

Dispositif expérimental

Le centre NV dans le diamant présente des caractéristiques qui semblent très prometteuses pour la réalisation d'une source de photons uniques, en particulier une grande photostabilité à température ambiante. Après une brève présentation du cristal de diamant, hôte du centre NV, nous allons passer en revue les propriétés et les méthodes de préparation des centres NV. Puis nous décrirons le montage expérimental mis au point pour isoler un centre NV unique.

2.1 Le diamant

Le cristal de diamant possède un grand nombre de propriétés intéressantes. Avant tout, c'est la pierre qui séduit le plus de personnes dans le monde ! Mais c'est aussi un matériau couramment utilisé dans de nombreuses applications.

Sa dureté fait qu'il est un matériau de choix pour découper ou forer. Sous forme de microcristaux, il est souvent utilisé comme abrasif ou produit de polissage dans l'industrie du verre. De plus il est chimiquement inerte et donc très résistant dans des milieux extrêmes. Dans des conditions normales, il ne subit aucune altération, mais il se transforme en graphite lorsqu'il est chauffé à des températures supérieures à 850°C à l'air. Il possède également une très bonne conductivité thermique et est utilisé comme contact thermique dans l'industrie des circuits intégrés. Le diamant est classé dans les matériaux semiconducteurs, au même titre que le silicium.

Le diamant existe sous forme naturelle ou synthétique. Il existe deux techniques pour le synthétiser. La première est de transformer le graphite en diamant en le soumettant à de très hautes pressions ($50 \times 10^8 \text{ Pa}$) et températures (2000°C). Ce procédé permet la création de monocristaux de bonne qualité et de grande taille. La deuxième technique consiste à réaliser un dépôt de carbone assisté par plasma. Cette technique appelée CVD (Chemical Vapor Deposition) permet de contrôler très précisément la formation du cristal et de fabriquer des films de diamant de quelques nanomètres d'épaisseur. A la différence de la première méthode, le diamant ainsi formé est souvent polycristallin. L'avantage de cette technique est de pouvoir doser la quantité d'impureté que l'on ajoute dans le cristal. Les impuretés présentes dans le cristal de diamant peuvent être optiquement actives, c'est-à-dire fluorescentes. On parle de centres colorés du diamant, car ils sont responsables de la coloration du cristal.

2.1.1 Classification du diamant

La classification du diamant est basée sur les propriétés d'absorption optique et paramagnétique des impuretés d'azote [38]. On distingue deux types.

2.1.1.1 Type I

Le type I correspond à l'ensemble des diamants pour lesquels l'absorption optique et paramagnétique est principalement due aux impuretés d'azote. Une grande partie des diamants naturels font partie de cette catégorie. Ce type est sous divisé en deux catégories supplémentaires, le type Ia et le type Ib. Le type Ia rassemble tous les diamants pour lesquels il n'y a pas d'absorption due à un seul atome d'azote : les impuretés d'azote sont présentes sous forme d'agrégats. La plupart des diamants naturels font partie de cette catégorie. Le type Ib contient de façon prédominante des atomes d'azote en substitution. On trouve rarement des diamants naturels dans cette sous-catégorie, qui englobe presque tous les diamants synthétiques. Une caractéristique commune des diamants Ib est la présence de centres colorés¹ NV, 575 et S1

2.1.1.2 Type II

Contrairement au type I, on classe dans cette catégorie les diamants dont les défauts ne sont pas majoritairement constitués d'azote. La concentration d'azote est alors inférieure à 10^{17} atomes \cdot cm⁻³. On classe les diamants de Type II en deux sous-catégories en fonction de leur absorption optique due au brome et à l'hydrogène. Le type IIa n'a pas d'absorption due à ces deux éléments. C'est le cristal qui est le plus transparent optiquement. Le type IIb au contraire a une absorption due au brome et à l'hydrogène. Ces cristaux sont souvent utilisés comme semi-conducteurs, puisqu'ils comportent des accepteurs et des donneurs non compensés.

2.1.2 Caractéristiques optiques du diamant

Nous allons maintenant nous intéresser aux propriétés optiques du diamant. Nous limiterons cette étude aux propriétés qui sont en rapport direct avec nos expériences.

L'indice de réfraction du diamant est très élevé [34]. Il est de 2.4257 à 533.8 nm et de 2.405 à 700 nm. L'écart d'indice entre les diamants de type I et type II est inférieur à 1%, et il ne varie que de 10/100 en fonction de la température. Le coefficient de réflexion du diamant pour une longueur d'onde de 700 nm à incidence normale vaut $R = \left(\frac{n_d-1}{n_d+1}\right)^2 = 0.17$. Ceci limite considérablement l'efficacité de collection de la lumière émise par un centre émetteur à l'intérieur du cristal.

Le diamant est transparent dans le domaine visible. La couleur jaune des cristaux de type Ib provient de la queue de l'absorption ultraviolette associée aux impuretés d'azote substitutionnel. Le diamant est aussi très riche en centres colorés [34]. On en dénombre plus d'un millier optiquement actifs, répartis sur un très grand spectre (de l'UV à l'IR). Les centres colorés sont toujours des défauts de la maille cristalline du diamant. Ainsi la présence d'un atome d'azote en substitution à un atome de carbone (centre P1) ou bien l'absence d'un atome de carbone (centre GR) forment des centres optiquement actifs. L'association d'un ou plusieurs atomes d'azote avec une ou plusieurs lacunes forment aussi des centres optiquement actifs.

Parmi les centres colorés du diamant, on distingue le centre NV qui est le centre fluorescent sur lequel notre source de photons uniques est basée. Il est constitué d'un atome d'azote (N) et d'une lacune (V : Vacancy). Il est probablement chargé négativement [39]. La forme non ionisée $[N - V]$ est appelé centre "575 nm". D'autres centres colorés basés sur l'association d'un azote et de plusieurs lacunes sont répertoriés. Ce sont les centres H3, N3, B de type $[N - V_n]$ avec $n = 2...4$ respectivement.

¹Un centre coloré est un défaut optiquement actif dans la maille cristalline du diamant

2.2 Le centre NV

Les centres NV, appelés aussi centres 637 nm ou 1.945 eV, sont des défauts naturellement présents dans le cristal de diamant. Ils peuvent aussi être créés artificiellement. Ils sont constitués (fig. 2.1) d'un atome d'azote en substitution d'un atome de carbone à côté d'une lacune, la direction N-V étant orientée sur l'axe $[1/4,1/4,1/4]$ de la maille cristalline. Ils appartiennent au groupe de symétrie C_{3v} , tandis que celle du diamant est O_h^7 . Cette association forme un système moléculaire fixe dans une matrice hôte.

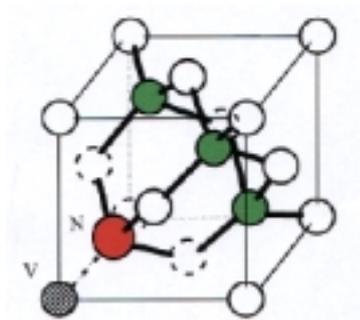


Figure 2.1: Structure d'un centre NV à l'intérieur d'une maille de cristal de diamant

La raie à zéro phonon est à 637 nm mais le spectre d'émission s'étend sur 100 nm (fig.2.2) à cause des répliques de phonons. Usuellement on observe 3 ou 4 répliques, mais sur des échantillons de très haute qualité, le couplage électron-phonon peut être suffisamment important pour observer jusqu'à 6 répliques à température ambiante [34]. L'élargissement inhomogène est de 750 GHz^2 pour la raie à zéro phonon [34]. Le spectre d'absorption est le symétrique de celui d'émission autour de 637 nm. Il coïncide aussi avec le spectre d'excitation. La longueur d'onde d'excitation peut être choisie indifféremment entre 514 nm et 637 nm.

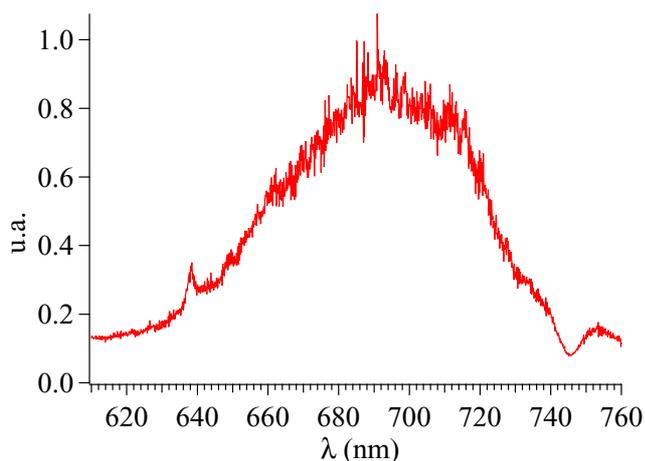


Figure 2.2: Spectre d'émission à température ambiante de plusieurs centres NV excités à 532 nm dans le diamant massif

²Soit environ 3 meV ou bien 0.6 nm

La structure électronique du centre NV a été établie de façon définitive après plusieurs années de polémiques. Il s'agit d'une transition électronique entre un état fondamental triplet de spin, de symétrie 3A , vers un état excité de symétrie 3E [40, 41, 42, 43, 34]. D'autres niveaux, de symétrie 1E et 1A , ont aussi été identifiés. Leur énergie est 0.44eV et 1.67eV respectivement [34] (fig. 2.3). Les transitions vers ces niveaux étant optiquement interdites, ils peuvent jouer le rôle d'états pièges [35, 37]. A basse température le niveau 1A est responsable de la disparition de la fluorescence car il dépeuple l'état excité [36]. Il est néanmoins possible de repomper l'état métastable vers le niveau excité à l'aide d'un laser à 488 nm. La désexcitation du centre NV se fait préférentiellement vers le sous-niveau de plus basse énergie de l'état fondamental, ce qui produit du pompage de spin et rend le centre paramagnétique [44].

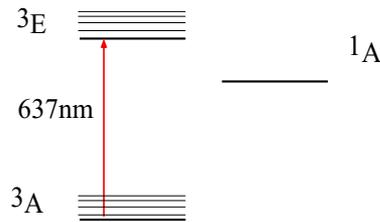


Figure 2.3: Diagramme des niveaux du centre NV.

L'existence de sous-niveaux dans l'état fondamental est une originalité des systèmes moléculaires fluorescents, qui sont souvent des états singulets (nombre pairs d'électrons appariés). Il existe d'ailleurs des propositions pour transformer le centre NV en qubit en utilisant cette propriété [45].

On peut résumer les principales caractéristiques qui rendent le centre NV attrayant pour réaliser une source à photons uniques à température ambiante.

- Sa courte durée de vie ($\Gamma = 11.6\text{ns}$), permet un taux de répétition élevé³ (environ 10 MHz).
- Son efficacité quantique proche de l'unité⁴ garantit l'émission d'un photon après chaque impulsion d'excitation.
- Le spectre d'émission est bien séparé du spectre d'absorption. Il est donc facile d'isoler la lumière d'excitation monochromatique de la lumière de fluorescence.
- Le centre NV se trouve naturellement fixé dans une matrice solide, ce qui rend sa manipulation assez aisée.
- Finalement il est important de souligner que le centre NV est intrinsèquement photostable. A l'inverse des molécules ou d'autres centres colorés dans les cristaux (par exemple LiF), il ne présente pas de photoblanchiment. Nos expériences ont montré une stabilité photophysique supérieure à sept jours. On n'a observé aucune modification de la lumière de fluorescence, aussi bien sous excitation continue qu'impulsionnelle.

Nos premières expériences ont été réalisées avec des centres NV dans le diamant massif. D'après les travaux extensifs de Gruber *et al* [35] et Dräbenstedt *et al* [36], seul le diamant de type I possède

³Typiquement la probabilité pour que le centre NV soit encore excité après $5 \times \Gamma$ est de 7×10^{-3}

⁴La seule voie de désexcitation connue du centre NV est radiative

une concentration suffisante d'azote. De plus, c'est seulement dans le type Ib que les atomes d'azote substituent un atome de carbone, et ne forment pas d'agrégats.

Les échantillons, de dimensions $1.5 \times 1.5 \times 0.1 \text{ mm}^3$, sont fournis par la compagnie Drukker International. Ils sont taillés suivant l'axe cristallographique [110]. En effet, un centre NV se forme toujours suivant l'axe [111] du cristal [34]. Dans une maille de cristal il existe 2 axes [111] équivalents, reliant les sommets d'un cube. Ainsi pour une coupe suivant l'axe [110] on aura 50% des centres dans le plan perpendiculaire à l'axe optique de l'objectif de microscope. Dans l'hypothèse où l'émission des centres NV est celle d'un dipôle, cette configuration nous permettra de collecter un maximum de lumière émise.

L'azote étant naturellement présent dans le diamant, il faut créer les lacunes (V : Vacancy) dans la maille cristalline. Elles sont obtenues par irradiation électronique, neutronique ou bien par des ions de haute énergie. Lorsqu'une particule énergétique entre en collision avec un atome de carbone, ce dernier est expulsé de la maille. Un recuit, pendant 2 h, sous vide à 850°C rend les lacunes mobiles. Elles s'immobilisent lorsqu'elles rencontrent un atome d'azote pour former un centre NV [34].

Nous avons effectué les premières expériences [46] sur des échantillons irradiés avec des électrons de 1.5 MeV à des doses de 10^{12} à $10^{14} \text{ e}^-/\text{cm}^2$. Nous avons réussi à mettre en évidence les centres NV, mais leur concentration était trop importante, et il était difficile d'isoler un centre unique. Il s'est avéré par la suite que la concentration de centres NV est suffisante dans les échantillons commerciaux, et que l'irradiation est donc inutile. Les résultats de ces expériences seront exposés en détail dans le Chapitre 3.

2.3 Le microscope confocal

Pour isoler optiquement un centre NV, et analyser sa lumière de fluorescence, nous avons mis au point un microscope confocal, ainsi qu'un système d'autocorrélation d'intensité de type Hanbury-Brown et Twiss [47] en régime de comptage de photons.

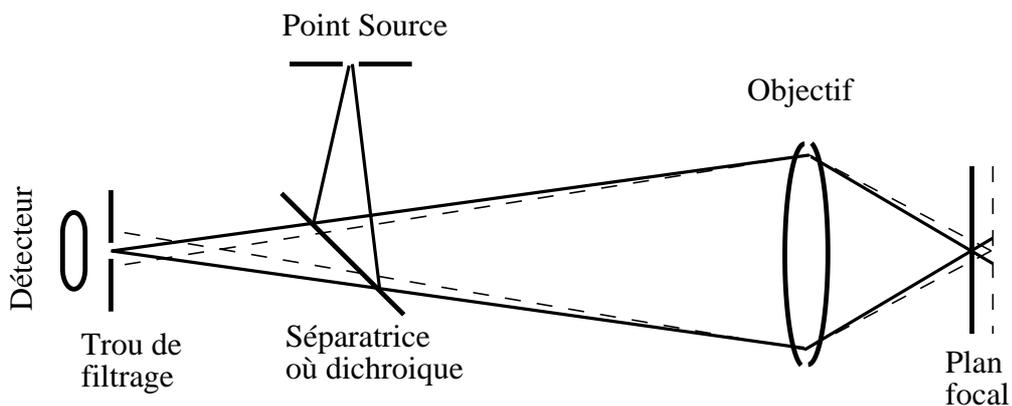


Figure 2.4: Schéma de principe du microscope confocal

La microscopie confocale a été introduite par Marvin Minsky [48, 49] en 1957. Une introduction générale est présentée dans la référence [50]. La figure 2.4 représente le schéma de principe. La lumière provenant d'un point source est réfléchiée sur une lame séparatrice (ou dichroïque) vers un objectif de microscope, puis est focalisée sur l'échantillon. La lumière réfléchiée, ou la fluorescence suivant l'expérience réalisée, est collectée par le même objectif, puis focalisée sur un trou de faible diamètre, qui joue le rôle de filtre spatial. Il est relativement simple de prouver que les seuls rayons

$$ON = n \sin i \quad (2.1)$$

où n est l'indice du milieu, et i le demi-angle d'incidence maximale. Avec l'objectif utilisé, nous collecterons suivant un angle de 144° pour une ouverture de $ON=1.4$, ce qui représente une fraction importante de la lumière de fluorescence émise par le centre NV.

L'objectif permet en principe de focaliser la lumière d'excitation sur une taille de spot limitée par la diffraction. En supposant que le faisceau d'excitation est une gaussienne qui remplit complètement la pupille la taille du faisceau d'excitation est limité par la diffraction. Le diamètre de la tache d'Airy (en $1/e^2$) sur le plan image est donné par :

$$2w_o \approx \frac{2}{3} \cdot 2 \cdot 1.22 \frac{\lambda}{O.N.} \approx 618 \text{nm} \quad (2.2)$$

pour une longueur d'onde d'excitation à 532 nm et une ouverture $ON=1.4$. Ainsi on n'excitera qu'une très faible zone au niveau de l'échantillon. La profondeur de champ est approximativement donnée par la longueur de Rayleigh, soit $z = 1.71 \mu\text{m}$. Le volume d'excitation est donc un cylindre de diamètre $0.618 \mu\text{m}$ et d'une hauteur de $1.71 \mu\text{m}$.

Nous voulons maintenant collecter seulement la lumière provenant de ce volume d'excitation, afin de maximiser le rapport signal à bruit. La lumière de fluorescence collectée par l'objectif de microscope est donc refocalisée sur un trou de filtrage à l'aide d'une lentille (principe du microscope confocal). Nous pouvons estimer la focale de la lentille à utiliser, ainsi que le diamètre du trou de filtrage. La focale (f_{obj}) de l'objectif est donnée par la formule

$$f_{obj} = \frac{250 \text{mm}}{G} = 2.5 \text{mm} \quad (2.3)$$

et nous utilisons une lentille de focalisation de focale $f_{len} = 250 \text{ mm}$. La résolution transversale du microscope confocal est donnée par la conjugaison du trou de filtrage au niveau de l'échantillon. On obtient alors une résolution de $R_{long} = d_{trou}/100$, soit un cercle d'un diamètre de 500 nm pour un trou de $50 \mu\text{m}$. Par un calcul d'optique géométrique, on évalue la résolution longitudinale du microscope confocal à approximativement $1 \mu\text{m}$. Avec ce choix de lentille et de trou, la résolution du microscope confocal est proche de la taille du spot laser d'excitation, et on ne collectera que la lumière provenant exactement de l'endroit que l'on excite.

La lumière d'excitation est amenée sur le montage à l'aide d'une fibre optique. On peut choisir une excitation continue par un laser Ar^+ à 514 nm, ou par un YAG doublé à 532 nm, ou bien une excitation impulsionnelle à 532 nm qui sera décrite plus loin (chapitre 5). Un système de lentilles permet de dilater le faisceau pour couvrir toute la pupille de l'objectif. Une lame $\lambda/4$ permet de corriger la polarisation après le passage dans la fibre optique, qui n'est pas à maintien de polarisation. On contrôle l'intensité du faisceau avec un "robinet" optique composée d'une lame $\lambda/2$ suivie d'un cube polariseur. Finalement pour purifier spectralement la lumière d'excitation après son passage dans la fibre, on place un filtre interférentiel passe bande, centré sur 514nm ou 532nm. En effet lors du passage dans la fibre, des effets non-linéaires de type Raman peuvent produire une lumière parasite aux longueurs d'onde d'observation, créant un bruit de fond assez grand pour masquer le signal d'un centre NV unique.

Une lame dichroïque permet d'envoyer le laser vers l'objectif. La lame dichroïque est réfléchissante pour les longueurs d'onde inférieures à 550 nm, et passante pour $\lambda > 550$ nm. Nous pouvons ainsi effectuer une première sélection spectrale de la lumière en filtrant la lumière d'excitation. Des filtres interférentiels passe-haut⁶ permettent d'isoler la lumière dans la gamme de longueurs d'ondes qui nous intéresse. Chaque filtre a une extinction de 10^{-4} à 532 nm. La lame dichroïque ayant elle aussi une transmission de seulement 10^{-4} à 532 nm, on obtient une extinction totale d'au moins 10^{-8} . Or la puissance d'excitation des centres NV est de quelques mW. En supposant que 10% de la lumière d'excitation est collectée par l'objectif (par des réflexions sur diverses surfaces), on vérifie bien qu'il faut placer au moins deux filtres interférentiels pour n'avoir que ≈ 350 photons·s⁻¹ de lumière parasite venant du laser d'excitation.

Pour atteindre des ouvertures numériques supérieures à l'unité, nous travaillons avec un objectif à immersion. L'huile à immersion doit avoir un faible niveau de fluorescence, car même si nous ne focalisons pas directement dans l'huile, elle est responsable d'une partie de la fluorescence parasite. Nous utilisons l'huile Cargille Type FF (Code formule 159). Son indice de réfraction est de 1.479. Pour une puissance d'excitation de 1 mW focalisée directement dans l'huile, on ne détecte que quelques milliers de photons. A l'inverse, une huile standard émet plus de 10^5 photons par seconde dans les mêmes conditions.

2.3.2 Positionnement du faisceau d'excitation

Pour pouvoir faire une image de l'échantillon étudié, on doit pouvoir balayer le faisceau d'excitation au niveau de l'échantillon suivant les trois degrés de liberté (X Y dans le plan et Z longitudinalement). L'objectif de microscope est monté sur une bague piézo-électrique (Piezo Jena modèle MIPOS-3) qui permet de positionner le spot d'excitation suivant l'axe z sur une plage de $100\mu\text{m}$, en appliquant une tension de -10 à 150V . Le positionnement sur le plan $x - y$ se fait à l'aide d'un miroir à 45° (fig 2.5) monté sur une cale piézo-électrique (Piezo Jena modèle PSH2 2NVB avec un plateau de type B). L'excursion totale au niveau de l'échantillon dépend de l'angle de tilt de la cale, et du grossissement de l'objectif. L'angle maximal est de 2 mrad pour une tension de 150V . Avec un objectif $\times 100$ (focale 2.5 mm) ceci équivaut à une course de $10\mu\text{m}$ au niveau de l'échantillon. On peut ainsi balayer une zone de $10 \times 10\mu\text{m}^2$ suivant les deux axes. La lumière de fluorescence est réfléchiée par ce même miroir, et dirigée vers le trou de filtrage. Nous pouvons donc positionner le faisceau d'excitation dans un volume de $10 \times 10 \times 100 \mu\text{m}^3$.

Les trois axes sont contrôlés par ordinateur à l'aide d'une carte National Instruments PCI-Lab1200. La position de l'axe Z est commandée par une tension $0 - 10\text{V}$ codée par la carte PCI-Lab1200 sur 12 bits, et les axes XY par une interface RS232 (8 bits). La résolution des déplacements au niveau de l'échantillon est donnée par la précision des tensions de commande. Elle est de $100\mu\text{m}/2^{12} = 24$ nm pour l'axe Z, et de $10\mu\text{m}/2^8 = 39$ nm pour les axes X-Y.

Les signaux produits par l'informatique sont envoyés sur deux modules haute tension qui les transforment en tension $-10 \rightarrow 150\text{V}$ pour commander les piézo-électriques. L'écart entre la tension attendue et la tension obtenue est inférieur à 0.1%.

L'axe Z a un taux de rafraichissement de 1 kHz, limité par la carte d'acquisition. Pour les axes X et Y, la bande passante est limitée par le taux de transfert de l'interface RS232, soit 2.4 kHz. Ces valeurs sont largement suffisantes pour notre application. On travaillera plutôt à 30 – 50 Hz de rafraichissement pour chaque axe.

⁶On possède plusieurs filtres avec une longueur d'onde de coupure de 580nm, 620nm, et 645nm

Comme tous les éléments piézo-électriques, nos cales présentent des effets de "creep" et d'hystérésis. Le creep est une dérive de la cale piézo-électrique en fonction du temps, qui dépend de la tension appliquée. Cette dérive est proportionnelle à l'amplitude du dernier mouvement de la cale. L'hystérésis se manifeste du fait qu'un déplacement pour une tension croissante (de -10 à 150V) n'est pas le même que pour une tension décroissante. Ainsi par exemple, un point lumineux identifié à 40V lors d'un scan à tension croissante, sera retrouvé à 38V pour un scan décroissant.

Pour éviter l'effet d'hystérésis nous demandons au programme de contrôle d'effectuer tous les mouvements toujours dans le même sens. L'existence du creep nous impose de mettre en place un asservissement en position des cales piézo-électriques.

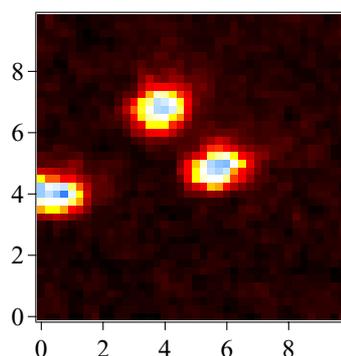


Figure 2.6: Balayage sur $10 \times 10 \mu\text{m}$ d'un échantillon comportant des billes de crimson

Avant d'utiliser notre microscope confocal avec les centres NV, nous l'avons testé avec des billes fluorescentes. Ce sont des billes calibrées d'un diamètre de $1 \mu\text{m}$ contenant des molécules de crimson. Leur spectre d'excitation et d'émission est compatible avec notre montage. Sur la figure 2.6 nous avons représenté une image ainsi obtenue. La résolution est de 250 nm pour chaque axe. L'image de chaque bille correspond à la convolution d'une gaussienne de diamètre $\approx 600\text{nm}$ (faisceau d'excitation) avec une fonction rectangle de taille $1 \mu\text{m}$. La largeur à mi-hauteur d'une bille vaut $1.25 \mu\text{m}$, ce qui correspond au résultat attendu. On n'observe pas d'hystérésis, et il les billes apparaissent avec un très bon contraste.

2.3.2.1 Asservissement

Le montage que nous venons de décrire présente deux sortes de dérives : celles dues au creep, intrinsèque aux cales piézo-électriques, et des dérives mécaniques de la platine de microscope. Le temps d'acquisition d'une courbe d'autocorrélation est de l'ordre d'une dizaine de minutes, et les expériences se déroulent sur plusieurs heures, alors que le système de microscopie ne reste stable que pendant environ 2 à 3 minutes. Nous devons donc compenser activement ces deux dérives, et nous avons développé un programme informatique capable de maintenir le spot d'excitation au maximum de fluorescence. Le principe est le suivant (pour un axe) :

- L'ordinateur mesure le taux (N_a) de photons émis par le centre pendant 160 ms .
- Puis il se déplace de Δx dans un sens, et mesure à nouveau le taux de fluorescence (N_b) pendant la même durée.

- Si $N_b > N_a + \sqrt{N_a}$ alors il reste dans cette position (il faut que le signal dans la nouvelle position soit supérieur au signal à la position initiale, plus le bruit de photon).
- Sinon il retourne à sa position initiale et se déplace dans l'autre sens.
- La boucle est répétée pour chacun des axes.

Cette procédure est répétée toute les 8 secondes pour chaque axe x, y, z avec un pas de 40 nm pour les axes x et y, et 250 nm pour l'axe z. Nous avons constaté qu'un seul pas dans chaque direction était largement suffisant pour garder le système stable pendant plusieurs heures. Il ne décroche qu'une fois qu'un des axes de la cale piézoélectrique arrive en butée.

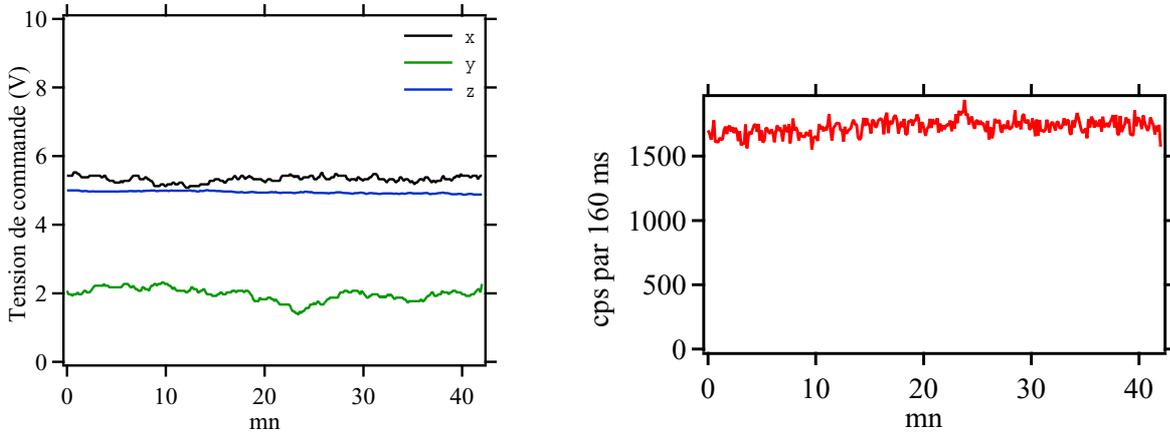


Figure 2.7: *Gauche : Tension appliquée sur chacune des cales piézo-électriques pendant l'asservissement. Droite : Taux de fluorescence en fonction du temps pendant 42 minutes*

La figure 2.7 montre la tension appliquée sur chacune des cales piézo-électriques pour maintenir la fluorescence à son maximum. La figure de droite montre le taux de fluorescence d'un centre NV en fonction du temps. Les légères dérives sont dues aux fluctuations de puissance du laser d'excitation.

2.3.3 Efficacité de collection

Dans le paragraphe précédent nous avons décrit le montage expérimental mis en place. Nous pouvons maintenant faire une estimation approximative de son efficacité de collection. Pour cela, nous devons tenir compte du fait que le dipôle se trouve à l'intérieur d'un cristal d'indice $n_2 = 2.4$.

Connaissant l'ouverture numérique de l'objectif, on en déduit l'angle maximal θ_{max} de collection (eq. 2.1) et on peut calculer l'efficacité de collection η_c pour un point source émettant uniformément sur 4π sr. Elle est donnée par la formule :

$$\eta_c = \frac{1}{4\pi} \int_0^{\theta_{max}} 2\pi \sin\theta' d\theta' = \frac{1 - \cos\theta_{max}}{2} \quad (2.4)$$

Cette formule n'est cependant valable que lorsque le dipôle est dans un milieu de même indice que le milieu entre le dipôle et l'objectif, soit un indice $n_1 = 1.5$ dans le cas d'un objectif à immersion. Ce n'est pas le cas du centre NV dans le diamant massif, ce qui complique l'estimation de l'efficacité de collection.

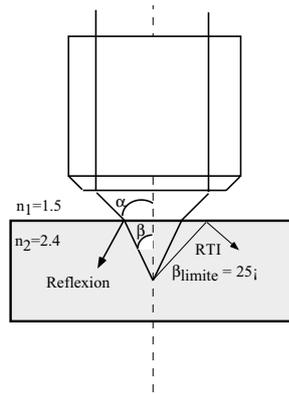


Figure 2.8: *Reflexion totale interne*

La figure 2.8 représente l'effet de la réfraction sur la lumière émise par le point source. Les rayons incidents sur l'interface avec un grand angle, n'émergent pas du diamant, et ne sont donc pas collectés. Pour tenir compte de la différence d'indice, la formule de l'efficacité de collection devient:

$$\eta_c = \frac{1}{2} \int_0^{\beta_{max}} \left(1 - \left(\frac{\sin(\beta - \alpha)}{\sin(\beta + \alpha)} \right)^2 \right) \sin \beta d\beta \tag{2.5}$$

où $\alpha = \arcsin \left(\frac{n_2}{n_1} \sin \beta \right)$ est l'angle du rayon à l'extérieur du milieu, et $\beta_{max} = \arcsin \left(\frac{n_1}{n_2} \sin \theta_{max} \right)$ l'angle de collection effectif à l'intérieur du milieu d'indice n . Dans le cas d'un objectif d'ouverture $ON = 1.4$ et d'un indice de l'huile 1.48, l'efficacité de collection η_{col} calculée est de 8%. Remarquons que si on utilise un objectif métallographique d'ouverture 0.95, qui travaille à l'air sans lamelle intermédiaire, on obtient une efficacité de seulement 2.6% (fig 2.9).

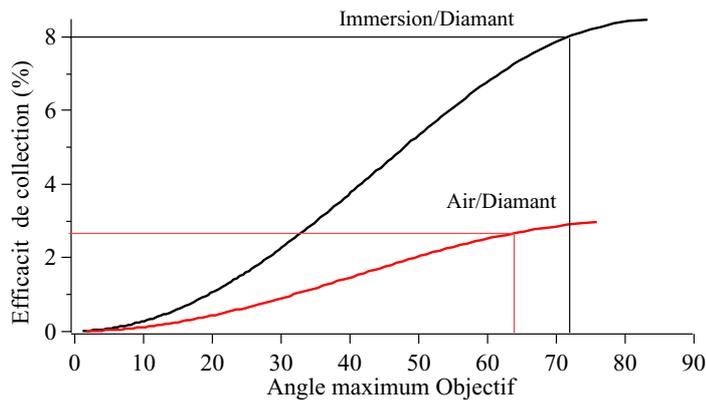


Figure 2.9: *Réflexion totale interne*

Une fois la lumière collectée, il faut aussi prendre en compte l'efficacité de propagation η_{opt} de la lumière à travers les différents éléments optiques. On peut décomposer leurs contributions de la manière suivante :

- Objectif 0.8

- Dichroïque 0.8
- Filtres $0.8 * 3$
- Éléments optiques divers 0.9
- Trou de filtrage 0.9

L'efficacité globale de propagation est ainsi $\eta_p = 0.25$

Finalement, il faut aussi tenir compte des aberrations sphériques introduites lorsqu'une onde traverse un dioptre. Sur la figure 2.10 nous avons représenté la simulation par Code V des aberrations sphériques lorsqu'on traverse une surface plane entre deux milieux d'indices différents.

La figure de droite indique l'énergie lumineuse en fonction du diamètre de la zone d'excitation. On remarque une caustique d'un diamètre inférieur à 840 nm, et un piédestal qui transporte 80% de l'énergie.

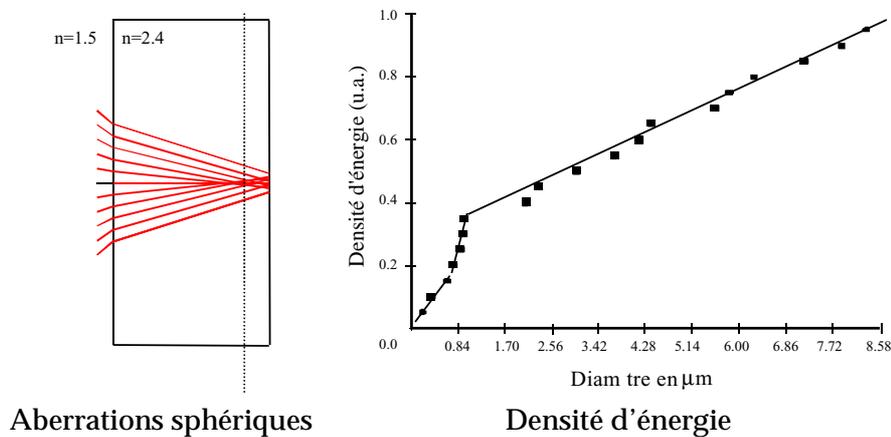


Figure 2.10: Simulation par Code V des rayons incidents à grande ouverture numérique avec une interface air/diamant.

Le calcul correspond à la lumière d'excitation incidente sur le cristal de diamant. De même, la lumière émise par un centre NV, sera aberrante après avoir traversé l'interface. On estime que la perte en collection due aux aberrations de sphéricité réduit l'efficacité de détection d'un facteur important, de l'ordre de $\eta_{abb} = 0.2$.

2.3.3.1 Efficacité totale

L'efficacité totale du système pour un centre NV dans le diamant massif est estimée à $\eta^{massif} = \eta_{col} \times \eta_{opt} \times \eta_{abb} \times \eta_{50/50} \times \eta_{pda} = 0.0012$. Les facteurs $\eta_{50/50}$ et η_{pda} sont explicités dans la section 2.4. Ils correspondent à la contribution de la séparatrice du montage Hanbury-Brown et Twiss, soit $\eta_{50/50} = 0.5$, et à l'efficacité de détection des photodiodes à avalanche, soit $\eta_{pda} = 0.6$.

2.4 Montage d'autocorrélation d'intensité.

La lumière de fluorescence collectée par le microscope confocal est ensuite analysée. Pour conclure sur l'unicité du centre, nous allons mesurer l'autocorrélation de l'intensité et chercher la signature du dégroupement de photons. La figure 2.11 décrit le montage expérimental réalisé.

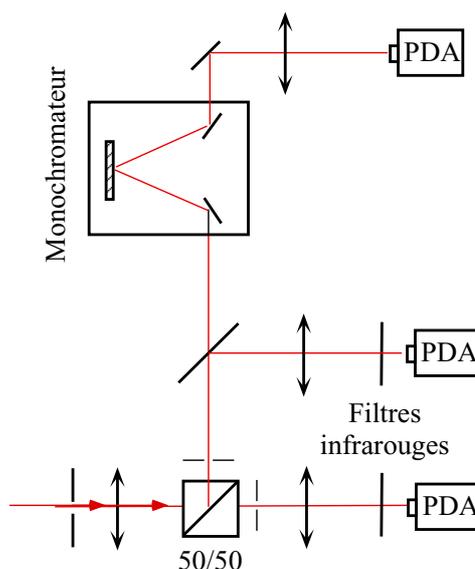


Figure 2.11: Schéma expérimental du montage Hanbury-Brown et Twiss ainsi que du spectroscope

La détection des photons de fluorescence est assurée par des photodiodes à avalanche (PDA) EG & G SPCM-AQR-13. Afin d'obtenir un fonctionnement en mode photon unique⁷, la photodiode est polarisée au-dessus de son seuil de claquage, de telle sorte qu'un seul photo-électron suffit pour déclencher une avalanche d'électrons. Ces détecteurs sont parfaitement adaptés à la détection de très faibles flux de lumière. Leurs caractéristiques sont décrites ci-dessous.

- Efficacité de détection η_{pda} : 55 – 70%
- Temps mort : 40ns
- Gigue électronique : 300ps (ceci correspond à la résolution temporelle ultime du détecteur)
- Coups d'obscurité : 100 – 150 coups par seconde (cps)
- Signal de sortie : 5 V pendant 25 ns sur une charge 50 Ω

Le taux d'obscurité mesure le nombre de fois où l'avalanche va se produire de façon spontanée. Un faible taux permet d'avoir de très bon rapport signal à bruit. On verra dans le chapitre 6 qu'un faible taux d'obscurité est indispensable pour la cryptographie quantique.

La gigue représente la limite de résolution temporelle que l'on peut atteindre avec les PDA, puisqu'elle donne la précision temporelle du signal de sortie par rapport au moment de la photodétection. Dans notre cas, où la durée de vie de l'émetteur est d'environ 11.6 ns, la gigue temporelle ne gêne pas la détection.

Des filtres passe-bas ainsi que les trous de filtrages de part et d'autre du cube séparateur, ont pour but d'éviter la diaphonie entre les deux photodiodes à avalanches. Une explication plus détaillée sera faite dans la section 2.4.2

La fonction d'autocorrélation d'intensité donne la probabilité d'avoir un photon détecté à l'instant τ , sachant qu'un photon a été détecté à l'instant $t = 0$ (voir chap 1.2). Le montage couramment

⁷Nommé mode Geiger ou mode d'avalanche, par analogie avec le détecteur Geiger de la physique nucléaire

utilisé dans les expériences d'autocorrélation, a été introduit par Hanbury-Brown et Twiss [47] en 1956. La lumière à analyser est divisée en deux faisceaux à l'aide d'une séparatrice (50/50) (fig.2.11), et l'on enregistre le temps qui sépare les détections de deux photons par chacune des photodiodes, placées de part et d'autre de la séparatrice. Le montage à deux photodiodes présente l'avantage d'avoir une meilleure résolution temporelle. En effet, après avoir détecté un photon, la photodiode à avalanche est inhibée pendant environ 40 ns (temps mort). Ainsi, avec une seule photodiode, on ne peut résoudre des événements avec une résolution inférieure à 40 ns. Par contre la deuxième photodiode peut détecter un photon qui arrivera dans un temps < 40 ns par rapport à la première détection. Grâce à ce montage, on n'est pas limité par le temps mort des détecteurs, mais seulement par leur gigue temporelle. On passe ainsi d'une résolution temporelle de 40 ns à 300 ps.

Un miroir amovible permet d'envoyer la fluorescence sur un monochromateur Jobin-Yvon (H-10) avec un moteur micrométrique contrôlé par ordinateur. La lumière en sortie du monochromateur est détectée par une photodiode à avalanche. L'acquisition d'un spectre se fait en intégrant pour chaque longueur d'onde le nombre de photons détectés par la PDA. La photostabilité intrinsèque du centre NV permet l'acquisition sur des longues durées. La résolution spectrale est de 1,2 ou 5 nm en fonction des largeurs des fentes choisies. Les spectres obtenus servent à s'assurer que la lumière analysée est bien celle d'un centre NV, ainsi qu'à analyser la provenance de la fluorescence parasite éventuelle.

2.4.1 Electronique de contrôle

Nous disposons d'une carte d'acquisition PCI-Lab1200 avec 3 compteurs de 16 bits pour effectuer le comptage des photons détectés par les photodiodes à avalanches. Mais les compteurs sont très élémentaires, et nous ne pouvons pas imposer un temps de comptage, mais seulement un nombre d'événements donnés. Chaque compteur possède une entrée Signal et Gate, et une sortie Out indiquant l'état du compteur. Elle vaut "1" si le compteur est actif, "0" sinon. Nous devons donc câbler les compteurs suivant la figure 2.12, pour utiliser la carte en compteur.

L'entrée Signal du compteur 0 est reliée à une horloge de 20 MHz interne et permet de réaliser des portes logiques programmables (sur la sortie OUT) d'une durée 50 ns à 32 ms. La sortie OUT est alors reliée sur l'entrée gate des compteurs 1 et 2. Nous contrôlons ainsi le temps de comptage des deux autres compteurs. La sortie OUT est aussi reliée sur une entrée digitale (entrée PB7) pour contrôler de façon informatique la fin du comptage.

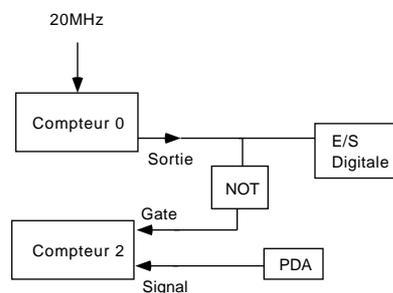


Figure 2.12: Circuit logique pour transformer la carte PCI-1200 en compteur

Avec cette disposition, nous sommes capables de compter pendant un temps variable de 50 ns à 32 ms. Le nombre total de photons comptés ne doit pas dépasser $2^{16} = 65536$ par fenêtre de comptage,

sinon le compteur s'initialise à 0.

La figure 2.13 reprend le schéma de principe de l'électronique de contrôle. Le signal délivré par les photodiodes à avalanches est distribué (par un "Fan-Out") vers plusieurs instruments de mesure. Durant cette étape, il faut s'assurer que les signaux distribués ne présentent pas plus de gigue que le signal original. Une sortie TTL est envoyée sur des compteurs (HAMEG HM 8021 – 3), qui permettent de contrôler le nombre de photons par seconde et par photodiode. Ces compteurs permettent de cumuler le nombre de photons détectés pendant l'acquisition du signal d'autocorrélation. Cette valeur est, comme on verra par la suite, importante pour la normalisation de la fonction d'autocorrélation enregistrée. Il faut donc éviter tout rebond pour ne pas comptabiliser plusieurs fois le même photon. Les entrées des Fan-Out sont chargées par 50Ω pour adapter en impédance l'électronique et les PDA. Le signal d'une des deux photodiodes sert aussi comme signal de contrôle à l'asservissement en position des cales piézo-électriques.

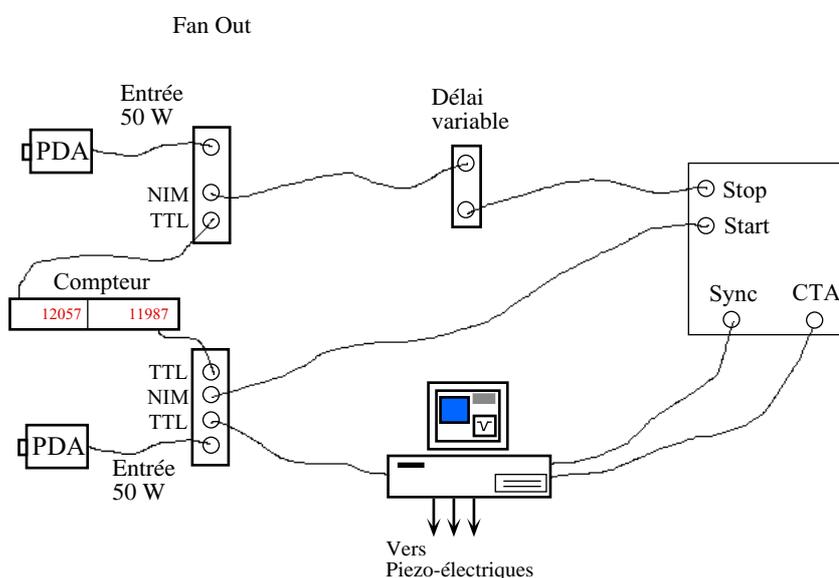


Figure 2.13: Schéma Electronique

Le montage Hanbury-Brown et Twiss mesure le temps d'arrivée entre deux photons. Pour enregistrer ce temps, nous utilisons un module de conversion temps-amplitude (CTA, ou TAC (Time Amplitude Converter) en anglais). Le principe de fonctionnement est simple. Un premier photon arrive sur l'entrée Start, et déclenche une rampe de tension. Elle s'arrête lorsqu'un deuxième photon arrive sur l'entrée Stop. A cet instant, le CTA délivre un signal de synchronisation et une tension continue (sur la sortie CTA) égale à la valeur de la rampe au moment du Stop. L'ordinateur de contrôle enregistre alors l'amplitude du signal qui est proportionnelle au temps entre les deux photons. La fonction d'autocorrélation correspond ainsi à l'histogramme cumulé des différents temps d'arrivée enregistrés. Pendant les expériences, nous avons utilisé deux CTA différents. Dans un premier temps, nous avons utilisé le CTA3-100 qui possède une fenêtre maximale de 70 ns, puis par la suite, nous avons travaillé avec un CTA de marque Tennelec TC 864. Sa fenêtre d'acquisition peut être réglée de 50 ns à 1 ms.

Les entrées analogiques de la carte PCI-1200 sont reliées à un convertisseur Analogique / Numérique 12 bits. Le temps de conversion est de $15\ \mu\text{s}$ environ. La conversion s'effectue sur un front descendant de la commande externe branchée sur Ext-Conv. Les valeurs numérisées sont stockées dans une mémoire interne (type First In First Out) à la carte avant d'être transférées vers l'ordinateur.

Pour profiter des 12 bits de résolution, il faut régler le temps de maintien de la tension continue aux bornes du CTA, de sorte qu'elle soit supérieure à $\approx 15\mu s$. Le CTA3-100 a été spécialement modifié, tandis que le temps de maintien peut être réglé sur le Tennelec TC 864.

Cependant, le signal de synchronisation du Tennelec n'est pas conforme au signal attendu par la carte d'acquisition. Plus précisément, si un signal Start est enregistré, mais qu'aucun signal Stop n'est enregistré pendant la fenêtre temporelle d'observation, alors il délivre un signal de synchronisation d'une largeur de $1\mu s$ et une valeur CTA = 0V. Sinon, si une coïncidence a été validée, le signal de synchronisation a une largeur de $10\mu s$. Or pour environ 10000 photons par seconde sur l'entrée Start, il n'y a qu'une dizaine de coïncidences par seconde sur une fenêtre typique de 100 ns. La carte d'acquisition sature rapidement. Le schéma 2.14 présente une façon simple pour discriminer entre les deux signaux Stop, et ne retenir que les signaux de $10\mu s$.

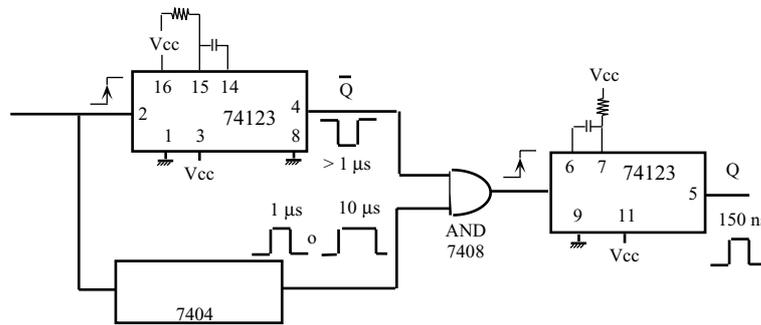


Figure 2.14: Circuit pour discriminer entre des impulsions de $1\mu s$ et $10\mu s$

Dans le montage expérimental, on ajoute une ligne à retard sur la voie Stop. Ainsi on enregistre aussi bien les événements où le premier photon est passé dans la voie Start, puis le deuxième sur la voie Stop (temps positif), que l'inverse qui correspond aux temps négatifs. La fonction d'autocorrélation ainsi observée est symétrique par rapport au temps $\tau = 0$.

Les mesures obtenues avec le système de comptage (Start-Stop) donnent directement la fonction d'autocorrélation si le nombre de coïncidences par fenêtre de détection est faible devant le nombre de photons détectés. Dans nos expériences, le nombre de photons par photodiode est typiquement égal à $N_1 \approx N_2 \approx 30000$ au maximum. Ainsi, avec une fenêtre de détection de $T_{fen} = 100$ ns, le nombre de coïncidences par seconde vaut $N_1 N_2 T_{fen} = 90$. Dans ces conditions, les effets "d'empilement" des détections sont négligeables.

Le CTA possède un temps mort pendant lequel aucun nouvel événement n'est enregistré. Ce temps est typiquement égal au temps de maintien de la tension analogique à ses bornes (environ $20\mu s$). Ainsi pour ne pas perdre d'évènements, il faut que le temps entre deux coïncidences soit supérieur au temps mort. Nous accepterons que ce temps soit légèrement inférieur si le nombre de coïncidences perdues est largement inférieur au nombre total de coïncidences (inférieur à 1%).

2.4.2 Diaphonie

Les expériences Start-Stop demandent une grande précision. Ainsi il faut éviter que de la diaphonie se crée entre les canaux Start et Stop. Même si le nombre d'évènements de diaphonie est

faible, le fait qu'ils soient temporellement toujours en coïncidence crée des artefacts dans la courbe d'autocorrélation. On peut énumérer deux causes de diaphonie.

2.4.2.1 Diaphonie électrique

La diaphonie électrique apparaît typiquement lorsque les deux signaux des photodiodes rentrent dans la même puce électronique pour être traités. Une impulsion dans l'entrée Start peut provoquer un signal de sortie sur la sortie Stop. Bien que ces événements soient très rares, ils créent toujours une coïncidence lorsque ceci arrive. Les "Fan-Out" (distributeurs de signaux) que l'on utilise présentent cette imperfection. Une courbe d'autocorrélation avec une lumière blanche ($g^{(2)}(\tau) = 1 \forall \tau$) montre des légères oscillations. Pour éliminer ce problème, nous avons utilisé des "Fan-Out" indépendants pour chacune des photodiodes à avalanche. Ceci a suffi dans notre cas pour éliminer la diaphonie électrique.

2.4.2.2 Diaphonie optique

La diaphonie électrique n'est pas la seule cause d'artefact dans le signal d'autocorrélation. On peut aussi avoir de la diaphonie optique entre les deux voies. En effet, la détection d'un photon conduit à une avalanche d'électrons à l'intérieur de la photodiode, qui est accompagnée d'une émission de photons vers l'arrière [51]. Le spectre d'émission est représenté sur la figure 2.15. Le nombre de photons émis n'est pas très important (environ 43 photons/str [52]), mais ces photons sont toujours émis dans un temps court après la détection du premier photon.

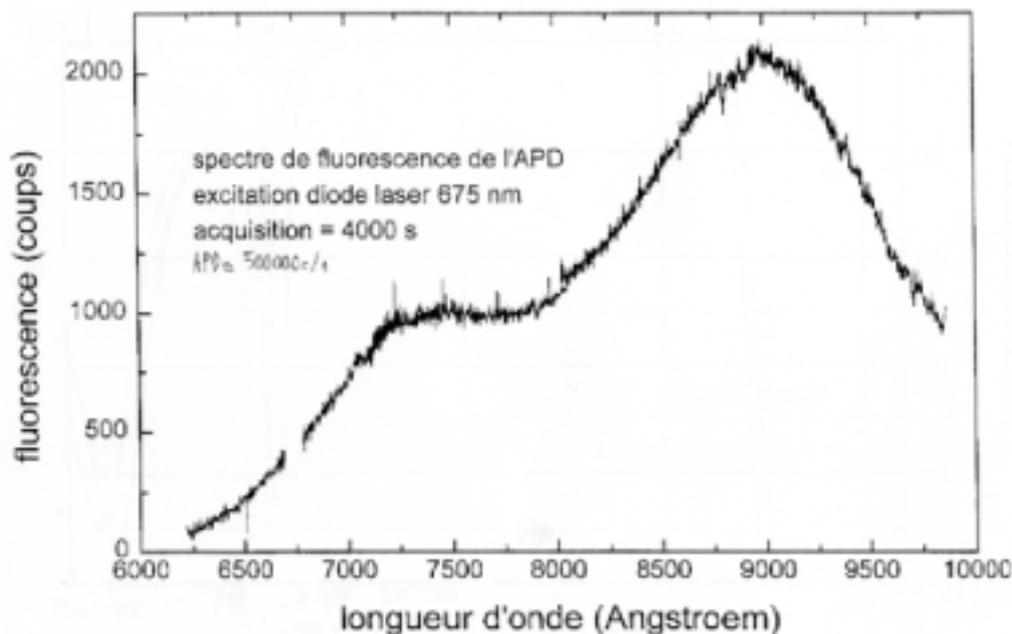


Figure 2.15: Spectre d'émission d'une photodiode à avalanche après avoir détecté un photon [51]

Ainsi, dans un montage de type Hanbury-Brown et Twiss, la deuxième photodiode peut détecter cette émission et enregistrer une coïncidence. Sur la figure 2.16, nous avons représenté le signal d'autocorrélation d'une source impulsionnelle⁸ (taux de répétition de 10 MHz) sans précautions par-

⁸La source sera décrite dans la section 5.1