\circ$, $0^\circ < \phi_d < 2\pi$, Pd orienté suivant OY).
- Voie de collection B : ($\theta_d = 70^\circ$, $\phi_d = \pi/2$).
- Voie de collection C : ($\theta_d = \pi/2$, $\phi_d = 0^\circ$).

4.2. Résultats expérimentaux.

Les figures 16(a), 16(b) et 16(c) présentent les images SNOM obtenues, respectivement, dans les configurations A, B et C. Ces images décrivent l'amplitude de la composante sinusoïdale de

fréquence f du champ modulé par la sonde dans les directions particulières définies par A, B et C. Bien que différent dans les trois directions, le contraste visible dans ces images ne reflète que très grossièrement celui auquel on aurait pu s'attendre (c. f. image MEB de la structure présentée par la figure 1(b)). Quatre causes principales pourraient être à l'origine de la résolution* dans ces images :

1/ La couche de protection (d'une épaisseur de 5 nm environ), dont est recouverte la surface étudiée, nous empêche d'imager précisément les différentes couches qui forment l'hétéro-jonction. Il faut noter, que dans le cas de l'imagerie MEB de cette surface (c. f. figure 1(b)), cette couche se détériore rapidement sous l'impact du faisceau d'électrons, lui permettant d'interagir directement avec la surface clivée du cristal laser pour mettre clairement en évidence le contraste de la structure de surface. Pourtant ce fait ne semble pas avoir été gênant dans l'étude de la diode en fonctionnement. Cette cause ne devrait donc pas, dans ce cas là également, nous empêcher d'accéder aux propriétés optiques champ proche de la surface.

2/ Les conditions (considérées comme optimales de façon hypothétique) dans lesquelles nous prospectons le champ proche optique du cristal nous permettent de caractériser ce champ à quelques nanomètres de la surface. Les images 16(a), 16(b) et 16(c) représenteraient alors les réelles propriétés du champ proche de la surface telles que nous devons les observer suivant les directions A, B et C, dans les conditions d'éclairage de l'expérience.

3/ Les images seraient ici significatives du processus de formation de l'image SNOM (c. f. §D 3 du chapitre II) qui ne permet pas de caractériser directement le champ proche optique au niveau de la surface mais intègre toute la structure du champ diffracté par la surface et modulé par la sonde sur une extension spatiale égale à $2.A$ (A étant l'amplitude de vibration de la sonde au cours de l'imagerie). Les images 16(a), 16(b) et 16(c) ne feraient alors que refléter les conséquences de ce processus. Cependant, d'après [10], il devrait exister, pour chaque composante évanescente

* Le terme résolution prend ici le sens qui lui est généralement donné en microscopie à sonde locale. La résolution peut être définie suivant plusieurs critères dont les plus usuels sont donnés par exemple en référence [17]. Dans la mesure où les phénomènes optiques que nous voulons décrire en champ proche sont encore mal connus, il est donc difficile de définir une résolution pour une image SNOM donnée.

diffraquée par la surface, une amplitude de vibration de la sonde adaptée pour sa détection.

4/ Comme nous venons de l'évoquer, le contenu des images SNOM obtenues dans les configurations A, B et C ne représente qu'une partie du spectre fréquentiel du signal modulé par la sonde et collecté en champ lointain (dans notre cas seule la fréquence f est présente dans l'image). Les informations contenues dans les harmoniques $2f, 3f, 4f, \dots$ du signal optique modulé, également relatives à la structure du champ diffusé lors de l'interaction *sonde – champ incident – surface*, sont ainsi perdues, expliquant le manque d'informations présentes dans ces images. Dans ce cas, leur connaissance semble indispensable pour remonter à la structure du champ modulé par la sonde au cours de chacune de ces oscillations et ainsi définir la cartographie 3D du champ proche optique diffracté par la surface dans une configuration *éclairage – détection* donnée [le terme détection englobe, ici, les détections champ proche (sonde) et champ lointain]. Cette étude n'a pas été faite pour l'instant mais fait partie d'un projet futur.

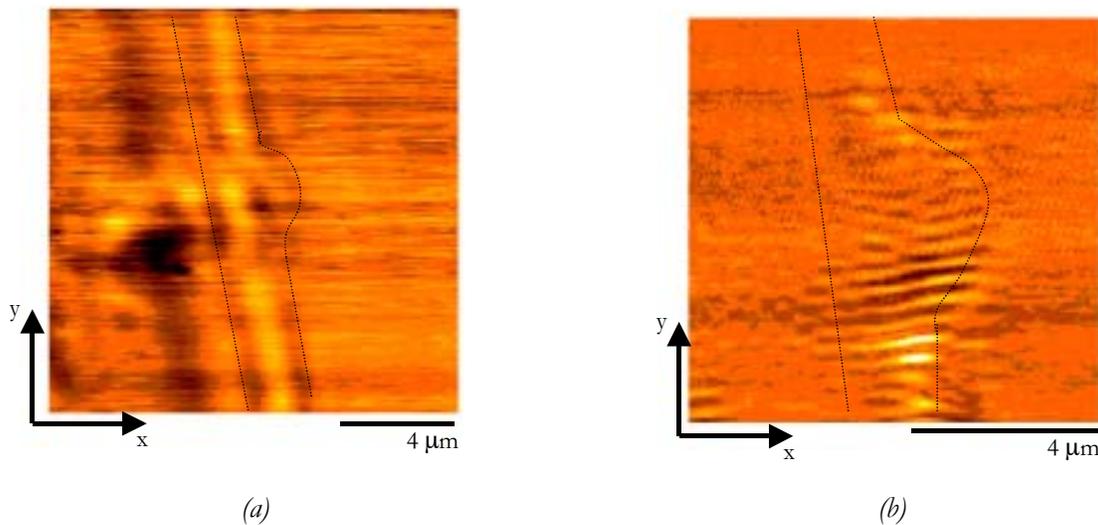


Figure 16 : Images SNOM obtenues lors d'un éclairage normal à une longueur d'onde de 635 nm. La fréquence de démodulation synchrone est f .

(a) Amplitude de la composante de fréquence f du diagramme de rayonnement champ proche de la sonde collecté en détection normale (voir A sur la figure 15).

(b) Amplitude de la composante de fréquence f du 'diagramme de rayonnement champ proche' de la sonde collecté en détection oblique (voie B sur la figure 15).

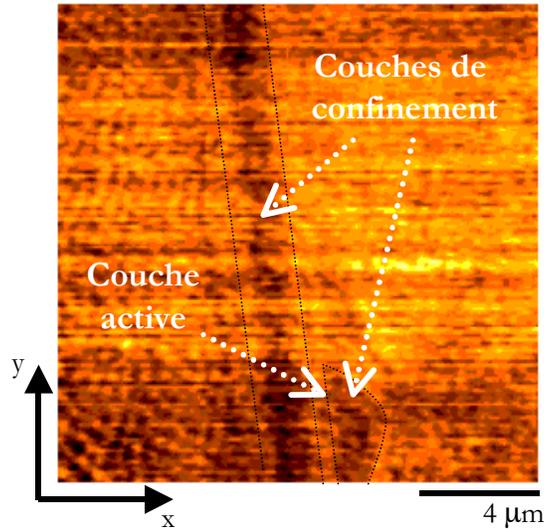


Figure 16(c) : Image SNOM obtenue lors d'un éclairage normal à une longueur d'onde de 635 nm. La fréquence de démodulation synchrone est f . Amplitude de la composante de fréquence f du champ modulé par la sonde collecté en détection rasante (voie C sur la figure 15).

Malgré le manque d'informations contenues dans ces images, nous pouvons noter des différences intéressantes dans le contraste optique qu'elles donnent de la surface du cristal laser. Dans les images 16(a) et 16(b), par exemple, la cartographie diélectrique de la surface est caractérisée par des fluctuations lentes du signal optique. Ces fluctuations disparaissent dans l'image 16(c) qui décrit plus précisément la structure de surface de la diode laser. Une interprétation, qui repose sur le diagramme de rayonnement des dipôles qui constituent la surface, pourrait expliquer ces différences. En effet, si l'on considère le diagramme de rayonnement des dipôles de la surface, principalement excités suivant l'axe ox par le champ incident (c. f. figure 15), le champ modulé par la sonde [si l'on suppose que la sonde tient, ici, un comportement similaire à celui qu'elle avait tenu lors de l'étude de la diode en émission stimulée] et collecté en champ lointain dans les directions A et B comporterait, en plus des champs diffractés dans des ordres élevés que nous désirons détecter, une composante progressive, diffractée dans des ordres moins élevés,

susceptible de modifier dans ce sens le contraste dans les images 16(a) et 16(b). Cet effet remarquable dans l'image 16(a) est encore plus marqué dans l'image 16(b), dans laquelle on 'devine' uniquement les contours de la zone d'émission de la diode qui apparaît dans l'image sous forme d'oscillations comparables à des interférences[†]. Ces 'ondulations', présentes dans les images 16(a) et 16(b), que nous attribuons à la présence d'une forte composante champ lointain dans le champ détecté par la sonde et diffusé dans les directions de collection A et B, pourraient être confirmées par le contraste observé dans l'image 16(c). En effet, la direction de collection C, qui donne lieu à ce contraste, est confondue avec l'axe des dipôles de la surface suivant lequel seules les ondes évanescentes peuvent contribuer au signal modulé par la sonde. Précisons et rappelons que ces ondes évanescentes ont pu parvenir au détecteur placé en champ lointain après perturbation par la pointe.

5. Conclusion.

Nous avons étudié les propriétés optiques de la surface d'une diode laser commerciale par SNOM. L'étude de cette diode en fonctionnement nous a permis de déterminer les paramètres SNOM (sonde utilisée, amplitude de vibration de la sonde, direction de détection champ lointain, fréquence de démodulation synchrone) optimaux pour caractériser le champ qu'elle génère au voisinage immédiat de la surface du cristal.

Nous avons également étudié cette surface en l'éclairant par une source externe. Dans ce cas, la détermination de paramètres SNOM optimaux est plus difficile, le champ proche optique de cette surface, dans les conditions d'analyse que nous avons choisies (éclairage et détection), n'étant pas connu. Néanmoins, nous avons pu discuter du contraste présent dans les images que nous avons obtenues en mettant en évidence l'influence des paramètres SNOM sur leur contenu. Nous avons, en particulier, montré et analysé la dépendance de ce contraste à la direction de collection en champ lointain.

[†] L'origine exacte de ces oscillations n'a pas encore pu être identifiée. Cependant, comme nous l'avons suggéré dans le précédent paragraphe, la détermination des amplitudes respectives des composantes sinusoïdales harmoniques de la fréquence de modulation du champ, contenues dans le signal diffusé en champ proche et collecté en champ lointain, pourrait permettre d'établir l'importance du processus de mesure (sonde vibrante) sur ce contraste.

C Etude SNOM d'une fibre optique monomode en émission.

1. Introduction.

Les télécommunications optiques trouvent, dans le SNOM, un moyen de caractérisation indispensable à la compréhension des phénomènes liés à la propagation dans les guides optiques ou encore à la 'visualisation' des pertes lumineuses dans les composants optiques. Les SNOM utilisant des fibres optiques effilées ont déjà montré leurs capacités à réaliser ce type d'études [18-23]. Pourtant, l'utilisation de sondes commerciales, telles que les sondes AFM, rendrait ces études plus souples (c. f. §2.3 du chapitre I) et pourrait, à terme, permettre de standardiser la caractérisation de ces composants optiques. Bien entendu, la complexité du processus de formation de l'image SNOM pourra faire douter le lecteur de l'utilité d'employer ici cette technique. Rappelons à ce titre que la configuration expérimentale qui nous a permis de caractériser, en champ proche, le mode émis par la diode laser en fonctionnement (c. f. figures 2(b) et 17) ainsi que l'étude présentée en référence [22] montrent que certains échantillons, et notamment les guides d'ondes, ne nécessitent pas forcément des conditions de détection contraignantes et donnent des résultats au moins comparables à ceux obtenus à l'aide de fibres effilées [22].

Nous avons entrepris depuis peu l'étude de ce type de composants en émission. Notre objectif trouve ses motivations premières dans la compréhension de la formation de l'image SNOM. En effet, le mode émis en sortie de fibre optique constituant un champ de référence dont les caractéristiques sont connues (distribution spatiale de l'intensité gaussienne dans l'approximation de Marcuse [24] et polarisation du mode mesurable en champ lointain), l'étude SNOM de ce champ nous permettrait d'examiner l'influence des conditions de détection sur le contenu de l'image et d'en tirer les conclusions pour engager, dans de bonnes conditions, l'étude des propriétés optiques en champ proche des guides d'onde comme, par exemple, l'étude de la propagation dans les guides.

Dans cette partie, nous présentons les premiers résultats que nous avons obtenus dans l'étude SNOM du mode émis par une fibre optique monomode en émission.

2. Configuration expérimentale.

La face de sortie clivée d'une fibre monomode ($3\ \mu\text{m}$ de cœur, $125\ \mu\text{m}$ de gaine) est solidarisée d'une platine de déplacement piézoélectrique (dans le plan x, y sur la figure 17). La raie rouge ($\lambda=632,8\ \text{nm}$) d'un laser He-Ne, utilisée comme source, est injectée dans la fibre par le biais d'un objectif de microscope (Melles-Griot, 4X, $\text{ON}=0,12$). La fréquence de coupure normalisée ne permet qu'au mode fondamental LP_{01} de se propager dans la fibre. La distribution de l'intensité à la sortie de la fibre est alors une gaussienne dans l'approximation de Marcuse. La largeur du mode à cette longueur d'onde est de $3,4\ \mu\text{m}$ à I_{max}/e^2 [24].

Pour étudier le champ proche de cette fibre nous utilisons la configuration expérimentale déjà utilisée lors de l'étude de la diode laser en émission. La sonde est en tungstène (c. f. figure 17 du chapitre II) et le signal optique modulé par la sonde est analysé par détection synchrone à la fréquence f ou $2f$ via une fibre optique ($100\ \mu\text{m}$ de cœur, $140\ \mu\text{m}$ de gaine) placée en détection rasante ($\theta_d=\pi/2$ sur la figure 17). Cette configuration expérimentale est décrite schématiquement par la figure 17.

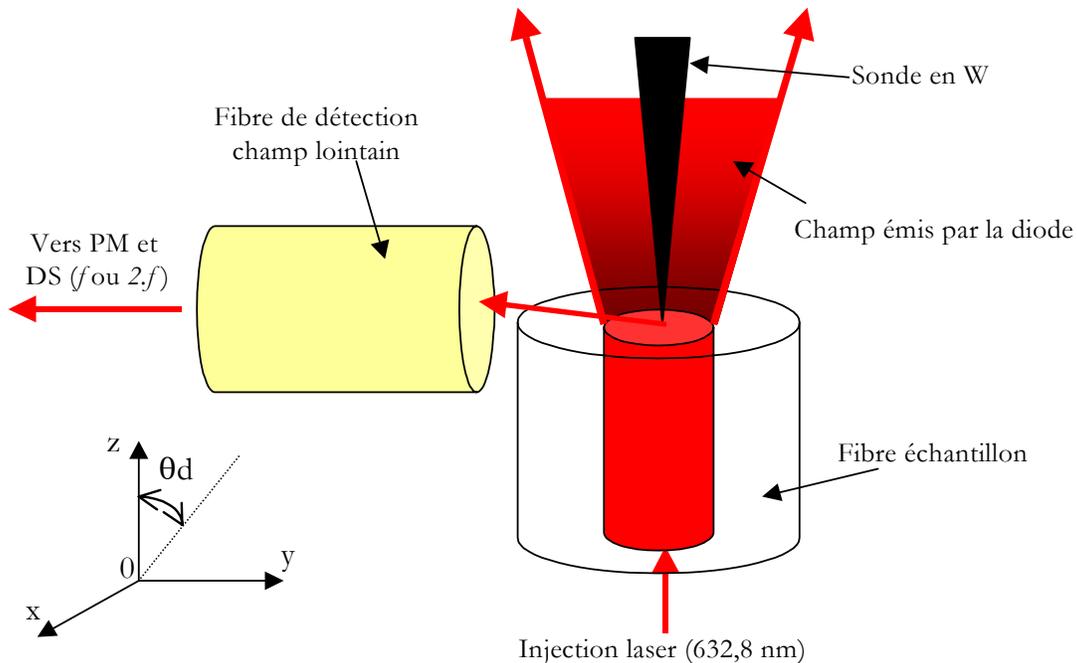


Figure 17.: Représentation schématique de la configuration expérimentale utilisée pour étudier, en champ proche, le champ émis par une fibre optique monomode.

3. Résultats et discussion.

Les images SNOM que nous présentons ont été effectuées sur une fibre d'une longueur de 50 cm. Notons que dans ce cas le mode fondamental coexiste encore avec des modes de gaines. La figure 18 présente ces images. Elles ont été enregistrées de façon séquentielle et représentent l'amplitude de la composante de fréquence f , pour 18(a), et $2f$, pour 18(b), du signal lumineux modulé à f par la sonde (les autres paramètres ayant été maintenus constants par ailleurs). Deux constatations importantes sont à faire :

- 1/ La source optique apparaît différemment dans les deux images. En effet, l'image 18(a), effectuée à f , met en évidence un profil d'intensité quasi gaussien (\sim mode fondamental LP_{01}), alors que cette symétrie axiale disparaît dans l'image 18(b), effectuée à $2f$, pour laisser place à une distribution spatiale de l'intensité qui ressemblerait d'avantage à un mode d'ordre plus élevé du type LP_{11} .
- 2/ La source n'est pas localisée au même endroit dans les deux cas alors que les images AFM (non représentées ici) montrent un contraste mécanique identique, comparable à celui représenté par la figure 7(a) du chapitre II.

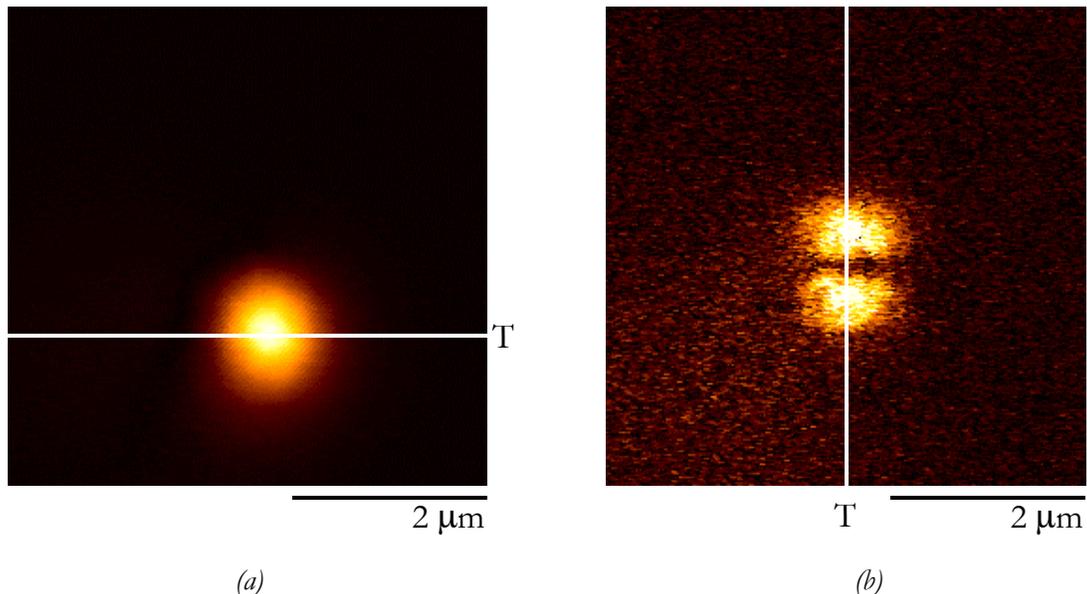


Figure 18 : Images SNOM de la face clivée d'une fibre monomode en émission.

(a) : Amplitude de la composante sinusoïdale de fréquence f contenue dans le signal optique modulé par la sonde.

(b) : Amplitude de la composante sinusoïdale de fréquence $2f$ contenue dans le signal optique modulé par la sonde.

Nous avons trop peu de recul dans l'étude que nous présentons pour donner une interprétation poussée qui pourrait expliquer ces résultats. Néanmoins, en nous basant sur l'expérience que nous avons acquise lors de l'étude de la diode laser en émission, nous proposons l'explication suivante : si nous supposons que l'image effectuée à f est composée, principalement, de composantes du champ ayant une nature progressive (c. f. §2.4), cette dernière décrirait le mode fondamental émis par la fibre et dont les caractéristiques sont mesurables en champ lointain (mode LP_{01}). Comme nous l'avons montré au §2.4 de ce chapitre, cette contribution peut être diminuée notablement lorsqu'on analyse l'amplitude de la composante démodulée à $2f$ pour favoriser, dans ce cas, la détection d'un champ ayant un fort gradient vertical (suivant la direction oz dans la figure 17). L'image 18(b) obtenue dans ces conditions mettrait alors en valeur ce champ dont les caractéristiques et la localisation spatiale (hors du cœur) l'attribuerait à un mode du type LP_{11} se propageant dans la fibre. La présence de ce mode pourrait être expliquée par la faible longueur de la fibre étudiée (~ 50 cm) dans laquelle la propagation n'aurait pas encore eu le temps d'isoler le mode fondamental, qui seul devrait pouvoir se propager dans cette fibre en 'régime permanent'. Notons que le contraste présent dans l'image 18(a) disparaît complètement lorsque nous analysons l'amplitude du signal optique de fréquence $2f$, laissant supposé un fort confinement vertical de la composante du champ révélée dans 18(b).

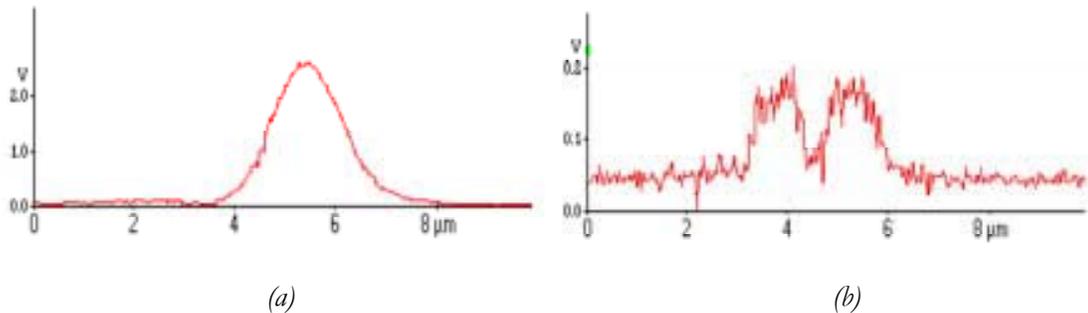


Figure 19 : (a) Profil de l'intensité suivant la coupe T dans la figure 18(a) montrant une largeur, à I_{max}/e^2 , de $2,7 \mu m$. Ce profil correspondrait à celui du mode fondamental LP_{01} se propageant dans le cœur de la fibre.

(b) Profil de l'intensité, effectué suivant T, dans la figure 18(b). Ce profil correspondrait à un mode du type LP_{11} localisé à quelques microns du cœur de la fibre.

En effet, les profils 19(a) et 19(b) effectués suivant T dans les images 18(a) et 18(b) montrent qu'un ordre de grandeur sépare les intensités maximales enregistrées dans les deux cas. Notons également que si la figure 18(a) représente le profil du mode LP_{01} se propageant dans la fibre, sa largeur de $2,67 \mu\text{m}$ (au lieu des $3,4 \mu\text{m}$ calculés), mesurée à I_{max}/e^2 dans 19(a), illustrerait un manque de sensibilité de la mesure SNOM dans ce cas. Ce manque de sensibilité pourrait provenir de la détection placée en champ lointain (photomultiplicateur), dont la dynamique a été ajustée de manière à éviter la saturation.

4. Conclusion.

Bien que très préliminaires, les résultats que nous venons de présenter nous semblent prometteurs tant sur le plan de la caractérisation optique locale des guides d'onde que sur la caractérisation de la mesure SNOM en elle-mêmes.

D Conclusion.

Nous avons étudié, en champ proche, le mode généré par une double hétéro-jonction laser. La connaissance de la structure géométrique du cristal laser ainsi que celle du mode qu'il génère en champ lointain nous a permis d'analyser, qualitativement, le contenu de l'image SNOM en fonction de l'amplitude de vibration de la sonde, de l'angle de détection en champ lointain et de la fréquence de démodulation synchrone. Grâce à cette étude nous avons déterminé les paramètres expérimentaux les mieux adaptés à l'étude des propriétés optiques en champ proche de la diode laser en fonctionnement. La sensibilité de la mesure SNOM nous a ainsi permis de caractériser en champ proche le mode émis par la diode laser lors de son fonctionnement en émission stimulée. Dans ce cas, nous avons pu retrouver, quantitativement, les caractéristiques du mode mesurées en champ lointain. Lors du fonctionnement de la diode en émission spontanée, la mesure SNOM nous a donné des informations relatives à la structure géométrique de la face émettrice du cristal laser. La mesure SNOM s'est alors montrée sensible à la structure diélectrique de la surface de la diode.

Nous avons également étudié la réponse diélectrique de la surface du cristal laser lors de son excitation par une source externe. Nous avons alors discuté le contenu de l'image SNOM en fonction de la direction selon laquelle l'interaction *sonde-champ diffracté-surface* est analysée dans une configuration d'éclairage définie. L'interprétation de ces résultats soulève encore beaucoup d'interrogations qui nous semblent fondamentales dans la compréhension des effets physiques qui interviennent lors d'une 'mesure' SNOM. Nous nous sommes, néanmoins, efforcés d'y apporter des réponses susceptibles d'expliquer le contraste SNOM observé.

La dernière partie de ce chapitre a été consacrée à l'étude SNOM du champ émis par une fibre optique monomode. Les premiers résultats, présentés ici, semblent confirmer la sensibilité d'une analyse de la composante de fréquence $2f$, présente dans le signal optique modulé par la sonde, à des champs ayant un fort gradient spatial (comportement déjà observé lors de l'étude de la diode en émission). Pour les raisons que nous évoquons au §C1., ce domaine d'étude fait l'objet de toute notre attention actuellement.

Dans le chapitre IV de ce manuscrit nous nous intéresserons au comportement d'une sonde diffusante soumise à un champ électromagnétique lumineux. En particulier, nous verrons quelles conditions sont à satisfaire sur l'orientation du vecteur champ électrique pour que la sonde métallique agisse comme une source locale de lumière.

E Références.

1. Ben-Ami U., *et al.*, *Near-infrared contact mode collection near-field optical and normal force microscopy of modulated multiplied quantum well lasers*. Applied Physics Letters, 1996. **68**(17), 2337-2339.
2. Buratto S.K. and al., *imaging of InGaAsP quantum-well lasers using near-field scanning optical microscopy*. Journal of Applied Physics, 1994. **76**(12), 7720-7725.
3. Lienau Ch., Richter A., and Elsaesser T., *Light-induced expansion of fiber tips in near-field scanning optical microscopy*. Applied Physics Letter, 1996. **69**(3), 325-327.
4. Richter A., *et al.*, *Optical near-field photocurrent spectroscopy: a new technique for analysing microscopic aging processes in optoelectronic devices*. Appl. Phys. Lett., 1996. **69**(26), 3981-3982.
5. Singh J., *Semiconductor Optoelectronics*. Electrical Engineering Series, ed. P.a. Technology. Vol. 1. 1995, New York: Mac Graw Hill. 725 pages.
6. Casey H.C. and Panish M.B., *Heterostructure Lasers*. 1978, New York: Academicpages.
7. Wurtz G., Bachelot R., and Royer P., *A reflection-mode apertureless scanning near-field optical microscope developed from a commercial scanning probe microscope*. Review of Scientific Instruments, 1998. **69**(4), 1735-1743.
8. Hecht B., *et al.*, *Facts and artefacts in near-field optical microscopy*. Journal of Applied Physics, 1997. **81**(6), 2492-2497.
9. Madrazo A., *et al.*, *Polarization effects in the optical interaction between a nanoparticle and a corrugated surface: implications for apertureless near-field microscopy*. Journal of the Optical Society of America A, 1998. **15**(1), 109-119.
10. Laddada R., *et al.*, *Detection of an evanescent field scattered by silicon tips in an apertureless scanning near-field optical microscope*. The European Physical Journal, 1999. **6**(2), 171-178.
11. Stage DEA de Viardot G., *Analyse d'images obtenues par microscopie à balayage à sonde locale.*, Compiègne. 1998, Université de Technologie de Compiègne.
12. Bryngdahl O., *Evanescent waves in optical imaging*. Progress in Optics, 1973, 169-218.
13. Adam P.M., *et al.*, *Analysis of the influence of the tip vibration in the formation of images in apertureless scanning near-field optical microscopy*. Optics Communications, 2000. **a paraître**.
14. Thèse de Trannoy N., *Contribution à l'étude d'effets thermiques liés à l'excitation laser dans un microscope à effet tunnel : étude de l'échantillon et de la pointe, rôle du couplage pointe-échantillon.*, Champagne-Ardenne. 1997, Reims champagne-Ardenne: Reims.

15. Bragas A.V., Landi S.M., and M. O.E., *Laser field enhancement at the scanning tunneling microscope junction measured by optical rectification*. Applied Physics Letters, 1998. **72**(17), 2075-2077.
16. Huber R., Koch M., and Feldmann J., *Laser-induced expansion of a scanning tunneling microscope tip measured with an atomic force microscope*. Applied Physics Letters, 1998. **73**(17), 2521-2523.
17. Thèse de Laddada R., *Réalisation d'un microscope optique en champ proche à sonde sans ouverture : étude expérimentale et théorique du contraste des images optiques*, Compiègne. 1999, Université de Technologie de Troyes: Troyes.
18. Choo A.G., et al., *Photon scanning tunneling microscopy of optical channel waveguides*. Ultramicroscopy, 1995. **57**, 124-129.
19. Huntington S.T., et al., *Field characterization of a D-shaped optical fiber using scanning near-field optical microscopy*. Journal of Applied Physics, 1997. **82**(2), 510-513.
20. Thèse de Mignard F., *Microscopie optique en champ proche de dispositifs optoélectroniques intégrés*, Versailles. 1999, Paris 7: Paris.
21. Vander Rhodes G.H., Goldberg B.B., and Ünlü M.S., *Measurement of internal spatial modes and local propagation properties in optical waveguides*. Applied Physics Letters, 1999. **75**(16), 2368-2370.
22. Taylor R.S., et al., *Scanning probe optical microscopy of evanescent fields*. Review of Scientific Instruments, 1998. **69**(8), 2981-2987.
23. Tsai D.P., et al., *Imaging local index variations in an optical waveguide using a tapping-mode near-field scanning optical microscope*. Applied Physics Letters, 1999. **75**(8), 1039-1041.
24. Jeunhomme L.B., *Single-mode fiber optics*. Deuxième ed. Optical Engineering, ed. T. B.J. 1990, New York: Dekker M.pages.

Chapitre IV : Mise en évidence de l'effet de pointe optique par photo-polymérisation locale

A Introduction.159

B L'effet de pointe..160

1. Introduction.160

2. L'effet de pointe en électrostatique classique.160

3. L'effet de pointe en microscopie optique en champ proche.....162

4. Conclusion.....164

C La formulation photosensible.....166

1. Introduction.166

2. Composition de la résine.166

2.1. L'amorceur.166

2.2. Le co-amorceur167

2.3. Le monomère167

3. Mécanisme réactionnel168

4. Conclusion.....172

D Mise en évidence de l'effet de pointe optique.....173

1. Introduction173

2. Montage expérimental.....173

3. Procédure expérimentale.176

4. Notion de seuil de polymérisation177

5. Résultats et discussion178

5.1. Effet de pointe: excitation radiative178

5.2. Effet de pointe: excitation évanescente.183

5.3. Expérience complémentaire.185

6. Conclusion.....187

E Conclusion et perspectives189

F Références.....191

Chapitre IV : **Mise en évidence de l'effet de pointe optique par photo-polymérisation locale**

A Introduction.

Au cours du chapitre III, nous avons analysé le contenu de l'image SNOM en fonction des paramètres d'éclairage et de détection (c. f. conclusion du chapitre III). Nous avons alors prêté à la sonde le rôle de détecteur local, retranscrivant le champ diffracté dans le voisinage proche de la surface de la diode. En réalité, le comportement de la sonde, lorsque celle-ci est soumise à un champ électromagnétique, dépend fortement des caractéristiques de ce champ. L'étude de ce comportement est à la base de la compréhension de l'interaction *sonde-champ électromagnétique-surface* que nous analysons lors de nos mesures SNOM et représente à ce titre un passage obligé dans la compréhension des mécanismes qui gouvernent l'imagerie SNOM.

Dans ce chapitre nous mettons en évidence la capacité d'une sonde diffusante métallique à agir comme une source lumineuse locale.

Nous commencerons ce chapitre en rappelant qualitativement comment l'électrostatique classique prévoit l'effet de pointe. Après un aperçu des principaux travaux théoriques et expérimentaux effectués en SNOM sur ce sujet, nous donnerons les conditions à satisfaire pour exciter l'effet de pointe. Nous concluons cette partie en proposant une expérience de photo-polymérisation qui nous permettra de mettre en évidence expérimentalement l'exaltation du champ en extrémité d'une sonde métallique. Ceci sera traité dans la partie B.

La partie C sera consacrée à la présentation de la formulation chimique qui nous servira de support à la 'matérialisation' du champ exalté en extrémité de sonde.

La partie D nous permettra de décrire précisément cette expérience et de présenter les résultats que nous obtenons. Nous discuterons, en particulier, l'influence de l'état de polarisation sur l'effet de pointe et analyserons les résultats obtenus en fonction des différents paramètres qui interviennent dans cette étude particulière.

Nous concluons, finalement, en donnant les motivations et les perspectives de l'étude en cours.

B L'effet de pointe.

1. Introduction.

Dans ce paragraphe nous montrerons comment l'électrostatique classique prévoit la singularité du champ électrique au voisinage d'une arête. Nous présenterons également quelques résultats importants obtenus par différents groupes de recherche dans l'étude de l'exaltation du champ au voisinage d'une sonde diffusante et dans son utilisation en microscopie optique en champ proche.

2. L'effet de pointe en électrostatique classique.

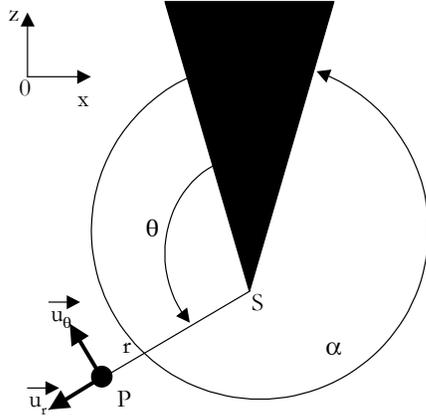
Dans un conducteur soumis à un champ externe, la condition d'équilibre électrostatique s'écrit pour le champ électrique \vec{E} [1] :

$$\vec{E} = 0 \quad (\text{IV-1})$$

Ce qui implique, d'après la relation $\epsilon_0 \text{div} \vec{E} = \rho$ (ϵ_0 étant la permittivité du vide), que la densité volumique de charge ρ est nulle à l'intérieur du métal. Les charges sur les conducteurs sont donc purement superficielles. D'après (IV-1) le potentiel électrostatique est constant sur la surface du conducteur, surface qui représente ainsi une équipotentielle : $V_s = \text{constante}$. Les lignes de forces étant normales à ces surfaces, le champ électrique est normal à la surface au voisinage immédiat de cette dernière et s'écrit sous la forme : $\vec{E} = -\epsilon_0 \frac{dV}{d\vec{n}}$; $\frac{dV}{d\vec{n}}$ désignant la dérivée du potentiel suivant la normale extérieure de la surface du conducteur.

Pour les surfaces présentant une arête (c. f. figure 1), la normale à la surface présente une discontinuité (l'extrémité de la pointe peut être représenté par le point S sur la figure 1) qui tend à donner au champ électrique une valeur infinie en ce point. Nous pouvons aisément nous rendre compte de ce phénomène en analysant le développement au premier ordre en r (valide lorsqu'on se trouve au voisinage de l'arête) du potentiel dans le cas particulier d'une arête rectiligne infinie

soumise à un potentiel induisant une densité de charge surfacique non nulle au niveau du point singulier S (c. f. figure 1) [1] :



Le potentiel électrostatique s'écrit alors :

$$V(r, \theta) \equiv V_s + A \cdot r^{\frac{\pi}{\alpha}} \cdot \sin\left(\frac{\pi}{\alpha} \cdot \theta\right) \quad (\text{IV-2})$$

- où
- V_s est le potentiel dans le conducteur,
 - A est une constante qui dépend des conditions aux limites prises sur le potentiel d'excitation.

Figure 1 : Conducteur présentant une singularité possible du champ et des sources.

D'où nous déduisons l'expression du champ électrique au point P :

$$\vec{E}(r, \theta) = -\frac{\pi}{\alpha} \cdot A \cdot r^{\left(\frac{\pi}{\alpha}-1\right)} \cdot \cos\left(\frac{\pi}{\alpha} \cdot \theta\right) \vec{u}_\theta - \frac{\pi}{\alpha} \cdot A \cdot r^{\left(\frac{\pi}{\alpha}-1\right)} \cdot \sin\left(\frac{\pi}{\alpha} \cdot \theta\right) \vec{u}_r \quad (\text{IV-3})$$

Analysons, par exemple, le comportement de la projection du champ suivant \vec{u}_θ . L'expression (IV-3) nous montre que si $\alpha > \pi$, i. e. lorsqu'on a effectivement une arête saillante (cas de la pointe), le champ électrique devient infini au point S. En effet, dans le cas où $\frac{\pi}{\alpha} - 1 < 1$, lorsque r tend vers 0, i. e. lorsque le point P se rapproche du point S, le champ électrique tend vers une valeur infinie.

Ainsi, si nous supposons que la figure 1 est une représentation 2D de notre sonde métallique, et si nous éclairons cette sonde avec une onde plane polarisée circulairement, par exemple, la composante du champ incident orientée selon Oz sur la figure 1 présentera une discontinuité au point S et verra son intensité exaltée au voisinage immédiat de ce point.

Une étude plus complète du comportement du champ électrique, dans l'approximation quasi statique, au voisinage immédiat d'une pointe en présence d'une source peut être trouvée en référence [2]. L'auteur, J. Van Bladel, traite, en particulier, le cas du champ électromagnétique au voisinage d'un cône pointu en fonction de ses caractéristiques géométriques et des caractéristiques du champ d'excitation (polarisation, angle d'incidence,...). Dans le cas de l'optique en champ proche le problème peut se compliquer dans la mesure où le calcul du champ électrique au voisinage de la sonde doit également tenir compte de la forme macroscopique de la sonde et de la présence de la surface ([3] par exemple).

3. L'effet de pointe en microscopie optique en champ proche.

Depuis le récent développement des SNOM utilisant des sondes diffusantes, l'étude du champ électromagnétique dans le voisinage proche de l'extrémité d'une telle sonde fait l'objet d'un intérêt grandissant dans la communauté SNOM. En effet, des travaux théoriques ont déjà montré qu'une sonde métallique éclairée par une source laser polarisée selon l'axe de la sonde génère un champ fortement localisé à l'extrémité de cette dernière [3-7], l'intensité de ce champ pouvant même être 3000 fois plus intense que celle du champ incident [6]. **Cet 'effet de pointe' explique comment une sonde diffusante peut être considérée comme source lumineuse locale.**

Comme exemple de résultats théoriques, on peut retenir ceux présentés en référence [6] où les auteurs calculent le champ proche d'une sonde en or dans les cas où l'onde incidente est polarisée soit perpendiculairement à l'axe de la sonde ou selon l'axe de celle-ci. Ces résultats sont représentés, respectivement, par les figures 2(a) et 2(b) ; la figure 2(c) décrit la répartition des charges surfaciques induites dans les deux cas de polarisation incidente. La légende de ces figures est fidèle à celles données en [6]. Ces figures mettent en évidence des différences notables du comportement de la sonde en fonction de la polarisation de l'onde incidence. En effet, dans le cas de la figure 2(a) l'exaltation n'a pas lieu, alors que l'intensité dans cette région, voisine de l'extrémité de la sonde, est environ 3000 fois plus importante que l'intensité du champ incident lorsque le champ est orienté dans l'axe de la sonde (figure 2(b)). Notons que pour $\lambda=810$ nm, l'or ne présente pas de résonance plasmon qui pourrait participer ou expliquer l'importance de cette exaltation.

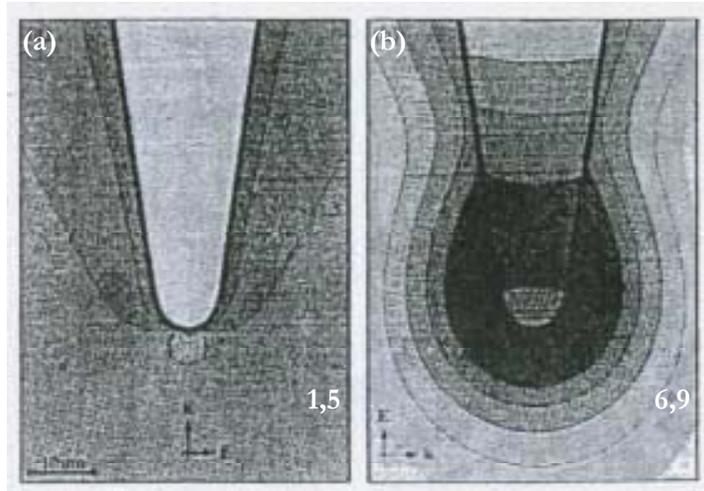


Figure 2 : Champ proche d'une sonde en or plongée dans l'eau et éclairée par deux ondes monochromatiques différentes à $\lambda=810$ nm. La direction de propagation des deux ondes ainsi que l'orientation du champ sont indiquées par les vecteurs \mathbf{k} et \mathbf{E} . Les figures représentent les lignes d'isointensité E^2 (facteur 2 entre deux lignes successives). L'échelle est donnée par les nombres dans chacune des figures (multiples du champ exciteur).

(a) Pas d'exaltation du champ incident,

(b) Exaltation d'un facteur 3000 du champ incident. Le champ est approximativement symétrique dans le voisinage immédiat de la sonde.

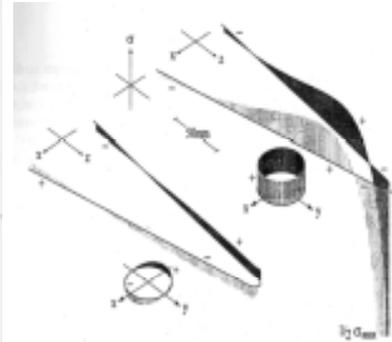


Figure 2(c) : Densité surfacique de charge induite par le champ d'excitation correspondant aux fig. 2(a) (à gauche) et fig. 2(b) (à droite). Dans chacun des deux cas il s'agit de la charge de surface d'une onde stationnaire. Dans la figure 2(a) la charge de surface représente un nœud en extrémité de sonde alors que dans la figure 2(b) il y a une forte accumulation de charge dans cette même région, accumulation responsable de l'exaltation du champ.

Un comportement similaire du champ autour d'une pointe en tungstène de forme pyramidale a été calculé par O. J. F. Martin et C. Girard [3] ; dans ce cas, comme dans [5] le calcul du champ tient compte de la présence d'une surface diélectrique à proximité de la sonde. La présence de la surface, même parfaitement plane, à une influence importante sur l'intensité du champ au voisinage de la pointe. En effet, H. Furukawa *et al.* [8], par exemple, montrent que l'effet de pointe peut, dans ce cas-là, également se manifester autour d'une sonde diélectrique, bien que l'effet soit ici plus modeste que pour une sonde métallique (facteur 7 entre l'intensité du champ sous la pointe et celle du champ incident alors qu'en absence de surface une pointe diélectrique ne génère pas d'exaltation du champ). Les auteurs attribuent cette exaltation locale du champ

incident aux multiples diffusions qui se produisent entre la sonde et le substrat mais celle-ci peut aussi être due aux rugosités qui forment la surface [4].

Une expression analytique de ce champ pour une pointe en tungstène conique, donnée en référence [2, 5], permet de déduire directement la dépendance en ' $\sin^2(\beta)$ ' de l'intensité du champ à l'apex de la pointe en fonction de l'angle β que fait la direction du champ incident avec la perpendiculaire à l'axe de la sonde. Cette dépendance a d'ailleurs été retrouvée expérimentalement par L. Aigouy *et al* [9] en détectant, en champ lointain, le signal diffusé par la pointe sur une surface de silicium en fonction de la polarisation du champ incident.

L'effet de pointe a également fait l'objet d'études expérimentales [9-12] et fut utilisé pour étudier les propriétés optiques d'objets de taille sub- λ [11, 13]. Nous pouvons, pour exemple, citer l'étude rapportée en [13]. Les auteurs de ce travail utilisent l'effet de pointe dans l'imagerie de fluorescence par absorption à deux photons en générant une excitation locale. Ceci leur permet, en particulier, d'isoler plus facilement le signal provenant du champ proche de l'échantillon en filtrant le bruit que représente la lumière incidente.

4. Conclusion - expérience proposée.

Le rapide état de l'art que nous venons d'effectuer montre à quel point la communauté SNOM s'investit dans l'étude de l'effet de pointe. La compréhension de ce phénomène est bien entendu justifiée par l'utilisation de la sonde comme source lumineuse dans les études qui nécessitent une excitation locale (spectroscopie...), mais est également à la base de l'étude du comportement de la sonde comme détecteur local d'un champ électrique. En effet, dans son utilisation pour la caractérisation optique locale du champ diffracté par une surface (c. f. §4. du chapitre III), la sonde jouerait un rôle bien plus important que celui de détecteur 'passif', ses caractéristiques géométriques et chimiques lui prêtant une sensibilité 'électromagnétique' accrue dans la diffusion des champs, favorisant l'effet de pointe. Il est évident que les conséquences d'un tel comportement sur la cartographie du champ au voisinage d'une surface font de l'interprétation des images SNOM un exercice délicat, la sonde pouvant agir ponctuellement, lors de l'imagerie, comme une source locale. Mais sans aller plus avant dans ces considérations, l'étude du

diagramme de rayonnement en champ proche d'une sonde diffusante, en fonction des caractéristiques du champ auquel elle est soumise, apparaît comme capitale.

Pour effectuer cette étude, nous proposons une expérience de photo-polymérisation locale où une sonde diffusante en tungstène servira de source actinique. Comme nous l'avons annoncé en introduction à ce chapitre, la photo-polymérisation à l'échelle locale, que nous traiterons dans la partie D du chapitre, est un premier pas dans la cartographie (nous voudrions dire 'matérialisation') du champ proche de la sonde lorsque celle-ci est soumise à une excitation lumineuse définie. Notons qu'une expérience 'similaire' a été effectuée par S. Davy et M. Spajer [14] pour déterminer le confinement du champ en sortie d'une fibre optique métallisée (la description de ces sondes est donnée au §2.2.1 du chapitre I).

Auparavant, nous décrivons dans la partie C, la formulation photopolymérisable que nous avons utilisée.

C La formulation photosensible.

1. Introduction.

La formulation photopolymérisable nous est fournie par le Département de Photochimie Générale (DPG) de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Mulhouse (ENSCMu), laboratoire avec lequel nous collaborons dans cette étude. Le choix de cette formulation est basé sur deux critères importants : l'*amorçage photo-induit* du processus de polymérisation qui a lieu dans le visible et la *sensibilité spatiale nanométrique* de ce processus. Cette sensibilité spatiale a été étudiée lors du travail de thèse effectué par C. Belin [15] qui démontra la faisabilité d'une activation de la polymérisation par une onde évanescente de Fresnel (générée par RTI dans un prisme). Elle obtint ainsi des films polymères d'épaisseur nanométrique.

Dans ce paragraphe, nous présentons cette résine. Nous nous intéresserons plus particulièrement aux spécificités physico-chimiques de la réaction de polymérisation en évoquant les facteurs qui vont en faveur de la mise en évidence de l'effet de pointe et ceux qui pourraient le concurrencer.

2. Composition de la résine.

La formulation utilisée comporte trois composés chimiques : l'amorceur (0,5% en masse), le co-amorceur (8% en masse) et le monomère.

2.1. L'amorceur.

L'amorceur (ou colorant) choisi est l'Eosine Y (tétrabromofluorescéine). Sa formule chimique est donnée par la figure 3(a). Son spectre d'absorption dans le 2-méthoxyéthanol, reporté sur la figure 3(b), met en évidence une bande d'absorption dont le maximum est situé dans le visible vers 528 nm.

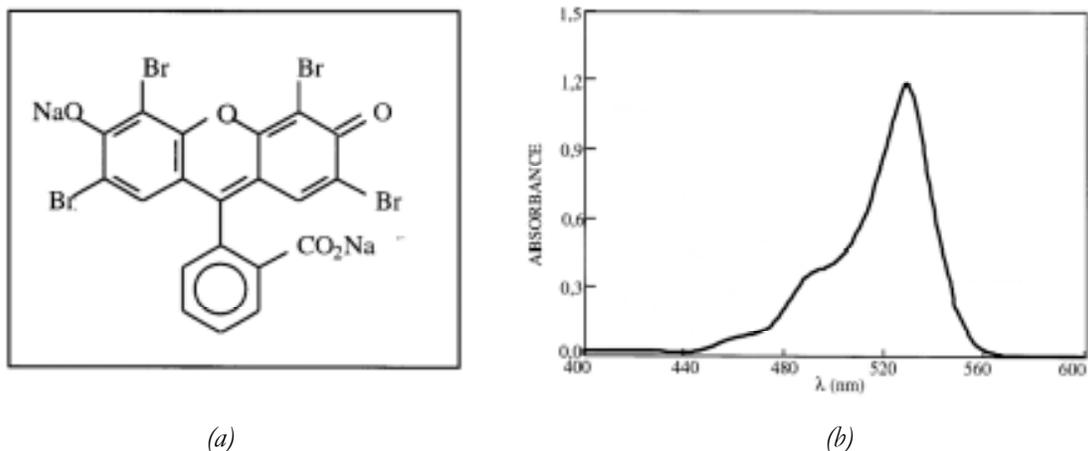


Figure 3 : L'amorceur,

(a) Formule chimique semi-développée de l'Eosine Y,

(b) Spectre d'absorption de l'Eosine Y dans le 2-méthoxyéthanol. Le maximum d'absorption est situé dans le visible vers 528 nm.

2.2. Le co-amorceur.

C'est une amine ternaire (MDEA : N-methyldiethanolamine) qui permet de générer les radicaux libres qui réagissent avec le monomère pour amorcer la polymérisation. Il interviendra dans la réaction comme radical primaire. Sa formule chimique est donnée par la figure 4 :

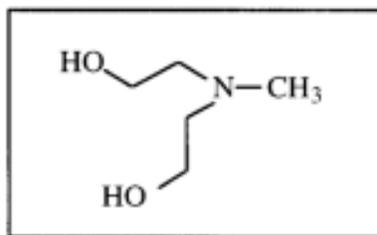


Figure 4 : Le co-amorceur, formule chimique semi-développée du MDEA.

2.3. Le monomère.

Le monomère est le pentaerythritoltriacrylate (PETIA). C'est une résine acrylate trifonctionnelle présentant une grande réactivité dans les réactions de polymérisation radicalaire. Sa formule chimique est donnée par la figure 5 :

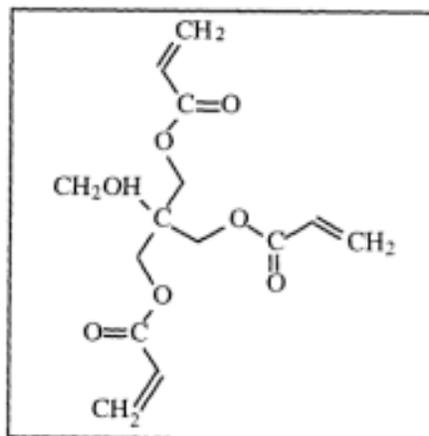


Figure 5 : Le monomère, formule chimique semi-développée du PETLA.

En raison de ses trois groupements réactifs, susceptibles d'intervenir dans la formation du polymère, ce dernier se développe en un réseau tridimensionnel. En cours de polymérisation, l'indice du polymère augmente d'une valeur de 1,486 (indice de réfraction du monomère à 20°C) à une valeur voisine de 1,52 pour le polymère gélifié. Le polymère est considéré comme étant gélifié lorsqu'il est suffisamment rigide pour ne plus être soluble dans le monomère. Pratiquement, c'est la fraction de polymère qui 'est juste' insoluble au rinçage lors de la fabrication de films polymères [16]. L'obtention de ce polymère nécessite l'apport d'une quantité d'énergie minimale appelée dose seuil qui correspond au seuil de gélification. Notons cependant que l'énergie nécessaire à l'amorçage de la polymérisation est inférieure à ce seuil. Nous reviendrons brièvement sur la notion de seuil de polymérisation, que nous redéfinirons, au §D.4 de ce chapitre.

3. **Mécanisme réactionnel.** [17, 18]

La polymérisation suit un mécanisme radicalaire amorcé par voie photochimique [19]. La figure 6 décrit schématiquement ce mécanisme :

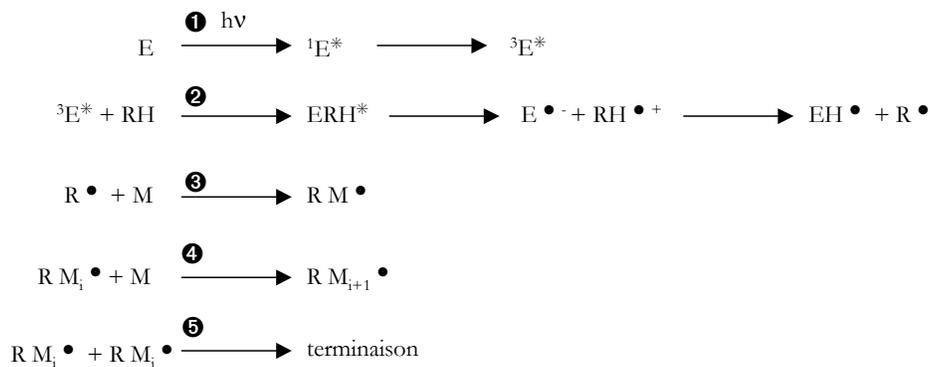


Figure 6 : Mécanisme réactionnel principal.

où : E est l'Eosine,

R est l'amine,

M est le monomère,

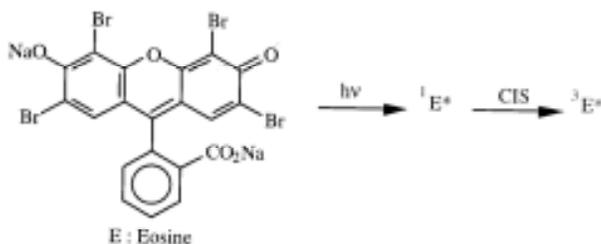
X^\bullet est le radical de l'espèce chimique considérée,

${}^nX^*$ représente l'état excité n de l'espèce chimique X ; n=1 pour l'état singulet,

n=3 pour l'état triplet,

M_i est le polymère composé de i monomères.

L'amorçage du processus de polymérisation est, dans notre cas, assuré par la raie verte ($\lambda=543$ nm) d'une source laser He-Ne (c. f. spectre d'absorption de l'Eosine figure 3). La molécule photosensible (E) va, sous l'effet de cette radiation lumineuse, passer dans son premier état excité singulet S_1 (${}^1E^*$). Cet état singulet est favorable à diverses réactions dont le passage à l'état triplet T_1 (${}^3E^*$) par conversion intersystème (CIS) non radiative (étape ① sur la figure 6) :



Etape ① sur la figure 6.

Il existe, cependant, plusieurs processus de désactivation qui peuvent intervenir lors de cette étape [20]. Le diagramme donné par la figure 7 présente ces différents processus de désactivation :

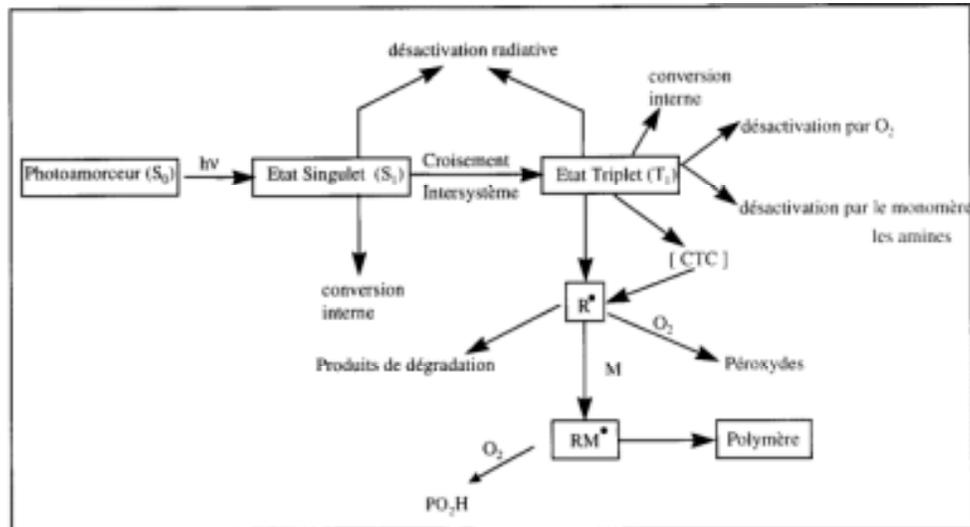


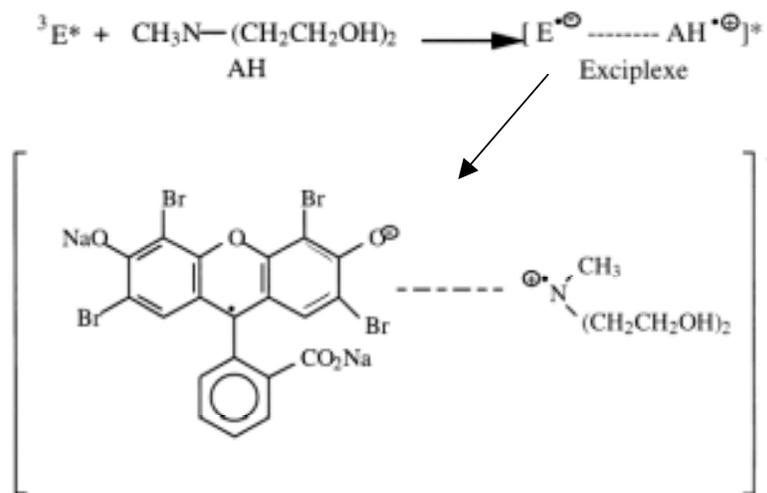
Figure 7 : Diagramme présentant les différents processus de désactivation pouvant intervenir dans la polymérisation. On s'intéresse principalement aux premières étapes de ce processus : l'amorçage photoinduit qui génère les états excités de l'amorceur ; cette étape est la plus marquée par la présence d'oxygène dans la formulation.

Comme le montre la figure 7, l'oxygène intervient dans plusieurs étapes au cours des réactions d'activation et de polymérisation, mais son rôle est crucial lors de l'étape d'amorçage photoinduit qu'il inhibe pendant un certain temps. Durant ce temps, où l'oxygène est consommée par l'amorceur photoexcité, la concentration en oxygène dans la formulation est supérieure à une valeur limite qui détermine le seuil énergétique d'initiation de la polymérisation, le processus de désactivation par l'oxygène est alors dominant et la polymérisation ne peut débuter. Dans notre cas, la formulation étant en contact direct avec l'atmosphère, l'effet inhibiteur de l'oxygène est également lié à la diffusion des molécules d'oxygène de l'air vers la résine. Il a été montré en référence [21] que ces systèmes ouverts rendent l'obtention de couches polymère, d'épaisseur

micronique, extrêmement difficile voire impossible. Ce dernier point est important dans l'étude que nous présentons dans la mesure où cet effet favoriserait le confinement spatial de l'initiation de la polymérisation dans une région où l'exaltation du champ incident est suffisamment importante i. e. en extrémité de sonde. Il permettrait ainsi de matérialiser le diagramme de rayonnement champ proche de la sonde et conjointement permettrait l'obtention d'objet de taille sub- λ par nano-lithographie (c. f. conclusion §B).

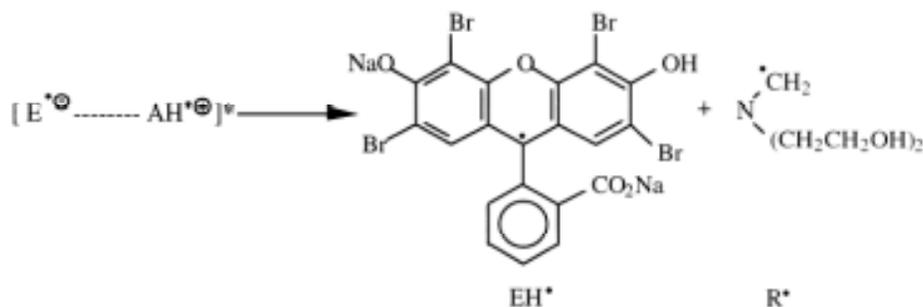
Deux phénomènes liés au comportement de l'Eosine au cours de cette première étape, peuvent néanmoins nuire au confinement spatial de la réaction : le *photoblanchiment* et la *fluorescence*. Le photoblanchiment traduit la décoloration de l'amorceur lors de son exposition à la lumière. Dans cet état, ce dernier est transparent à l'onde incidente entraînant une augmentation de la profondeur de pénétration de la lumière dans la formulation, préjudiciable au confinement de la réaction. D'autre part, le spectre d'émission et d'absorption de l'Eosine se recouvrant partiellement, un photon absorbé peut donner lieu à l'émission d'un photon de fluorescence, qui peut à son tour être absorbé par une autre molécule d'Eosine pour amorcer la polymérisation. L'Eosine joue alors le rôle d'une source secondaire susceptible d'induire une polymérisation indésirable. Notons que la diffusion des différentes espèces chimiques formées au cours de la réaction est un troisième facteur pouvant nuire à la résolution spatiale de la polymérisation.

Lorsque la concentration d'oxygène est suffisamment faible, l'Eosine, dans son état triplet, réagit alors avec l'amine pour former un complexe à transfert de charge qui met en jeu un transfert d'électron de l'amine vers le colorant :



Etape ② sur la figure 6.

Cette réaction est suivie d'un transfert de proton de l'amine vers le colorant :



Etape ② (suite) sur la figure 6.

Le radical primaire R^\bullet , ainsi formé, amorce alors la polymérisation (c. f. Etape ③, ④ et ⑤ sur la figure 6).

4. Conclusion.

Cette résine nous servira de support matériel tridimensionnel pour la cartographie de l'effet de pointe. La sensibilité spatiale de la polymérisation fera d'elle une excellente candidate pour cartographier l'intensité d'un champ localisé, mais en contrepartie il faudra s'attendre à ce que cette cartographie soit affectée des propriétés chimiques intrinsèques à la formulation. En particulier, seule l'intensité du champ, et non son orientation, pourra être retranscrite lors de la réaction, et ceci dans des conditions énergétiques d'initiation qu'il faudra définir.

Nous tenterons d'interpréter les résultats suivants en faisant appel aux propriétés de la formulation que nous venons de décrire.

D Mise en évidence de l'effet de pointe optique.

1. Introduction.

Cette partie est consacrée à la polymérisation locale, initiée par effet de pointe optique. Plus précisément, il s'agit ici d'une étude menée pour valider, sans ambiguïté, le concept de source lumineuse qu'on prête à une sonde diffusante métallique (c. f. §B de ce chapitre).

Nous donnerons, dans ce paragraphe, les principaux résultats qui permettent de mettre en évidence le rôle de source lumineuse locale que peut tenir une sonde diffusante métallique. Nous avons testé deux configurations expérimentales correspondant à deux géométries d'éclairage de la pointe. Nous présenterons et commenterons les résultats obtenus dans ces configurations.

2. Montage expérimental.

Le montage expérimental comprend :

- une sonde métallique en tungstène dont l'allure est donnée par la figure 17 du chapitre II, cette sonde est utilisée pour activer le processus de polymérisation ; et pour caractériser le résultat par AFM,
- une source lumineuse qui permet d'exciter l'effet de pointe. Il s'agit de la raie verte ($\lambda=543$ nm) d'un laser He-Ne. Un système optique, composé d'une lame quart d'onde placée entre deux polariseurs, permet de contrôler la polarisation (taux de polarisation $\sim 1/3000$) du faisceau incident sans modifier son intensité. Le faisceau incident, éclairant le système *sonde-formulation photosensible*, est collimaté (diamètre ~ 800 μm : sortie directe du laser) et a une intensité de 0,8 mW,
- une couche de formulation déposée, par racle ou 'spin-coating', sur un substrat de verre. L'épaisseur de cette couche varie entre 1 μm et 10 μm selon des conditions de dépôt.

Nous avons utilisé deux montages expérimentaux différents. Les figures 8(a) et 8(b) les représentent schématiquement. Ils se distinguent par la nature de l'éclairage du système *sonde-formulation photosensible*.

La figure 8(a) représente la configuration expérimentale dans laquelle le système *sonde-formulation photosensible* est éclairé en réflexion par un champ radiatif. Les conditions d'éclairage y sont définies par $\theta_i = 80^\circ$ et par un état de polarisation P_i qui peut être ajusté de manière à orienter la direction de vibration du champ incident sur 90° par rapport à l'axe du corps de la pointe. Compte tenu des conditions d'éclairage, une grande partie du corps de la sonde (environ $400 \mu\text{m}$) ainsi qu'une surface importante de la formulation (environ $3 \times 10^{-2} \text{ cm}^2$) sont illuminées au cours de l'exposition. Le choix d'un éclairage en faisceau collimaté permet d'une part, un réglage aisé du faisceau lumineux sur l'extrémité de la sonde, et nous assure, d'autre part, la connaissance de l'état de polarisation du faisceau éclairant la sonde. Rappelons que, dans le cas d'un éclairage par le biais d'un objectif de microscope, la polarisation du faisceau collimaté, au niveau de la pupille d'entrée de l'objectif, n'est conservée qu'en partie dans le plan focal de ce dernier [22], introduisant une incertitude sur l'orientation du champ électrique atteignant l'extrémité de la sonde lorsque cette dernière est éclairée de cette façon.

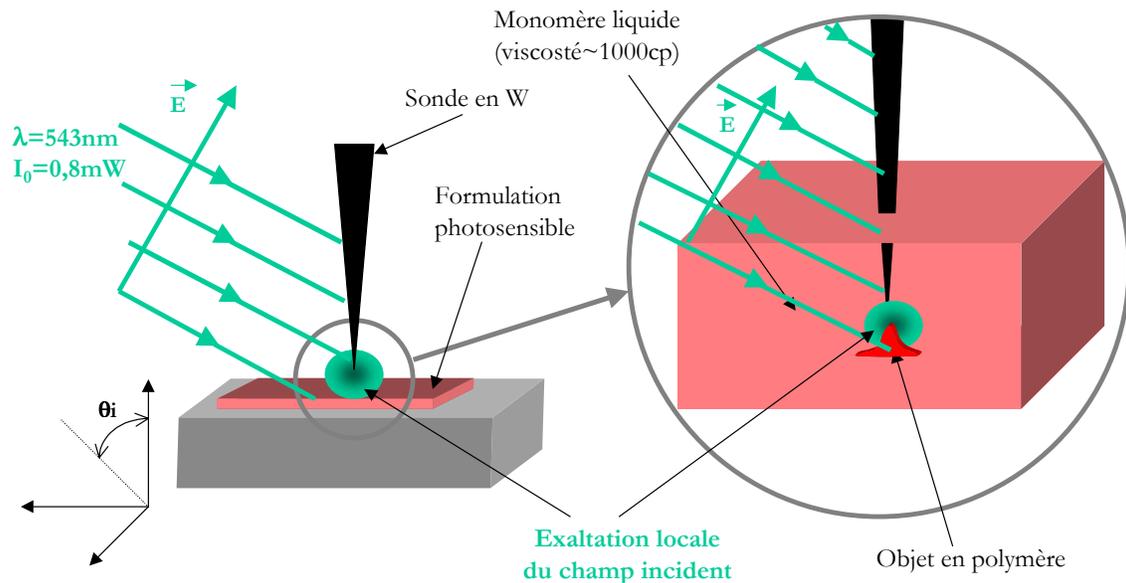


Figure 8(a) : Configuration expérimentale utilisée pour exciter l'effet de pointe en réflexion par un champ radiatif.

La figure 8(b) représente la configuration expérimentale dans laquelle le système *sonde-formulation photosensible* est éclairée par une onde évanescente de Fresnel générée à la surface du prisme par réflexion totale interne dans la formulation. Compte tenu de l'indice de réfraction du polymère ($n=1,52$) et de celui du prisme ($n_1=1,62$), l'angle d'incidence est ajusté à $\theta_i=80^\circ$ (l'angle critique θ_c est dans ce cas de 70°) pour éviter toute frustration de la réflexion totale lors de la formation du polymère. Les conditions de polarisation du champ incident sont, comme pour l'éclairage en réflexion, ajustables par rapport à l'axe de la pointe.

La profondeur de pénétration de l'onde évanescente dans la formulation, lors de l'activation de la polymérisation, peut être déterminée par la relation suivante [23] :

$$d_p = \frac{\lambda}{2\pi \cdot \sqrt{(n_1 \cdot \sin \theta_i)^2 - n_2^2}} \quad (\text{IV.4})$$

- où :
- d_p est la profondeur de pénétration de l'onde de Fresnel dans la résine,
 - λ est la longueur d'onde : $\lambda=543$ nm,
 - n_1 est l'indice de réfraction du prisme : $n_1=1,62$,
 - n_2 est l'indice de réfraction de la résine : $n_2=1,486$. En réalité, la formulation photopolymérisable contient une espèce absorbante (l'Eosine) qui rendrait l'indice du milieu complexe. Le calcul de la partie imaginaire de l'indice, en tenant compte de la concentration d'Eosine dans le mélange polymérisable ($0,0044 \text{ mol.l}^{-1}$) et de son coefficient d'extinction molaire ($50000 \text{ l.mol}^{-1}.\text{cm}^{-1}$), montre que cette dernière, égale à $5 \cdot 10^{-3}$, peut être négligée dans notre cas [16].

L'utilisation de (IV.4) avec nos paramètres expérimentaux nous permet d'estimer la profondeur de pénétration de l'onde évanescente dans la résine à 150 nm environ. Dans cette configuration d'éclairage (c. f. figure 8(b)), seule l'extrémité de la sonde sera éclairée lors de l'insolation de la formulation. Précisons que l'effet de pointe optique a été prévu théoriquement dans les deux géométries : en réflexion simple [3, 5], comme en réflexion totale interne [8].

Nous verrons, dans ce qui suit, comment notre démarche expérimentale nous a conduit à choisir l'une ou l'autre de ces configurations.

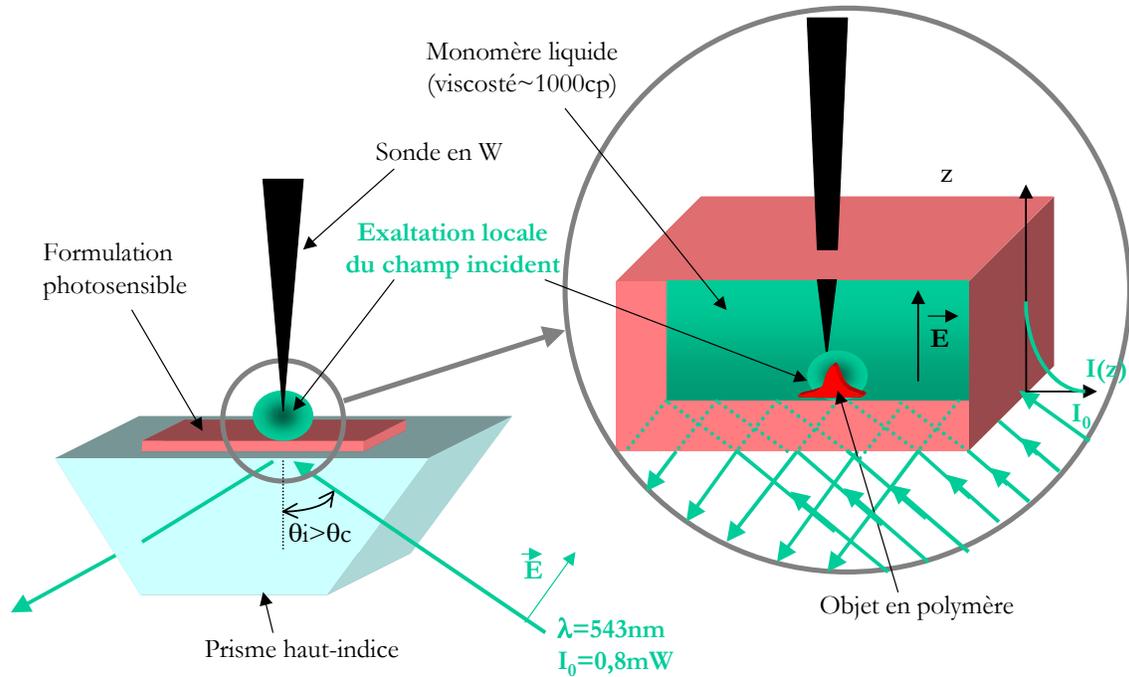


Figure 8(b) : Configuration expérimentale utilisée pour exciter l'effet de pointe par une onde évanescente de Fresnel.

3. Procédure expérimentale.

La procédure expérimentale utilisée dans cette étude comporte trois étapes successives. Dans une première étape, le système d'asservissement AFM, dans le mode contact intermittent, nous permet d'approcher l'extrémité de la sonde en tungstène à proximité du substrat de verre à travers la formulation (c. f. agrandissement sur la figure 8(a)). Lorsque la sonde est placée dans la région où l'objet en polymère va être créé, l'excitation du levier (liée au mode de fonctionnement vibrant de l'AFM) est annulée. La seconde étape consiste à éclairer le système *sonde-formulation photosensible* dans les configurations décrites par les figure 8(a) ou 8(b) (quelques secondes de manière à ce que l'énergie absorbée par la résine ne dépasse pas la dose seuil de polymérisation). Ainsi, seule l'exaltation du champ incident en extrémité de sonde, peut être à l'origine du déclenchement du processus de polymérisation. La fabrication est terminée. Dans la troisième et dernière étape le polymère produit est caractérisé, in situ par AFM, en utilisant la même sonde.

4. Notion de seuil de polymérisation.

Nous avons déjà évoqué brièvement la notion d'énergie seuil telle qu'elle a été définie au LPG à Mulhouse (c. f. §C.2.3). En plus des considérations purement chimiques qui associent ce seuil à l'énergie (produit de l'intensité incidente par le temps d'exposition) minimale nécessaire pour amorcer la polymérisation, le 'seuil' de polymérisation est également, et surtout, relatif à l'observation physique consécutive à la réaction, i. e. l'observation du polymère lui-même. On parle alors de 'seuil de gélification', i. e. l'énergie qu'il faut apporter par unité de surface pour obtenir un 'gel' (le polymère) insoluble dans le monomère. Au LPG, cette définition est complétée par l'obligation pour ce gel, qui dans leur cas est formé sur un substrat de verre, de résister au rinçage (c. f. §C.2.3).

Dans notre expérience, la formation de polymère est constatée par imagerie AFM (c. f. §D.3.). Les critères qui nous permettent de définir le seuil de polymérisation ne sont donc ni relatifs à la gélification (notion macroscopique), qui perd son sens en microscopie à sonde locale, ni relatifs à la capacité du polymère à résister à un quelconque rinçage, l'imagerie AFM étant effectuée 'in situ' dans le monomère.

En conséquence, nous considérons que le seuil de polymérisation a été atteint lorsque le polymère créé correspond à un contraste dans une image réalisée par microscopie à force atomique, i. e. à une modification des propriétés mécaniques consécutives à l'excitation de l'effet de pointe.

Remarque : la quantification de l'énergie seuil est cependant difficile dans l'état actuel des choses.

En effet, pour ces couches d'épaisseur micrométrique, les expériences faites au LPG ne prévoient qu'une limite basse pour cette énergie ($> 1 \text{ J/cm}^2$). Dans notre cas, la réaction étant photo-induite par effet de pointe, la quantification de l'énergie de seuil et de l'énergie sous la pointe s'avère d'autant plus difficile qu'elle dépend de paramètres tels que la forme de la sonde (sonde plus ou moins effilée), la taille de son extrémité terminale, la distance *sonde-substrat* durant l'exposition, l'intensité du champ incident qui participe à l'excitation de l'effet de pointe...

5. Résultats et discussions.

5.1. Excitation de l'effet de pointe par un champ progressif.

La figure 9 montre l'image AFM ($70 \times 70 \mu\text{m}^2$) d'un objet en polymère créé dans une couche de formulation photosensible de $10 \mu\text{m}$ d'épaisseur. La couche a été étalée avec une racle sur un substrat de verre. L'activation de la polymérisation a été effectuée dans les conditions expérimentales décrites par la figure 8(a). Le champ incident est principalement orienté suivant l'axe de la sonde pour satisfaire les conditions d'exaltation. Le temps d'insolation, fixé à 20 secondes, correspond à une dose ($\sim 0,5 \text{ J}/\text{cm}^2$) bien plus faible que la dose qui pourrait initier la polymérisation (typiquement $\gg 1 \text{ J}/\text{cm}^2$). L'image AFM, présentée figures 9(a) et 9(b), révèle une bosse d'une géométrie comparable à celle d'un cône dont le sommet coïncide avec la position de la sonde au cours de l'exposition (c. f. étape 1 du §3). La hauteur du cône est environ de $6 \mu\text{m}$, correspondant à la distance *sonde-substrat* ajustée lors de l'étape d'exposition. Trois ordres de grandeur séparent les dimensions de la surface de la base du cône ($\sim 10^3 \mu\text{m}^2$ sur la figure 9(b)) de la surface totale éclairée ($\sim 3 \times 10^6 \mu\text{m}^2$), **confirmant le comportement de source locale de la sonde métallique.**

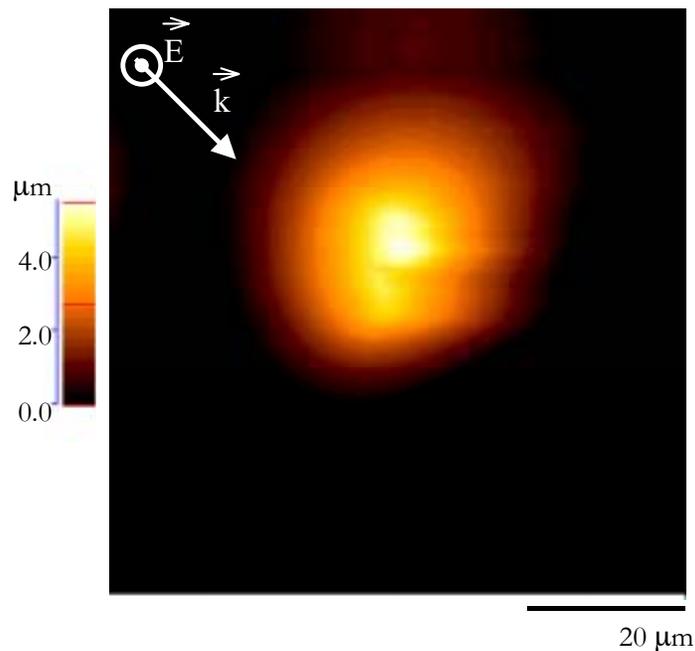


Figure 9(a) : Image AFM d'un cône polymère obtenu par effet de pointe optique.

La forme conique de l'objet (c. f. figure 9(b)) peut être due à des phénomènes d'origine optique tout autant que physico-chimique. D'un point de vue chimique, la diffusion de l'oxygène, de l'interface *air-résine* dans la formulation vers les régions où l'oxygène est consommée rendrait les conditions d'initiation de la polymérisation plus sévères alors la formation du polymère approche de l'interface *air-résine*. En conséquence, la distribution spatiale de la dose seuil, relative à la concentration d'oxygène dans la résine, ainsi que la distribution spatiale de l'intensité du champ exalté en extrémité de sonde (c'est le paramètre optique) détermineraient la géométrie de l'objet en polymère.

Les dimensions microniques de ce cône laissent supposer que l'initiation de la polymérisation n'est pas uniquement due à l'exaltation permise par l'extrémité de la sonde, i. e. par des ondes évanescentes. Deux phénomènes pourraient être à l'origine de l'amorçage de la réaction de polymérisation dans les régions éloignées de l'extrémité de la sonde. D'abord la diffusion de l'oxygène des zones sombres vers les zones où l'intensité du champ incident a été augmentée notablement (c'est le cas en extrémité de sonde) aurait pour conséquence de diminuer considérablement la dose seuil dans les zones voisines de la position de l'extrémité de la sonde permettant au champ diffusé par le corps de la pointe de contribuer à l'amorçage de la réaction. Ensuite, ce phénomène peut également trouver une explication purement chimique, dans la mesure où la fluorescence de l'Eosine peut avoir agi comme une source secondaire (c. f. §2.1) d'intensité suffisante pour déclencher la polymérisation au cours de l'exposition.

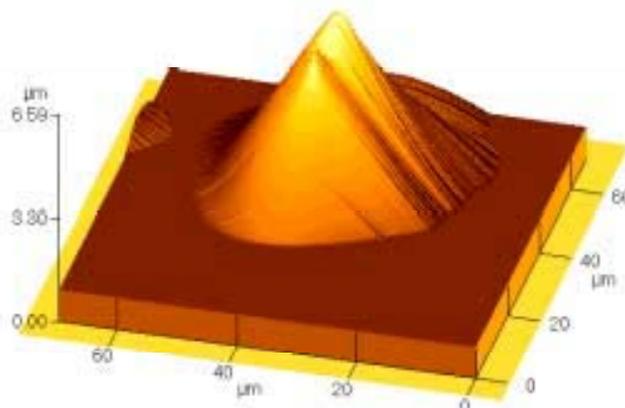


Figure 9(b): Représentation 3D de l'image 9(a). La cavité centrale pourrait être attribuée à l'empreinte qu'aurait laissée la pointe lors de la polymérisation.

Pour montrer l'effet de la polarisation incidente sur les caractéristiques de l'objet fabriqué, nous avons effectué cette même expérience en tournant la polarisation incidente de 90°. Le champ électrique vibre alors perpendiculairement à l'axe de la sonde. Les autres paramètres expérimentaux ont été maintenus constants. L'expérience n'a jamais permis d'observer la formation d'un objet polymère lors de l'imagerie AFM. Dans ces conditions de polarisation, l'exaltation du champ en extrémité de sonde ne semble donc pas avoir été suffisante pour déclencher la polymérisation de manière significative pour permettre à l'objet en polymère de s'accrocher au substrat durant sa formation et donc de permettre son imagerie AFM ultérieure. Ceci confirme qu'un champ perpendiculaire à l'axe de la pointe n'est pas adapté à l'exaltation de l'effet de pointe.

En éclairant la sonde dans les conditions d'exaltation du champ, il a été montré, [6, 12], qu'il se produisait également une nette augmentation de la température en extrémité de sonde ($\Delta T \approx 11$ K dans les conditions définies par [6]). Afin d'exclure toute origine thermique du déclenchement de la polymérisation, nous avons effectué une expérience similaire à celle discutée ci-dessus, en utilisant la raie rouge d'un laser He-Ne ($\lambda = 632,8$ nm, $P = 10$ mW, diamètre de faisceau : $800 \mu\text{m}$) comme source d'activation. L'augmentation de température prévue par [6, 12] en extrémité de sonde et l'effet de pointe optique, qui a également lieu à cette longueur d'onde, n'ont pas permis d'initier la réaction. Cette expérience confirme l'origine purement photochimique du déclenchement de la réaction de polymérisation révélée par l'imagerie AFM dans la figure 9.

Les résultats que nous venons de présenter sont prometteurs puisqu'ils ont permis de mettre en évidence la capacité d'une sonde diffusante à se comporter comme une source optique. Bien que reproductible dans les deux états de polarisation (taux de reproductibilité $\sim 0,8$), il faut toutefois noter que le confinement spatial de l'effet de pointe n'a pas pu être établi lors de la précédente étude. Nous pouvons évoquer l'épaisseur de la couche de formulation comme l'une des principales causes à ce manque de confinement, en particulier car elle détermine la distance *sonde-substrat* durant l'exposition et empêche ainsi l'obtention et la caractérisation AFM d'un objet en polymère de dimension nanométrique qui aurait, éventuellement, pu être créé.

Pour s'affranchir des contraintes expérimentales que nous impose l'épaisseur de cette couche, nous avons étalé une couche de formulation photosensible sur un substrat de verre par 'spin-coating'. Cette technique nous permet d'obtenir des couches d'une épaisseur de $1 \mu\text{m}$ environ

[24]. Une pré-polymérisation de cette couche micronique (à l'aide d'une lampe blanche de forte puissance) s'est avérée nécessaire pour atteindre une épaisseur submicronique de formulation n'ayant pas encore été polymérisée. En effet, la concentration élevée en oxygène à l'interface *air/résine* induit une augmentation importante de la dose seuil à mesure qu'on se rapproche de cette interface. Ceci nous permet de réticuler en grande partie la couche de résine, à l'exception d'une faible couche à la surface pour laquelle la dose seuil n'a pu être atteinte. Les épaisseurs de résine, non ou faiblement réticulées, ainsi obtenues sont typiquement de l'ordre d'une centaine de nanomètres.

La figure 10(a) présente l'image AFM ($1 \times 1 \mu\text{m}^2$) réalisée sur une telle couche après l'avoir insolée 60 secondes en présence de la sonde ($\lambda=543 \text{ nm}$, polarisation du champ incident suivant l'axe de la sonde) dans la configuration expérimentale décrite par la figure 8(a). La distance *sonde-échantillon* a été fixée à une dizaine de nanomètre au cours de la première étape de la procédure expérimentale. La coupe (c. f. figure 10(b)) effectuée suivant T dans la figure 10(a) révèle des dimensions de l'objet de $\sim 70 \times 70 \times 7 \text{ nm}^3$. Le contraste mécanique observé autour de l'objet en polymère correspond au polymère réticulé lors de l'exposition préliminaire à la lumière blanche alors que l'objet, en lui-même, correspond à la formation d'un volume de polymère généré par effet de pointe optique dans le champ proche de l'extrémité de la sonde. D'après 10(a), seule l'intensité relative à cet effet a permis le déclenchement de la réaction de polymérisation.

Cette expérience, bien que relativement reproductible (taux de réussite $\sim 40\%$) en polarisation 'p', n'a pas encore permis une étude systématique de la formation de polymère en fonction de l'état de polarisation de la lumière incidente. Le taux modeste de réussite enregistré en polarisation 'p' peut être relatif à une énergie d'activation importante dans ce type de couche pré-polymérisée. Deux causes principales peuvent être à l'origine d'une augmentation importante de la dose seuil : la désactivation de l'amorceur (photoblanchiment de l'Eosine) au cours de la pré-polymérisation de la résine, et/ou une concentration trop élevée d'oxygène dans la couche due à son épaisseur nanométrique en contact avec l'air.

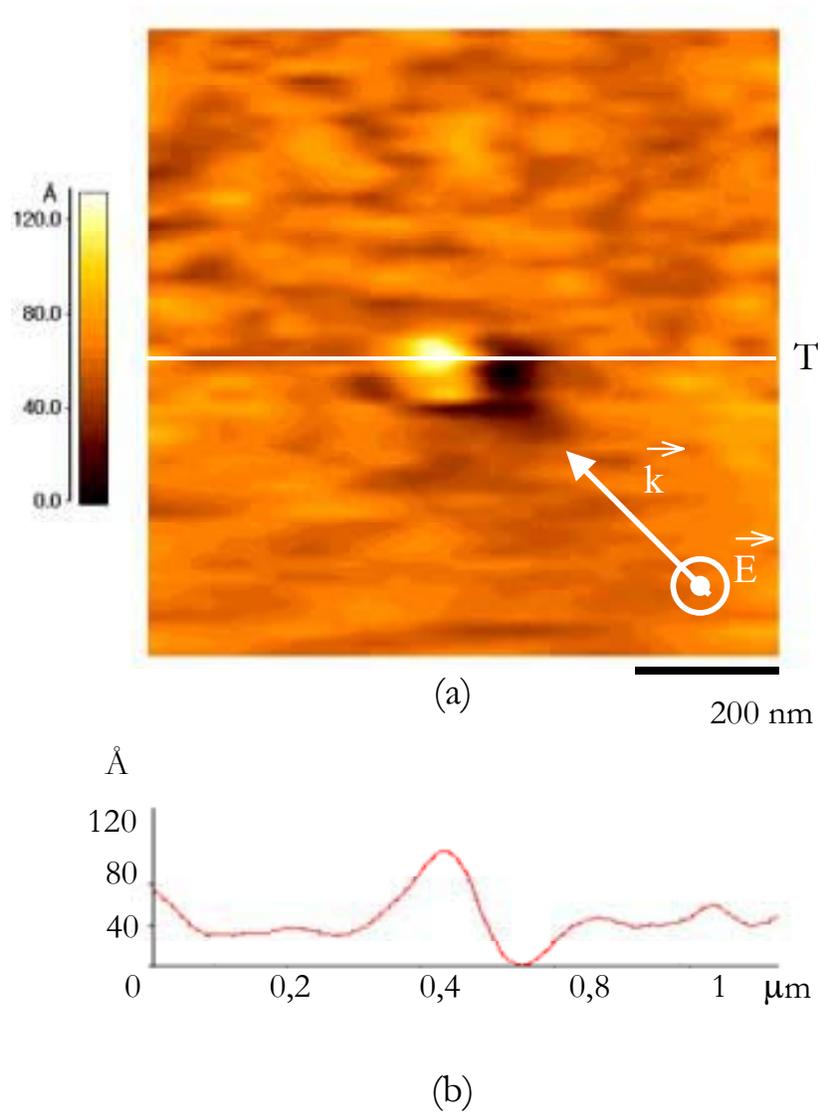


Figure 10.: Objet polymère de taille nanométrique créé en utilisant une sonde métallique comme source actinique. L'excitation de l'effet de pointe est assurée par un champ radiatif. (a) : image AFM, (b) : coupe de 10(a) suivant T.

Les deux expériences que nous venons de présenter nous ont permis de démontrer qu'il était possible, pour une sonde métallique, de se comporter comme une source optique locale.

Cependant, la configuration expérimentale utilisée dans ces deux cas (c. f. figure 8(a)) a dans le même temps montré ses limites dans l'étude qui nous intéresse. En effet, il est difficile de trouver une épaisseur de couche qui offre un bon compromis entre faisabilité de l'imagerie AFM, qui devient pratiquement impossible sur les couches de quelques microns d'épaisseur après exposition (la viscosité de la résine allant en augmentant d'une exposition à l'autre), et une dose seuil qu'il nous est difficile voire impossible de dépasser sur des couches pré-polymérisées. Dans ce dernier cas, le photoblanchiment de l'amorceur ainsi que la proximité de l'interface *air-résine* augmenteraient drastiquement les conditions énergétiques d'initiation de la réaction.

5.2. Excitation de l'effet de pointe par une onde évanescente de Fresnel.

La configuration expérimentale décrite par la figure 8(b) semble, ainsi, être une bonne alternative dans l'éclairage de la sonde. L'excitation de l'effet de pointe par une onde évanescente de Fresnel présente, en effet, les avantages suivants par rapport à un éclairage radiatif :

- 1/ l'épaisseur de la couche de résine exposée au rayonnement incident est faible (de l'ordre de 150 nm dans nos conditions d'éclairage), minimisant ainsi toute création de polymère dans le volume de la couche et évitant ainsi toute 'pollution' qui nuirait à l'imagerie AFM,
- 2/ elle ne nécessite pas la pré-polymérisation des couches (c. f. §4.2). La couche de formulation (épaisseur $\sim 1 \mu\text{m}$) sert alors de barrière à la diffusion de l'oxygène. On limite ainsi la dose seuil à atteindre au cours de l'exposition,
- 3/ dans ces conditions d'éclairage, la profondeur de pénétration de l'onde de Fresnel dans la formulation étant de l'ordre de 150 nm, seule l'extrémité de la sonde est alors susceptible de participer à l'exaltation du champ incident lors de l'exposition. Ceci nous permet d'éviter toute contribution du corps de la sonde au déclenchement de la polymérisation, et rend ainsi possible l'étude en champ proche du phénomène d'exaltation.

Rappelons que l'exaltation du champ a été prévue théoriquement dans cette configuration [8].

Pour cette expérience, la formulation est étalée par 'spin-coating' sur une lame de verre 'haut-indice' ($n=1,619$), son épaisseur est de $1 \mu\text{m}$ environ. Un liquide d'adaptation (le

bromonaphtalène ; $n=1,62$), entre la lame et le prisme, permet de conserver les conditions de réflexion totale dans la formulation lors de l'étape d'irradiation. La figure 11 présente l'image AFM d'une bosse polymère obtenue dans la configuration décrite par la figure 8(b). La procédure de polymérisation est identique à celle suivie lors des expériences précédemment présentées (procédure décrite au §3 de cette partie). La distance *sonde-surface du substrat*, au cours de l'exposition, est de 10 nm environ. Le temps d'insolation est de 10 secondes. La polarisation du champ incident est parallèle à l'axe de la sonde.

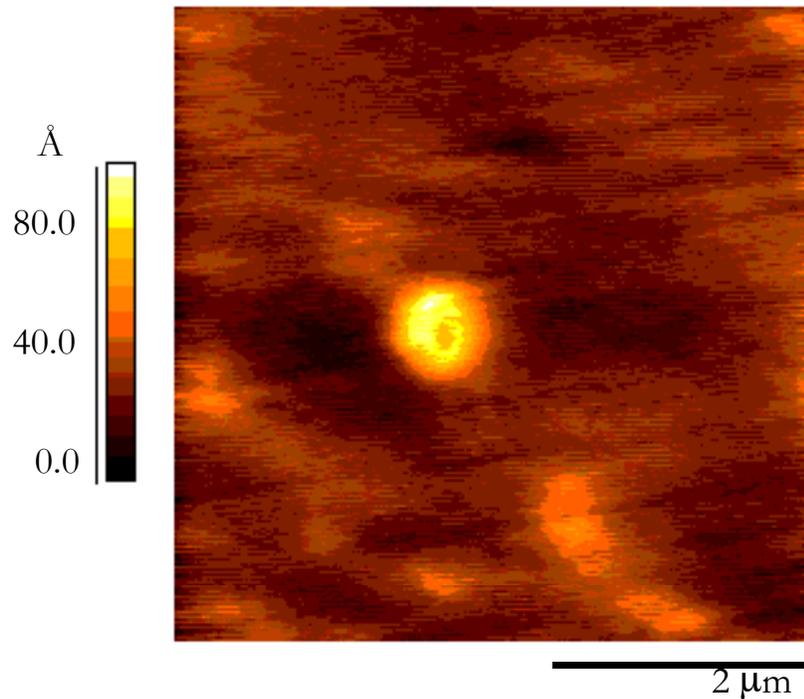


Figure 11 : Image AFM d'un objet polymère nanométrique. La source actinique est une sonde diffusante en tungstène. L'excitation de l'effet de pointe est assurée par une onde évanescente de Fresnel.

L'objet obtenu, en forme de calotte sphérique, est symétrique et présente une légère dépression en son centre. Ses dimensions sub-microniques (diamètre à mi-hauteur de la calotte ~ 400 nm pour une hauteur de 8 nm) laissent supposer une forte contribution des ondes évanescentes, générées par effet de pointe en extrémité de sonde, au processus d'amorçage de la réaction. La dépression, visible au centre de la bosse polymère, est très probablement l'empreinte laissée par la sonde au cours de la formation du polymère.

Cette expérience s'est avérée reproductible. C'est cette configuration que nous avons retenue pour de futures recherches sur cet effet physique (c. f. §E)

5.3. Expérience complémentaire.

Dans les expériences décrites jusqu'à présent, nous avons excité l'effet de pointe alors que celle-ci était plongée dans la résine. Ceci s'est traduit par la formation de bosse polymère, formation que nous attribuons à un effet purement optique. Nous avons également excité l'effet de pointe sur une couche polymérisée et rincée ; la pointe étant dans ce cas plongée dans l'air. La préparation de l'échantillon consiste à étaler une couche de 10 μm d'épaisseur, par racle, sur une lame de verre. Cette couche est ensuite éclairée 1 heure sous une lumière blanche de forte puissance. Après irradiation, la couche est rincée au méthanol de manière à éliminer le monomère qui n'a pas réagi et le polymère qui n'est pas suffisamment réticulé pour résister au rinçage. Une couche de polymère de quelques microns d'épaisseur, dont la surface correspond à la surface irradiée, subsiste quant à elle collée sur le du substrat [16, 25]. La procédure expérimentale présentée au paragraphe §3 est alors appliquée à cette couche dans la configuration décrite par la figure 8(a) en fixant la polarisation incidente selon l'axe de la pointe.

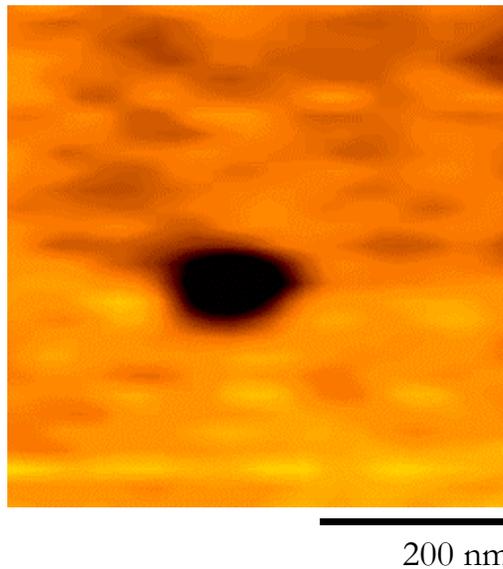


Figure 12 : Image AFM d'une cavité de taille nanométrique.

La figure 12 représente le contraste AFM obtenu après exposition. L'image AFM présente une cavité de taille nanométrique (100 nm de diamètre, 8 nm de profondeur). Notons que cette expérience a un taux de réussite proche de 1 et que le contraste de la figure 12 est un contraste typiquement obtenu lors d'une telle expérience.

Nous pouvons émettre deux hypothèses susceptibles d'expliquer la formation de ces trous. La première consiste à considérer que l'exaltation générée en extrémité de sonde provoque une post-polymérisation là où le polymère n'aurait pas été complètement réticulé lors de la première étape (pré-polymérisation). La formation d'une cavité serait alors expliquée par la contraction de volume consécutive à une augmentation locale du taux de réticulation. Une augmentation de volume est dans ce cas peu probable dans la mesure où elle exigerait une certaine mobilité des monomères et/ou des amas polymères dans la matrice polymère déjà existante. Une seconde hypothèse consiste à considérer l'élévation locale de température qui accompagne l'exaltation du champ en extrémité de sonde. Deux cas sont alors envisageables :

- 1/ un échauffement de l'extrémité de la sonde, successif à une absorption de l'énergie du rayonnement optique incident [6, 11], aurait été suffisamment élevé pour évaporer localement les chaînes de polymères.
- 2/ l'échauffement probable évoqué en 1/ induit une dilatation de l'extrémité de la sonde provoquant une indentation de la surface de polymère [10, 12]. Ce cas est à exclure. En effet, aucune déformation permanente de la surface polymérisée n'a été constatée lorsque celle-ci est soumise à une pression mécanique (pression équivalente à une force de $\sim 50 \mu\text{N}$) exercée à l'aide de la sonde (indentation mécanique sans exposition lumineuse).

Ainsi, tout effet mécanique, direct (indentation mécanique) ou indirect (indentation mécanique causée par une dilatation thermique de la sonde) n'affectant pas la surface de polymère de manière permanente, la formation d'une cavité serait consécutive soit à l'évaporation du polymère (effet thermique), soit à une post-polymérisation (effet photochimique).

Nous ne sommes pas en mesure, pour l'instant, de déterminer laquelle de ces deux causes est à l'origine du contraste observé dans la figure 12.

6. Conclusion.

Les résultats présentés par les figures 10 et 11 sont une démonstration expérimentale directe, déjà prévue théoriquement par de nombreux travaux, de la capacité d'une sonde diffusante à se comporter comme une source optique locale.

E Conclusion et perspectives.

Nous avons démontré la capacité d'une sonde métallique à se comporter comme une source locale de lumière. L'origine optique de ce phénomène a pu être mis en évidence par une expérience de polymérisation photoinduite par la sonde. Les conséquences de l'effet de pointe en SNOM sont d'une importance capitale tant sur le plan de l'imagerie pure (mise en évidence d'un contraste diélectrique, fluorescence...) que sur le plan de la modification locale des surfaces (nanolithographie). Aussi, l'étude que nous venons de présenter n'est que préliminaire à une analyse plus approfondie de l'interaction entre le champ électromagnétique et une sonde diffusante. Les études théoriques, que nous évoquons dans la première partie de ce chapitre, montrent l'importance d'une multitude de paramètres expérimentaux sur le comportement optique de la sonde (*distance sonde-surface*, nature chimique et géométrie de la sonde, nature et géométrie de la surface, conditions d'éclairage...). L'étude de ces paramètres fait, actuellement, l'objet d'une thèse dans notre laboratoire.

F Références.

1. Jackson J.D., *Classical Electrodynamics*. Troisième ed. 1998, New York: John Wiley & Sons. 808 pages.
2. Van Bladel J., *Singular Electromagnetic Fields and Sources*. Deuxième ed. 1991: IEEE Press. 237 pages.
3. Martin O.J.F. and Girard C., *Controlling and tuning strong optical field gradients at a local probe microscope tip apex*. Applied Physics Letters, 1997. **70**(6), 705-707.
4. Zayats A.V., *Electromagnetic field enhancement in the context of apertureless near-field microscopy*. Optics Communications, 1999. **161**, 156-162.
5. Cory H., *et al.*, *Electric field variation in the vicinity of a perfectly conducting conical probe: application to near-field microscopy*. Microwave and optical technology letters, 1998. **18**(2), 120-124.
6. Novotny L., Bian R. X., and Sunney Xie X., *Theory of Nanometric Optical Tweezers*. Physical Review Letters, 1997. **79**(4), 645-648.
7. Denk W. and Pohl D., *Near-field optics: Microscopy with nanometer-size fields*. Journal of Vacuum Science and Technology B, 1991. **9**(2), 510-513.
8. Furukawa H. and Kawata S., *Local field enhancement with an apertureless near-field-microscope probe*. Optics Communications, 1998. **148**, 221-224.
9. Aigouy L., *et al.*, *Polarisation effects in apertureless scanning near-field optical microscopy: an experimental study*. Optics Letters, 1999. **24**(4), 187-189.
10. Bragas A.V., Landi S.M., and M. O.E., *Laser field enhancement at the scanning tunneling microscope junction measured by optical rectification*. Applied Physics Letters, 1998. **72**(17), 2075-2077.
11. Jersch J. and Dickmann K., *Nanostructure fabrication using laser field enhancement in the near-field of a scanning tunneling microscope tip*. Applied Physics Letters, 1996. **68**(6), 868-870.
12. Huber R., Koch M., and Feldmann J., *Laser-induced expansion of a scanning tunneling microscope tip measured with an atomic force microscope*. Applied Physics Letters, 1998. **73**(17), 2521-2523.
13. Sanchez E.J., Novotny L., and Sunney Xie X., *Near-Field Fluorescence Microscopy Based on Two-Photon Excitation with Metal Tips*. Physical Review Letters, 1999. **82**(20), 4014-4017.
14. Davy S. and Spajer M., *Near field optics: snapshot of the field emitted by a nanosource using a photosensitive polymer*. Applied Physics Letters, 1996. **22**, 3306-3308.

15. Thèse de BELIN C., *Application de la photopolymérisation résolue dans l'espace au stockage d'informations optiques. Etude d'une nouvelle technique utilisant les ondes évanescentes.*, Mulhouse. 1994, Université de Haute Alsace: Mulhouse.
16. Thèse de Espanet A., *Photopolymérisation par les ondes évanescentes. Application à la stéréolithographie et au stockage de l'information.*, Mulhouse. 1998, Université de Haute-Alsace: Mulhouse.
17. Fouassier J.P., *Radiation Curing in Polymer Science and Technology*. 1993, London: Elsevier Sciences Publishers. 193-233 pages.
18. Timpe H.J., Jockusch S., and Körner K., *Radiation Curing in Polymer Science and Technology.*, ed. Fouassier J.P. and Rabek J.F. Vol. Deuxième. 1993, London: Elsevier Science Publisherspages.
19. Champetier G., *et al.*, *Chimie Macromoléculaire*. 1970, Paris: Hermanpages.
20. Fouassier J.P., *Photopolymerization and Photoimaging Science and Technology*. Elsevier Applied Science, 1989. **209**.
21. Espanet A., Ecoffet C., and Lougnot D.J., *PEW: Photopolymérisation by Evanescent Waves. II. Revealing Dramatic Inhibiting Effects of Oxygen at Submicrometer Scale*. *Advanced Matter*, 1999. **37**, 2075-2085.
22. Mansuripur M., *The Physical Principles of Magneto-Optical Recording*. 1998: Cambridge University Presspages.
23. Fowles G.R., *Introduction to Modern Optics*. Deuxième ed. Vol. 1. 1989, New-York: Dover. 328 pages.
24. Stage DEA de H'Dhili F., *Préparation de couches minces photosensibles pour l'étude de l'effet de pointe optique.*, Reims. 1999, Université de Technologie de Troyes: Troyes.
25. Ecoffet C., Espanet A., and Lougnot D.J., *Photopolymerization by Evanescent Waves: A New Method to Obtain Nanoparts*. *Advanced Matter*, 1998. **10**(5), 411.

Conclusion générale et perspectives.

Au cours de ce travail de thèse nous avons développé un microscope optique en champ proche sur la base d'un microscope à force atomique commercial. Ce microscope utilise une sonde en tungstène dans le mode AFM contact intermittent. Nous avons voulu faire de ce microscope un instrument de mesure polyvalent dans l'étude de l'interaction *sonde-champ diffracté-surface* en le dotant d'une instrumentation optique complète tant sur le plan de l'éclairage que sur le plan de la détection. Tout particulièrement sur le plan de la détection, nous avons élargi la gamme des sondes utilisables par ce microscope à des sondes métalliques fabriquées au laboratoire. Nous avons montré que leur géométrie présentait un avantage incontestable dans l'étude de composants émetteurs de lumière (c. f. chapitres II & III).

Les études que nous avons menées ont été avant tout motivées par la compréhension des processus physiques qui interviennent dans la caractérisation des propriétés optiques des objets de taille $\text{sub-}\lambda$.

L'étude du mode généré par une diode laser à double hétéro-jonction en émission nous a permis de déterminer qualitativement l'influence de différents paramètres expérimentaux sur le contraste observé dans l'image SNOM. Nous avons pu mettre en évidence la sensibilité de l'image SNOM à l'amplitude de vibration de la sonde, à la direction de détection du champ ainsi qu'à la démodulation synchrone. Nous avons ainsi pu caractériser le champ au voisinage immédiat du cristal laser en émission, en choisissant les conditions expérimentales favorisant l'expression de ce

champ dans le contraste de l'image optique. Les résultats obtenus nous ont permis de proposer une composition chimique réaliste des couches de confinement de la diode.

Les conclusions de l'étude de la diode laser nous ont permis d'interpréter le contenu de l'image SNOM du champ émis par une fibre monomode. Si la mesure SNOM a montré une sensibilité identique dans les deux cas, nous avons clairement mis en valeur la présence, en sortie de fibre, d'un mode de gaine du type LP_{11} de faible intensité par rapport au mode fondamental LP_{01} coexistant. En effet, l'efficacité d'une démodulation effectuée à $2f$ aurait permis d'isoler ce champ LP_{11} d'une composante radiative LP_{01} , presque dix fois plus intense dans le signal démodulé à f , la fréquence de vibration de la sonde.

Au cours de ces expériences, l'intérêt d'une détection rasante et utilisant une démodulation à $2f$ a été démontrée.

Ces études ont révélé dans le cas de la diode laser le caractère de détecteur local de la sonde. En particulier, nous avons pu retrouver par la mesure SNOM une dépendance directe de l'intensité du signal optique collecté en champ lointain à l'état de polarisation du champ issu de l'échantillon. Le champ était alors polarisé perpendiculairement à l'axe de la sonde. Les résultats obtenus sur ces deux échantillons (fibre et diode laser) nous encouragent à utiliser le microscope pour l'étude de divers composants d'actualité de l'optoélectronique : guides d'onde intégrés semi-enterrés, fibres optiques à cristaux photoniques, structures quantiques (puits quantiques, fils, boîtes),...

Nous avons également démontré, au cours du chapitre IV, la capacité de cette sonde métallique à se comporter comme une source locale de lumière. Nous avons attribué cette propriété à un effet de pointe optique prévu par des théories récentes. Le champ lumineux excitateur est alors orienté suivant l'axe de la sonde. Les conséquences de cette dualité *source/détecteur* nous semblent d'une importance capitale dans le processus de formation des images par les techniques à sonde diffusante dans la mesure où, la sonde peut aussi bien éclairer l'échantillon localement que détecter son champ proche.

Nous comptons mettre à profit les caractéristiques de la résine photosensible décrite au chapitre IV, pour étudier plus précisément cet effet de pointe et particulièrement sa sensibilité aux conditions d'excitation ainsi qu'à la géométrie et à la nature de la sonde. Ce travail fait actuellement l'objet d'une thèse débutée récemment au laboratoire. La maîtrise de cet effet pourrait nous permettre de développer une nouvelle technique de nanolithographie optique et d'envisager des mesures de spectroscopie locale sur les semi-conducteurs dans le but d'établir une cartographie physico-chimique locale de la surface de ces composants. C'est peut-être là, une alternative élégante à la cartographie diélectrique pour laquelle nos mesures SNOM ne donnent encore des résultats que difficilement interprétables. Néanmoins, ces mesures restent l'une de nos préoccupations. Dans ce cas, nous tenterons d'analyser plus précisément le contenu fréquentiel du signal optique modulé par la sonde dans le but d'établir une cartographie du champ diffracté par la surface d'un échantillon.

Annexe 1.

A reflection-mode apertureless scanning near-field optical microscope
developed from a commercial scanning probe microscope.

A reflection-mode apertureless scanning near-field optical microscope developed from a commercial scanning probe microscope

G. Wurtz, R. Bachelot,^{a)} and P. Royer

Laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique, Université de Technologie de Troyes, 12 rue Marie Curie, BP 2060, 10010 Troyes Cedex, France

(Received 30 June 1997; accepted for publication 20 January 1998)

We have developed a polyvalent reflection-mode apertureless scanning near-field optical microscope (SNOM) from a commercial scanning probe microscope (SPM). After having explained our motivations, we describe the instrument precisely, by specifying how we have integrated optical elements to the initial SPM, by taking advantage of its characteristics, and without modifying its initial functions. The instrument allows five different reflection-mode SNOM configurations and enables polarization studies. Three types of SNOM probes can be used: dielectric, semiconducting, and metallic probes. The latter are homemade probes whose successful use, as probes for atomic force microscopy, by the commercial SPM has been experimentally demonstrated. Using silicon-nitride (dielectric) probes, one of the five configurations has been experimentally tested with two samples. The first sample is made of nanometric aluminum dots on a glass substrate and the second sample is the output front facet of a laser diode. The preliminary SNOM images of the latter reveal pure optical contrasts. © 1998 American Institute of Physics. [S0034-6748(98)03404-2]

I. INTRODUCTION

Scanning near-field optical microscopy (SNOM)¹ has indisputably demonstrated its capability of achieving a sub-wavelength spatial optical resolution. Presently, this resolution is in the $[\lambda/10-\lambda/30]$ range, where λ is the wavelength of light. Nowadays, it is possible to consider two main SNOM families. The first one is the "aperture SNOM" which has given rise to most of the publications during the last decade. In its principle, this family uses a probe with a small aperture (diameter $\sim 50 \text{ nm} \ll \lambda$) in a metallic screen placed at a small distance ($\ll \lambda$) from the sample surface to illuminate the sample locally (illumination mode²) or to pick up the optical near-field (collection mode³). This principle, which was suggested by Syngé⁴ and for the first time applied experimentally to optical wavelengths by Pohl *et al.*,² can be described by the Bethe-Bouwkamp theory.⁵ In general, SNOM apertures are produced from silica optical fibers or glass micropipettes. Despite its performances, aperture SNOM seems to have three limitations:

- (i) the optical resolution does not surpass 20 nm ($\sim \lambda/30$) which would correspond to the skin depth of the metal surrounding the aperture;
- (ii) making ultrasmall apertures is a technological challenge which presently prevents the mass production of such optical probes;
- (iii) aperture SNOM is limited to visible and near-infrared region of the spectrum. Indeed, it seems difficult to extend it to the mid- and the far infrared region because of the strong attenuation of the light power

transmitted by the silica fibers and the severe cutoff problem for metallized waveguides.

Additionally, the presence of the metallic screen (diameter $> 100 \text{ nm}$) surrounding the aperture can generate feedback artifacts⁶ (in the case of an atomic force microscopy AFM/SNOM combination), and limits the study to samples without rough topographical structures.

The second family is the "apertureless SNOM" which uses apertureless tips as optical probes.⁷⁻¹² In this case, the tip end may be viewed as some dipoles which, interacting locally with the sample surface, are excited by the optical near-field of the sample and radiate homogeneous waves which can be detected far from the sample surface. The resulting signal depends on the local optical properties of the sample just beneath the tip end. Hence, the tip end may be considered as a scattering Rayleigh particle, and this principle can be described by the Mie-Rayleigh theory.¹³ *A priori*, the refractive index n of the Rayleigh particle is complex ($n = n_1 + jn_2$). It can be noted that the scanning tunneling optical microscopy [(STOM),¹⁴ also called (PSTM)¹⁵ for photon scanning tunneling microscopy], may be considered as an "apertureless" SNOM using a dielectric ($n_2 = 0$) scattering particle, provided, of course, that an uncoated (non-metallized) probe¹⁶ is used. The apertureless SNOM family is less well known and much less used than the aperture SNOM. It arouses a growing interest, however, especially since it has demonstrated an 0.8 nm optical resolution,¹⁷ as well as its ability to work with a wavelength range much larger than that allowed by aperture SNOM.¹⁸⁻²⁰ Another advantage is that the already existing AFM and STM (scanning tunneling microscopy) reliable probes can easily be used by apertureless SNOM.

Near-field optics is still a young branch of optics and it seems difficult to consider that the SNOM is already a "rou-

^{a)} Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: renaud.bachelot@univ-troyes.fr

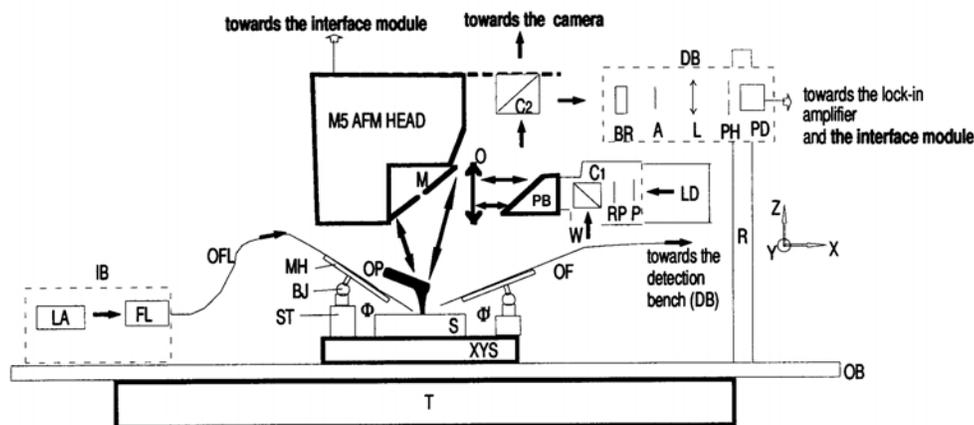


FIG. 1. General diagram of the main setup. The thick lines correspond to the initial commercial system. The thin lines represent the optical functions that we have integrated. The gray arrows represent the direction of light propagation. (A) analyzer, (BJ) ball joint, (BR) optical band rejector ($\lambda = 670$ nm) filter, ($C_{1,2}$) cube beam splitters, (DB) detection optical bench, (FL) fiber launching (objective lens+positioner), (IB) illumination optical bench, (L) glass lens ($f = 100$ mm), (LA) laser source (He-Ne, Ar, laser diode...), (LD) laser diode ($\lambda = 635$ nm), with collimating optics and beam expander ($\times 5$), (M) pierced mirror, (MH) micro-pipette holder, (O) objective lens ($\times 20$, N.A. = 0.28, W.D. = 30 mm, $f = 10$ mm), (OB) optical breadboard, (OF) optical fiber, (OFL) optical fiber ending in a micro-lens (N.A. = 0.5), (OP) cantilever and optical probe tip, (P) polarizer, (PB) piece holding a plate beam splitter, (PD) photodetector, (PH) pinhole ($\varnothing = 40 \mu\text{m}$), (R) rod, (RP) retardation plate ($\lambda/2$ or $\lambda/4$), (S) sample, (ST) compact X,Y,Z translation stages, (T) active isolation tabletop, (W) white light, (XYS) sample chuck, XY translation stages, isolation rigid marble.

time tool" (like AFM and STM) for the study of local physical properties of samples. In fact, several fundamental problems have still to be solved. For example, the recent "APPEAL" of Hecht *et al.*⁶ is significant and leads us to question ourselves about the nature of the SNOM response and the respective influences of the topographical and dielectric local properties of the sample on the SNOM signal.

We have developed an apertureless SNOM from a commercial scanning probe microscope. The commercial SPM has been modified and has acquired an additional SNOM function. These modifications do not perturb the initial functions and performances of the SPM. Our motivations and expectations for such a development are the following;

- (i) to let the SNOM take full advantage of the capabilities and high quality of the commercial SPM system, including reliability, user-friendliness, reproducibility, stability, low noise electronics, data acquisition and processing, high quality piezo-transducers, available interface, and software;
- (ii) to use the various types of SPM probes as optical probes; and
- (iii) to easily combine and compare STM, AFM, SNOM techniques with each other.

With this setup, we hope to study and use the promising concept of "apertureless SNOM" under the best technological conditions. In this article, we describe the instrument in detail and present preliminary results and applications.

II. DESCRIPTION OF THE SETUP

During the description of the device, we will attempt to demonstrate its advantages by referring to the near-field opt-

ics (NFO) literature. The modified commercial SPM is the M5 model from Park Scientific Instrument (PSI). This choice has been made according to several criteria. First, the system has an initial adjustable optics (objective lens, camera etc). Second, its mechanical environment is open enough to have access to the tip end (for illumination and detection of light). Third, the system is polyvalent: it permits AFM (contact, noncontact, or tapping modes) procedures, as well as lateral force microscopy (LFM), scanning tunneling microscopy (STM), and magnetic force microscopy (MFM).

A. General description

Figure 1 presents the general setup. We will see that this setup allows four SNOM configurations. On the other hand, we will see in paragraph II B that an auxiliary setup (that will be briefly described) allows a fifth configuration. The setup of Fig. 1 is the main device which takes advantage of the whole M5 environment, whereas the auxiliary system has been built outside this environment. In Fig. 1, the initial parts (of the commercial device) and the added elements are represented by thick lines and thin lines, respectively. Two main functions have been added, with regard to the initial system: an illumination function to illuminate the tip end by a focused laser beam, and a detection function to detect the scattered flux and to generate the SNOM signal.

1. Illumination of the tip end

Two illumination modes are possible: an illumination by a laser diode beam through a microscope objective and an illumination by an optical fiber terminating microlens.

Illumination by a laser diode beam through an objective lens (LD,P,RP,C1,PB,O,M, in Fig. 1). This illumination mode is compact and takes advantage of the initial optical

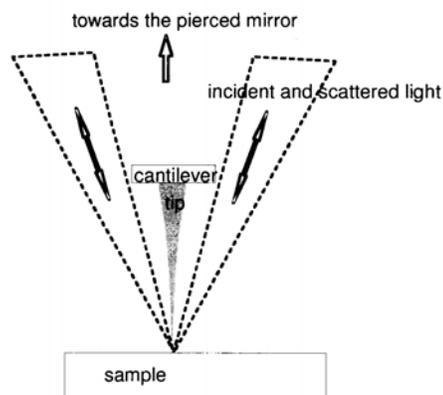


FIG. 2. Advantage of a dark-field illumination: the illumination of both the cantilever and the parts of the tip other than the extreme end is minimized. The axis of the cantilever is perpendicular to the page plane.

elements (PB,O,M in Fig. 1) used for visual observation of the sample surface. PB is initially an aluminum piece which holds a plate beamsplitter as well as a white light source. This source has been removed and replaced with the compact illumination system (LD,P,RP,C1 in Fig. 1). The use of this white light (W), however, is allowed by the cube beamsplitter C1, permitting the visual observation of the working field (sample, tip, and laser spots). A laser diode (LD, $\lambda = 635$ nm) has been associated with a beam expander ($\times 5$) providing a 10 mm diameter collimated laser beam. This diameter is necessary to illuminate entirely the entrance pupil of the objective lens (O, entrance pupil diameter=6 mm). Any kind of polarization state of this incident laser beam is allowed by both the polarizer (P) and the retardation plate (RP: $\lambda/2$ or $\lambda/4$).

This capability is of importance for a systematic study of polarization contrasts which are very significant in near-field optics. Although this study has often been made in apertureless SNOM,²¹⁻²³ it seems to be almost ignored in apertureless SNOM.²⁴ The objective lens (O) (infinity corrected, N.A. = 0.28) permits the focusing of the laser beam onto the sample surface. Since all of the entrance circular pupil of the objective is illuminated, the focalization spot is a diffraction spot whose diameter is $\sim 3 \mu\text{m}$ ($1.22\lambda/\text{N.A.}$). It has been shown that such a high density incident energy can be very effective in apertureless SNOM.¹⁰⁻¹² The focused beam is deflected towards the sample by the mirror (M) which is initially pierced so that the laser beam ($\lambda = 670$ nm) issued from the M5 head can reach the cantilever (this laser beam, not represented in Fig. 1, permits by reflection the detection of the cantilever deflection). We noted that this hole does not prevent the generation of the diffraction spot on the sample surface. Moreover, the hole allows a "dark field" illumination which minimizes the illumination of both the cantilever and the parts of the tip other than the extreme end (Fig. 2). This illumination would generate a background optical signal which is unwanted because it is associated with a low spatial resolution.

In Fig. 1, it can be noted that the small size (compared to other laser sources) of the laser diode associated with the expander (about 3.5 cm diameter and 8 cm length) enables its total integration into the commercial system. This integration especially enables the Z movement of the laser spot by the focus M5 function which moves the compact set (O, PB, C1, RP, P, LD) in the X direction, as well as the X, Y movement of the spot, by the initial Z, Y adjustments of the microscope objective. All these possible adjustments are independent of the tip and sample positions.

Illumination by an optical fiber (OFL in Fig. 1). This illumination mode presents three advantages compared to the illumination by the objective. First, it allows one to use several types of laser source (LA in Fig. 1). Consequently, several wavelengths, light powers, and degrees of coherence can be tested. Second, it permits an oblique illumination. The angle Φ between the fiber axis and the sample surface can be adjusted in the 5° – 85° range. The influence of the angle of incidence on the near-field effect induced by the tip can thus be studied. This parameter Φ is of importance in apertureless SNOM. For example, in the case of strong enhancement of the electric field just below the tip,²⁵ it has been shown that the total field intensity beneath the tip apex strongly depends on Φ .²⁵ Third, in this case, we can be sure that the "dark-field" illumination is optimized: the incident light field illuminates neither the cantilever nor the parts of the tip other than its extreme end.

In Fig. 1, OFL is a single-mode optical fiber tapered by pulling under an electric arc. During the preparation of the taper, when the fiber breaks, the superficial tension leads to the formation of a microlens, whose radius of curvature and focal length are a few microns and a few tens of microns, respectively. This process ensures an adiabatic transition from the guided fundamental mode of the fiber to the extremity of the taper.²⁶ By optical measurements, we showed that such a system focuses the light to a $2 \mu\text{m}$ diameter spot, with a high (~ 0.5) numerical aperture. It is thus equivalent to a high power objective lens of micronic size. Such a fiber ending in a microlens has been successfully used as a probe for an optical profilometer.²⁷ The optical fiber (OFL) is held by a commercial pipette holder (H-7 Narishige, MH in Fig. 1), associated with a joint ball (B-8C Narishige, BJ in Fig. 1) and a XYZ translation stage (ST in Fig. 1). The compact system (MH, BJ, ST) permits the positioning of the laser spot on the sample surface as well as the adjustment of the angle Φ . The control of the polarization state is still possible with this illumination mode. Indeed, any desired polarization state is accessible for such a single-mode optical fiber which has already been successfully used for polarization studies.²¹

2. Detection of the SNOM signal

Two detection modes are possible: a detection by the objective lens, as well as a detection by an optical fiber.

Detection by the objective lens (M, O, PB, C2, DB in Fig. 1). In this detection mode, the objective lens (O, in Fig. 1) is used to collect the flux scattered by the SNOM probe in local interaction with the sample surface. The collimated laser beam issued from the objective lens is deflected first by

the initial plate beamsplitter (PB) towards the camera, then by the cube beamsplitter (C2, in Fig. 1) towards the detection bench. This added cube has simply been stuck on the input glass window of the camera, using an optical gel (refractive index = 1.46) which does not prevent optical observation and allows easy removal or adjustment of the cube. The detection bench (DB in Fig. 1) is a rail holding optical components. BR is a band rejector which rejects the wavelength of the laser beam ($\lambda = 670$ nm) issued from the M5 head, without cutting of that associated with the SNOM signal ($\lambda = 635$ nm). Indeed, light at $\lambda = 670$ nm would be unwanted background light scattered by the cantilever, mainly. The analyzer (A) is used in the case of polarization study. The light is focused by a lens (L) onto a pinhole (PH) and detected by a photodetector (PD). The spatial filter (PH) is used to reject the background scattered light: its diameter ($= 40 \mu\text{m}$) has been adjusted so that only the image of the diffraction spot, associated with the microscope objective, is detected.

Detection by an optical fiber (OF in Fig. 1). In this detection mode, the light scattered by the tip end is collected by an optical fiber (OF in Fig. 1) which is held by a mechanical system identical to that holding the fiber used for illumination. Hence, this mode permits an oblique detection with an adjustable angle of collection Φ' . This capability is of importance in near-field optics because the light emitted in different directions certainly has different behaviors and contains different information about the sample. For comparison, in the case of the "tunnel SNOM",²⁸ it has been recently shown that radiation emitted into directions within the critical angle of total internal reflection ("allowed light") contains information which is different and complementary to that contained by light emitted at supercritical angles ("forbidden light").²⁹ It is thus important to detect these two types of light, both of them but separately. Whatever the detection mode, the electric signal provided by the photodetector is processed by a lock-in amplifier at the vibration frequency of the AFM cantilever. We shall now show that it is necessary to use a vibrating AFM mode for an SNOM image generation.

3. Suitable AFM modes, lock-in detection, and scanning modes

In apertureless SNOM, because of the external illumination and detection, it is necessary to make the probe vibrate (perpendicular to the sample surface, at the frequency f) and to perform a lock-in detection (at the frequency f) of the scattered light. This procedure allows one to extract, from the total intensity received by the detector, the small part which corresponds to the light scattered by the local interaction between the tip end, the sample and the incident laser beam. Two suitable AFM modes are thus used: the "noncontact" mode^{10,17} and the "tapping mode" (or "intermittent contact" mode).^{11,12} These two modes are available on the M5 head. It has also been suggested to make both the tip (at f_t frequency) and the sample vibrate (parallel to its surface, at f_s frequency) and to detect the signal at the difference frequency $f_t - f_s$ (or at the sum frequency $f_t + f_s$).⁷ We will test this technique by installing the sample on a vibrating

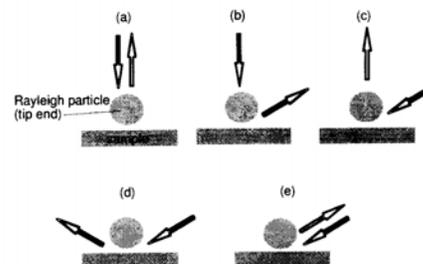


FIG. 3. Reflection-mode SNOM configurations allowed by our instrument. The sphere represents the tip end (Rayleigh particle). The arrows represent the direction of both incident and detected lights: (a) illumination by an objective, collection by an objective, (b) illumination by an objective, oblique collection by an optical fiber, (c) oblique illumination by an optical fiber ending in a micro-lens, collection by an objective, (d) oblique illumination by an optical fiber ending in a micro-lens, oblique collection by an optical fiber, (e) "backscattering" SNOM configuration allowed by the auxiliary setup presented in Fig. 4: both illumination and collection by an objective.

piezo-electric transducer. The lock-in amplifier that we use (EG&G Princeton applied research, 5302) is able to work in the 1 Hz–1 MHz range and is thus suitable for any resonance frequency of the AFM cantilevers.

In the case of the AFM/SNOM combination, two scanning modes can be used: the constant gap-width mode (CGM) and the constant height mode (CHM). CHM prevents feedback-induced artifacts^{6,30} in the SNOM image, but does not permit a very high resolution because the probe is not maintained in contact with the sample. Moreover, during scanning, the gap width (between the probe and the sample) is not constant in CHM, and therefore the optical resolution is also not constant because this resolution is very dependent on the gap width. CGM optimizes the SNOM resolution and simultaneously measures the topography. Nevertheless, this mode can generate serious artifacts in the SNOM image.^{6,30} When studying a sample, it is thus necessary to perform both CHM and CGM experiments, in order to obtain complementary images of the sample. The M5 head allows one to use these two scanning modes.

To finish this general description, it should be pointed out that both the M5 interface module and the user-friendly software allow the recording of several signals simultaneously, including the AFM signal, the corresponding error signal, and the SNOM signal (provided by the lock-in amplifier: amplitude and phase).

B. SNOM configurations

All the illumination/detection combinations are possible: illumination by the objective+collection by the objective, illumination by the objective+collection by the optical fiber, illumination by the optical fiber+collection by the objective, illumination by the optical fiber+collection by the optical fiber. Figure 3 presents these four configurations [(a), (b), (c), (d), respectively]. The fifth SNOM configuration [(e) in Fig. 3] is obtained by an auxiliary setup that we have developed outside the M5 system. Figure 4 presents this auxiliary

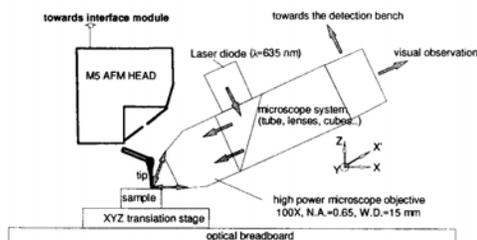


FIG. 4. Auxiliary setup allowing the "backscattering" apertureless SNOM configuration [(e) Fig. 3]. The X' axis is parallel to the microscope axis. The gray arrows represent the direction of the propagation of the light.

setup schematically. We take advantage of the fact that the M5 head can be removed and used out of the whole M5 system, above any sample, in a "stand-alone" configuration. This configuration is possible because in the M5 model the X, Y, Z piezoelectric scanner is integrated in the head associated with the probe. This removal frees a half-space near the tip, allowing the installation of an optical microscope system, associated with a high power microscope objective. This microscope system (objective + tube + lenses + cube beamsplitters + eye-piece) permits, simultaneously, the focusing of a laser diode beam ($\lambda = 635$ nm) onto the tip end, and the collecting of the "backscattered" light, and allows the user to observe the working field (laser spots, tip, and sample). With precision, the microscope system can be adjusted with regard to both tip and sample since it is held by a X, Y, Z, X' translation stages, and a rotation (around the Y, Z axis) stage (not represented in Fig. 4). A survey of the NFO literature reveals that this "backscattering" apertureless SNOM configuration has never been implemented.

C. SNOM probes

Three types of SNOM probes can be used: dielectric, semi-conducting, and metallic probes.

1. Dielectric probes

They are silicon-nitride (Si_3N_4 , refraction index ~ 2 at $\lambda = 635$ nm) commercial probes (MicroleversTM from PSI), the tip of which is pyramidal with a 70° vertex angle. The tip end is standard or sharpened. In the second case, the pyramid ends in a small 200 nm height tip, with a radius of less than 20 nm. Because of the low force constant of the cantilevers, these probes are suitable rather for contact-mode AFM. Nevertheless, the highest available force constant (0.5 N/m) allows one to perform both attractive mode and tapping-mode AFM procedures. This kind of pyramidal dielectric probe has been successfully used as SNOM probes.³¹ The preliminary images presented in this article have been obtained using such probes.

2. Semiconducting probes

They are boron-doped silicon (refraction index $\sim 3.8 + j0.02$ at $\lambda = 635$ nm) commercial probes (UltraleversTM from PSI) with a conical tip. The typical radius of curvature for such a tip is less than 10 nm. The force constant of the cantilever are in the 0.2–20 N/m range, quite suitable for AFM vibrating modes. We also use tetrahedral silicon tips (micro-cantilever from Olympus). Such semiconducting tips have proven to be efficient as optical probes.^{10,17}

3. Metallic probes

The large interest of using metallic probes as SNOM probes has been theoretically^{25,32} and experimentally^{9,12} demonstrated. Nevertheless, no commercial metallic AFM probes exist. This is why we produce our own metallic tips. Moreover, this autonomy enables us to control the geometry of the tips which are made of tungsten. This material (W , $n \sim 3.7 + j2.8$, at $\lambda = 635$ nm) has proved to be efficient for SNOM probes.^{12,18,33} A tungsten cylindrical wire (diameter = 125 μm) is polished and covered by a 100 nm thick gold layer, except at its extremity which is bent and etched by electrochemical erosion. This etching procedure is

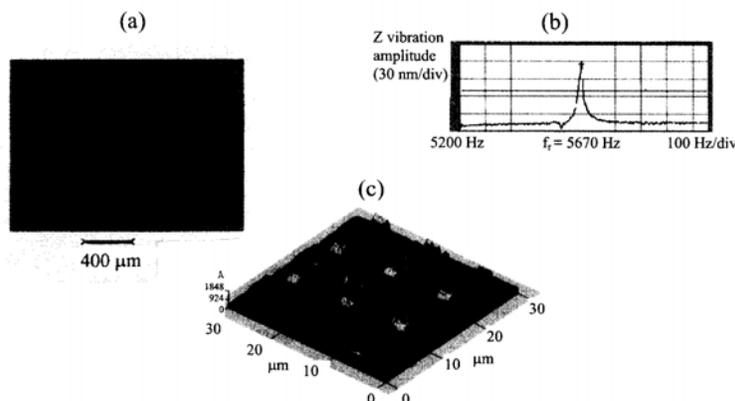


FIG. 5. Homemade tungsten (W) probes: successful use, as AFM probes, by the commercial SPM: (a) 2 mm \times 1.5 mm size snapshot of a W probe (cantilever and tip), (b) measurement of the resonance at frequency f_r , (c) 30 $\mu\text{m} \times$ 30 μm tapping-mode AFM image of a test grating.

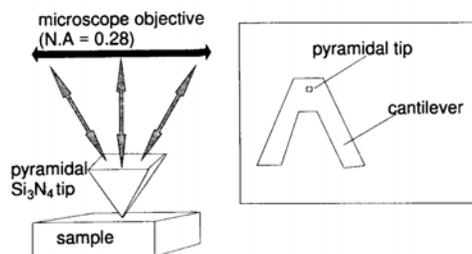


FIG. 6. Experimental configuration used to obtain the preliminary images: (Boxed) top view of the cantilever. The size of the pyramid base is $4\ \mu\text{m} \times 4\ \mu\text{m}$. The height of the pyramid is $4\ \mu\text{m}$. The gray arrows represent the direction of the propagation of the light.

described in several papers (e.g., Ref. 34). Figure 5(a) shows such a metallic probe. Both the well-tapered geometry of the tip as well as the large tip end-to-cantilever distance have to be noted. These characteristics are expected to minimize the unwanted background optical signal described above. The probe characteristics (length and shape of the tip, radius of curvature of the tip end) can be easily controlled by adjusting the parameters of the electrochemical procedure. The probes are checked by both conventional optical microscopy and scanning electron microscopy. The typical dimensions of the cantilever are $5\ \text{mm}$ (horizontal) by $0.5\ \text{mm}$ (vertical) and its stiffness constant k and resonant frequency f_r are in the $10\text{--}150\ \text{N/m}$ and $3\text{--}6\ \text{kHz}$ range, respectively. The cantilever is glued to a M5 ceramic cassette initially used to hold commercial cantilever chips. By choosing the glue point, the horizontal dimension of the cantilever is adjusted to choose both k and f_r . The radius of curvature of the end of such a homemade SNOM probe is less than $10\ \text{nm}$. Figures 5(b) and 5(c) demonstrate that these homemade probes can be used, as AFM probes, by the M5 system. The gold layer on the W cantilever, as well as the polishing, allows a reflectivity which is high enough for the laser beam ($\lambda = 670\ \text{nm}$) of the AFM head to permit the measurement of the vibration amplitude of the cantilever [as well as its resonance, Fig. 5(b)] and a tapping-mode AFM procedure [Fig. 5(c)].

Figure 5 presents preliminary experiments which show that we will be able to use metallic tips in the near future. Presently, this use is not optimized, notably because the initial electronic system of the SPM is not perfectly suitable for the low resonance frequency of the tungsten cantilever (typically $4\ \text{kHz}$). A small modification of this electronic system is in progress, in order to use the metallic tip as an optical probe under the best experimental conditions.

III. PRELIMINARY SNOM IMAGES

As mentioned in Sec. IV, this instrument will be used for the study of the apertureless scanning near-field optical microscopy. The preliminary images that we present here do not represent this study. The purpose of these images is to demonstrate that we have obtained a SNOM signal which

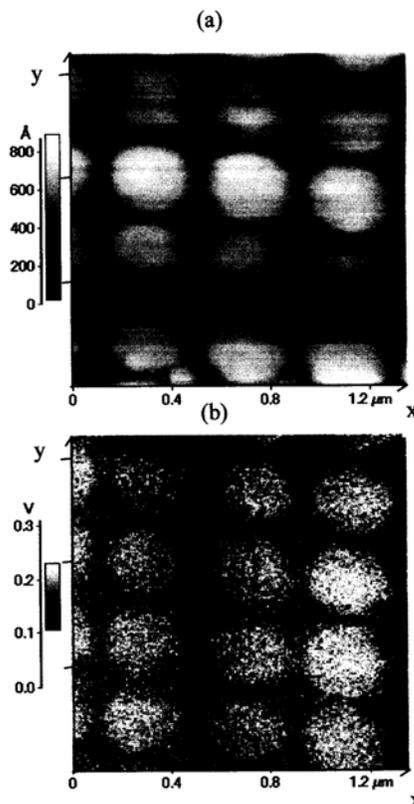


FIG. 7. Simultaneously obtained near-field images (size = $1.3\ \mu\text{m} \times 1.3\ \mu\text{m}$) of aluminum dots on a quartz substrate, obtained by the SNOM configuration of Fig. 3(a), with a silicon-nitride probe: (a) tapping-mode AFM image (constant-gap width mode, vibration amplitude $\sim 50\ \text{nm}$), (b) SNOM image (amplitude of the lock-in detection) at $\lambda = 635\ \text{nm}$.

seems to describe the subwavelength size optical characteristics of the sample. It should be pointed out that the following SNOM images are very reproducible.

The images have been obtained by implementing the (a) SNOM configuration [Fig. 3(a)], using a pyramidal silicon-nitride probe. The incident light ($\lambda = 635\ \text{nm}$) is focused by the objective, and the polarization contrasts are not taken into account (incident elliptic polarization, analyzer not used). Figure 6 describes the experimental conditions. Figure 7 presents the simultaneously recorded AFM image [tapping-mode, constant gap-width mode, vibration amplitude $\sim 50\ \text{nm}$, Fig. 7(a)], and SNOM image [amplitude of the lock-in detection, Fig. 7(b)] of aluminum patterns (dots) deposited on a quartz substrate. This sample has been prepared by x-ray lithography. The dots are $50\ \text{nm}$ high and are cylindrical (diameter = $200\ \text{nm}$) in shape and form a grating (period = $400\ \text{nm}$). Hence, this sample presents both known optical and topographical characteristics. In Fig. 7, we note

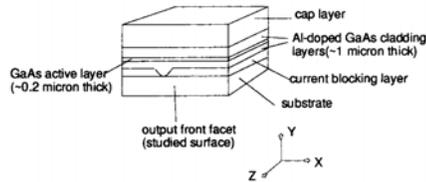


FIG. 8. Schematic diagram of the front facet of the laser diode used as sample. The Y axis is parallel to the growth direction. During near-field imaging, the axis of the probe tip is parallel to the Z axis, and the scan is in the (X, Y) plane.

that the resolution of the AFM images (better than 50 nm) seems to be slightly different from that of the SNOM image (about $50 \text{ nm} \sim \lambda/13$). For example, the two dots at the coordinates $(X=0.7 \mu\text{m}, Y=0.4 \mu\text{m})$ and $(X=1.1 \mu\text{m}, Y=0.4 \mu\text{m})$ are resolved in the AFM image, whereas they are barely resolved in the SNOM image. This difference between the AFM resolution and the SNOM resolution is not surprising because, *a priori*, the part of the tip in mechanical interaction with the sample surface does not exactly correspond to that in optical interaction with the sample. In the SNOM image [Fig. 7(b)], the observed contrast can be interpreted by the high optical reflectance of Al (at $\lambda=635 \text{ nm}$: reflectance $\sim 90\%$ at normal incidence, refraction index $\sim 1.3 + j7.5$), compared to that of quartz (reflectance $\sim 4\%$ at $\lambda=635 \text{ nm}$, at normal incidence). In any case the SNOM contrast has not been induced by a variation in the vibration amplitude, which has been kept constant by the AFM feedback (the error image, not presented in Fig. 7, does not present any contrast). In the AFM image, the presence of small particles lodged between Al dots can be noted, for example at the coordinates $(X=0.5 \mu\text{m}, Y=1 \mu\text{m})$. These objects are about 20 nm high. Although we are ignorant about their nature, we can assume that they are not Al particles because they do not correspond to any contrast in the SNOM image. For example, in the SNOM image, there is no distinguishable particle at the coordinates $(X=0.5 \mu\text{m}, Y=1 \mu\text{m})$. This leads us to hope for the independence of the SNOM signal and the local topography (and the AFM signal). Nevertheless, in the case of Fig. 7, topographical artifacts⁶ may be suspected. Indeed, since the configuration is in reflection, a spatial distribution of specular intensity $I_0(z)$ does exist. $I_0(z)$ is due to the interference between the incident light and the reflected light. Consequently, in this case the contrast of SNOM signal can depend on the path followed by the tip during the scan.³⁰ A good way to avoid this artifact is to study samples presenting no topographical contrast but a large optical contrast.²⁰ This is the case with the following sample.

Figure 8 presents a schematic representation of the sample studied next. It is the front facet of a commercial laser diode (GaAs/Al-doped GaAs, VSIS structure SHARP LT020MC, $\lambda=780 \text{ nm}$) whose protection window has been removed. The interest of this sample is that it does not present any topographic contrast (the crystal facet is cleaved) whereas it presents dielectric contrasts (various GaAs, GaAl_xAs layers). It is thus a suitable sample for first tests of

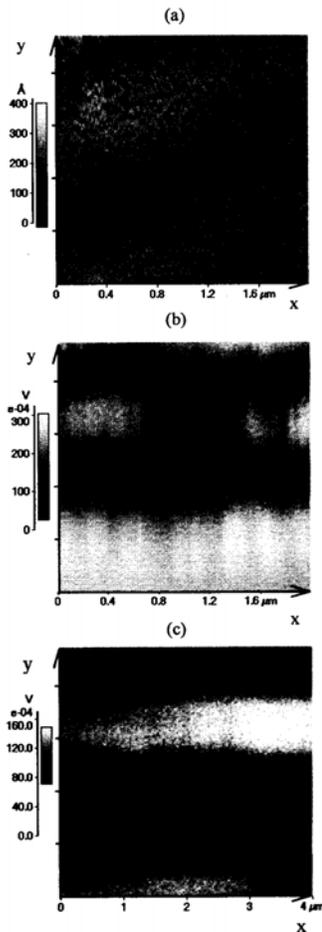


FIG. 9. Near-field images of the sample described in Fig. 8, obtained by the SNOM configuration of Fig. 3(a), with a silicon nitride probe: (a) $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ size tapping-mode AFM image (constant-gap width mode, vibration amplitude $\sim 50 \text{ nm}$), (b) simultaneously obtained $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$ size SNOM image (amplitude of the lock-in detection) at $\lambda=635 \text{ nm}$, (c) $4 \mu\text{m} \times 4 \mu\text{m}$ size SNOM image of another sample zone.

the feasibility of our instrument. It should be noted, however, that the sample surface has certainly been covered by an antireflecting layer whose thickness is in the 10–100 nm range. Because of this layer, the microscope works in the “quasi-near field” zone.³⁵ In this zone, it has been demonstrated that a spatial resolution better than $\sim 100 \text{ nm}$ (at $\lambda=635 \text{ nm}$) cannot be reached.³⁵ Hence, we do not expect very high optical resolution with this sample. The images of Figs. 9(a) and 9(b) have been obtained in the same experimental conditions (see Fig. 6) as for Fig. 7. They are, respectively, the simultaneously recorded AFM (tapping mode, constant gap-width mode), and SNOM images of a sample

zone which is believed to include the active layer. For this experiment, the tip position above the sample was adjusted by visual observation of the spontaneous light emission from the active layer. Figure 9(a) shows the surface flatness. AFM quantitative measurements have confirmed that the surface roughness is less than 5 nm. It should be noted that this flatness corresponds to that of the antireflecting layer. The error image (not presented in Fig. 9) demonstrates that the tip vibration amplitude has been kept constant during scanning. The corresponding SNOM image [Fig. 9(b)] reveals various bands which are supposed to correspond to the GaAs/Al-doped GaAs layers of the laser diode structure. We interpret the contrast of this SNOM image by the fact that the refractive index of Al-doped GaAs is weaker than that of GaAs. It is presently difficult to identify the observed bands without both an advanced study of this sample and a better understanding of the imaging process in apertureless SNOM. However, it can be noted that the bands are parallel to the X axis, as expected (see Fig. 8). Moreover, it should be noted that if the sample is turned with an angle θ in its plane, then the observed band structure pivots in its plane with the same angle θ , demonstrating that the structure corresponds to the various dielectric layers parallel to the X axis. Figure 9(c) is a SNOM image of another zone of the sample. This image has been obtained using the same dielectric tip as for Fig. 9(b). In Fig. 9(c), six optical layers are distinguishable. As expected, in Figs. 9(b) and 9(c), the optical resolution is not very high compared to λ (~ 100 nm, i.e., $\sim \lambda/6$). However, this resolution represents a gain of about 30, compared to the resolution of the microscope objective used. In Fig. 9, no feedback artifact^{6,30} can be suspected in the SNOM images, and it is assumed that both Figs. 9(b) and 9(c) reveal a pure dielectric contrast. In Fig. 9, the size of the images do not exceed $4 \mu\text{m} \times 4 \mu\text{m}$. Larger scans would show the extended structure and would help to better identify the layers. Unfortunately, it is presently difficult to make a scan larger than about $4 \mu\text{m}$ because in our configuration both the laser spot (diameter $\sim 3 \mu\text{m}$) and the sample are fixed, whereas the probe is scanned above the sample. Hence, if the scan is too large, the probe leaves the spot and thus is no longer illuminated. This is a disadvantage as well as a limitation, which is why we actually install the sample on a piezoelectric transducer translation stage, for larger scans.

The SNOM characterization of this kind of sample (without an antireflecting layer to improve the resolution) is in progress. The light emission profile of the laser diode especially is studied for injection currents below as well as above the laser threshold.

IV. DISCUSSION AND PERSPECTIVES

In conclusion, we have presented a polyvalent reflection-mode apertureless SNOM developed from a commercial scanning probe microscope. The SNOM functions take advantage of the performances of the commercial system, without modifying them in any way. Two setups have been introduced, allowing five reflection-mode SNOM configurations which can use several types of tips of variable materials and shapes. One of the configurations has been

tested and the preliminary images have revealed the ability of the device to reveal the pure dielectric contrasts of a commercial optoelectronic component, with a subwavelength spatial resolution. Because of its polyvalence, this instrument is scheduled to allow the complete experimental study of the apertureless scanning near-field optical microscopy, including polarization contrasts, influence of the angle illumination, influence of the angle of detection, process of the SNOM signal formation, and influence of the tip nature (material and shape) on the SNOM contrast. Recent theoretical works³⁶ demonstrate that these experimental studies are of great importance. Simultaneously, the instrument will be used for characterization of components in microelectronics and optoelectronics, and for photopolymerization experiments. In this experiment, we will take advantage of the local extremely strong field enhancement that may occur in the gap between a metallic tip and a sample surface²⁵ to illuminate a sensitive sample locally, in order to perform optical lithography with a nanometric resolution.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors are grateful to Y. Chen and R. Deturche for samples manufacture, M. Spajer and D. Courjon for micro-lens manufacture, P. Adam, O. Bergossi, J. L. Bijeon, R. Carminati, and J. J. Greffet for fruitful discussions, and A. C. Boccarda for encouragement.

¹M. A. Paesler and P. J. Moyer, *Near-Field Optics* (Wiley, New York, 1996); J. P. Fillard, *Near-Field Optics and Nanoscopy* (World Scientific, Singapore, 1996).

²D. W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984).

³E. Betzig, M. Isaacson, and A. Lewis, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 2088 (1987).

⁴E. H. Syngue, *Philos. Mag.* **6**, 356 (1928).

⁵H. A. Bethe, *Phys. Rev.* **66**, 163 (1944); C. J. Bouwkamp, *Phillips Res. Rep.* **5**, 401 (1950).

⁶B. Hecht, H. Bielefeld, Y. Inouye, and D. W. Pohl, *J. Appl. Phys.* **81**, 2492 (1997).

⁷A. C. Boccarda, MRT Contract 88 PO249 (Ministère de la recherche et de la technologie, Paris, France, 1988); H. K. Wickramasinghe and C. C. Williams, U.S. Patent 4,947,034 (Aug. 28, 1990).

⁸R. Bachelot, P. Gleyzes, and A. C. Boccarda, *Microsc. Microanal. Microstruct.* **5**, 389 (1994).

⁹Y. Inouye and S. Kawata, *Opt. Lett.* **19**, 159 (1994).

¹⁰F. Zenhausern, M. P. O'Boyle, and H. K. Wickramasinghe, *Science* **249**, 1083 (1995).

¹¹R. Bachelot, P. Gleyzes, and A. C. Boccarda, *Opt. Lett.* **20**, 1994 (1995).

¹²R. Bachelot, P. Gleyzes, and A. C. Boccarda, *Appl. Opt.* **36**, 2160 (1997).

¹³G. Mie, *Ann. Phys. (Leipzig)* **25**, 377 (1928); M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, 6th ed. (Pergamon, New York, 1993), Chap. 13.5.

¹⁴D. Courjon, K. Sarayeddine, and M. Spajer, *Opt. Commun.* **71**, 23 (1989).

¹⁵F. de Fornel, J. P. Gouffonnet, L. Salomon, and E. Leniewska, *ECO2 Opt. Storage Scanning Technol.* **1139**, 77 (1989); R. C. Reddick, R. J. Warmack, and T. L. Ferrel, *Phys. Rev. B* **39**, 767 (1989).

¹⁶C. Bainier, S. Leblanc, and D. Courjon, in *Near Fields Optics*, Vol. 242, *NATO ASI Series E: Applied Sciences*, edited by D. W. Pohl and D. Courjon (Kluwer, Dordrecht, 1993), p. 97.

¹⁷Y. Martin, F. Zenhausern, and H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2475 (1996).

¹⁸A. Lahrech, R. Bachelot, P. Gleyzes, and A. C. Boccarda, *Opt. Lett.* **21**, 1315 (1996).

¹⁹B. Knoll, F. Keilmann, A. Kramer, and R. Guckenberger, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2667 (1997).

²⁰A. Lahrech, R. Bachelot, P. Gleyzes, and A. C. Boccarda, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 575 (1997).

²¹E. Betzig, J. K. Trautman, J. S. Weiner, T. D. Harris, and R. Wolfe, *Appl. Opt.* **31**, 4563 (1992).

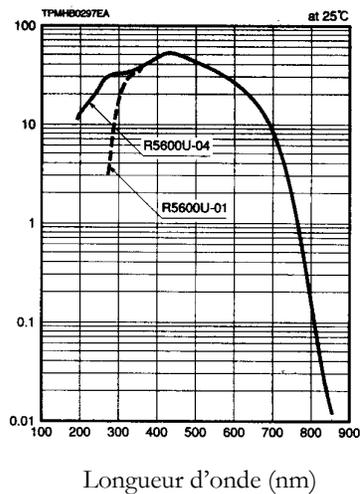
- ²²K. Propstra and N. F. van Hulst, *J. Microsc.* **180**, 165 (1995).
- ²³A. Jalocha and N. F. van Hulst, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 1577 (1995).
- ²⁴To our knowledge, only Adam *et al.* have recently begun this study: P. M. Adam, J. L. Bijoon, and P. Royer, Fourth International Conference in Near-Field Optics (NFO-4), Jerusalem, Israel, Feb. 9–13, 1997 (oral communication).
- ²⁵O. J. F. Martin and C. Girard, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 705 (1997).
- ²⁶H. Kuwahara, M. Sasaki, and N. Tokoyo, *Appl. Opt.* **19**, 2578 (1980).
- ²⁷M. Spajer, O. Bergossi, and M. Guignard, *Opt. Commun.* **106**, 139 (1994).
- ²⁸B. Hecht, D. W. Pohl, and H. Heinzelmann, *Ultramicroscopy* **57**, 229 (1995).
- ²⁹L. Novotny, *J. Opt. Soc. Am. A* **14**, 91 (1997); *ibid.* **14**, 105 (1997).
- ³⁰R. Carminati, A. Madrazo, M. Nieto-Vesperinas, and J. J. Greffet, *J. Appl. Phys.* **82**, 501 (1997).
- ³¹N. F. van Hulst, M. H. P. Moers, O. F. J. Noordman, R. G. Tack, F. B. Segerink, and B. Bölger, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 461 (1993); F. Baida, D. Courjon, and G. Tribillon, in *Near Field Optics*, Vol. 242, *NATO ASI Series E: Applied Sciences*, edited by D. W. Pohl and D. Courjon (Kluwer, Dordrecht, 1993), p. 71.
- ³²R. D. Grober, R. J. Schoelkopf, and D. E. Prober, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1354 (1997).
- ³³M. Specht, J. D. Pedarnig, W. M. Heckl, and T. W. Hansch, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 476 (1992).
- ³⁴A. J. Melmed, *J. Vac. Sci. Technol. B* **9**, 601 (1991).
- ³⁵D. Barchiesi, O. Bergossi, C. Pieralli, and M. Spajer, *Ultramicroscopy* (to be published).
- ³⁶A. Madrazo, R. Carminati, M. Nieto-Vesperinas, and J. J. Greffet, *J. Opt. Soc. Am. A* **15**, 109 (1998).

Annexe 2.

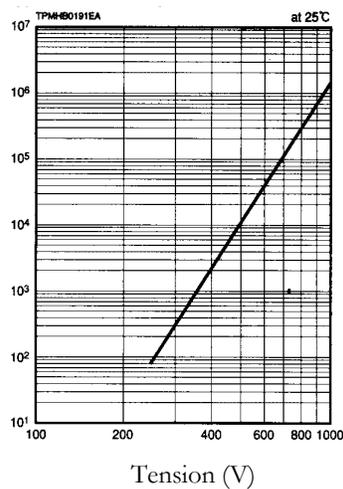
Caractéristiques du photomultiplicateur Hamamatsu R5600P-04

	R5600P-04
Matériau de la photocathode	Multi-alkalin
Matériau de la fenêtre	verre UV
Réponse spectrale (max. de sensibilité)	185 à 820 nm (420 nm)

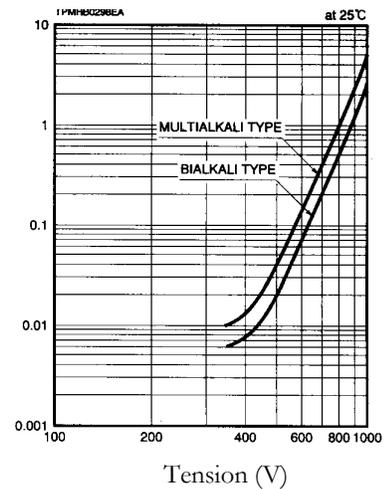
		R5660U-04
Sensibilité de la cathode	Sensibilité lumineuse	100 $\mu\text{A}/\text{lm}$
	Sensibilité au bleu	-----
Sensibilité de l'anode	rapport rouge à blanc	0.1
	sensibilité lumineuse	30 A/lm
Amplification en courant(800 V)		3×10^5
Courant d'obscurité (800 V)		1 nA



Réponse spectrale



Caractéristiques d'amplification en courant



Caractéristiques du courant d'obscurité d'anode