HAL
open science

Source de photons uniques et interférences à un seul photon.De l'expérience des fentes d'Young au choix retardé.

Vincent Jacques

▶ **To cite this version:**

Vincent Jacques. Source de photons uniques et interférences à un seul photon.De l'expérience des fentes d'Young au choix retardé.. Physique [physics]. École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2007. Français. NNT : . tel-00281163

HAL Id: tel-00281163

https://theses.hal.science/tel-00281163

Submitted on 21 May 2008

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

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

Ecole Normale Supérieure
de Cachan

Laboratoire de Photonique
Quantique et Moléculaire

THÈSE DE DOCTORAT
Spécialité : Sciences Physiques

présentée et soutenue publiquement par

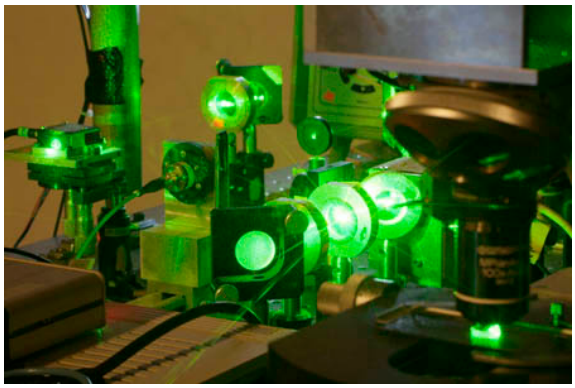
Vincent JACQUES

pour obtenir le grade de Docteur de L'Ecole Normale Supérieure de Cachan

Le 13 Novembre 2007

Sujet :

SOURCE DE PHOTONS UNIQUES ET INTERFÉRENCES À UN SEUL PHOTON. DE L'EXPÉRIENCE DES FENTES D'YOUNG AU CHOIX RETARDÉ.



Soutenue le 13 Novembre 2007
devant le jury composé de :

M. Alain ASPECT	Président
M. Philippe TAMARAT	Rapporteur
M. Michel BRUNE	Rapporteur
M. Juan-Ariel LEVENSON	Examinateur
M. Fédor JELEZKO	Examinateur
M. Jean-François ROCH	Directeur de thèse

-

« Souvent je me pose des questions qui me font me poser d'autres questions et la nuit je suis attaquée par les points d'interrogations. »

Traversées, Julie Cordier

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire à l'Ecole Normale Supérieure de Cachan. Je remercie la directrice du laboratoire, Isabelle LEDOUX-RAK, de m'y avoir accueilli. Les résultats scientifiques présentés dans ce mémoire sont le fruit du travail de l'équipe « Nanophotonique Quantique » et de collaborations, notamment avec le Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique.

C'est évidemment en premier lieu à Jean-François ROCH que je souhaite présenter mes plus grands remerciements pour m'avoir proposé ce sujet de thèse passionnant et pour l'avoir encadré avec une disponibilité sans faille. Le rapport de confiance qu'il a su instaurer depuis notre rencontre lors d'un stage de licence m'a mis dans des conditions idéales pour mener à bien ce projet scientifique, en me laissant notamment une grande liberté pour prendre des initiatives. Sa grande culture de la physique, sa rigueur scientifique et son souci perpétuel d'expliquer les problèmes complexes avec un grand sens de la pédagogie constitueront sans aucun doute des repères fondamentaux pour la suite de mon parcours scientifique. J'ai également été très sensible à sa profonde générosité humaine, à son optimisme communicatif ainsi qu'à sa façon de diriger le groupe dans une atmosphère amicale, par un savant mélange de convivialité et d'exigence scientifique.

Je tiens également à remercier les autres membres permanents du groupe « Nanophotonique Quantique ». En particulier François TREUSSART qui m'a très activement formé à l'« expérience diamant » en début de thèse. Par la suite, j'ai pu apprécier son dynamisme ainsi que sa grande disponibilité pour résoudre les nombreux problèmes expérimentaux qui jalonnent une thèse. Sa rigueur expérimentale, son regard critique toujours bien placé et son sens de l'organisation resteront pour moi des modèles. Merci également à Dominique CHAUVAT pour sa grande implication dans les expériences, malgré un emploi du temps souvent surchargé, et pour les nombreuses discussions stimulantes que nous avons pu avoir autour de notre drogue commune, la machine à café. Un grand merci également à Frédéric GROSSHANS pour son apport théorique dans l'interprétation de l'expérience de choix retardé. J'ai eu la chance de profiter de sa grande culture dans le domaine de l'information quantique tout au long de mon travail de thèse et je garderai un souvenir amusé de nos discussions sur les « photons tricheurs ».

Le début de ma thèse a coïncidé avec le début de celle de E WU, réalisée en cotutelle avec l'East China Normal University (ECNU) à Shanghai. Je la remercie très chaleureusement pour ces trois années de travail commun. La majeure partie des résultats présentés dans ce mémoire est le fruit d'un travail expérimental en binôme. Le souvenir de nos journées, et parfois nos nuits, passées ensemble dans le grand couloir du sous-sol de l'Institut d'Optique pour aligner l'expérience de choix retardé est impérissable. Je lui souhaite beaucoup de succès dans son nouveau poste de professeur assistant à l'Université de Shanghai.

La partie de ce mémoire concernant les expériences d'interférence à un photon a été réalisée en étroite collaboration avec Philippe GRANGIER et Alain ASPECT du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique. Je tiens à les remercier profondément pour leur enthousiasme et l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail. Les échanges stimulants que nous avons pu avoir durant ces trois années ont considérablement enrichi ce travail de thèse. Je remercie également Alain ASPECT pour ses nombreux conseils et « pinaillages » dans la relecture du mémoire. Son souci permanent de précision et de clarté ainsi que sa vaste culture scientifique m'ont profondément marqué. Je le remercie enfin d'avoir accepté de présider mon jury de thèse.

Je remercie Pierre CHAVEL, directeur du Laboratoire Charles Fabry, d'avoir accueilli l'expérience de choix retardé dans le sous-sol de l'Institut d'Optique. Mes remerciements vont aussi à Lionel JACUBOWIEZ, Thierry AVIGNON, Hervé SAUER, André VILLING et Antoine BROWAEYS pour leur aide et leur soutien durant la réalisation de cette expérience.

Je voudrais également remercier chaleureusement André CLOUQUEUR pour la réalisation de nombreux circuits électroniques ainsi que Jean-Pierre MADRANGE, pour avoir assuré avec une grande efficacité la réalisation des pièces mécaniques pour nos expériences. Leurs compétences ont été primordiales pour réaliser l'expérience de choix retardé, démontrant une fois de plus qu'un laboratoire de recherche ne peut pas se passer des ateliers de mécanique et d'électronique. Merci également Gilles COLLA et Raymond MERCIER de l'atelier d'optique du Laboratoire Charles Fabry, pour avoir réalisé « sur mesure » le biprisme de Fresnel utilisé pour l'expérience d'Afshar.

L'arrivée de Ngoc Diep LAI a été décisive pour la réalisation de l'expérience d'Afshar en régime de photon unique. Je le remercie pour son formidable dynamisme et lui souhaite beaucoup de réussite pour la suite de son séjour post-doctoral. Je tiens également à remercier Anaïs DRÉAU et Steven RÉGNIÉ pour leur implication dans les tests préliminaires à cette expérience.

Les expériences ayant trait à l'étude de la photostabilité de molécules individuelles ont été réalisées avec John MURRAY qui a séjourné une année dans notre équipe avant de débuter sa thèse à l'Université de Yale aux Etats-Unis. Je le remercie sincèrement pour cette année de travail commun, passée dans une atmosphère très amicale. Merci également à Oretsis FALKARIS d'avoir accepté de partager sa manip pendant quelques mois, pour nous laisser aller à la « chasse » aux molécules uniques.

Durant trois années, j'ai eu la chance de pouvoir enseigner au sein du département de physique de l'Ecole Normale Supérieure de Cachan. Ces enseignements ont profondément enrichi mon travail de recherche. Je tiens à remercier Mireille TADJEDDINE et Emmanuelle DELEPORTE, directrices successives du département de physique, de m'avoir donné cette opportunité. Mes remerciements vont également à Jean-Baptiste DESMOULINS pour ses nombreux conseils et aux techniciens du département de physique, Christian OLLIER, Jean-Luc LAGARDE et Luc FLORIOT pour leurs nombreux coups de main, que ce soit pour les enseignements ou les expériences de recherche. Enfin, je remercie Zina CHALLAL, secrétaire du département, pour sa gentillesse et son incroyable disponibilité.

Je remercie également Michel BRUNE et Philippe TAMARAT d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail de thèse, ainsi que Ariel LEVENSON et Fedor JELEZKO pour leur présence dans mon

jury en tant qu'examinateurs.

Pour finir, je remercie du fond du coeur mes parents pour tout ce qu'ils m'ont donné et Julie pour son soutien et sa patience, surtout quand arrivent les angoisses de la fin de thèse.

Table des matières

I Interférence à un photon **15**

1 Dualité onde-corpuscule pour un photon unique **17**
1.1 Un bref historique . . . 17
1.1.1 Onde ou corpuscule ? . . . 19
1.1.2 Onde et particule . . . 21
1.2 Photons et dualité onde-corpuscule . . . 22
1.2.1 Effet photoélectrique et quantification de la lumière . . . 23
1.2.2 Eléments de théorie quantique de la photodétection . . . 25
1.2.3 Fonction de corrélation en amplitude du champ . . . 27
1.2.4 Fonction de corrélation d'intensité et paramètre de corrélation A . . . 28
1.2.5 Expérience d'Orsay de 1986 . . . 32
1.3 Emission de photons uniques . . . 34
1.3.1 Développements actuels . . . 34
1.3.2 Centres colorés du diamant comme source efficace de photons uniques . . . 35
1.4 Interférence à un photon avec un biprisme de Fresnel . . . 36
1.4.1 Mesure du paramètre de corrélation A . . . 36
1.4.2 Construction photon par photon des franges d'interférence . . . 39
1.4.3 Simulation des franges d'interférence . . . 42
1.5 Conclusion . . . 44

2 Complémentarité entre chemin suivi et interférence pour un photon unique **47**
2.1 Introduction . . . 47
2.2 Interférence de particules uniques et chemin suivi . . . 48
2.2.1 Expérience de pensée des trous d'Young mobiles . . . 48
2.2.2 Complémentarité, relations d'incertitude et intrication . . . 50
2.2.3 Inégalité de complémentarité . . . 52
2.3 Chemin suivi pour une expérience d'interférence à un photon . . . 53
2.3.1 Information chemin-suivi *a priori* . . . 53
2.3.2 Information chemin suivi *a posteriori* . . . 54
2.3.3 Discussion . . . 56
2.4 Expérience d'Afshar : description et réfutation . . . 56
2.4.1 Description de l'expérience avec deux trous d'Young . . . 56
2.4.2 Analyse de l'expérience d'AFSHAR réalisée avec un biprisme de Fresnel . . . 58
2.4.3 Mise en place et tests du dispositif expérimental . . . 60
2.4.4 Expérience en régime de photon unique . . . 62
2.5 Conclusion . . . 64

3 Réalisation de l'expérience de choix retardé de WHEELER 67
3.1 Introduction . . . 69
3.2 Proposition de J. A. Wheeler . . . 71
3.2.1 Contexte . . . 71
3.2.2 Conditions requises pour la réalisation de l'expérience de choix retardé . . . 73
3.2.3 Réalisations antérieures de l'expérience de choix retardé . . . 73
3.3 Réalisation de l'interféromètre en configuration ouverte/fermée . . . 76
3.3.1 Interféromètre de Jamin en polarisation . . . 76
3.3.2 Modulateur électro-optique : caractéristiques et commutation . . . 80
3.3.3 Tests de l'interféromètre de Jamin avec un laser . . . 81
3.4 Réglage de l'interféromètre en régime de photon unique . . . 83
3.4.1 Correction du chromatisme des lentilles utilisées dans les télescopes . . . 83
3.4.2 Centre NV et cohérence temporelle . . . 84
3.4.3 Recherche du contact optique : spectre cannelé de photon unique . . . 84
3.4.4 Tests de l'interféromètre en régime de photon unique . . . 86
3.4.5 Bilan . . . 87
3.5 Rupture du lien causal . . . 88
3.5.1 Générateur aléatoire quantique de pile ou face . . . 89
3.5.2 Electronique de contrôle de l'expérience . . . 90
3.5.3 Séquence temporelle de l'expérience . . . 93
3.6 Résultats de l'expérience de choix retardé . . . 95
3.6.1 Mesure du paramètre de corrélation A . . . 95
3.6.2 Effet du tirage aléatoire de la configuration de l'interféromètre . . . 95
3.6.3 Discussion . . . 97
3.7 Test de l'inégalité de complémentarité en régime de choix retardé . . . 99
3.7.1 Principe de l'expérience . . . 100
3.7.2 Résultats . . . 101
3.8 Conclusion . . . 103

II Amélioration des performances de sources de photons uniques 105

4 Source de photons uniques dans le proche infrarouge pour la cryptographie quantique 107
4.1 Introduction . . . 107
4.2 Le centre coloré NE8 du diamant . . . 109
4.3 Détection de centres NE8 uniques dans le diamant massif . . . 110
4.3.1 Dispositif expérimental de microscopie confocale . . . 110
4.3.2 Spectre de luminescence et dispersion spectrale . . . 112
4.3.3 Photostabilité . . . 113
4.3.4 Mesure de corrélations de photons . . . 114
4.4 Analyse des paramètres photophysiques des centres NE8 . . . 116
4.4.1 Modèle à trois niveaux . . . 116
4.4.2 Durée de vie du niveau excité . . . 118
4.4.3 Niveau métastable . . . 120
4.4.4 Courbe de saturation . . . 122
4.5 Conclusion et perspectives . . . 124

5 Amélioration de la photostabilité de molécules uniques 127
5.1 Introduction . . . 127
5.2 Observation de molécules uniques à température ambiante . . . 129
5.2.1 Schéma de Perrin-Jablonsky . . . 129
5.2.2 Dispositif expérimental de détection de molécules uniques . . . 130
5.3 Caractéristiques de la fluorescence de molécules uniques . . . 132
5.3.1 Taux de comptage . . . 132
5.3.2 Sauts quantiques vers le niveau triplet . . . 133
5.3.3 Extinction irréversible de la fluorescence . . . 134
5.4 Processsus associés au photoblanchiment . . . 135
5.4.1 Effet de l'environnement et de l'excitation optique . . . 135
5.4.2 Photoblanchiment et passage dans le niveau triplet . . . 136
5.5 Hypothèse de travail . . . 139
5.6 Amélioration de la photostabilité de molécules uniques . . . 140
5.6.1 Principe de l'expérience . . . 140
5.6.2 Augmentation de la photostabilité de molécules uniques de $DiIC_{18}(3)$ . . . 141
5.7 Gain en photostabilité G . . . 144
5.7.1 Estimation du gain en photostabilité . . . 144
5.7.2 Paramètre G et seuil de détection des sauts quantiques vers le niveau triplet . 144
5.7.3 Paramètre G et puissance d'excitation laser . . . 145
5.8 Généralisation de la méthode . . . 146
5.8.1 Molécule de terrylène . . . 147
5.8.2 Amélioration de la photostabilité de molécules uniques de terrylène . . . 147
5.9 Conclusion . . . 148

A Source déclenchée de photons uniques à l'aide de centres colorés NV du diamant 155
A.1 Centre coloré NV du diamant . . . 156
A.1.1 Structure des niveaux d'énergie . . . 156
A.1.2 Emission dans le diamant massif . . . 157
A.1.3 Echantillons de nanocristaux de diamant dopés en centres NV . . . 158
A.2 Détection de centres colorés NV dans des nanocristaux de diamant . . . 160
A.2.1 Laser d'excitation impulsionnel . . . 160
A.2.2 Dispositif de microscopie confocale . . . 160
A.3 Diagnostic d'émission de photons uniques . . . 162
A.4 Caractéristiques de la photoluminescence des centres NV . . . 164
A.4.1 Durée de vie radiative des centres colorés dans un nanocristal . . . 164
A.4.2 Spectre d'émission . . . 165

B Caractéristiques du générateur aléatoire quantique de pile ou face 167
B.1 Caractérisation du bruit . . . 168
B.2 Séquence de nombres aléatoires . . . 170

C Calcul de la différence de marche d'un interféromètre de Jamin 171

Bibliographie 175

Introduction

Historiquement, l'émergence de la physique quantique est intimement liée aux réflexions sur la nature de la lumière. C'est en effet en cherchant à expliquer le rayonnement du corps noir et l'effet photoélectrique que Albert EINSTEIN introduisit en 1905 l'hypothèse des quantas de lumière [1, 2, 3]. La physique quantique a depuis conduit à de profonds bouleversements, tant au niveau conceptuel sur notre vision du monde que dans l'élaboration de technologies innovantes.

Cette théorie, dont les prédictions n'ont cessé d'être confirmées de façon de plus en plus précise tout au long du XXe siècle, nécessite cependant de renoncer aux images classiques héritées du « sens commun ». Elle stipule en particulier une description duale de la lumière et de la matière, présentant simultanément les propriétés d'une onde et d'une particule et conduisant ainsi à des représentations classiques de la réalité physique incompatibles.

Afin d'introduire cette dualité onde-corpuscule, de nombreux ouvrages de physique quantique présentent une expérience de pensée fondée sur des interférences par des trous de Young et réalisée avec des particules indépendantes envoyées l'une après l'autre à travers l'interféromètre [4]. Le phénomène d'interférence s'explique alors en considérant une onde passant simultanément par les deux trous, incompatible avec notre image intuitive d'une particule matérielle indivisible qui traverserait soit un trou, soit l'autre, mais jamais les deux à la fois. Si ce caractère corpusculaire semble naturel dans le cas d'objets initialement identifiés comme des particules matérielles tels que les électrons, les neutrons et les atomes, celui-ci mérite d'être testé dans le cas du « Licht Quanten » introduit par Einstein en 1905 [1], auquel sera donné par la suite le nom de photon [5].

Avant l'émergence des idées et des méthodes de l'optique quantique, le régime de « photon unique » était supposé atteint en atténuant fortement une source lumineuse jusqu'à s'assurer que la probabilité d'avoir plus d'un photon à la fois dans le dispositif optique devienne négligeable [6]. Néanmoins, les états du champ lumineux obtenus de cette façon ne permettent pas de mettre en évidence un comportement de type corpusculaire pour la lumière, la probabilité d'avoir simultanément plusieurs photons n'étant jamais rigoureusement nulle [7]. Au cours des trente dernières années, les progrès spectaculaires des techniques de détection et de manipulation d'objets quantiques à l'échelle individuelle ont rendu possible l'observation directe d'états intrinsèquement quantiques du rayonnement [8, 9] et ont conduit par la suite à la réalisation d'une source de lumière émettant des photons un par un [10]. Cette source fût alors utilisée pour réaliser la première expérience d'interférence à un photon, illustrant ainsi la dualité onde-corpuscule pour la lumière [10].

L'amélioration des performances des sources de photons uniques [11, 12] permettent aujourd'hui de réaliser des expériences qui n'étaient considérées que comme des « expériences de pensée », par les pères fondateurs de la mécanique quantique. Une partie du travail que nous présenterons dans ce mémoire de thèse est consacrée à la réalisation d'un telle expérience de pensée illustrant la dualité onde-corpuscule pour un photon unique.

Plan du mémoire

Ce mémoire est composé de deux parties indépendantes.

La première partie comprend trois chapitres et est consacrée aux travaux sur la réalisation d'interférence à un photon. Elle débute par le chapitre 1, où, après un bref historique, nous donnerons les outils nécessaires à l'étude de la dualité onde-corpuscule pour un photon unique. Nous présenterons par la suite la réalisation d'une expérience d'interférence à un photon fondée sur l'utilisation d'un interféromètre à division du front d'onde constitué par un biprisme de Fresnel, très similaire au dispositif des trous d'Young, et sur une source déclenchée de photons uniques reposant sur l'excitation optique impulsionnelle d'un centre coloré NV individuel dans un nanocristal de diamant [13]. Nous concluerons sur la nécessité de considérer que l'état de lumière se comporte simultanément comme une onde et une particule, bien que ces deux représentations classiques soient mutuellement exclusives.

Le chapitre 2 est dédié à l'étude du principe de complémentarité qui assure la cohérence de l'interprétation de la mécanique quantique et apporte une solution conceptuelle aux paradoxes soulevés par la dualité onde-corpuscule. Dans une expérience d'interférence à deux voies pour un photon unique, la complémentarité se situe entre la connaissance du chemin suivi par le photon dans l'interféromètre, associée à une propriété corpusculaire, et l'enregistrement de la figure d'interférence, associé à une propriété ondulatoire. Ces propriétés sont complémentaires, en ce sens qu'elles correspondent à des dispositif de mesure ainsi qu'à des concepts classiques mutuellement exclusifs, lesquels sont cependant tous les deux nécessaires pour expliquer l'ensemble du phénomène. Dans le prolongement de l'observation des interférences à un photon avec le biprisme de Fresnel, nous décrirons une expérience illustrant cette complémentarité que nous avons réalisée dans le but de clarifier une controverse récente.

Le chapitre 3 est consacré à la description de la réalisation d'une expérience d'interférence à « choix retardé ». Cette expérience fût proposée par John Archibald WHEELER en 1973 [14] afin de mettre en défaut une interprétation du principe de complémentarité selon laquelle chaque particule en entrée de l'interféromètre pourrait avoir accès à une information cachée sur l'appareil de mesure placé en sortie (observation des interférence ou détermination du chemin suivi) et choisir d'ajuster sa nature, soit ondulatoire soit corpusculaire, en fonction de cette information. Dans une expérience à choix retardé, la décision de la configuration de mesure est prise aléatoirement et est séparée par un intervalle de type espace au sens de la relativité de l'entrée du photon dans l'interféromètre. Ces conditions assurent qu'aucune information n'est disponible pour le photon lorsqu'il entre dans l'interféromètre. Les résultats de cette expérience de choix retardé nous permettront de conclure qu'aucune réalité physique classique ne peut-être attribuée au photon indépendamment de l'appareil de mesure, comme le stipule le principe de complémentarité.

Les expériences décrites dans la première partie du mémoire ont été rendues possible grâce au développement de sources efficaces de photons uniques. Il est donc naturel que nous consacrions la deuxième partie de ce mémoire à certaines améliorations des performances de ces sources.

Dans cette perspective, le chapitre 4 est dédié à l'étude d'une source de photon unique dans le proche infrarouge, fondée sur la luminescence d'un centre coloré du diamant à base d'impuretés de nickel. Nous montrerons que cette source présente de nombreux avantages en vu de la réalisation d'un système de cryptographie quantique en espace libre [15].

Les premières réalisations d'une source déclenchée de photons uniques à température ambiante reposaient sur l'émission de molécules fluorescentes individuelles [16, 17, 18]. Cependant

le phénomène de photoblanchiment, correspondant à une extinction irréversible de la fluorescence après un nombre fini de cycles d'absorption-émission, contraint fortement les performances de ces sources. Le chapitre 5 est dédié à l'étude du phénomène de photoblanchiment pour les molécules uniques. Nous y décrirons une méthode conduisant à une nette amélioration de la photostabilité à température ambiante de molécules fluorescentes.

Première partie

Interférence à un photon

Chapitre 1

Dualité onde-corpuscule pour un photon unique

Sommaire

1.1 Un bref historique **17**
1.1.1 Onde ou corpuscule ? 19
1.1.2 Onde et particule 21
1.2 Photons et dualité onde-corpuscule **22**
1.2.1 Effet photoélectrique et quantification de la lumière 23
1.2.2 Eléments de théorie quantique de la photodétection 25
1.2.3 Fonction de corrélation en amplitude du champ 27
1.2.4 Fonction de corrélation d'intensité et paramètre de corrélation A 28
1.2.5 Expérience d'Orsay de 1986 32
1.3 Emission de photons uniques **34**
1.3.1 Développements actuels 34
1.3.2 Centres colorés du diamant comme source efficace de photons uniques . . 35
1.4 Interférence à un photon avec un biprisme de Fresnel **36**
1.4.1 Mesure du paramètre de corrélation A 36
1.4.2 Construction photon par photon des franges d'interférence 39
1.4.3 Simulation des franges d'interférence 42
1.5 Conclusion **44**

1.1 Un bref historique

Intrigués par des phénomènes tels la forme des ombres, les reflets sur l'eau ou l'arc en ciel, les hommes se sont de tout temps questionnés sur la nature de la lumière, depuis l'Antiquité (figure 1.1) jusqu'à nos jours [19, 20]. L'évolution des idées sur la lumière est également étroitement liée à l'évolution des techniques en optique [21], association qui ne sera jamais démentie au cours des âges, depuis les miroirs ardents d'ARCHIMÈDE qui, selon la légende, permirent de mettre en déroute la flotte romaine aux portes de Syracuse [22], jusqu'aux développements récents de l'information quantique.

FIG. 1.1 – *Stèle de la* DAME TAPÈRET, *vers 945-715 avant J.-C., conservée au Musée du Louvre. Cette stèle représente la lumière émise par le dieu soleil Horakhty, comme un flux de fleurs de lys multicolores. Cette représentation rappelle fortement le modèle corpusculaire de la lumière qui sera proposé par* NEWTON *au XVIIe siècle, selon lequel la lumière blanche est constituée d'un flux de particules ayant chacune une couleur déterminée.*

Dans le monde antique grec, EUCLIDE et les pythagoriciens pensent que des rayons visuels se propagent depuis l'œil jusqu'à l'objet observé et non l'inverse, comme le défendent les atomistes tel DÉMOCRITE. Dès cette époque, la notion de rayon lumineux est introduite, ainsi que les lois de la réflexion sur un miroir.

Ces conceptions sont révisées par le savant arabe IBN-AL-HAITHAM, connu en Occident sous le nom d'ALHAZEN (965-1039) qui conclut que la lumière et les couleurs se propagent à une très grande vitesse et de manière rectiligne le long des rayons lumineux, de chaque point de l'objet jusqu'à l'œil. Celui-ci forme alors sur le cristallin une image dont les points correspondent à ceux de

l'objet. ALHAZEN étudie en détail la réflexion et la réfraction des rayons lumineux aux interfaces à l'aide d'un modèle mécanique analogue au rebond d'une balle sur le sol. Afin d'expliquer la réfraction, il évoque alors simplement un changement de vitesse de la lumière dans les matériaux. Ces travaux novateurs s'accompagnent d'une importante évolution des techniques d'ingénierie optique. Les artisans verriers développent ainsi des lentilles permettant de corriger la presbytie et la myopie en utilisant des verres convexes ou concaves. L'association de plusieurs lentilles est finalement utilisée pour réaliser les premières lunettes grandissantes qui, utilisées par GALILÉE pour explorer le ciel, révolutionneront nos conceptions de monde.

Au milieu du XVIIe siècle, rayon lumineux, propagation rectiligne, formation des images et réflexion sont des phénomènes aux lois bien établies. Cependant, des interrogations fondamentales subsistent, concernant notamment l'explication des couleurs et l'analyse de la réfraction sur un dioptre. La découverte du phénomène de diffraction par GRIMALDI (1618-1663) jette un peu plus le trouble dans les conceptions de la lumière. Le grand débat entre une modélisation de la lumière sous forme d'onde ou de particule peut alors s'ouvrir. Il impliquera les plus grands physiciens pendant les trois siècles à venir.

1.1.1 Onde ou corpuscule ?

Pour expliquer les lois de la réfraction, René DESCARTES (1596-1650) construit, en suivant les travaux pionniers d'ALHAZEN, un premier modèle corpusculaire de la lumière, en invoquant des corpuscules qui rebondissent sur un miroir comme une balle dans un jeu de paume. Quelques décennies plus tard, Isaac NEWTON (1642-1727) développe un modèle corpusculaire de la lumière, qu'il n'hésite pas à compliquer à outrance pour parvenir à expliquer les phénomènes de diffraction et d'interférence, tel l'observation des anneaux qui portent son nom. Il réalise alors des expériences remarquables de décomposition de la lumière blanche à l'aide de prismes, qui le conduisent à penser que la lumière est faite de particules de masses différentes, chacune étant associée à une couleur.

En réponse au modèle corpusculaire défendu par NEWTON, un physicien hollandais, Christiaan HUYGENS (1629-1695), développe, par analogie avec les ondes observées à la surface de l'eau, un modèle ondulatoire pour la lumière. Il interprète ainsi de manière élégante les phénomènes de réfraction, jusqu'à la double réfraction par un spath d'Islande que la théorie corpusculaire ne pouvait expliquer. Cependant, il ne peut expliquer les observations expérimentales obtenues en utilisant deux cristaux biréfringents l'un à la suite de l'autre. Pour comprendre ce phénomène, il faut attendre Etienne Louis MALUS (1775-1812) qui introduit la notion de polarisation.

Toutefois, le débat entre une nature corpusculaire ou ondulatoire de la lumière est vite bloqué par NEWTON. Fort de ses succès expérimentaux en optique, et de l'extraordinaire prestige acquis par la loi de gravitation universelle, il use de son autorité scientifique et des limitations d'une théorie ondulatoire encore embryonnaire pour imposer la théorie corpusculaire.

Il faut attendre près d'un siècle pour constater un progrès radical dans les expériences et les idées concernant l'optique. C'est à un médecin anglais aux connaissances universelles, Thomas YOUNG, que revient le mérite d'avoir véritablement jeté les bases de la théorie ondulatoire de la lumière en interprétant une expérience d'interférence passée à la postérité sous le nom d'expérience des « trous d'YOUNG ». Il montre que l'obscurité peut être engendrée en ajoutant de la lumière à la lumière ! L'analyse du phénomène en traitant la lumière comme une onde lui permet alors de mesurer avec une précision remarquable la longueur d'onde de la lumière, $0.7\ \mu$m pour le rouge et $0.4\ \mu$m pour le violet. La publication de ses travaux en 1804 fût cependant couverte d'insultes par les tenants de la théorie corpusculaire de NEWTON. Il faut ainsi attendre Au-

gustin FRESNEL pour que soit établie de façon incontestable la supériorité du modèle ondulatoire pour expliquer les phénomènes d'interférences et de diffraction. En 1818, l'Académie des sciences ouvre un concours pour la rédaction d'un article sur l'étude théorique et expérimentale de la diffraction de la lumière, auquel FRESNEL présente ses études. POISSON, membre du jury et tenant de la théorie newtonienne, remarque alors une conséquence curieuse de la théorie ondulatoire de la diffraction défendue par FRESNEL ; elle prédit l'existence d'un point lumineux au centre de l'ombre projetée par une bille. Ce résultat semble paradoxal, mais lorsque l'expérience est réalisée par FRESNEL, sur proposition de François ARAGO également membre du jury, le point lumineux est bien présent [23]. L'académie des sciences prime alors l'article de FRESNEL et bascule en bloc en faveur du modèle ondulatoire.

La lumière est décrite comme une onde vibrant transversalement, dont FRESNEL réussit à établir toutes les propriétés alors même qu'il en ignore la nature. Celle-ci ne sera élucidée que cinquante années plus tard par James Clerk MAXWELL, en écrivant les équations qui portent son nom et qui synthétisent les connaissances de l'époque sur l'électricité et le magnétisme. Une solution à ces équations est une onde électromagnétique vibrant transversalement et se propageant dans le vide à une vitesse égale à $(1/\sqrt{\epsilon_0\mu_0})$. La mesure de cette quantité en 1856 par KOHLRAUSCH et WEBER avait fourni $310\ 740$ km.s^{-1} [24]. Convaincu de la force de sa théorie, MAXWELL estime que la coïncidence entre cette valeur et la vitesse de la lumière, mesurée égale à $314\ 858$ km.s^{-1} par FIZEAU en 1849 [25], n'est pas fortuite. Il énonce alors : « we can scarcely avoid the inference that light consists in the transverse undulations of the same medium which is the cause of electric and magnetic phenomena » [26]. La lumière est ainsi une onde électromagnétique transverse, et Heinrich HERTZ confirme finalement cette intuition en montrant en 1888 que les perturbations électromagnétiques produites par une décharge conduisent aux mêmes phénomènes de diffraction et d'interférence que la lumière. Le triomphe de la théorie ondulatoire est alors total.

A la fin du XIXe siècle, au regard des résultats extraordinaires obtenus en thermodynamique, en magnétisme et en optique, l'idée selon laquelle la physique serait définitivement constituée dans ses concepts fondamentaux et que les progrès futurs viendraient de mesures de plus en plus précises est très répandue [1][28]. Lors d'une conférence prononcée le 17 Avril 1900 à la Royal Institution of Great Britain, Lord KELVIN évoque cependant deux nuages noirs qui obscurcissent la compréhension globale de la physique : « the beauty and clearness of the dynamical theory, which asserts heat and light to be modes of motion, is at present obscured by two clouds. The first came into existence with the undulatory theory of light [...] ; it involved the question, How could the earth move through an elastic solid, such as the luminiferous ether ? The second is the Maxwell-Boltzmann doctrine regarding the partion of energy [29] ». Le premier « nuage » mentionné par KELVIN est directement lié au résultat négatif de l'expérience de MICHELSON et MORLEY, qui annonce la théorie de la relativité. Le deuxième « nuage » soulève quant à lui les difficultés rencontrées par le théorème de l'équipartition de l'énergie, notamment pour l'évaluation des capacités calorifiques des gaz monoatomiques et diatomiques. Notons que la résolution du problème de l'émission du corps noir, bien que non mentionné par KELVIN, impliquera également une violation de l'équipartition et va déclencher la révolution quantique, relançant ainsi le débat sur la nature de la lumière en terme d'onde ou de particule.

[1] A. A. MICHELSON énonce par exemple en 1894 : « While it is never safe to affirm that the future of physical science has no marvels in store even more astonishing than those of the past, it seems probable that most of the grand underlying principles have been firmly established and that further advances are to be sought chiefly in the rigorous application of these principles to all phenomena which come under our notice. It is here that the science of measurement shows its importance - where quantitative results are more to be desired than qualitative work. An eminent physicist has remarked that the future truths of physics are to be looked in the sixth places of decimals...[27] »

1.1.2 Onde et particule

Planck et le rayonnement du corps noir

A la fin du XIXe, le rayonnement du corps noir a fait l'objet de nombreuses études tant expérimentales que théoriques. KIRCHHOFF montre notamment en 1860 que la densité spectrale d'énergie de ce rayonnement est universelle, dépendant uniquement de la température et de la longueur d'onde, mais pas de la nature du corps porté à haute température. Cependant, aucun modèle théorique visant à prédire le spectre d'émission du corps noir ne permet d'obtenir un accord avec les mesures expérimentales très précises réalisées en 1900 par RUBENS et KURLBAUM. La loi de WIEN est en effet uniquement valable dans le domaine des courtes longueurs d'onde tandis que la loi de RAYLEIGH-JEANS est convenable pour les grandes longueur d'onde mais se confronte à un problème de divergence énergétique aux courtes longueur d'onde, connue sous le nom de catastrophe ultra-violette.

C'est alors que Max PLANCK a l'idée révolutionnaire de quantifier les échanges d'énergie entre le rayonnement et les parois du corps noir, modélisées comme un ensemble d'oscillateurs de Hertz, comme le lui autorisait l'indépendance des propriétés du rayonnement en fonction de la nature du corps étudié. Le résultat de cette analyse le conduit alors à une formule qui ajuste parfaitement l'ensemble des résultats expérimentaux.

Einstein et la dualité onde-corpuscule

Albert EINSTEIN va beaucoup plus loin que Max PLANCK. Dans un de ses articles célèbres de 1905, il fait l'hypothèse que le rayonnement électromagnétique est lui-même quantifié [1, 2]. En calculant les fluctuations d'entropie d'un rayonnement monochromatique enfermé dans une enceinte, il constate que l'expression obtenue est identique à celle obtenue pour un gaz parfait. Il conclut alors que le rayonnement se comporte d'après les lois de la thermodynamique comme s'il était constitué de quanta d'énergie, indépendants et distincts, les *LichtQuanten*, qui seront par la suite dénommés photons [5]. Cette démarche lui permet de retrouver le spectre d'émission du corps noir. Dans le même article, il utilise cette quantification heuristique du rayonnement pour interpréter l'effet photoélectrique, dont les lois ne peuvent être décrites avec des modèles purement classiques. Nous reviendrons sur l'effet photoélectrique au § 1.2.1.

EINSTEIN voit que la réintroduction de l'aspect corpusculaire se heurte aux immenses succès de la théorie ondulatoire pour expliquer les phénomènes d'interférence, de diffraction ou de polarisation. Dans un nouvel article écrit en 1909, il effectue alors un saut intellectuel supplémentaire en évoquant pour la première fois la notion de dualité onde-corpuscule et en stipulant que la lumière se comporte à la fois comme une onde et une particule [2] [2, 30]. En étudiant les fluctuations de la pression de radiation exercée par le rayonnement du corps noir du domaine de fréquence $d\nu$ sur une plaque qui ne réfléchit totalement que le rayonnement de ce domaine de fréquence et laisse passer, sans absorption, tout rayonnement de fréquence autre, EINSTEIN aboutit à la relation [30] :

$$\overline{\Delta^2} = \frac{1}{c}\left(h\rho\nu + \frac{c^3\rho^2}{8\pi\nu^2}\right) S\tau d\nu \tag{1.1}$$

[2] Il écrit dans l'introduction de cet article, « il est indéniable qu'il existe un ensemble de faits relatifs au rayonnement qui indiquent que la lumière possède certaines propriétés fondamentales que l'on comprend beaucoup mieux en adoptant le point de vue de la théorie newtonienne de l'émission de lumière que celui de la théorie ondulatoire. C'est pourquoi je pense que la prochaine étape du développement de la physique théorique nous fournira une théorie de la lumière que l'on pourra interpréter comme une sorte de fusion de la théorie ondulatoire et de la théorie de l'émission de la lumière » [2].

où Δ désigne la quantité de mouvement transférée à la plaque, pendant une durée τ, du fait des fluctuations du rayonnement thermique, ρ la densité spectrale d'énergie du corps noir pour la tranche de fréquence $d\nu$ considérée et S la surface de la plaque.

L'expression de la moyenne quadratique des fluctuations de quantité de mouvement de la plaque est la somme de deux termes. EINSTEIN note que le second terme de la formule (1.1) est celui prédit par la théorie ondulatoire, résultant d'une interférence désordonnée d'ondes ayant des phases aléatoires, que nous qualifierions aujourd'hui de « speckle ». Quant au premier terme de cette formule, qui est proportionnel au nombre de quantas de lumière d'énergie $h\nu$, il est selon EINSTEIN la signature du comportement corpusculaire du rayonnement. Il correspond en effet aux fluctuations du nombre de quanta d'énergie $h\nu$. Aujourd'hui nous appellerions ce terme le « bruit de photons » ! Ainsi, les aspects corpusculaires et ondulatoires sont présents simultanément et EINSTEIN conclut son article en écrivant : « ...les deux caractéristiques structurelles (structure ondulatoire et structure en quanta), qui toutes deux doivent être attribuées au rayonnement, conformément à la formule de PLANCK, ne doivent pas être tenues pour incompatibles » [2].

Malgré les nombreuses réticences que suscite un tel bouleversement des idées en physique [3], les théories défendues par EINSTEIN finiront par triompher grâce aux expériences décisives de R. A. MILLIKAN sur l'effet photoélectrique [31] et de A. H. COMPTON sur la diffusion de la lumière [32].

En 1923 Louis DE BROGLIE généralise à la matière cette dualité, conjecturant qu'un corpuscule tel un électron ou un atome se comporte également comme une onde. La confirmation expérimentale de cette dualité ne tarde pas à venir avec les premières expériences de diffraction d'électrons de DAVISSON et GERMER en 1927 [33]. Depuis, la dualité onde-corpuscule a pu être mise en évidence à l'aide d'une grande variété d'objets quantiques tels des neutrons [34], des atomes [35, 36], des molécules [37] et des électrons [38].

1.2 Photons et dualité onde-corpuscule

Dès l'introduction par EINSTEIN du concept de dualité onde-corpuscule pour la lumière, s'est posée la question d'éventuelles modifications des phénomènes optiques dans un régime qui mettrait en œuvre un seul photon à la fois. Dès 1909, TAYLOR réalise une expérience de diffraction par une aiguille en lumière fortement atténuée. Les résultats de cette expérience, ayant requis six mois d'exposition d'une plaque photographique, montrent une correspondance parfaite avec les prédictions de la théorie ondulatoire [6]. Dirac peut alors en conclure « qu'un photon interfère...avec lui-même » [4] [39]. Par la suite, un grand nombre d'expériences réalisées en lumière atténuées ont confirmé ces observations [40].

Pour des expériences d'interférence réalisées au moyen de sources de lumière classique fortement atténuées, l'affirmation que le processus met effectivement en jeu un seul photon repose en général sur l'argument énergétique suivant. En postulant l'existence du photon, le flux de photons envoyé dans l'interféromètre est égal à $\Phi/h\nu$ où Φ est le flux énergétique de lumière et $h\nu$ l'énergie d'un quanta de lumière. Ainsi, en atténuant fortement la source, on peut sans difficulté

[3] Il est intéressant de voir comment EINSTEIN anticipe dans son article les réticences de ses collègues scientifiques face à ce profond changement conceptuel dans la nature de la lumière : « Imaginons un instant que l'on ne connaisse pas encore les phénomènes de diffraction et d'interférence, mais que l'on sache que la valeur moyenne des fluctuations irrégulières de la pression de radiation est donnée par le deuxième terme de l'équation ci-dessus, ν étant un paramètre caractérisant la couleur mais dont la signification est inconnue. Qui aurait assez d'imagination pour élaborer, à partir de là, la théorie ondulatoire de la lumière ? ».

[4] Cette affirmation est certainement à l'origine de nombreuses confusions que nous discuterons par la suite.

se placer dans des conditions où il y a en moyenne beaucoup moins d'un photon à la fois dans l'interféromètre. En admettant que les photons sont statistiquement indépendants les uns des autres, on peut alors en déduire que la probabilité d'avoir deux photons dans l'interféromètre est très petite comparée à la probabilité d'en avoir un seul, pour finalement conclure que les effets observés sont essentiellement dus au comportement d'un photon unique.

Cet argumentaire est valide à condition de postuler l'existence des photons. Cependant, les paradoxes issus de la dualité onde-corpuscule ne prennent tout leur sens que si l'on est capable de démontrer expérimentalement que l'introduction de la nature corpusculaire de la lumière est réellement nécessaire. L'étude de la dualité pour des objets quantiques massifs tels les électrons, les neutrons ou les atomes suit une logique sensiblement différente. En effet, la nature corpusculaire de tels objets est héritée du sens commun, issu de l'observation, et c'est par conséquent leur nature ondulatoire, intrinsèquement quantique, qui doit être mis en évidence pour illustrer de manière frappante la dualité. Pour la lumière, c'est au contraire la nature ondulatoire qui est héritée de la physique classique en raison de la puissance de la théorie ondulatoire pour expliquer les phénomènes optiques comme la diffraction et les interférences. Il est ainsi nécessaire de trouver un critère expérimental permettant de mettre clairement en évidence un comportement de type corpusculaire pour la lumière.

Traditionnellement, l'acte de naissance du photon est lié à l'explication de l'effet photoélectrique par EINSTEIN en 1905. Nous allons cependant rappeler dans la section suivante (§ 1.2.1) que l'effet photoélectrique peut être expliqué entièrement à l'aide d'une théorie semi-classique, pour laquelle la lumière est décrite par une onde électromagnétique classique, qui interagit avec un détecteur quantifié. L'effet photoélectrique ne saurait être ainsi une preuve expérimentale de la nature corpusculaire de la lumière. Après avoir introduit quelques éléments de théorie quantique de la photodétection (§ 1.2.2), nous verrons que l'ensemble des phénomènes optiques ne faisant intervenir que des corrélations en amplitude du champ électromagnétique ne nécessitent pas l'introduction de la quantification du champ électromagnétique pour être compris (§ 1.2.3).

Afin de pouvoir mettre en évidence un comportement corpusculaire de la lumière, il est nécessaire d'étudier la statistique d'émission de la source de lumière considérée, en réalisant des mesures de corrélations d'intensité. Nous établirons alors un critère permettant de distinguer une source classique d'une source spécifiquement quantique, dont les propriétés peuvent être décrites uniquement par la quantification du champ électromagnétique [40, 10, 41] (§ 1.2.4). Nous étudierons alors quels états du champ électromagnétique permettent effectivement de mettre en évidence la nature corpusculaire de la lumière. Nous montrerons en particulier qu'il est impossible de la mettre en évidence en utilisant des sources de lumière telle une lampe à décharge, une diode électroluminescente ou un laser, ceci même en régime de forte atténuation. Ainsi, les expériences d'interférence à un photon réalisées à l'aide de sources classiques très atténuées ne constituent en aucune façon une démonstration de la dualité onde-corpuscule pour la lumière. Pour conclure cette partie, nous décrirons la première réalisation d'une expérience d'interférence à un seul photon, réalisée en 1986 par P. GRANGIER, A. ASPECT et G. ROGER à l'Institut d'Optique (§ 1.2.5).

1.2.1 Effet photoélectrique et quantification de la lumière

En 1888 W. HALLWACHS, un étudiant de H. HERTZ, observe qu'une plaque de zinc isolée prend, sous l'action d'un éclairage ultra-violet, une charge positive. Inversement, une plaque de zinc initialement chargée négativement se décharge par insolation avec un rayonnement ultraviolet, ceci même lorsqu'elle est placée dans le vide. Suite à la découverte de l'électron par J. J. THOMSON en 1899, P. LENARD est le premier à suggérer au cour de la même année, que les

observations réalisées par HERTZ et HALLWACHS correspondent à l'émission d'électrons par la cathode [42]. En utilisant différentes polarisations de la cathode, il découvre en 1902 les lois fondamentales suivantes, qui caractérisent l'effet photoélectrique [43, 44] :

• L'énergie cinétique d'un électron émis a une valeur maximale $E_c^{\max}$, qui dépend linéairement de la fréquence optique d'excitation ν. De plus, l'émission d'électrons n'apparaît qu'au delà d'un seuil de fréquence ν_{seuil} caractéristique du matériau.

• Le flux lumineux n'affecte pas la valeur d'$E_c^{\max}$, bien qu'il détermine le nombre de photoélectrons émis par la cathode par unité de temps.

Aucune de ces deux propriétés ne peut être expliquée par un modèle d'interaction matière-rayonnement utilisant les théories classiques alors en vigueur, à savoir le modèle de Thomson pour l'électron et le modèle ondulatoire du champ électromagnétique découlant des équations de Maxwell.

Dans son article de 1905 introduisant la notion de quantification du champ électromagnétique [1], EINSTEIN donne une explication à l'ensemble des faits expérimentaux relatifs à l'effet photoélectrique, en postulant un transfert d'énergie entre quantas de lumière et électrons. Il écrit alors la relation :

$$E_c^{\max} = h\nu - W \tag{1.2}$$

où W représente le travail de sortie de l'électron à la cathode et $h\nu$ l'énergie d'un quanta de lumière. Le seuil en fréquence de l'effet photoélectrique s'interprète alors comme $\nu_{\text{seuil}} = W/h$.

En 1916, R. MILLIKAN publie une étude très détaillée de l'émission photoélectrique [31], qui établit que la constante h introduite dans la loi d'Einstein est bien égale à celle introduite par PLANCK pour l'étude du corps noir. Le jugement de MILLIKAN sur ses résultats, obtenus après dix années d'efforts expérimentaux est frappant : « I spent ten years of my life testing the 1905 equation of Einstein's, and contrary to all my expectations I was compelled in 1915 to assert its unambiguous experimental verification in spite of its unreasonableness, since it seemed to violate everything that we knew about the interference of light » [45].

L'explication de l'effet photoélectrique est ainsi traditionnellement considérée comme l'acte de naissance du photon [5]. Cependant, W. E. LAMB et M. O. SCULLY proposèrent dans les années cinquante un modèle permettant d'expliquer l'ensemble des observations caractéristiques de l'effet photoélectrique, sans nécessiter le recours à la quantification du champ électromagnétique [46, 47]. Dans ce modèle dit « semi-classique », la lumière est décrite par un champ électromagnétique classique interagissant avec un détecteur quantifié.

Considérons par exemple un détecteur constitué par un atome, présentant un niveau d'énergie fondamental $|f\rangle$ d'énergie E_f et un continuum d'états ionisés $|k\rangle$ d'énergie E_k, séparés par l'énergie d'ionisation W (figure 1.2). Cet atome interagit avec un champ électromagnétique classique de la forme $E_0 \cos(\omega t)$ par interaction dipolaire électrique. Le taux de transition de l'atome $\Gamma_{f\to k}$ de l'état $|f\rangle$ vers un état $|k\rangle$ du continuum s'obtient en utilisant la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma_{f\to k} = \frac{\pi E_0^2}{2\hbar} \left|\langle f|\hat{D}|k\rangle\right|^2 \times \rho(E_k) \times \delta(E_k - E_f - \hbar\omega)\ . \tag{1.3}$$

où $\hat{D}$ est l'opérateur dipolaire électrique et $\rho(E_k)$ la densité d'états d'énergie E_k. Cette relation traduit simplement la condition de résonance entre le champ et l'atome permettant à un électron

[5] Au total, trois prix NOBEL ont été décernés pour des travaux reliés à l'étude de l'effet photoélectrique : LENARD en 1905, EINSTEIN en 1921 et MILLIKAN en 1923.

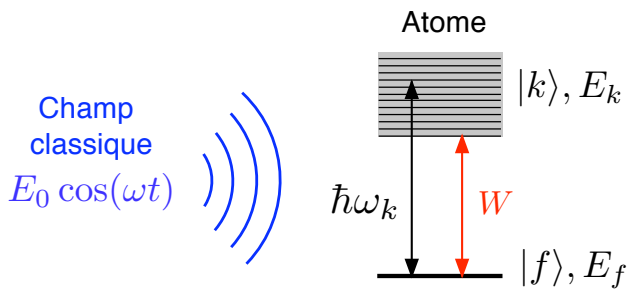


FIG. 1.2 – *Modèle de photodétecteur interagissant avec un champ électromagnétique classique d'amplitude E_0 et de fréquence ω. Le niveau fondamental $|f\rangle$ est séparé du premier niveau excité du continuum (états $|k\rangle$) par une énergie W, correspondant à l'énergie d'ionisation de l'atome.*

de transiter de l'état fondamental vers un état excité $|k\rangle$ lorsque $E_k \approx \hbar\omega$.

En sommant sur tout les états $|k\rangle$ accessibles, il vient finalement le taux global de photoionisation Γ_{ion} :

$$\Gamma_{\text{ion}} = \frac{\pi E_0^2}{2\hbar} \left| \langle f|\hat{D}|k\rangle \right|^2 \times \rho(E_f + \hbar\omega) \; . \tag{1.4}$$

Cette formule contient l'ensemble des caractéristiques de l'effet photoélectrique. En effet, l'existence d'un seuil est due au fait que la densité d'états excités est nulle si $E_f + \hbar\omega < W$. D'autre part si l'excitation se fait au delà du seuil, l'énergie cinétique de l'électron libéré $E_c^{\max}$ est donnée par la relation :

$$E_c^{\max} = \hbar\omega - W \tag{1.5}$$

qui est exactement la formule (1.2) proposée par EINSTEIN. Enfin, la probabilité de détection est bien proportionnelle à l'intensité lumineuse E_0^2.

Il s'avère ainsi que l'effet photoélectrique peut être entièrement interprété sans l'aide du concept de photon mais en introduisant la quantification dans le processus de photodétection [6]. Il ne constitue donc pas une preuve de l'existence de la nature corpusculaire de la lumière.

Dans les sections suivantes, nous allons introduire un critère quantitatif permettant de mettre en évidence sans ambiguïté la nature corpusculaire de la lumière, lors d'une expérience mesurant les corrélations d'intensités de la source de lumière utilisée.

1.2.2 Eléments de théorie quantique de la photodétection

Il est nécessaire d'introduire quelques résultats importants de la théorie quantique de la photodétection, développée par R. J. GLAUBER et permettant de fixer un cadre théorique à l'étude des états non-classiques du rayonnement électromagnétique [7] [48, 49].

[6] Il est souvent soulevé le problème de l'instantanéité de l'effet photoélectrique dès le début de l'illumination, ceci même dans le cas d'un éclairement de très faible intensité. Pour certains, cette observation ne serait pas compatible avec un champ électromagnétique classique et nécessiterait l'introduction du photon. Cependant, les taux de transition calculés dans le modèle semi-classique sont des probabilités quantiques, qui indiquent que la probabilité de production instantanée d'un photo-électron, bien que très faible, est non nulle. En répétant l'expérience d'illumination soudaine d'un échantillon un grand nombre de fois, il serait ainsi possible d'illustrer sans ambiguité la validité de l'équation (1.4) aux temps courts. Il est ainsi possible d'interpréter la photoionisation aux temps courts comme une conséquence de la nature quantique de l'atome.

[7] C'est pour le développement de ce formalisme, qui permet à la fois de clarifier la compréhension des états de lumière intrinsèquement quantiques et d'expliquer les succès du modèle classique grâce à l'introduction des états cohérents, que R. GLAUBER a reçu le prix NOBEL de Physique en 2005.

En se plaçant dans les conditions de jauge de Coulomb et en considérant le champ électromagnétique comme une superposition d'ondes planes monochromatiques de fréquence ω_k, de vecteur d'onde $\mathbf{k}$ et de vecteur polarisation $\mathbf{e_k}$, le champ électrique dans le cadre du formalisme de l'optique quantique correspond à l'opérateur [50] :

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = i\sum_k \sqrt{\frac{\hbar\omega_k}{2\epsilon_0 V}}\left[\hat{a}_k \mathbf{e_k} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega_k t)} - \hat{a}_k^\dagger \mathbf{e_k^*} e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega_k t)}\right] \tag{1.6}$$

où V est le volume de quantification. On peut écrire plus simplement :

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r},t) + \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r},t) \tag{1.7}$$

où les termes $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}$ et $\hat{\mathbf{E}}^{(-)}$ correspondent au regroupement des termes faisant intervenir respectivement les opérateurs annihilation $\hat{a}_k$ et création de photon $\hat{a}_k^\dagger$ pour les différents modes du champ.

Nous considérons un photodétecteur idéal constitué d'un atome isolé tel celui que nous avons décrit dans la section précédente. L'interaction de cet atome avec le champ électromagnétique se traduit par une absorption de lumière, conduisant à l'ionisation de l'atome. Ce processus libère un électron qui peut être détecté, en étant par exemple à l'origine d'un processus d'avalanche créant un signal macroscopique de photodétection. En se plaçant dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique et à la limite des grandes longueurs d'onde devant la dimension de l'atome, le couplage de type dipolaire électrique entre l'atome et le champ correspond à l'opérateur $-\hat{\mathbf{D}}\cdot\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r_0},t)$, où $\mathbf{r_0}$ correspond à la position de l'atome et $\hat{\mathbf{D}}$ est l'opérateur dipolaire électrique.

Notons que le processus de détection étant associé à un phénomène d'absorption du champ électromagnétique, seuls les termes de l'opérateur champ électrique faisant intervenir les opérateurs annihilation de photons $\hat{a}_k$ interviennent [8]. Nous pouvons ainsi considérer uniquement le terme $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}$ de l'équation (1.7).

La règle d'or de FERMI permet d'évaluer la probabilité d'ionisation de l'atome $\mathcal{P}_{i\to f}$ par unité de temps, correspondant à la transition du champ électromagnétique d'un état initial $|i\rangle$ vers un état final $|f\rangle$. Ceci conduit à la relation [50] :

$$\mathcal{P}_{i\to f} = \left|\langle f|\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r_0},t)|i\rangle\right|^2 . \tag{1.8}$$

En sommant sur tous les états finaux $|f\rangle$ possibles et en utilisant la relation de fermeture les liant, le taux de comptage du photodétecteur $\mathcal{I}(\mathbf{r_0},t)$, c'est-à-dire le nombre de photoélectrons par unité de temps, s'écrit [9] :

$$\mathcal{I}(\mathbf{r_0},t) = \langle i|\hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r_0},t)\cdot\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r_0},t)|i\rangle = \left|\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r_0},t)|i\rangle\right|^2 \tag{1.9}$$

Il faut également tenir compte du fait que le champ peut être initialement dans un mélange statistique d'états purs, décrite par une matrice densité $\hat{\rho}$ de la forme

$$\hat{\rho} = \sum_i \mathcal{P}_{\mathrm{i}}|\mathrm{i}\rangle\langle\mathrm{i}| , \tag{1.10}$$

[8] Il s'agit d'une approximation résonnante.

[9] Nous considérons ici par souci de simplification que le photodétecteur possède une efficacité quantique unité dont la réponse spectrale varie lentement avec la fréquence ω. Par la suite, nous nous intéresserons essentiellement aux fonctions de corrélation du champ, qui de par leur normalisation, sont indépendantes de cette efficacité de détection.

où $\mathcal{P}_i$ est la probabilité initiale de peuplement de l'état $|i\rangle$ du champ. L'équation (1.9) devient alors :

$$\mathcal{I}(\mathbf{r_0}, t) = \mathrm{Tr}\{\hat{\rho} \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r_0}, \mathrm{t}) \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r_0}, \mathrm{t})\} = \langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r_0}, \mathrm{t}) \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r_0}, \mathrm{t})\rangle \ , \tag{1.11}$$

de sorte que le taux de comptage est proportionnel à la valeur moyenne d'un produit d'opérateurs rangés dans l'ordre dit *normal* [10], conséquence naturelle de l'utilisation d'un détecteur en absorption. En posant $x = (\mathbf{r_0}, t)$, cette expression correspond à la fonction $G^{(1)}(x, x)$ définie par :

$$G^{(1)}(x, x) = \mathrm{Tr}\{\hat{\rho} \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r_0}, \mathrm{t}) \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r_0}, \mathrm{t})\} \ . \tag{1.12}$$

1.2.3 Fonction de corrélation en amplitude du champ

Considérons maintenant un dispositif d'interférométrie constitué de deux trous d'Young S_1 et S_2, positionnés respectivement en $\mathbf{r_1}$ et $\mathbf{r_2}$. La superposition des champs issus de chacun des deux trous au point $\mathbf{r_0}$ où est placé un photodétecteur s'écrit :

$$\hat{E}^{(+)}(\mathbf{r_0}, t) = K_1 \hat{E}^{(+)}(\mathbf{r_1}, t_1) + K_2 \hat{E}^{(+)}(\mathbf{r_2}, t_2) \tag{1.13}$$

où $t_i = t - |\mathbf{r_0} - \mathbf{r_i}|/c$.

Nous pouvons alors utiliser les équations (1.11) et (1.12) pour exprimer l'intensité mesurée par le photodétecteur :

$$\mathcal{I}(\mathbf{r_0}, t) = |K_1|^2 G^{(1)}(x_1, x_1) + |K_2|^2 G^{(1)}(x_2, x_2) + 2\mathrm{Re}\left[K_1^* K_2 G^{(1)}(x_1, x_2)\right] \tag{1.14}$$

avec $x_1 = (\mathbf{r_1}, t_1)$ et $x_2 = (\mathbf{r_2}, t_2)$. Compte tenu des équations (1.6) et (1.12), la fonction $G^{(1)}(x_1, x_2)$ présente un terme $\exp[i\ \omega\ (t_2 - t_1)\ -\ i\ \mathbf{k} \cdot (\mathbf{r_2} - \mathbf{r_1})]$, qui correspond à une modulation de l'intensité détectée en fonction du point d'observation $\mathbf{r_0}$ et de la position des deux trous d'Young. Nous obtenons ainsi une formule identique à celle obtenue par le traitement classique des interférences. Pour poursuivre l'analogie avec l'optique ondulatoire, nous pouvons définir la fonction de corrélation quantique du premier ordre $g^{(1)}(x_1, x_2)$ par :

$$g^{(1)}(x_1, x_2) = \frac{G^{(1)}(x_1, x_2)}{\sqrt{G^{(1)}(x_1, x_1) G^{(1)}(x_2, x_2)}} \tag{1.15}$$

Cette fonction représente l'enveloppe des interférences, caractérisant le degré de cohérence spatio-temporelle de la source. Ainsi, aucun trait spécifiquement quantique ne peut être mis en évidence lors de la réalisation d'une expérience d'interférence, qui peut entièrement être comprise en utilisant une description classique ondulatoire. De manière générale, les prédictions de l'ensemble des phénomènes optiques faisant intervenir uniquement la fonction de corrélation en amplitude du champ électromagnétique (phénomènes dits du « premier ordre ») [11] sont strictement identiques en utilisant le formalisme semi-classique ou celui de l'optique quantique, ceci même dans le régime de photons uniques [12] [50]. Ce résultat sera illustré par la modélisation de

[10] L'ordre dit *normal* correspond à un positionnement des opérateurs de création de photon $\hat{a}_k^\dagger$ à gauche des opérateur d'annihilation $\hat{a}_k$.

[11] L'effet photoélectrique, les interférences ou la diffraction sont des exemples de phénomènes du premier ordre.

[12] En particulier, l'état à un photon qui nous intéressera par la suite, donne exactement le même type d'interférence qu'un champ classique, possédant ainsi des propriétés ondulatoires liées à l'existence de deux chemins possibles, de longueur optiques différentes. Cependant pour l'état à un photon, le résultat a uniquement un caractère probabiliste : on ne peut évidemment avoir qu'une seule photodétecton avec un tel état, et les franges d'interférence ne pourront apparaître que si on répète l'expérience un grand nombre de fois en accumulant les données.

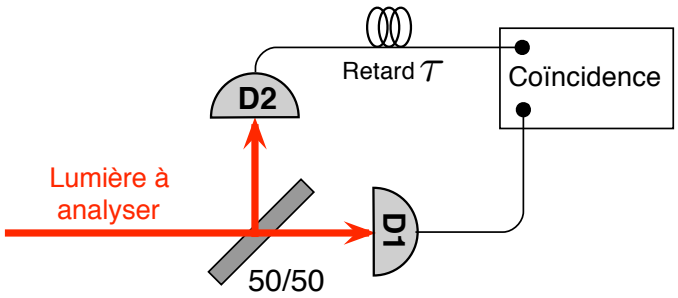


FIG. 1.3 – *Montage de type Hanbury Brown et Twiss permettant de mesurer la fonction de corrélation en intensité d'un champ lumineux à l'aide d'un dispositif électronique qui enregistre les coïncidences entre les détections aux instants t et $t+\tau$, au moyen d'un retard électronique ajustable.*

l'expérience d'interférence à un photon qui sera présenté à la fin de ce chapitre (§ 1.4.3).

Pour mettre en évidence des propriétés spécifiquement quantiques du rayonnement, c'est-à-dire ne pouvant être décrits en utilisant le formalisme semi-classique, il est nécessaire de considérer les phénomènes du « deuxième ordre », qui font intervenir la fonction de corrélation en intensité du champ.

1.2.4 Fonction de corrélation d'intensité et paramètre de corrélation A

L'étude de la statistique d'émission d'une source lumineuse à l'aide de mesures de corrélations en intensité a été introduite par Robert HANBURY BROWN et Richard Quentin TWISS en 1956 [51]. Le dispositif expérimental, qui désormais porte leurs noms, est constitué de deux photodétecteurs D1 et D2, que nous supposerons fonctionnant en régime de comptage de photons et positionnés à égale distance de part et d'autre d'une lame séparatrice $50/50$ sur laquelle est envoyée la lumière à analyser (figure 1.3).

Ce dispositif expérimental permet d'évaluer la probabilité de détections conjointes $P_{12}(t, t+\tau)$ que deux événements de photodétection interviennent à l'instant t sur le détecteur D1 et à l'instant $t+\tau$ sur le détecteur D2 [13]. En utilisant également les probabilités de photodétection simples $P_1(t)$ et $P_2\ (t+\tau)$, respectivement associées aux détecteurs D1 à l'instant t et D2 à l'instant $t+\tau$, la fonction de corrélation en intensité normalisée s'écrit sous la forme :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{P_{12}(t, t+\tau)}{P_1(t) \times P_2(t+\tau)} \tag{1.16}$$

Notons que cette normalisation dans la définition de $g^{(2)}(\tau)$ permet d'obtenir une expression ne dépendant ni de l'efficacité quantique des photodétecteurs, ni des facteurs de réflexion et transmission de la lame séparatrice $50/50$, ni du profil temporel de l'impulsion.

[13] Le montage à deux détecteurs permet de s'affranchir du temps mort des détecteurs fonctionnant en régime de comptage de photons, lequel est de l'ordre de 40 ns pour les photodiode à avalanche que nous utiliserons (PERKIN-ELMER AQR 14). La résolution temporelle est finalement limitée par la gigue des détecteurs, de l'ordre de 700 ps, et celle de l'électronique d'acquisition.

Corrélations classiques d'intensité

Nous nous intéressons dans un premier temps aux propriétés de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ prédites par le formalisme de l'optique classique. L'équation (1.16) se met alors sous la forme :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\overline{\mathcal{I}(t)\mathcal{I}(t+\tau)}}{\overline{\mathcal{I}(t)} \times \overline{\mathcal{I}(t+\tau)}} \ , \tag{1.17}$$

où la notation $\overline{\mathcal{I}(t)}$ désigne une moyenne statistique.

Pour le retard nul $\tau = 0$, nous obtenons ainsi :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\overline{\mathcal{I}(t)^2}}{\left(\overline{\mathcal{I}(t)}\right)^2} \ . \tag{1.18}$$

En utilisant l'inégalité de Cauchy-Schwartz, qui établit que

$$\overline{\mathcal{I}(t)^2} \geq \left(\overline{\mathcal{I}(t)}\right)^2 , \tag{1.19}$$

nous obtenons finalement une propriété essentielle de la fonction de corrélation d'intensité classique :

$$g^{(2)}(0) \geq 1. \tag{1.20}$$

Nous utiliserons par la suite le paramètre de corrélation A défini par :

$$A = \frac{P_c}{P_1 \times P_2} \tag{1.21}$$

où $P_c = P_{12}(t,t)$ correspond à la probabilité d'une détection en coïncidence, correspondant à des « clicks » simultanés des détecteurs D1 et D2, tandis que P_1 et P_2 correspondent respectivement aux probabilités de détection simples sur ces mêmes détecteurs.

Les équations (1.16) et (1.21) montrent l'équivalence entre le paramètre de corrélation A et la fonction de corrélation en intensité au retard nul $g^{(2)}(0)$, de sorte que dans le cadre de l'optique classique, le paramètre de corrélation satisfait à l'inégalité suivante :

$$A \geq 1 \ . \tag{1.22}$$

Cette inégalité établit un critère quantitatif permettant de distinguer un état classique du champ électromagnétique d'un état purement quantique, dont les propriétés requièrent la quantification du rayonnement électromagnétique. En effet, toute violation expérimentale de l'inégalité (1.22), qui correspond à un phénomène d'*anticorrélation* pour les photodétections de part et d'autre d'une lame semi-transparente (cf. figure 1.3), ne peut être expliquée à l'aide d'un formalisme semi-classique.

Nous allons maintenant voir quel types d'états du champ peuvent effectivement conduire à une telle *anticorrélation*.

Corrélations quantique d'intensité

Reprenons maintenant le cadre du formalisme de GLAUBER de l'optique quantique. L'expression décrite par l'équation (1.16) se met alors sous la forme :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{< \hat{E}^{(-)}(\mathbf{r_1},t)\hat{E}^{(-)}(\mathbf{r_2},t+\tau)\hat{E}^{(+)}(\mathbf{r_2},t+\tau)\hat{E}^{(+)}(\mathbf{r_1},t) >}{< \hat{E}^{(-)}(\mathbf{r_1},t)\hat{E}^{(+)}(\mathbf{r_1},t) >< \hat{E}^{(-)}(\mathbf{r_2},t+\tau)\hat{E}^{(+)}(\mathbf{r_2},t+\tau) >} \tag{1.23}$$

où $\mathbf{r_1}$ et $\mathbf{r_2}$ correspondent respectivement aux positions des détecteurs D1 et D2 (cf. figure 1.3). Le terme au numérateur correspond à la détection d'un photon à l'instant t par le détecteur D1 suivie de la détection d'un photon à l'instant $t + \tau$ par le détecteur D2.

Nous voyons apparaître une contradiction avec les prédictions de l'optique classique, caractérisée par l'inégalité (1.22). En effet, pour un état de lumière à un seul photon, l'expression (1.23) est identiquement nulle puisque l'opérateur annihilation de photon est appliqué deux fois successivement. Ce résultat correspond à la représentation intuitive d'un photon en tant que particule indivisible, qui ne peut être détectée simultanément à deux endroits différents. La probabilité P_c de détection en coïncidence est donc nulle, conduisant ainsi à une *anticorrélation* parfaite $A = 0$, qui traduit le fait que la lame séparatrice utilisée pour la mesure des corrélations d'intensité ne peut pas « couper en deux » un photon unique.

Afin de rentrer davantage dans les détails des propriétés de la fonction de corrélation d'intensité obtenue dans le cadre du formalisme de l'optique quantique, nous considérons désormais par souci de simplification le cas d'un champ monomode. L'équation (1.23) s'écrit alors :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{< \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a}\hat{a} >}{< \hat{a}^\dagger \hat{a} >^2} = \frac{< \hat{n}(\hat{n}-1) >}{< \hat{n} >^2} \tag{1.24}$$

où $\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a}$ est l'opérateur « nombre de photons » et $< \hat{n} >$ le nombre moyen de photons pour le mode considéré. Cette expression, qui est indépendante du retard τ, est évidemment valable au retard nul $\tau = 0$, pour lequel la fonction de corrélation en intensité est équivalente au paramètre de corrélation A. L'expression (1.24) peut également s'écrire en fonction de la variance du nombre de photons $(\Delta n)^2$, définie par $(\Delta n)^2 =< \hat{n}^2 > - < \hat{n} >^2$. Nous obtenons alors :

$$A = g^{(2)}(0) = 1 + \frac{< (\Delta n)^2 > - < \hat{n} >}{< \hat{n} >^2} \ . \tag{1.25}$$

Pour un état nombre $|n\rangle$ du champ électromagnétique pour lequel $\Delta n = 0$, l'équation (1.25) conduit à :

$$A = 1 - \frac{1}{n} \tag{1.26}$$

Ainsi, quelque soit l'état nombre $|n >$ utilisé, nous obtenons $A < 1$, violant ainsi l'inégalité classique (1.22). Cet effet d'*anticorrélation* révèle l'essence spécifiquement quantique de la source de lumière utilisée. En particulier, un état à un seul photon conduit à une *anticorrélation* parfaite $A = 0$.

Considérons maintenant un état cohérent $|\alpha\rangle$ du champ électromagnétique, tel celui produit par un laser monomode fonctionnant très au dessus de son seuil d'oscillation. Un état cohérent est décrit formellement comme un état propre de l'opérateur annihilation de photon [14], satisfaisant à la relation :

$$\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \tag{1.27}$$

Il est possible de décomposer cet état cohérent sur la base des états nombres selon la relation [50] :

$$|\alpha\rangle = \sum_n e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle \ . \tag{1.28}$$

[14] Notons que les transformations associées aux opérateurs a et $a^\dagger$ ne sont pas hermitiques. Dire qu'un état cohérent $|\alpha >$ est un état propre de l'opérateur annihilation de photon constitue un abus de langage.

Cette expression permet de calculer la statistique de photons d'un état cohérent. En notant $P(n)$ la probabilité qu'un état cohérent $|\alpha\rangle$ contienne n photons, il vient :

$$P(n) = e^{-<\hat{n}>}\frac{<\hat{n}>^n}{n!} \quad \text{avec} \quad <\hat{n}>=|\alpha| \tag{1.29}$$

Cette loi est caractéristique d'une distribution de Poisson pour laquelle $<(\Delta n)^2>=<\hat{n}>$. En utilisant l'équation (1.25), nous pouvons ainsi conclure que l'utilisation d'un état cohérent conduit à la limite classique $A = 1$ du paramètre de corrélation. Cette propriété se conserve quelque soit l'atténuation du faisceau, une statistique poissonnienne atténuée restant une statistique poissonnienne pour laquelle seul le nombre moyen de photons $<\hat{n}>$ est diminué. Ce résultat établit qu'il est impossible de mettre en évidence un comportement de type corpusculaire de la lumière à l'aide de lumière laser, même fortement atténuée [15], justifiant ainsi la dénomination de champ « quasi-classique » et expliquant le succès de l'approche semi-classique.

Conclusion et remarque

En étudiant les corrélations d'intensité du rayonnement nous avons finalement obtenu un critère quantitatif permettant de mettre en évidence un caractère spécifiquement quantique de la lumière. Nous avons vu en particulier que l'utilisation d'une source laser très atténuée ne permet pas de mettre en évidence la nature corpusculaire de la lumière, puisqu'elle conduit à la limite classique du paramètre de corrélation $A = 1$. A l'inverse, un état à un photon conduit à une *anti-corrélation* parfaite $A = 0$, signature d'un comportement corpusculaire [10].

Notons que nous nous sommes intéressés uniquement à la fonction de corrélation d'intensité au retard nul $g^{(2)}(0)$, dont la valeur est équivalente au paramètre de corrélation A. Il existe cependant une autre inégalité satisfaite par la fonction de corrélation d'intensité classique, correspondant à [50] :

$$g^{(2)}(0) \geq g^{(2)}(\tau) \tag{1.30}$$

La violation de cette inégalité, appelée usuellement *dégroupement de photon*, constitue une autre preuve du caractère non-classique de l'émission d'une source de lumière.

La première mise en évidence d'un comportement non classique de la lumière a été observée en 1974 par John CLAUSER en étudiant les corrélations entre photons émis par une cascade radiative d'atomes de mercure [8]. S'il s'agit indéniablement d'une expérience mettant en évidence un comportement de type corpusculaire pour la lumière, près de soixante-dix années après l'article fondateur de EINSTEIN en 1905, la violation de l'inégalité obtenue par CLAUSER est spécifique à la situation expérimentale de la cascade radiative. CLAUSER n'avait pas alors souligné son lien avec les inégalités classiques (1.22) et (1.30).

Quelques années plus tard, une expérience réalisée par H. J. KIMBLE, M. DAGENAIS et L. MANDEL a illustré de manière frappante le phénomène de *dégroupement de photon*, en envoyant sur une lame séparatrice la lumière de fluorescence d'un un jet atomique, suffisamment dilué pour qu'en moyenne moins d'un atome soit présent dans le volume d'interaction avec le faisceau laser d'excitation [9] (figure 1.4-(a)). Cependant, ils ne purent mettre en évidence le phénomène d'*anticorrélation* à l'aide des données brutes (figure 1.4-(b)), compte tenu de la statistique de Poisson du nombre d'atomes présents dans le volume d'interaction [53]. Ce n'est qu'après un traitement des données prenant en compte les imperfections du système expérimental, qu'ils montrèrent

[15] Ce résultat est également valable dans le cas d'utilisation de lampe à décharge atténuée pour lesquelles il est possible de démontrer que $g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2$, conduisant à la relation $1 \leq A \leq 2$, identique aux prédictions de l'optique classique [52].

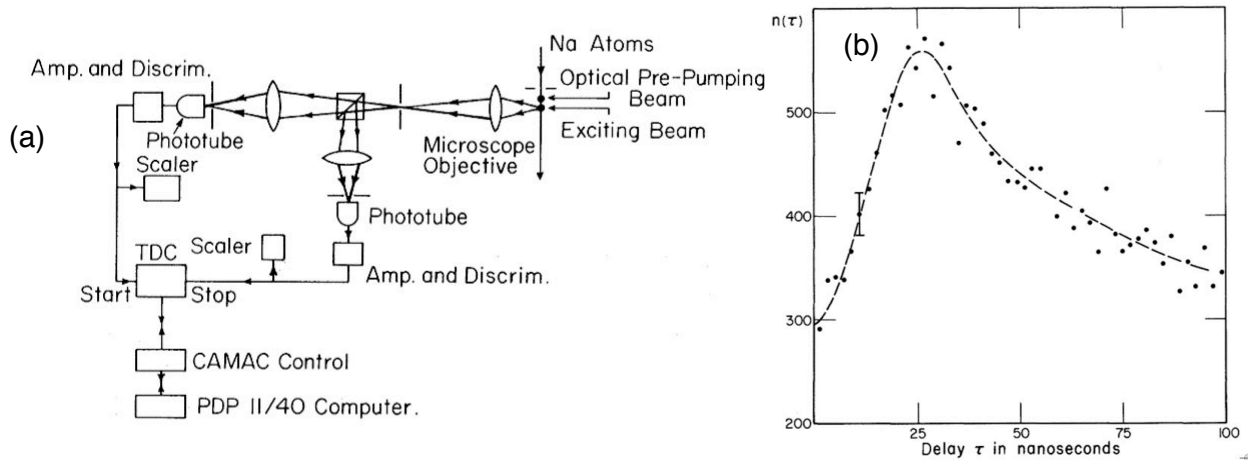


FIG. 1.4 – *Expérience réalisée en 1977 par* H. J. KIMBLE, M. DAGENAIS *et* L. MANDEL *[9]. (a)-Dispositif expérimental permettant d'étudier les corrélations d'intensité de la lumière de fluorescence émise par les atomes d'un jet atomique de très faible flux. (b)-Fonction de corrélation en intensité (non normalisée) de la lumière émise par le jet atomique fortement dilué en interaction avec le laser d'excitation résonnante. Ces résultats démontre le phénomène de dégroupement de photons* $g^{(2)}(0) \leq g^{(2)}(\tau)$*, signature du caractère non-classique de l'émission de lumière par les atomes.*

qu'une composante de la lumière détectée était bien constituée d'états à un seul photon [54, 7]. Cet exemple illustre la nécessité de distinguer le phénomène de *dégroupement de photon*, signature d'un comportement non-classique de la lumière, et celui d'*anticorrélation* qui assure en plus la mise en évidence d'une émission photon par photon.

Dans la suite du mémoire, nous nous intéresserons uniquement à la valeur de la fonction de corrélation en intensité au retard nul, équivalente au paramètre de corrélation A.

1.2.5 Expérience d'Orsay de 1986

La première démonstration expérimentale d'une source capable de produire des impulsions lumineuses à un seul photon et conduisant à un effet d'*anticorrélation* sur une lame séparatrice, a été réalisée par Philippe GRANGIER, Alain ASPECT, et Gérard ROGER lors d'une expérience menée à l'Institut d'Optique au milieu des années quatre-vingt [10], en utilisant une cascade radiative de l'atome de calcium (figure 1.5-(a)).

Le principe qui permet de créer des photons uniques consiste à isoler l'émission de fluorescence d'un émetteur individuel. En effet, en raison de la conservation de l'énergie, cet émetteur une fois porté dans un état excité se désexcite en émettant un, et un seul, photon de fluorescence.

Lors des expériences réalisées à l'Institut d'Optique, l'isolation des émetteurs uniques est obtenue dans le temps, et non dans l'espace. L'excitation d'une transition à deux photons permet de porter des atomes de calcium dans le niveau excité d'une cascade radiative atomique (figure 1.5-(a)). Lors de la désexcitation, chaque atome de calcium émet successivement deux photons de fréquence ν_1 et ν_2 séparés temporellement suivant une loi de décroissance exponentielle, dont le temps caractéristique correspond à la durée de vie τ de l'état intermédiaire de la cascade. Lorsque le taux d'excitation de la cascade radiative est très petit devant τ^{-1}, les cascades sont bien séparées dans le temps et la détection d'un premier photon à la fréquence ν_1 annonce l'émission d'un photon *unique* à la fréquence ν_2 complémentaire dans une fenêtre temporelle de détection dont la

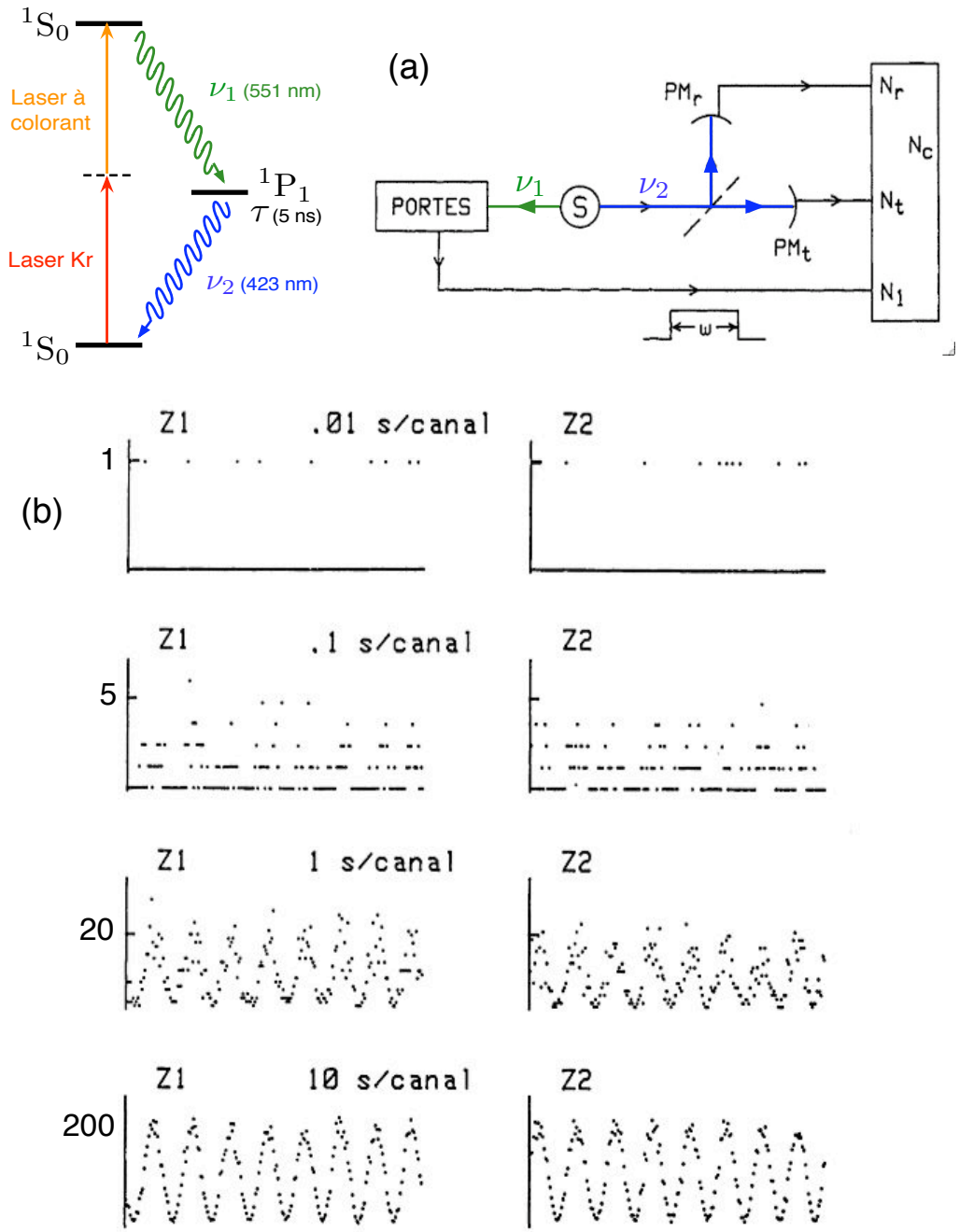


FIG. 1.5 – *(a)-Cascade radiative de l'atome de calcium conduisant à la création d'impulsions à un seul photon. La détection d'un premier photon ν_1 de la cascade est utilisée pour annoncer l'émission d'un second photon ν_2. La mesure de la statistique d'émission des photons ν_2 à l'aide d'un montage de type Hanbury Brown et Twiss conduit à la mesure d'un paramètre de corrélation $A = 0.18$. (b)-En envoyant ces impulsions à un photon dans un interféromètre de Mach-Zehnder, un phénomène d'interférence apparaît photon par photon, sur les ports de sortie de l'interféromètre lorsque la différence de marche entre les deux bras varie (1 canal correspond à une différence de marche égale à $\lambda/25$). Les figures sont tirées de la référence [41].*

durée w est de l'ordre du paramètre τ. Il est ainsi possible d'isoler les processus mettant en jeu l'emission d'un seul atome et partant, de produire des impulsions à un seul photon, comme le prouve la mise en évidence d'un fort effet d'*anticorrélation*, $A = 0.18$, dans les détections sur les voies de sortie d'une lame séparatrice [10].

Cette source de photon uniques a été utilisée pour réaliser la première expérience d'interférence à un seul photon. En envoyant les impulsions à un photon produites par la cascade radiative d'atome de calcium dans un interféromètre de Mach-Zehnder, P. GRANGIER, A. ASPECT et G. ROGER mirent en évidence une modulation de l'intensité détectée sur les ports de sortie de l'interféromètre en variant la différence de chemin optiques entre les deux bras (figure 1.5-(b)) [40, 10]. L'état à un photon produit alors en moyenne exactement le même type d'interférence que celui observé en optique classique.

Cette expérience met ainsi en évidence la dualité onde-corpuscule pour un photon unique. Compte tenu de sa propriété « corpusculaire », le photon ne peut être détecté que sur une voie ou sur l'autre de l'interféromètre. Il possède également des propriétés ondulatoires qui conduisent à des interférences, liées à la recombinaison des deux chemins possibles dans l'interéfromètre, avec des longueurs optiques différentes.

Dans la suite de ce chapitre, nous décrirons une nouvelle réalisation d'une expérience d'interférence à un photon.

1.3 Emission de photons uniques

1.3.1 Développements actuels

La réalisation de sources de lumière pouvant émettre des photons uniques un par un est devenu un enjeu important en optique quantique, motivé autant par leur possible utilisation pour tester les fondements de la mécanique quantique que par leurs applications dans le domaine de l'information quantique, comme la cryptographie quantique [55] ou le réalisation de portes logiques quantiques [16] [56, 57].

Le système expérimental mis au point par P. GRANGIER, A. ASPECT et G. ROGER que nous avons décrit au § 1.2.5, constitue une source de photons uniques « annoncés » : la production de l'impulsion à un photon est conditionnée par la détection d'un premier photon à une fréquence complémentaire. Ce type de source de photons uniques est aujourd'hui réalisé de façon très efficace en partant de la production de paires de photon par fluorescence paramétrique dans un cristal non-linéaire $\chi^{(2)}$ [58]. La préparation d'un état à un photon est alors conditionnée par la détection de l'un des deux photons constituant la paire, dont la direction d'émission est fixée par la condition d'accord de phase. Le processus de conversion paramétrique étant un phénomène d'émission spontané, les instants d'émission des paires de photon sont totalement aléatoires, de sorte que l'émission des photons uniques ne peut être synchronisée sur une horloge externe. Pour cette raison, ce type de source est qualifié d'asynchrone.

Pour certaines expériences, il est désirable de disposer d'une source de photons uniques synchronisée sur une horloge externe. Le principe général permettant la réalisation d'une telle sources de photons uniques, proposé par Franscesco DE MARTINI [16], est représenté sur la figure 1.6.

[16] Précisons que la réalisation de portes logiques quantiques à l'aide de photons uniques requiert l'utilisation d'une source de photons uniques indiscernables, c'est-à-dire de même mode spatio-temporel. Nous discuterons de la réalisation de telles sources, qui constitue un domaine de recherche très actif, dans la conclusion générale du mémoire. Pour les expériences d'interférence à un photon que nous allons décrire, il n'est pas nécessaire d'utiliser de tels photons uniques indiscernables.

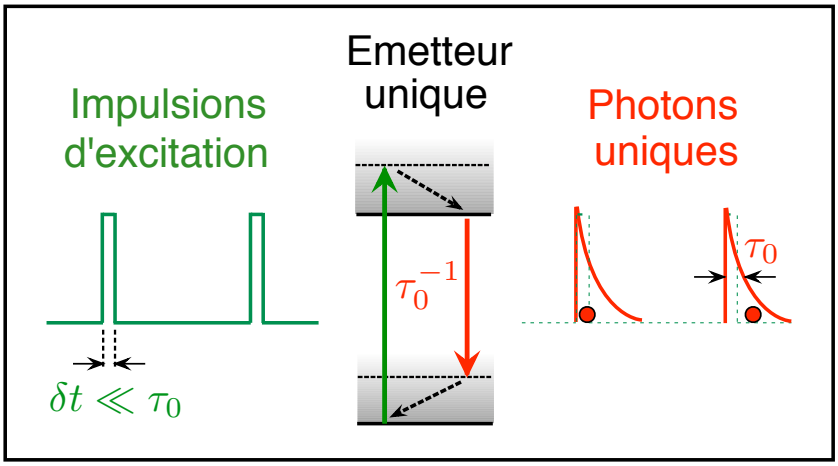


FIG. 1.6 – *Schéma de principe d'une source déclenchée de photons uniques.*

A l'aide d'une impulsion d'excitation laser de durée δt, un émetteur unique isolé spatialement est porté de son niveau fondamental vers un niveau excité, de durée de vie τ_0. Dans la limite où la durée δt de l'impulsion de pompe est très petite devant τ_0, l'émetteur individuel ne peut réaliser qu'un unique cycle de fluorescence pour chaque impulsion d'excitation. Le processus d'absorption-émission de l'émetteur individuel conduit ainsi à l'émission d'un train de photons uniques, synchrone des « tops » d'excitation. Grâce aux développements récents des techniques de détection et de manipulation d'objets quantiques à l'échelle individuelle, de telles sources synchrones de photons uniques ont été réalisées à l'aide d'une très grande variété d'émetteurs tels, des molécules [18, 59], des ions piégés [60, 61], des atomes piégés [62, 63], des boîtes quantiques semi-conductrices en micro-cavités [64, 65, 66] ou en cristal photonique [67, 68] et encore des nanocristaux colloïdaux de CdSe [69, 70].

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons utilisé comme système émetteur des centres colorés dans le diamant, qui correspondent à une famille de défauts optiquement actifs au sein de la matrice cristalline du diamant.

n porte, par une excitation br 'eve, un ?emetteur unique de son ?etat fondamental vers un ?etat excit ?e. Dans la limite o 'u l'impulsion excitatrice est 'a la fois suffisamment intense et

1.3.2 Centres colorés du diamant comme source efficace de photons uniques

A ce jour plus de 500 centres colorés dans le diamant, dont certains luminescents, ont été dénombrés [71]. Cependant, seulement trois d'entre eux ont pour l'instant pu être isolés à l'échelle individuelle, et ont permis la réalisation de source de photons uniques. Il s'agit des centres colorés SiV [72] à base d'impuretés de silicium, des centres NE8 associé à des impuretés de nickel [17] [73, 74] et des centres colorés NV [75, 76] à base d'impuretés d'azote, ces derniers étant à ce jour les mieux connus et les mieux maîtrisés.

La source déclenchée de photons uniques que nous utiliserons par la suite repose sur l'excitation optique impulsionnelle d'un centre coloré NV individuel dans un nanocristal de diamant. Ce système, qui correspond à une impureté (N) d'azote associée à une lacune électronique (V), se comporte comme une molécule artificielle piégée dans la matrice de diamant. Cette source de photons uniques a été mise au point par Alexios BEVERATOS durant sa thèse effectuée au Laboratoire

[17] L'étude des propriétés de photoluminescence des centres colorés NE8 sera présentée au chapitre 4.

Charles Fabry de l'Institut d'Optique sous la direction de Philippe GRANGIER et Jean-Philippe POIZAT [13], afin de réaliser des expériences de cryptographie quantique en régime de photon unique. Aucune amélioration notable n'ayant été apportée à cette source durant mon travail de thèse, son fonctionnement ainsi que ses principales caractéristiques sont décrits dans l'annexe A de ce mémoire.

Le principal avantage des centres colorés NV, par rapport à d'autres émetteurs isolables à l'échelle individuelle tels une molécule ou une boîte quantique, réside dans leur parfaite photostabilité à température ambiante. Il est alors possible de réaliser des expériences utilisant des photons uniques durant plusieurs semaines avec le même centre coloré. De plus, le fait que les centres colorés NV soient des émetteurs de lumière à l'état solide rend leur détection à l'échelle individuelle relativement aisée par microscopie optique confocale (cf. Annexe § A.2.2). Il n'est pas exagéré de qualifier cette source de photons uniques de « presse-bouton ». Cette haute qualité pratique permet d'envisager la réalisation d'expériences nécessitant une longue phase de mise au point, comme cela a été le cas pour l'expérience de choix retardé qui sera décrite au chapitre 3 ou pour des expériences de cryptographie quantique en photons uniques qui ont pu être réalisées avec cette même source [77, 78].

Indiquons deux caractéristiques importantes de cette source de photon unique dont nous devrons tenir compte par la suite. D'une part, le spectre de photoluminescence émis par un centre coloré NV est étendu, en raison du fort couplage de la transition de luminescence avec les phonons de la matrice de diamant. Ce spectre est centré autour de la longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm et présente une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 100 nm (cf. Annexe § A.4.2). D'autre part, la durée de vie du niveau excité des centres colorés NV dans des nanocristaux de diamant est de l'ordre de $\tau_{\mathrm{sp}} = 40$ ns (cf. Annexe § A.4.1). Cette durée correspond à la fenêtre temporelle d'émission d'un photon unique par un centre coloré NV unique, une fois celui-ci excité par une impulsion de pompe.

1.4 Interférence à un photon avec un biprisme de Fresnel

Les progrès obtenus ces dernières années dans les performances des sources de photons uniques permettent désormais de réaliser des expériences d'interférence à un photon relativement simplement. Cette section est dédiée à la description d'une telle expérience utilisant un interféromètre à division du front d'onde constitué par un biprisme de Fresnel. Ce système, analogue au dispositif des trous d'Young, présente l'avantage de ne pas introduire de pertes significatives de lumière lors de la traversée du dispositif interférométrique.

Dans un premier temps, nous démontrerons le caractère corpusculaire de la lumière émise par un centre coloré NV individuel en réalisant une mesure du paramètre de corrélation A entre les deux voies de l'interféromètre (§ 1.4.1). Nous illustrerons par la suite la dualité onde-corpuscule en enregistrant la formation de la figure d'interférence photon par photon à l'aide d'une caméra CCD (§ 1.4.2).

1.4.1 Mesure du paramètre de corrélation A

Nous commençons par mettre en évidence un comportement de type corpusculaire en mesurant le paramètre de corrélation A. Cette mesure est réalisée à l'aide du dispositif expérimental décrit sur la figure 1.7. La lumière de photoluminescence émise par un centre coloré NV individuel est envoyée en incidence normale sur un biprisme de Fresnel, et deux détecteurs fonctionnant en régime de comptage de photon sont positionnés en sortie de chacun des deux chemins

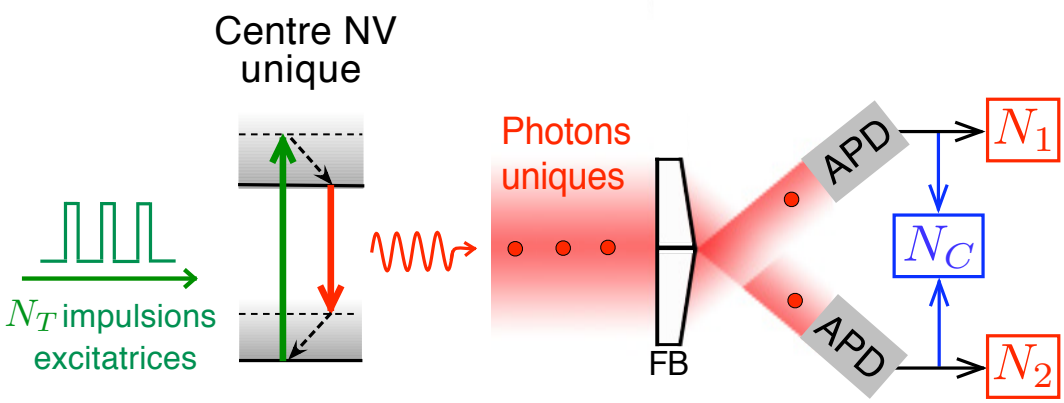


FIG. 1.7 – *Mesure du paramètre de corrélation A. La lumière de photoluminescence d'un centre coloré NV unique excité par un laser impulsionnel est envoyée sur un biprisme (FB). Deux photodiodes à avalanches (APD), sont positionnées en sortie du système interférométrique, loin de la zone de recouvrement des deux fronts d'onde déviés par le biprisme. Pour un nombre d'impulsions N_T appliqué au centre NV individuel pendant une durée de mesure T, ce dispositif permet de mesurer le nombre de détections simples N_1 et N_2, ainsi que le nombre de détections en coïncidences N_C.*

de l'interféromètre, loin de la zone de recouvrement des faisceaux issus du biprisme. Dans cette configuration expérimentale, le biprisme joue un rôle analogue à celui de la lame séparatrice dans le montage de Hanbury Brown et Twiss (figure 1.3).

Considérons une mesure de durée T durant laquelle N_T impulsions lasers de pompe ont été appliquées au centre coloré NV. Cette excitation conduit à N_1 (resp. N_2) détections sur le chemin 1 (resp. 2), et N_C détections en coïncidence. Les probabilités P_1, P_1 et P_C peuvent être évaluées suivant :

$$P_1 = \frac{N_1}{N_T}\ ,\ P_2 = \frac{N_2}{N_T}\ ,\ P_C = \frac{N_C}{N_T}\ . \tag{1.31}$$

A l'aide la définition (1.21), le paramètre de corrélation A s'écrit ainsi :

$$A = \frac{P_C}{P_1 \times P_2} = \frac{N_C \times N_T}{N_1 \times N_2} \tag{1.32}$$

Pour cette expérience, le taux de répétition du laser d'excitation impulsionnel est fixé à 2.25 MHz, correspondant à une impulsion de pompe appliquée toutes les 444 ns au centre coloré NV. La durée de vie de l'état excité de la transition de luminescence étant de l'ordre de $\tau_{\rm sp} \approx 40$ ns, ce taux de répétition assure que la source émet des impulsions de lumière bien séparées dans le temps. La mesure du paramètre A peut alors être directement réalisée à partir de l'enregistrement des temps d'arrivée des photons sur les détecteurs, obtenu au moyen d'une carte d'acquisition TIA (GUIDETECH Modèle GT653), pour *Time Interval Analyser* selon la terminologie anglo-saxonne [15].

La notion de détection en coïncidence n'a de sens qu'après la définition d'une porte temporelle de détection. Afin d'éviter des biais dans la mesure du paramètre de corrélation, nous avons choisi une porte de détection dont la durée $w = 80$ ns est bien supérieure à la durée de vie radiative, $\tau_{\rm sp} = 44.6 \pm 0.8$ ns (cf. § A.4.1), du centre coloré NV utilisé pour cette expérience. Ainsi, si

Temps d'acquisition (s)	N_1	N_2	N_C	A
5.138	49135	50865	28	0.132
5.190	49041	50959	23	0.109
5.166	49097	50903	23	0.109
5.173	49007	50996	28	0.133
5.166	48783	51217	29	0.137
5.167	48951	51049	31	0.147
5.169	49156	50844	30	0.142
5.204	49149	50851	32	0.152
5.179	49023	50977	26	0.124
5.170	48783	51217	26	0.123

TAB. 1.1 – *Mesure du paramètre de corrélation A pour la source déclenchée de photons uniques basée sur la photoluminescence de centres colorés NV uniques. Chaque prise de donnée correspond à la détection de 10^5 photons, associé à une durée approximative d'enregistrement de 5 s.*

deux détections sont séparées par un intervalle temporel inférieur à w, un événement en coïncidence est comptabilisé. Avec ce choix de porte de détection, les données enregistrées par la carte TIA permettent sans difficulté d'évaluer N_1, N_2 et N_C, pour la durée totale T de l'acquisition. Le nombre d'impulsions N_T appliquées à l'émetteur est quant à lui évalué simplement en effectuant le produit $f \times T$, où f est le taux de répétition du laser d'excitation impulsionnel.

La mesure du paramètre de corrélation A est réalisée à dix reprises, chaque mesure correspondant à une durée d'acquisition d'environ 5 s. Les résultats de ces mesures, reproduites sur le tableau 1.1, conduisent à 10 valeurs indépendantes du paramètre A.

Pour un intervalle de confiance de 95%, nous obtenons finalement :

$$A = 0.13 \pm 0.01 \tag{1.33}$$

Ce fort effet d'*anticorrélation* est la signature du caractère spécifiquement quantique des impulsions lumineuses produites par le centre coloré unique. Il correspond à l'image classique intuitive d'un photon en tant que particule indivisible, ne pouvant être détectée simultanément à deux endroits différents. Chaque photon est ainsi dévié « vers le haut » ou « vers le bas » par le biprisme, mais ne peut pas emprunter les deux chemins simultanément. L'écart à la valeur $A = 0$ attendue pour une source idéale de photons uniques est dû à un résidu de photoluminescence de la matrice hôte de diamant ainsi qu'à la raie de diffusion Raman du diamant, qui produisent tout deux des photons suivant une statistique poissonnienne (cf. Annexe § A.3).

La même expérience est réalisée en envoyant sur le biprisme les impulsions très atténuées du laser de pompe, qui correspondent à un état cohérent quasi-classique dont les principales caractéristiques ont été indiquées § 1.2.4. L'atténuation est telle que l'état cohérent ainsi produit correspond à un nombre moyen de photons par impulsion de l'ordre de 0.01, conduisant à des taux de comptage sur les photodiodes à avalanche équivalents à ceux obtenus avec la source de photon unique. Les résultats de la mesure du paramètre de corrélation, reproduites sur le tableau 1.2, conduisent à :

$$A_{\text{laser}} = 1.00 \pm 0.06\ . \tag{1.34}$$

Nous retrouvons ainsi expérimentalement le résultat attendu par l'analyse développée au § 1.2.4, à savoir qu'il est impossible de mettre en évidence un comportement de type corpus-

Temps d'acquisition (s)	N_1	N_2	N_C	A
4.780	49448	50552	269	1.180
4.891	49451	50449	212	0.937
4.823	49204	50796	211	0.934
4.869	49489	50511	196	0.975
4.799	49377	50623	223	0.981
4.846	49211	50789	221	0.982
4.797	49042	50958	232	1.021
4.735	49492	50508	248	1.077
4.790	49505	50495	248	1.090
4.826	49229	50771	219	0.970

TAB. 1.2 – *Mesure du paramètre de corrélation A pour un laser impulsionnel atténué correspondant à un nombre moyen de photons par impulsion de l'ordre de $< \hat{n} >= 10^{-2}$. Aucun effet d'anticorrélation n'est observé dans la traversée du biprisme de Fresnel.*

culaire de la lumière à l'aide d'un laser, même fortement atténué pour que moins d'un photon en moyenne soit présent à la fois dans le dispositif optique.

Remarquons que nous pouvons retrouver $A = 1$ en considérant la statistique de Poisson pour le nombre de photons d'un état cohérent quasi-classique. En utilisant l'equation (1.29) et en se plaçant dans l'approximation où $< \hat{n} > \ll 1$, les probabilités $P(1)$ et $P(2)$ d'avoir respectivement un ou deux photons dans l'impulsion lumineuse sont reliées par la relation :

$$P(2) = \frac{P(1)^2}{2} \tag{1.35}$$

La probabilité de détection en coïncidence P_C est fixée par la probabilité $P(2)$ qu'il y ait deux photons dans la même impulsion, divisée par un facteur 2 qui provient du fait qu'il n'apparaît pas de coïncidence lorsque les deux photons de l'impulsion se dirigent vers le même détecteur. Soit :

$$P_C = \frac{P(2)}{2} = \frac{P(1)^2}{4} \ . \tag{1.36}$$

Les probabilités P_1 et P_2 de détections simples sont quant à elles fixées par la probabilité $P(1)$ d'avoir un photon dans l'impulsion [18], divisée par un facteur 2 résultant de la séparation du faisceau par le biprisme. Il vient donc :

$$P_1 = P_2 = \frac{P(1)}{2} \ . \tag{1.37}$$

En utilisant la définition du paramètre de corrélation donnée par l'équation (1.21)), nous retrouvons bien une valeur unité pour le paramètre A.

1.4.2 Construction photon par photon des franges d'interférence

En utilisant les impulsions à un photon émises par le même centre coloré NV, nous nous proposons maintenant de visualiser la construction photon par photon des franges d'interférence, de

[18] Etant donné que $P(2) \ll P(1)$, les événements à deux photons se dirigeant vers le même détecteur sont négligés dans l'évaluation des probabilités P_1 et P_2.

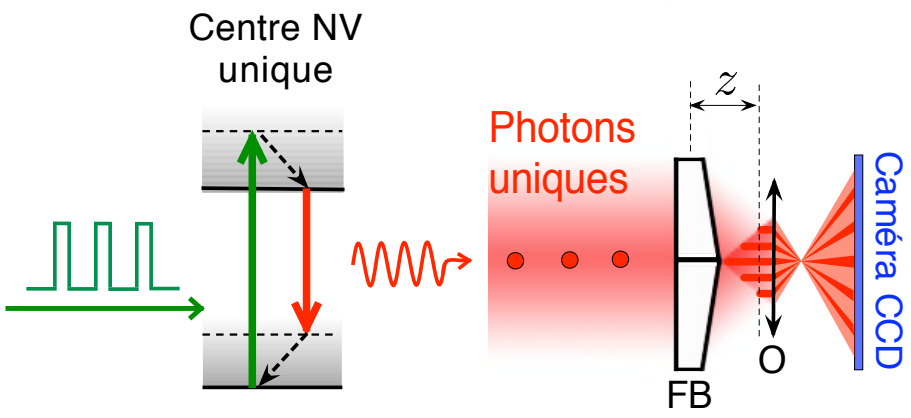


FIG. 1.8 – *Enregistrement des franges d'interférence à un photon. Un oculaire (O) de grandissement* $\times 10$ *conjugue un plan d'observation situé dans la zone de recouvrement des fronts d'onde issus du biprisme de Fresnel (FB) avec la surface de détection d'une caméra CCD intensifiée. La distance* z *correspond à la séparation entre le biprisme et le plan conjugué par l'oculaire sur la caméra.*

façon à compléter l'expérience précédente et obtenir ainsi une nouvelle illustration de la dualité onde-corpuscule pour un photon unique. Pour ce faire, une caméra CCD intensifiée refroidie à la température$-25°$C (iStar, ANDOR TECHNOLOGIES) est positionnée dans la zone de recouvrement des deux fronts d'onde déviés par le biprisme (figure 1.8).

Le calcul de l'interfrange i dans l'approximation des petits angles pour ce système interférentiel conduit à :

$$i = \frac{\lambda}{2(n-1)\alpha} \tag{1.38}$$

où n est l'indice de réfraction du biprisme et α son angle au sommet. Le biprisme que nous avons utilisé est réalisé en verre borosilicate B1664 [19], d'indice $n = 1.5142$ à la longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm, et il présente un angle au sommet $\alpha \approx 25.74'$ d'arc. Ces paramètres conduisent à un interfrange $i = 87$ μm pour la longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm correspondant au pic de photoluminescence des centres colorés NV.

La résolution spatiale de la caméra, qui est limitée par la taille d'un pixel de l'ordre de 25 μm, n'est pas suffisante pour pouvoir enregistrer directement avec une bonne résolution la figure d'interférence. Pour contourner ce problème, un oculaire de grandissement $\times 10$ est positionné entre le biprisme et la caméra CCD (figure 1.8).

La caméra fonctionne en mode de comptage de photon, permettant ainsi de fixer un seuil de détection afin d'optimiser le rapport signal à bruit, en limitant au maximum le nombre de coups d'obscurité de la caméra. Lorsque le nombre de photoélectrons sur un pixel de la caméra CCD est inférieur à la valeur seuil, le signal est compté 0 et 1 sinon. Un autre paramètre important de la caméra est le gain de l'intensification. Pour un gain trop important, plusieurs pixels adjacents peuvent être allumés pour la détection d'un seul photon. Nous désirons diminuer autant que possible ces événements multi-pixel pour visualiser le plus clairement possible la construction des franges d'interférence photon par photon. A l'inverse, un gain trop faible ne permet pas de détecter suffisamment de photons de fluorescence et conduit à une réduction drastique du rap-

[19] Le biprisme a été réalisé par l'atelier de l'Institut d'Optique grâce à Raymond MERCIER et Gilles COLAS.

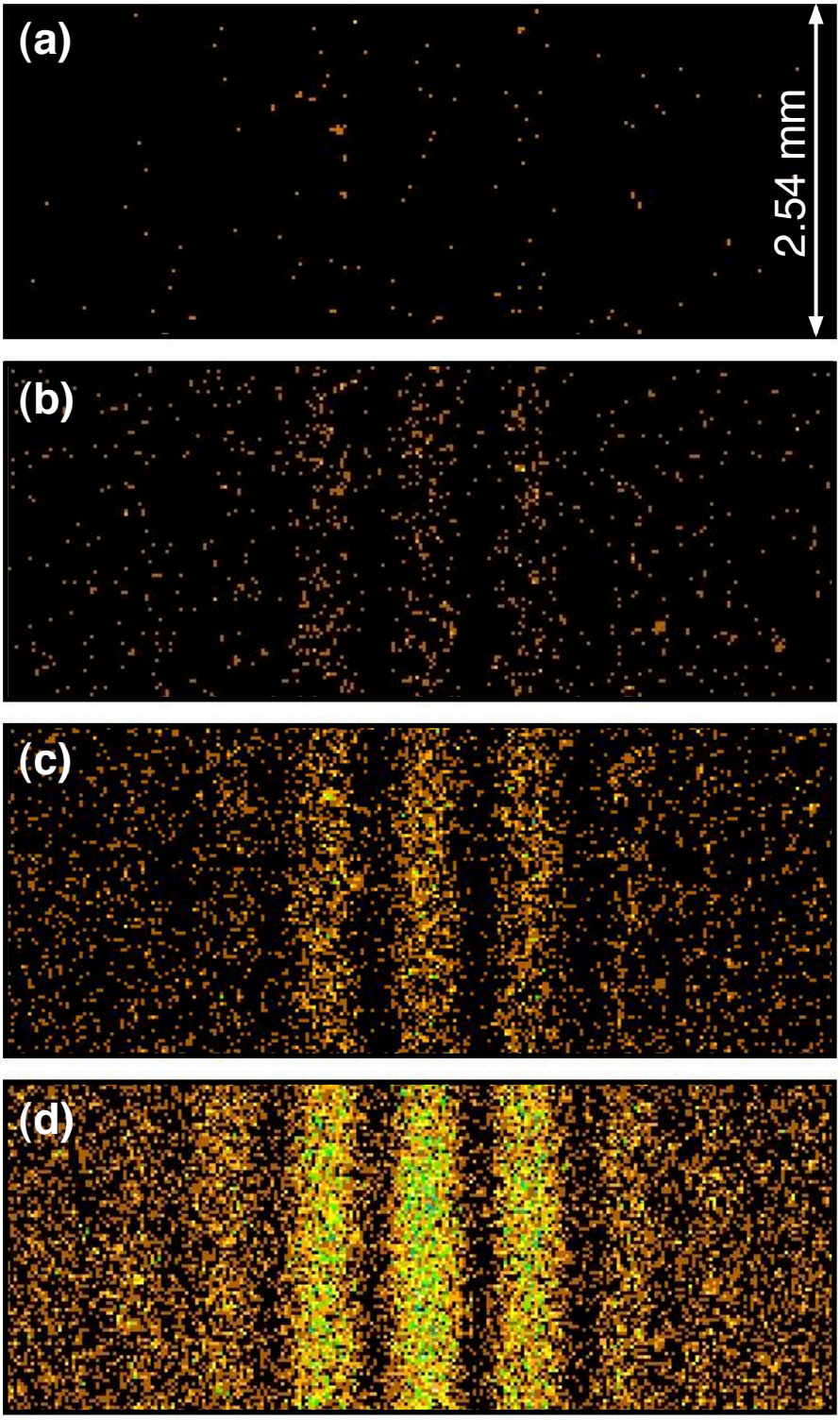


FIG. 1.9 – *Observation de la construction des franges d'interférence photon par photon au moyen de la caméra CCD intensifiée. Les images (a), (b), (c) et (d) correspondent respectivement à l'accumulation de 10, 100, 500 et 2000 clichés, chacun des clichés étant associé à un temps d'ouverture de* 1 *s de la caméra. Le nombre de photons détecté par cliché est en moyenne égal à* 10.

port signal à bruit. Un compromis entre ces deux situations extrêmes permet d'obtenir un régime de fonctionnement de la caméra pour lequel environ 12% des événements de détection correspondent à des coups d'obscurité de la caméra et environ 25% à des événements multi-pixel [20].

Pour l'acquisition des images, nous utilisons une surface de la caméra d'environ 240 pixels$\times 100$ pixels, correspondant à une surface de détection de l'ordre de 6 mm$\times 2.5$ mm. Dans cette zone, environ cinq franges d'interférence peuvent être clairement visualisées. Des images sont successivement enregistrées pour un temps d'ouverture de la caméra fixé à 1 s, correspondant chacune à la détection d'une dizaine de photons. Ces clichés sont sauvegardés puis ajoutés les uns à la suite des autres. Nous avons ainsi réalisé une accumulation de 2000 clichés, équivalente à la détection d'environ 2×10^5 photons. Ces clichés accumulés ont été utilisés pour réaliser un film qui permet de visualiser très clairement la construction photon par photon des franges d'interférence [21] (figure 1.9).

Nous mettons ainsi en évidence le comportement ondulatoire d'un photon unique. Les franges d'interférence ne peuvent en effet se comprendre qu'en considérant l'image classique d'une onde se séparant en deux sur le biprisme et se recombinant sur le détecteur. Cette représentation est incompatible avec l'image classique associée au résultat de l'expérience précédente (§ 1.4.1), qui démontre une *anticorrélation* entre les détections sur les deux voies de sortie du biprisme de Fresnel.

1.4.3 Simulation des franges d'interférence

En sommant l'ensemble des événement de détections sur chacune des colonnes de la caméra, nous obtenons le profil spatial de la figure d'interférence reproduit sur la figure 1.11. Nous allons ajuster ces données expérimentales au moyen d'une simulation numérique de l'expérience, réalisée en utilisant une théorie classique de propagation des champs dans le régime de diffraction de Fresnel [79]. Cette simulation a été réalisée sans inclure l'oculaire, à l'aide du programme LIGHTPIPE écrit par F. VAN GOOR (Department of Applied Physics, University of Twente, The Netherlands) et utilisant le logiciel MATHCAD.

La simulation des franges d'interférences observées nécessite l'évaluation du facteur de grandissement G associé à l'utilisation de l'oculaire, qui nous permettra de redimensionner l'ensemble des résultats expérimentaux. Le facteur G est estimé en mesurant l'interfrange de la figure d'interférence, qui après grandissement correspond à $555 \pm 6\,\mu$m. Nous considérons alors l'interfrange théorique comme la référence de longueur pour l'expérience et nous obtenons la valeur $G = 6.4$ du grandissement en effectuant le rapport entre les deux valeurs de l'interfrange. Par la suite, le système de détection constitué de l'oculaire et de la caméra CCD n'est plus modifié et seule la distance z, séparant le biprisme du plan conjugué par l'oculaire sur la caméra, est susceptible d'être modifiée, en changeant la position du biprisme.

Le faisceau de photon unique peut être considéré comme un mode gaussien TEM_{00}, résultat du filtrage spatial associé au dispositif de microscopie confocale. Afin de caractériser ce mode gaussien, nous avons enregistré une image du faisceau sans le biprisme de Fresnel, en utilisant l'oculaire et la caméra CCD. En sommant l'ensemble du signal sur chaque colonne de la caméra CCD, nous obtenons le profil spatial du faisceau de photon unique, qui est convenablement ajusté par une fonction gaussienne de demi-largeur à mi-hauteur $w = 4.88$ mm (figure 1.10). En utilisant

[20] En pratique, ce régime de fonctionnement correspond à un seuil de détection fixé à 605 photoélectrons par pixel et à un gain fixé à la valeur 130.

[21] Ce film est disponible à l'adresse http ://www.physique.ens-cachan.fr/franges_photon/index.html. La construction des franges d'interférence est visualisée à une vitesse correspondant à 30 images par seconde, soit une accélération par un facteur $\times 30$ par rapport à la réalité.

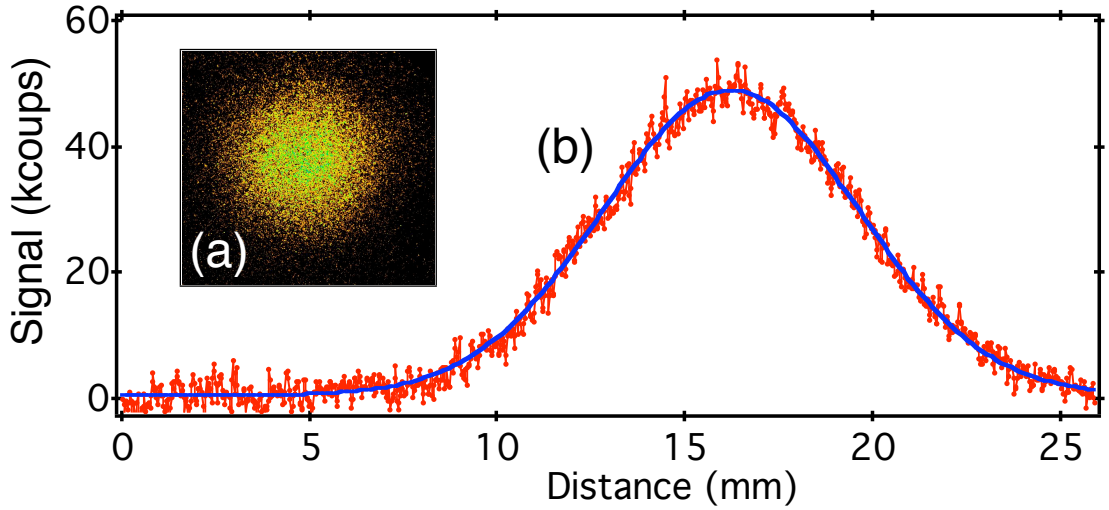


FIG. 1.10 – *Caractérisation du faisceau incident de photons uniques. (a)-Image obtenue en retirant le biprisme, enregistrée pour un temps de pause de* 200 *s, sans seuil de détection et en corrigeant les données du fond. (b)-En sommant le signal enregistré sur chaque colonne de la caméra CCD, le profil du faisceau de photons uniques est ajusté par une fonction gaussienne de demi-largeur à mi-hauteur* $w = 4.88$ *mm. Ce résultat est la conséquence du filtrage spatial introduit par le dispositif de microscopie confocale, conduisant à un faisceau spatialement cohérent très proche du mode gaussien fondamental* TEM_{00} *de propagation dans l'espace libre.*

le facteur de grandissement évalué précédemment, nous avons ainsi considéré pour la simulation numérique de l'expérience un faisceau gaussien, de demi-largeur à mi-hauteur $w_{\mathrm{th}} = 0.75$ mm, en incidence normale sur le biprisme de Fresnel.

Nous avons également tenu compte des effets de cohérence temporelle résultant de l'importante largeur spectrale de la photoluminescence des centres colorés NV (cf. Annexe A, figure A.7). Pour ce faire, le spectre d'émission est découpé en « tranches » de 10 nm et les figures d'interférence calculées pour chacune des tranches sont sommées, après pondération par leur poids respectif dans le spectre de photoluminescence.

Enfin, une normalisation des données expérimentales et du résultat de la simulation est réalisée, en les divisant par l'aire totale de la figure d'interférence obtenue. Notons que le seul paramètre restant à ajuster dans la simulation numérique est la distance z entre le biprisme et le plan conjugué par l'oculaire sur la caméra CCD, que nous n'avons pas mesuré précisément lors de l'expérience. La qualité de l'ajustement de la simulation numérique avec les données expérimentales est illustrée par la figure 1.11.

Nous avons également enregistré la figure d'interférence en régime de photon unique pour différentes valeurs de la distance z entre le biprisme et le plan conjugué par l'oculaire sur la caméra (cf. figure 1.8). Les figures d'interférence obtenues présentent une distribution relativement exotique, qui résulte du recouvrement de deux « demi-gaussienne » après la séparation en deux du faisceau incident par le biprisme de Fresnel (figure 1.12). Ces figures d'interférence sont à nouveau bien ajustées par la simulation numérique. Ceci est une illustration de la propriété établie précédemment au § 1.2.3 qui stipule que l'ensemble des phénomènes optiques du premier ordre tels la diffraction ou les interférences peuvent être entièrement décrits à l'aide du formalisme de l'optique classique, que ce soit pour des champs cohérents quasi-classiques ou pour des champs

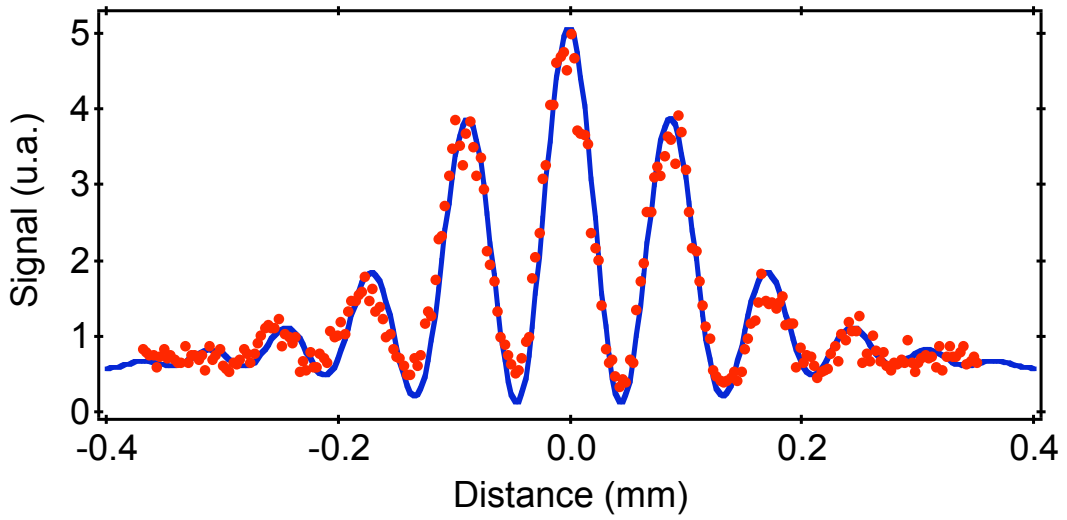


FIG. 1.11 – *Profil spatial transverse de la figure d'interférence décrite sur la figure 1.9-(d), obtenu en sommant l'ensemble des événements de détection sur chacune des colonnes de la barette CCD de la caméra. Ce profil est corrigé du grandissement introduit par l'oculaire puis normalisé en divisant les données obtenues par l'aire totale de la figure d'interférence. Un contraste de 85% est obtenu pour la frange centrale. La courbe bleue donne le résultat de la simulation numérique de l'expérience, à l'aide d'une théorie classique de propagation du champ dans le régime de diffraction de Fresnel et en tenant compte des effets de cohérence temporelle qui résultent de la largeur spectrale de la photoluminescence des centres colorés NV.*

non-classiques comme les impulsions à un photon.

1.5 Conclusion

Nous venons de réaliser au moyen du biprisme de Fresnel deux expériences dont les interprétations utilisant une représentation classique d'onde ou de corpuscule sont contradictoires.

La première expérience met en évidence une anticorrélation entre les détections sur les deux voies de sortie du biprisme de Fresnel. Ce résultat ne peut s'interpréter intuitivement qu'en considérant l'image d'une particule indivisible, choisissant un des deux chemins de l'interféromètre, mais jamais les deux à la fois. Dans la deuxième expérience, la figure d'interférence enregistrée ne peut se comprendre qu'en considérant une onde, se divisant pour moitié sur le biprisme de Fresnel, se propageant suivant les deux chemins de l'interféromètre, pour finalement se recombiner dans le plan d'observation où la caméra CCD est positionnée. La différence de chemin optique entre les deux chemins conduit alors au phénomène d'interférence. Ainsi, la lumière révèle des comportements classiques incompatibles suivant la nature de l'expérience réalisée.

Dès lors que l'on considère le formalisme de la physique quantique, ces contradictions sont levées pour autant que l'on accepte de renoncer à toute image classique de l'état de lumière, en terme d'onde ou de particule. Il s'agit là de l'essence du concept du dualité onde-corpuscule, qui conduit à considérer la lumière comme une onde et une particule simultanément.

Remarquons que le dispositif expérimental utilisé pour mesurer le paramètre de corrélation permet également de déterminer parfaitement le chemin suivi par la particule, chacun des détecteurs étant strictement associé à un chemin donné de l'interféromètre (cf. figure 1.7). La deuxième

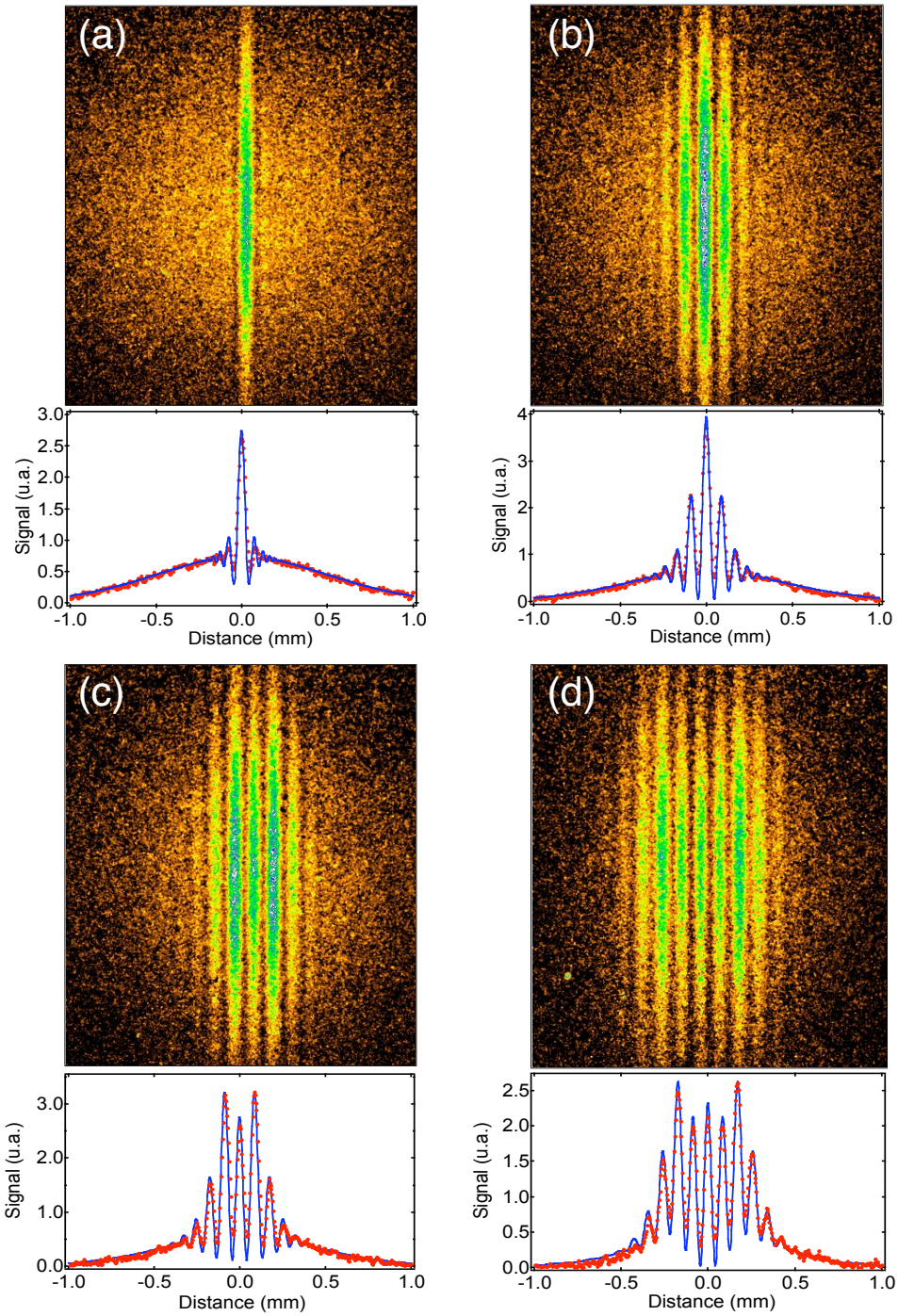


FIG. 1.12 – *Figures d'interférence obtenues en variant la distance z entre le biprisme et le plan conjugué par l'oculaire sur la caméra CCD. Ces images sont enregistrées en utilisant la caméra dans un régime d'acquisition en temps réel et en corrigeant du fond. La durée d'acquisition est égale à* 200 *s pour chaque image. Les figures (a), (b), (c) et (d) correspondent respectivement à des distances z égales à 11, 37, 57 et 75 mm. Le profil spatial transverse de chaque image est obtenu en sommant les signaux mesurés sur chaque colonne de la caméra et en corrigeant du grandissement introduit par l'oculaire. Après normalisation, ces profils sont correctement reproduits par la simulation numérique de l'expérience.*

expérience (cf. figure 1.8) permet quant à elle de visualiser des franges d'interférence, mais ne permet pas de connaître le chemin suivi par les particules. Ces deux expériences étant mutuellement exclusives, nous avons là une illustration de la complémentarité entre interférence, associée à une propriété ondulatoire, et chemin suivi, associé à une propriété corpusculaire. Le chapitre suivant est dédié à l'étude de cette complémentarité.

Chapitre 2

Complémentarité entre chemin suivi et interférence pour un photon unique

Sommaire

2.1 Introduction **47**
2.2 Interférence de particules uniques et chemin suivi **48**
2.2.1 Expérience de pensée des trous d'Young mobiles 48
2.2.2 Complémentarité, relations d'incertitude et intrication 50
2.2.3 Inégalité de complémentarité 52
2.3 Chemin suivi pour une expérience d'interférence à un photon **53**
2.3.1 Information chemin-suivi *a priori* 53
2.3.2 Information chemin suivi *a posteriori* 54
2.3.3 Discussion 56
2.4 Expérience d'Afshar : description et réfutation **56**
2.4.1 Description de l'expérience avec deux trous d'Young 56
2.4.2 Analyse de l'expérience d'AFSHAR réalisée avec un biprisme de Fresnel . . 58
2.4.3 Mise en place et tests du dispositif expérimental 60
2.4.4 Expérience en régime de photon unique 62
2.5 Conclusion **64**

2.1 Introduction

Afin de répondre aux difficultés posées par l'interprétation du formalisme quantique, en particulier sa relation avec la réalité physique, Niels BOHR introduisit le principe de complémentarité, lors d'une conférence tenue à Côme en 1927 pour célébrer le centenaire de la mort de Alessandro VOLTA [80]. Il n'existe pas d'énoncé précis du principe de complémentarité, moins encore de formulation mathématique. En reprenant la formulation de BOHR, son énoncé peut-être le suivant : « [the quantum of action] forces us to adopt a new mode of description designated as *complementarity* in the sense that any given application of classical concepts precludes the simultaneous use of other classical concepts which in a different connection are equally necessary for the elucidation of the phenomena » [81], que nous pouvons traduire selon :

Toute application de concepts classiques dans l'interprétation d'une expérience exclut l'emploi simultané d'autres concepts classiques tout aussi nécessaires à l'interprétation d'autres aspects du phénomène.

Ce principe, dont nous verrons qu'il englobe sous une certaine forme les relations d'incertitude de Heisenberg, assure la cohérence de l'interprétation standard de la mécanique quantique, connue sous le nom d'« interprétation de Copenhague ». Il apporte en particulier une solution conceptuelle aux problèmes soulevés par la dualité onde-particule, en stipulant que « l'on ne peut attribuer ni aux phénomènes, ni aux moyens d'observation une réalité physique indépendante dans le sens ordinaire (classique) » [82]. L'objet quantique étudié et l'appareil de mesure doivent être considérés comme une seule et même entité.

Dans une expérience d'interférence à deux voies pour une particule quantique unique, la complémentarité se situe entre l'observation des interférences, associée à un comportement de type ondulatoire, et la connaissance du chemin suivi par la particule, associée à un comportement de type corpusculaire. Ces propriétés sont dites complémentaires, en ce sens qu'elles correspondent à des concepts classiques mutuellement exclusifs, qui sont cependant tous les deux nécessaires pour expliquer l'ensemble du phénomène. Le principe de complémentarité interdit la connaissance simultanée du chemin suivi par la particule dans l'interféromètre et l'observation d'un phénomène d'interférence.

Dès son introduction, le principe de complémentarité fût le sujet d'un âpre débat entre Niels BOHR et Albert EINSTEIN, qui débuta lors de la tenue du cinquième congrès Solvay à Bruxelles en 1927 [82], quelques semaines après la conférence de Côme. Attaché à l'existence d'une réalité physique indépendante de tout acte de mesure, EINSTEIN imagina des expériences de pensée qui permettraient d'invalider le principe de complémentarité. Les schémas expérimentaux proposés par EINSTEIN, connus sous le nom de « gedanken experiments », ont permis d'améliorer et de clarifier notre compréhension du formalisme quantique, sans jamais cependant parvenir à mettre en défaut l'« interprétation de Copenhague ».

Dans ce chapitre, nous commencerons par rappeler une expérience de pensée proposée par EINSTEIN au congrès Solvay de 1927. L'analyse de cette expérience nous permettra alors de discuter du lien entre complémentarité et relations d'incertitude de Heisenberg. Afin de quantifier la complémentarité entre propriétés ondulatoires et corpusculaires lors d'une expérience d'interférence à deux voies, nous donnerons par la suite une inégalité liant les grandeurs associées, c'est-à-dire le contraste C des interférences et le paramètre chemin-suivi I qui quantifie l'information disponible sur le chemin suivi par la particule. Nous discuterons enfin des différentes manières d'évaluer le paramètre I pour un photon unique dans un interféromètre à deux voies.

Pour terminer ce chapitre, nous décrirons une expérience dans le prolongement de l'observation d'interférence à un photon avec un biprisme de Fresnel. Cette expérience, que nous avons réalisé dans le but de clarifier une controverse récente, constitue une illustration pédagogique du principe de complémentarité.

2.2 Interférence de particules uniques et chemin suivi

2.2.1 Expérience de pensée des trous d'Young mobiles

Afin de mettre en défaut le principe de complémentarité, EINSTEIN proposa l'expérience décrite schématiquement sur la figure 2.1. Des particules individuelles sont envoyées une par une au travers d'un dispositif interférométrique constitué de deux trous d'Young S_1 et S_2. Ces trous sont percés dans une plaque suffisamment légère et isolée de l'environnement pour qu'il soit possible de mesurer le transfert d'impulsion entre une particule et la plaque, lorsque cette particule est déviée de l'un des deux trous vers un point P de l'écran où sont enregistrées les franges d'interférence (figure 2.1). Selon EINSTEIN, il serait possible à l'aide de ce dispositif de connaître le tra-

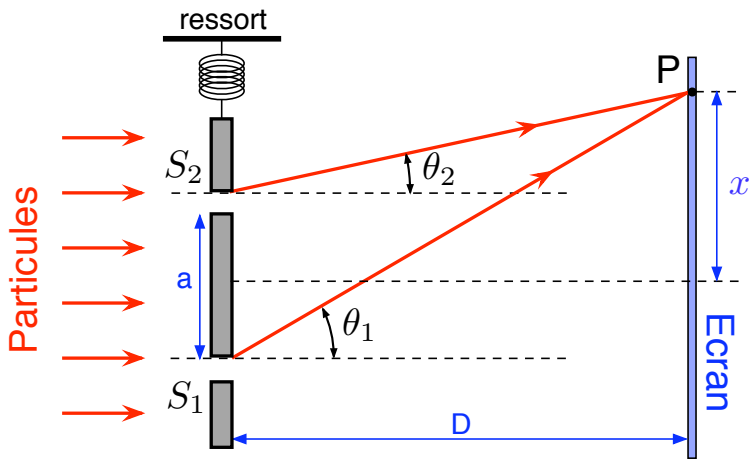


FIG. 2.1 – *Expérience de pensée des trous d'Young mobiles, proposée par* EINSTEIN *pour mettre en défaut la complémentarité entre la connaissance du chemin suivi par la particule et l'observation du phénomène d'interférence entre les ondes issus des trous S_1 et S_2. Ces trous sont libres de bouger transversalement et sont reliés à un ressort qui permet de mesurer l'impulsion de recul transférée par une particule les traversant. La mesure de cette impulsion de recul permettrait alors de savoir de quel trou provient la particule, sans pour autant affecter les franges d'interférence.*

jet suivi par la particule en mesurant l'impulsion de recul de la plaque et, simultanément, d'enregistrer la figure d'interférence. Cette contradiction manifeste avec le principe de complémentarité fût discutée par N. BOHR lors du congrès Solvay de 1927.

Considérons qu'une particule traverse le trou S_1 et soit déviée d'un angle θ_1 vers le point P de l'écran (figure 2.1). En se plaçant dans l'approximation des petits angles, l'impulsion P_1 cédée à la plaque par cette particule d'impulsion initiale P_{in} est égale à :

$$P_1 = P_{\text{in}} \times \theta_1 \tag{2.1}$$

De façon similaire, si la particule traverse le trou S_2 et est déviée d'un angle θ_2 vers le même point P de l'écran, l'impulsion cédée à la plaque s'écrit $P_2 = P_{\text{in}} \times \theta_2$. En utilisant un appareil de mesure ayant une résolution ΔP telle que $\Delta P < |P_2 - P_1|$, il est ainsi possible de savoir de quel trou provient la particule. Cependant, en vertu de la relation d'incertitude position–impulsion d'Heisenberg, la position de la plaque, et donc celle des trous, est alors connue avec une incertitude Δx_{trou} telle que :

$$\Delta x_{\text{trou}} > \frac{h}{P_{\text{in}} \times (\theta_1 - \theta_2)} \tag{2.2}$$

En utilisant la relation de de Broglie reliant l'impulsion de la particule P_{in} à sa longueur d'onde λ_{DB}, il vient finalement :

$$\Delta x_{\text{trou}} > \frac{D\lambda_{\text{DB}}}{a} \tag{2.3}$$

où a est la distance entre les deux trous et D celle les séparant de l'écran.

La position des trous ne peut donc être connue avec une précision inférieure à $D\lambda_{\text{DB}}/a$, qui correspond exactement à l'interfrange de la figure d'interférence attendue pour le dispositif interférométrique. La connaissance du chemin suivi conduit alors à la destruction de la figure d'interférence, illustrant ainsi leur complémentarité.

Une autre expérience de pensée célèbre est décrite par R. P. FEYNMAN [4] dans son cours de physique. Cette expérience, similaire à celle décrite sur la figure 2.1, utilise des électrons et une source lumineuse émettant à la longueur d'onde λ positionnée juste derrière les trous d'Young. Lors de la traversée des trous, les électrons diffusent de la lumière dans toutes les directions à la longueur d'onde λ. Si la distance a entre les deux trous est supérieure à λ, il devient alors possible au moyen d'un objectif de microscope de déterminer par quel trou est passée la particule. L'analyse de cette expérience en utilisant la relation d'incertitude position–impulsion permet à nouveau de montrer que dans ce cas les interférences sont effacées [83].

Dans les deux cas que nous venons de discuter, c'est l'interaction entre le système qui interfère et un appareil de mesure qui obéit aux lois de la mécanique quantique qui permet d'assurer le principe de complémentarité.

2.2.2 Complémentarité, relations d'incertitude et intrication

La discussion précédente permet d'illustrer de manière élégante le principe de complémentarité en utilisant la relation d'incertitude d'Heisenberg liant les mesures des observables conjuguées position et impulsion, appelées également variables complémentaires. Cependant, pour certaines situations expérimentales, cette relation d'incertitude ne suffit pas pour expliquer la disparition des interférences.

Pour illustrer ce point, M. O. SCULLY, B. G. ENGLERT et H. WALTHER ont proposé en 1991 l'expérience décrite sur la figure 2.2 [84]. Des atomes portés dans un état excité $|e\rangle$ au moyen d'un faisceau laser, sont envoyés dans un dispositif de trous d'Young, dans lequel deux cavités micro-onde de grande finesse et accordées sur une transition atomique sont positionnées devant chacun des deux trous. Lorsqu'un atome traverse l'une de ces cavités, il revient dans son état fondamental $|f\rangle$ en émettant un photon qui reste piégé dans la cavité. La présence du photon dans l'une ou l'autre des cavités permet alors d'étiqueter le chemin suivi par l'atome, conduisant selon le principe de complémentarité à un effacement de la figure d'interférence.

Ce résultat ne peut être expliqué à l'aide de la relation d'incertitude position–impulsion, puisque l'atome ne subit pratiquement aucun transfert d'impulsion lors de son interaction avec la cavité [84]. Pour comprendre pourquoi les interférences disparaissent, il faut tenir compte de l'intrication entre l'atome et le photon émis dans l'une ou l'autre des cavités, qui constitue un étiquetage quantique du chemin suivi par les atomes [1].

Après la traversée du dispositif expérimental, la fonction d'onde $\Psi(\mathbf{r})$ décrivant le système constitué de l'onde de matière atomique et du champ électromagnétique dans les cavités s'écrit :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\Psi_1(\mathbf{r})|1_1 0_2\rangle + \Psi_2(\mathbf{r})|0_1 1_2\rangle\right] |f\rangle \tag{2.4}$$

où $|1_1 0_2\rangle$ (resp. $|0_1 1_2\rangle$) décrit l'état pour lequel la cavité 1 contient un photon (resp. aucun photon) et la cavité 2 aucun photon (resp. un photon). Les grandeurs $\Psi_1(\mathbf{r})$ et $\Psi_2(\mathbf{r})$ correspondent pour leur part aux fonctions d'onde atomiques associées à chacun des deux chemins de l'interféromètre (figure 2.2). La densité de probabilité $P(\mathbf{R})$ de trouver un atome à la position $\mathbf{r} = \mathbf{R}$ de l'écran s'écrit alors :

$$P(\mathbf{R}) = \frac{1}{2} \left[|\Psi_1|^2 + |\Psi_2|^2 + \Psi_1^* \Psi_2 \langle 1_1 0_2|0_1 1_2\rangle + \Psi_1 \Psi_2^* \langle 0_1 1_2|1_1 0_2\rangle\right] \langle f|f\rangle \tag{2.5}$$

[1] Notons que l'expérience de pensée de EINSTEIN décrite dans la section précédente peut également être interprétée en considérant une intrication entre la particule et la plaque portant les trous d'Young [85].

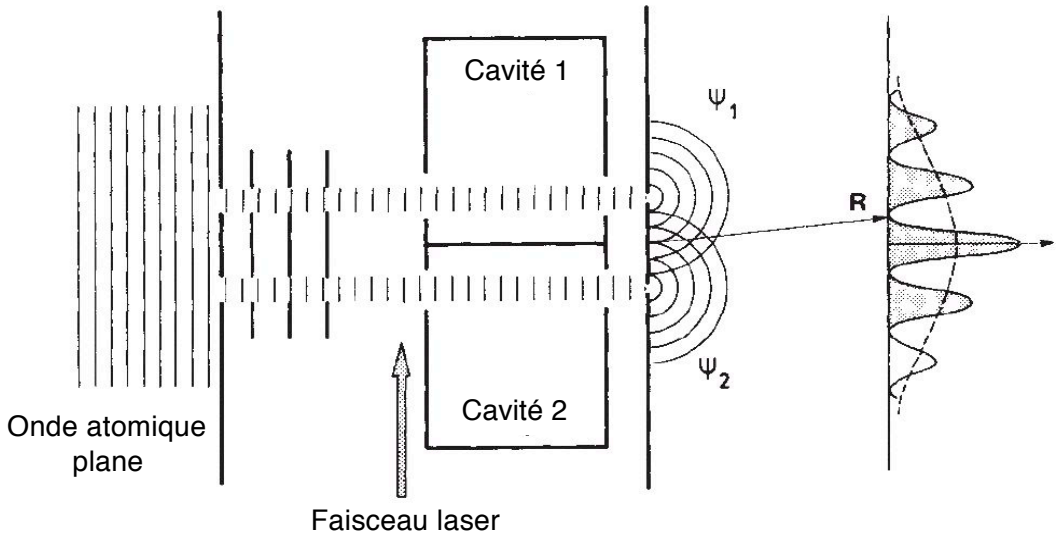


FIG. 2.2 – *Expérience de pensée proposée par* M. O. SCULLY, B. G. ENGLERT *et* H. WALTHER, *permettant d'étiqueter le chemin suivi par un atome dans un dispositif de trous d'Young. Cette figure est tirée de la référence [84].*

Les états $|1_1 0_2\rangle$ et $|0_1 1_2\rangle$ étant orthogonaux, cette relation s'écrit finalement :

$$P(\mathbf{R}) = \frac{1}{2}\left[|\Psi_1|^2 + |\Psi_2|^2\right] \ . \tag{2.6}$$

Ainsi, lorsque un étiquetage du chemin suivi est réalisé, aucun phénomène d'interférence ne peut être mis en évidence dans la densité de probabilité $P(\mathbf{R})$. Ce résultat est bien en accord avec le principe de complémentarité.

Notons que même si le photon présent dans une des deux cavités n'est pas détecté, le fait que l'information sur le chemin suivi soit disponible suffit pour effacer les franges d'interférence. Il est également intéressant de remarquer que la qualité de l'étiquetage du chemin dépend de l'état initial du champ dans les cavités. En particulier, le cas d'une cavité initialement vide que nous venons de discuter conduit à un étiquetage parfait du chemin suivi lorsqu'un photon est émis dans l'une ou l'autre des cavités, associé à une disparition totale du phénomène d'interférence. Le système d'étude est alors dans l'état maximalement intriqué décrit par l'équation (2.4). La situation est différente si les cavités contiennent initialement un état cohérent du champ électromagnétique caractérisé par un nombre moyen de photons N, connu avec une incertitude égale à $\sqrt{N}$. Lorsqu'un photon est émis dans la cavité par un atome la traversant, le nombre de photons passe de $N \pm \sqrt{N}$ à $(N+1) \pm \sqrt{N}$. Dans le cas limite où $\sqrt{N} \gg 1$, l'étiquetage est totalement détérioré, puisque l'addition d'un photon dans la cavité ne modifie pas de manière significative l'état du champ électromagnétique. Dans une telle situation, il peut être démontré que la fonction d'onde décrivant l'atome et le champ devient factorisable et qu'il n'existe plus d'intrication entre l'atome et le champ des cavités utilisé comme marqueur du chemin suivi [85]. Il est alors possible de visualiser les franges d'interférence avec un contraste parfait. Ainsi, lorsque N augmente, l'étiquetage du chemin suivi se détériore peu à peu et dans le même temps, le contraste des franges d'interférence augmente. Nous avons ainsi un exemple de situation où la connaissance du chemin

suivi est partielle et l'interférence imparfaitement contrastée. Nous donnerons dans la section suivante une relation quantitative liant le contraste et l'information sur le chemin suivi dans une telle situation.

Plusieurs réalisations expérimentales, similaires dans leur principe à celle décrite sur la figure 2.2, ont confirmé cette analyse en intriquant les particules avec un marqueur du chemin suivi pouvant être externe à l'interféromètre [86, 87, 88] ou bien constitué par l'interféromètre lui-même [89]. Un interféromètre à la frontière classique/quantique a également été réalisé en variant le nombre moyen N de photon d'un état cohérent initialement introduit dans la cavité du détecteur chemin suivi et en observant alors une augmentation du contraste des interférences lorsque N croît [85, 89].

Lorsque l'étiquetage du chemin suivi est optimal (cavités initialement vides), il est également possible par une mesure adéquate du photon stocké dans la cavité d'effacer l'étiquetage du chemin suivi et de retrouver ainsi les franges d'interférence [84, 90]. Cette restauration des effets d'interférence peut être obtenue alors que les particules ont déjà traversé le dispositif interférométrique et même après qu'elles aient été détectées [91]. Il s'agit là du principe d'une « gomme quantique ». Les réalisations expérimentales de gommes quantiques s'appuient le plus souvent sur des mesures de corrélation entre deux particules, la première étant utilisée pour étiqueter le chemin suivi et la deuxième pour restaurer l'ambiguïté entre les deux chemins d'interférence [92, 93, 94]. On parle alors d'une gomme quantique conditionnelle qui est très proche dans sa problématique du paradoxe soulevé par EINSTEIN, PODOLSKY et ROSEN dans leur célèbre article EPR [95]. Une autre solution consiste à utiliser deux détecteurs de chemin suivi dont les effets sur le marquage du chemin suivi s'annulent lorsqu'ils sont positionnés l'un à la suite de l'autre. Il s'agit dans ce cas d'une gomme quantique inconditionnelle [89].

Notons que ces expériences ont alimenté un débat sur la nature des phénomènes physiques qui sous-tendent le principe de complémentarité [96, 97, 98]. Certains pensent qu'il est une conséquence directe du principe d'incertitude entre position et impulsion. Afin d'interpréter les expériences que nous venons de présenter, il est alors nécessaire d'introduire des transferts quantiques d'impulsion occasionnés par l'utilisation d'un détecteur du chemin suivi [2] [100, 101, 102]. Dans l'esprit des expériences que nous avons briévement décrites dans cette section, d'autres pensent que la complémentarité a une portée plus générale que le principe d'incertitude, puisqu'il semble englober le phénomène d'intrication [84, 103]. Nous ne détaillerons pas dans ce mémoire les développements de ce débat, en renvoyant le lecteur désireux de plus amples explications à la référence [104].

2.2.3 Inégalité de complémentarité

Quelque soit le point de vue adopté, il est possible de démontrer que la complémentarité entre la mesure du chemin suivi et l'enregistrement des interférences est quantifié par l'inégalité :

$$C^2 + I^2 \leq 1 \tag{2.7}$$

où C est le contraste des interférences et I le paramètre chemin-suivi, qui mesure l'information disponible sur le chemin suivi par la particule dans l'interféromètre [3]. La démonstration de cette inégalité, publiée indépendamment par JAEGER, SHIMONY et VAIDMAN [105] et par ENGLERT [106], en développant le travail pionnier de WOOTTERS et ZUREK [107], ne nécessite pas l'utilisation des relations d'incertitude d'Heisenberg. Il a également été démontré que l'inégalité

[2] Ces modèles s'inspirent de l'effet BOHM-AHARONOV qui permet de modifier une figure d'interférence sans qu'il y ait eu une quelconque interaction classique avec les particules utilisées [99].

[3] Nous définirons plus précisément le paramètre I dans le paragraphe suivant.

de complémentarité (2.7) peut être obtenue en utilisant ces relations d'incertitude, en choisissant convenablement les observables conjuguées associées à la mesure du contraste des interférences et à l'évaluation du chemin suivi [108].

L'inégalité (2.7) illustre bien que la mesure d'une interférence parfaitement contrastée ($C = 1$) est associée à une absence totale d'information sur le chemin suivi ($I = 0$). Inversement, lorsque le chemin suivi est intégralement disponible ($I = 1$) aucun effet d'interférence ne peut être mis en évidence ($C = 0$). Entre ces expériences « tout ou rien », il est intéressant d'étudier l'inégalité de complémentarité dans des situations intermédiaires correspondant à des informations partielles sur le chemin suivi ($0 < I < 1$) et sur la grandeur ondulatoire ($0 < C < 1$). Des expériences testant la validité de l'inégalité de complémentarité dans de telles situations ont été réalisées avec des atomes [109], des spins nucléaires [110] et des impulsions laser atténuées [111, 112]. Cependant, dans ce dernier cas la notion de chemin suivi perd son sens puisque nous avons montré que l'utilisation d'états cohérents ne permet en aucune manière de mettre en évidence la nature corpusculaire de la lumière.

2.3 Chemin suivi pour une expérience d'interférence à un photon

Dans la suite de ce chapitre, nous nous limitons à l'étude de la complémentarité entre chemin suivi et contraste dans le cas d'interférences à deux voies pour un photon unique, en décrivant dans un premier temps les divers moyens envisageables pour rendre disponible de l'information sur le chemin suivi.

Les schémas utilisant un étiquetage quantique, tels ceux que nous avons détaillés précédemment, sont envisageables en utilisant des paires de photons intriqués pouvant être produites par conversion paramétrique [93, 94] ou bien en utilisant la coalescence de deux photons indiscernables sur une lame séparatrice [113, 114]. Dans ce cas, c'est l'un des photons de la paire qui sert de marqueur quantique. Une autre possibilité consisterait à réaliser une mesure quantique non-destructive du photon unique dans un bras de l'interféromètre [115, 116].

Nous excluons de notre discussion ces schémas puisque nous ne bénéficions pas des outils expérimentaux adaptés.

2.3.1 Information chemin-suivi *a priori*

La première méthode permettant de rendre disponible de l'information sur le chemin suivi consiste à déséquilibrer l'interféromètre, en faisant en sorte que les flux de particules suivant les deux chemins soient différents. Une telle situation conduit à une information chemin suivi *a priori* [106]. Elle est par exemple réalisée à l'aide d'une lame séparatrice d'entrée non équilibrée dans un interféromètre de Mach-Zehnder, tel celui décrit par la figure 2.3-(a).

Pour ce dispositif expérimental, la mesure du contraste des interférences est effectuée à partir du maximum $N_{\max}$ et du minimum $N_{\min}$ de détections sur chacune des voies de sortie de l'interféromètre, lorsque la différence de chemin optique entre les deux chemins varie. Le contraste C des interférences est alors défini par :

$$C = \frac{N_{\max} - N_{\min}}{N_{\max} + N_{\min}} \tag{2.8}$$

En notant R le coefficient de réflexion en intensité de la lame séparatrice d'entrée de l'interféromètre, pouvant varier entre 0 et $1/2$, le calcul de l'intensité en sortie de l'interféromètre

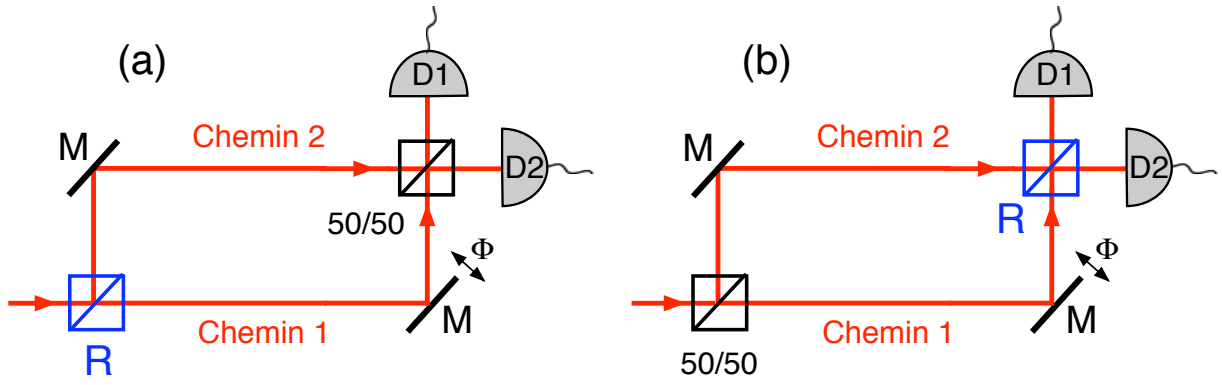


FIG. 2.3 – *(a)-Information chemin-suivi a priori dans un interféromètre de type Mach-Zehnder. Cette information est rendue disponible en déséquilibrant les deux chemins de l'interféromètre à l'aide d'une lame séparatrice d'entrée déséquilibrée, de facteur de réflexion en intensité $R \neq 1/2$. (b)-Information chemin-suivi a posteriori, obtenue en utilisant un interféromètre équilibré en entrée et une lame séparatrice de sortie déséquilibrée de facteur de réflexion en intensité $R \neq 1/2$. Lorsque $R = 0$, l'information chemin-suivi est totale, chaque détecteur D1 et D2 étant alors strictement associé à un chemin donné dans l'interféromètre. Lorsque $R = 1/2$, l'interférence est parfaitement contrastée et aucune information sur le chemin suivi n'est disponible.*

effectuée pour une onde classique conduit à la relation :

$$C = 2\sqrt{R(1-R)} \tag{2.9}$$

Nous retrouvons sans surprise que l'interférence est parfaitement contrastée lorsque $R = 1/2$ (interféromètre équilibré) et qu'elle se détériore progressivement quand R diminue, pour finalement s'annuler complètement lorsque $R = 0$.

L'information disponible sur le chemin suivi est estimée par un raisonnement fondé sur le comportement d'une particule classique sur la lame séparatrice d'entrée. Le paramètre chemin suivi I est alors défini comme la valeur absolue de la différence entre la probabilité $P(\text{chemin1})$ pour que la particule suive le chemin 1 de l'interféromètre et la probabilité $P(\text{chemin2})$ pour qu'elle suive l'autre chemin. Il vient ainsi :

$$I = |P(\text{chemin2}) - \text{P}(\text{chemin1})| = 1 - 2\text{R} \tag{2.10}$$

En combinant les équations (2.9) et (2.10), nous obtenons :

$$C^2 + I^2 = 1 \tag{2.11}$$

2.3.2 Information chemin suivi *a posteriori*

L'autre méthode permettant de rendre disponible de l'information sur le chemin suivi consiste à utiliser un interféromètre équilibré en entrée et à distinguer *a posteriori* les deux chemins de l'interféromètre, en utilisant par exemple un interféromètre de Mach-Zehnder avec une lame de sortie déséquilibrée (figure 2.3-(b)). Chacun des deux détecteurs placés en sortie est alors partiellement associé à un des deux chemins de l'interféromètre. Dans le cas extrême correspondant à $R = 0$, chaque détecteur est relié de façon non ambiguë à un chemin donné de l'interféromètre,

conduisant à une connaissance parfaite du chemin suivi.

L'information disponible sur le chemin suivi peut être à nouveau évaluée en utilisant un raisonnement fondé sur le comportement d'une particule classique sur la lame séparatrice de sortie. Nous introduisons pour cela les quantités I_1 et I_2, respectivement associées à l'information disponible sur le chemin 1 et sur le chemin 2 dans l'interféromètre.

L'information I_1 sur le trajet éventuel d'une particule selon le chemin 1 lors d'une détection sur le détecteur D1 ou le détecteur D2 s'écrit :

$$I_1 = |P(\mathrm{D1}, \mathrm{chemin1}) - \mathrm{P}(\mathrm{D2}, \mathrm{chemin1})| \tag{2.12}$$

où $P(\mathrm{D1}, \mathrm{chemin1})$ (resp. $P(\mathrm{D2}, \mathrm{chemin1})$) est la probabilité que la particule emprunte le chemin 1 de l'interféromètre et qu'elle soit détectée sur le détecteur D1 (resp. D2). Comme l'interféromètre est équilibré en entrée, les probabilités de suivre le chemin 1 ou le chemin 2 sont égales à $1/2$. Le paramètre I_1 peut donc finalement s'écrire :

$$I_1 = \frac{1}{2} \times |P(\mathrm{D1}|\mathrm{chemin1}) - \mathrm{P}(\mathrm{D2}|\mathrm{chemin1})| \tag{2.13}$$

où $P(\mathrm{D1}|\mathrm{chemin1})$ (resp. $P(\mathrm{D2}|\mathrm{chemin1})$ est la probabilité conditionnelle de détecter la particule sur le détecteur D1 (resp. D2) sachant qu'elle a suivi le chemin 1 de l'interféromètre, soit :

$$I_1 = \frac{1-2R}{2} \,. \tag{2.14}$$

En suivant une démarche similaire, l'information I_2 disponible sur le trajet éventuel d'une particule selon le chemin 2 lors d'une détection sur le détecteurs D1 ou sur le détecteur D2 s'écrit :

$$I_2 = \frac{1}{2} \times |P(\mathrm{D2}|\mathrm{chemin2}) - \mathrm{P}(\mathrm{D1}|\mathrm{chemin2})| = \frac{1-2\mathrm{R}}{2} \,. \tag{2.15}$$

L'information totale disponible sur le chemin suivi s'écrit alors [106] :

$$I = I_1 + I_2 = 1 - 2R \,. \tag{2.16}$$

Pour une valeur de R donnée et en considérant une onde classique, le contraste de l'interférence est toujours caractérisé par la relation (2.9). En combinant, les relations (2.9) et (2.16), nous obtenons à nouveau

$$C^2 + I^2 = 1 \,. \tag{2.17}$$

Pour valider cette relation dans une expérience, il est nécessaire d'évaluer les quantités I_1 et I_2 pour une valeur donnée du coefficient de réflexion R. Il suffit pour cela de bloquer un des deux bras de l'interféromètre et de mesurer les nombres N_1 et N_2 de détections sur les détecteurs D1 et D2, pour un temps d'intégration donné. En particulier, le bloquage du chemin 2 (resp. 1) permet d'évaluer la quantité I_1 (resp. I_2). En utilisant les relations (2.12) et (2.12), les quantités I_1 et I_2 sont reliées de façon statistique aux nombres de détections N_1 et N_2 sur les deux détecteurs selon :

$$I_1 = \frac{1}{2} \left| \frac{N_1 - N_2}{N_1 + N_2} \right| \Bigg]_{\text{chemin 2 bloqué}} \tag{2.18}$$

$$I_2 = \frac{1}{2} \left| \frac{N_1 - N_2}{N_1 + N_2} \right| \Bigg]_{\text{chemin 1 bloqué}} \tag{2.19}$$

Remarque

Dans l'esprit de la discussion que nous avons donnée au § 2.2.2, notons que l'étiquetage quantique du chemin suivi par la particule dans l'interféromètre peut être porté par la particule elle-même, en intriquant chaque chemin avec un de ses degrés de liberté internes. Dans le cadre d'expériences réalisées avec des atomes, ce degré de liberté est son état énergétique, différent selon les deux chemins de l'interféromètre. En utilisant un tel étiquetage du chemin suivi, aucun effet d'interférence ne peut être mis en évidence, les amplitudes de probabilités associées à deux états orthogonaux n'interférant pas [109].

Pour des expériences réalisées à l'aide de photons uniques, l'étiquetage peut par exemple être réalisé sur leur polarisation en considérant des polarisations linéaires orthogonales suivant les deux chemins de l'interféromètre. Une telle situation rentre dans le cadre de la discussion sur l'information chemin-suivi *a posteriori*.

2.3.3 Discussion

Dans les deux situations que nous venons de décrire, nous avons obtenu l'inégalité de complémentarité en utilisant un raisonnement purement classique [4]. Une telle démarche se justifie puisque l'évaluation du contraste des interférences et de l'information disponible sur le chemin suivi ne font intervenir que des événements de détection à une particule. Il s'agit donc de phénomènes du premier ordre au sens de la définition que nous avons donnée au § 1.2.3, lesquels sont parfaitement décrits par un formalisme semi-classique où le champ électromagnétique est décrit par une onde et où la quantification est introduite dans le processus de photodétection.

L'inégalité de complémentarité ne révèle une essence quantique que s'il est possible d'établir que ce sont bien des particules qui sont envoyées l'une après l'autre dans l'interféromètre. Seulement dans ce cas, la notion de chemin suivi possède effectivement un sens. Par conséquent, pour tester l'inégalité de complémentarité avec de la lumière, il est nécessaire d'utiliser des états à un photon, caractérisés par un paramètre de corrélation A inférieur à l'unité (cf. § 1.2.4).

A notre connaissance, l'inégalité de complémentarité dans les régimes intermédiaires ($C \neq 1$ et $I \neq 1$) n'avait jamais été testée avec des impulsions à un seul photon, seules des expériences utilisant des impulsions lasers atténuées ayant été réalisées [111, 112]. Nous décrirons dans le chapitre suivant un test expérimental de l'inégalité de complémentarité dans les régimes intermédiaires en utilisant des photons uniques et en se plaçant dans la configuration de choix retardé (cf. § 3.7).

Pour clore ce chapitre, nous discutons une controverse récente autour du principe de complémentarité.

2.4 Expérience d'Afshar : description et réfutation

2.4.1 Description de l'expérience avec deux trous d'Young

Dans des articles publiés récemment [117, 118], S. S. AFSHAR a affirmé avoir violé expérimentalement le principe de complémentarité onde-particule, à l'aide du dispositif expérimental décrit sur la figure 2.4.

[4] Nous avons plus précisément obtenu la limite supérieure de l'inégalité de complémentarité $C^2 + I^2 \leq 1$, qui correspond à une situation sans aucune imperfection expérimentale. Ce résultat traduit le fait que le maximum d'information est accessible et que le contraste des interférences n'est pas réduit par des effets de cohérence spatiale ou temporelle, ou encore par un recouvrement imparfait des fronts d'onde après propagation dans l'interféromètre.

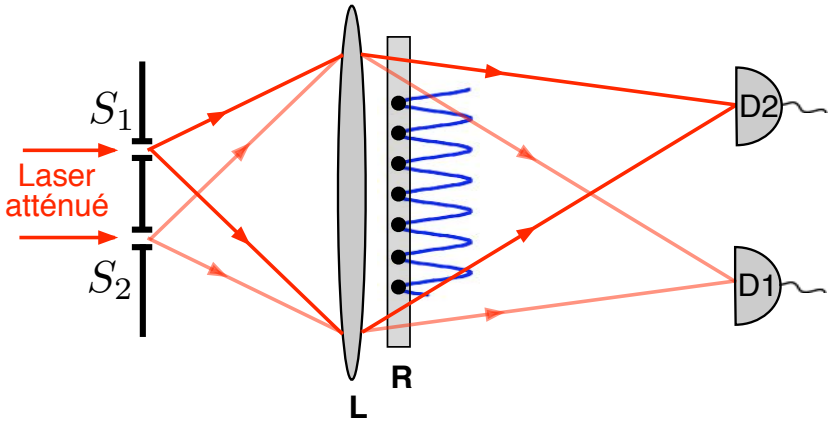


FIG. 2.4 – *Dispositif expérimental de l'expérience de S.S.* AFSHAR. *Deux trous d'Young S_1 et S_2 sont imagés à l'aide d'une lentille (L) sur deux détecteurs D1 et D2. Un réseau de traits opaques (R), dont la périodicité est égale à l'interfrange de la figure d'interférence attendue dans la zone de recouvrement des faisceaux diffractés par S_1 et S_2, est positionné de façon que les traits opaques coïncident avec les franges sombres de la figure d'interférence.*

Un interféromètre à division du front d'onde, constitué par deux trous d'Young, S_1 et S_2, est illuminé à l'aide d'un laser atténué. En utilisant une lentille, chaque trou est imagé sur deux détecteurs indépendants, à savoir S_1 sur D1 et S_2 sur D2. Chaque détecteur est alors strictement associé à un chemin donné de l'interféromètre, conduisant à une connaissance parfaite de l'information sur le chemin suivi par les particules dans l'interféromètre, soit $I = 1$.

Afin d'obtenir simultanément l'information ondulatoire, caractérisée par le contraste C des franges d'interférence, S. S. AFSHAR propose d'insérer un réseau périodique de traits opaques qui épouse fidèlement la figure d'interférence formée par le recouvrement des faisceaux diffractés par chacun des deux trous. Ce réseau est positionné de telle façon que les minima de la figure d'interférence coïncident exactement avec les traits opaques du réseau. Ainsi, aucune particule ne sera bloquée par le masque. Dans sa réalisation expérimentale, AFSHAR parvient effectivement à introduire le masque en ne modifiant que très faiblement les signaux délivrés par les détecteurs D1 et D2. Il en conclut que le masque révèle la figure d'interférence, chacun des détecteurs restant cependant toujours associé à un chemin donné de l'interéromètre. En d'autres termes, il annonce une violation du principe de complémentarité !

Dans son interprétation de l'expérience, AFSHAR considère que le positionnement des traits opaques du réseau sur les zones où sont effectivement attendues les franges sombres révèle l'existence du phénomène d'interférence, sans induire de perturbation du système de détection constitué par la lentille et les deux détecteurs D1 et D2. Cependant, un effet important et inévitable occasionné par l'utilisation de tout réseau réaliste est la diffraction de l'onde lumineuse incidente, ayant pour conséquence de rediriger une partie de la lumière issue du trou S_1 vers le détecteur D2, et réciproquement du trou S_2 vers le détecteur D1. Il n'est alors plus possible de considérer que chaque détecteur est strictement associé à un chemin donné de l'interféromètre. L'introduction du réseau conduit finalement à effacer partiellement l'information sur le chemin suivi.

De plus, l'obtention de l'information de nature ondulatoire nécessite une mesure quantitative du contraste de la figure d'interférence, que le simple positionnement du réseau, sans aucun acte supplémentaire de mesure, ne saurait réaliser. En reprenant les mots de J. A. WHEELER, « No elementary phenomenon is a phenomenon until it is a registered phenomenon » [14]. Nous allons

montrer qu'il est possible d'utiliser le réseau pour réaliser une mesure quantitative du contraste. Il faut pour cela le translater dans la direction transversale, le long des franges d'interférence.

Dans la section suivante, nous proposons une réalisation de l'expérience proposée par AFSHAR au moyen d'un interféromètre à division du front d'onde constitué d'un biprisme de Fresnel.

2.4.2 Analyse de l'expérience d'AFSHAR réalisée avec un biprisme de Fresnel

L'expérience d'Afshar est facilement réalisable à l'aide du biprisme de Fresnel que nous avons précédemment utilisé pour l'observation d'interférences à un photon (cf. § 1.4). Comme le décrit la figure 2.5, deux détecteurs D1 et D2 sont positionnés sur chaque voie de sortie de l'interféromètre, loin de la zone de recouvrement des fronts d'onde issus du biprisme. En l'absence de réseau, chaque détecteur est ainsi associé de façon non ambiguë à un chemin donné de l'interféromètre.

Nous introduisons maintenant un réseau en amplitude dans la zone de recouvrement, dont le pas est égal à l'interfrange i des franges d'interférence, donné dans l'approximation des petits angles par :

$$i = \frac{\lambda}{2(n-1)\alpha} \tag{2.20}$$

où α est l'angle au sommet du biprisme et n son indice de réfraction. La fonction de transmission du réseau $t(x)$ est une fonction porte de largeur a, répétée avec la périodicité i (figure 2.5-(b)).

Comme indiqué précédemment, ce réseau d'amplitude diffracte les ondes incidentes. Pour décrire cet effet, nous introduisons les notations suivantes, qui sont illustrées sur la figure 2.5 :

• α_0 est la déviation du front d'onde incident induite par le biprisme et donnée par $\alpha_0 = (n-1)\alpha$.

• $u_0 = \alpha_0/\lambda$ est la fréquence spatiale associée à l'onde déviée par le biprisme. La périodicité du réseau est ainsi égale à $i = 1/(2u_0)$.

• u est la fréquence spatiale associée à l'onde diffractée dans la direction θ, soit $u = \theta/\lambda$.

• $\mathcal{S}_1(u)$ (resp. $\mathcal{S}_2(u)$) désigne l'amplitude de l'onde diffractée dans la direction θ, correspondant à la diffraction du faisceau issu du chemin 1 (resp. du chemin 2) de l'interféromètre par le réseau.

Un calcul de diffraction de Fraunhofer permet de déterminer les amplitudes des ondes diffractées $\mathcal{S}_1(u)$ et $\mathcal{S}_2(u)$, soit :

$$\mathcal{S}_1(u) = \mathcal{S}_0 \operatorname{sinc}[\pi(u+u_0)a] \times \frac{\sin[N\pi(u+u_0)i]}{\sin[\pi(u+u_0)i]} \times \exp\left[i\pi(N-1)\left[\frac{u-u_0}{2u_0}\right]\right] \tag{2.21}$$

$$\mathcal{S}_2(u) = \mathcal{S}_0 \operatorname{sinc}[\pi(u-u_0)a] \times \frac{\sin[N\pi(u-u_0)i]}{\sin[\pi(u-u_0)i]} \times \exp\left[i\pi(N-1)\left[\frac{u+u_0}{2u_0}\right]\right] \tag{2.22}$$

où N est le nombre de motifs du réseau traversés par les faisceaux émergents du biprisme, d'égale amplitude $\mathcal{S}_0$.

Le détecteur D1 (resp. D2) positionné en $u = -u_0$ (resp. $u = u_0$) détecte par conséquent l'ordre de diffraction 0 (resp. 1) du faisceau issu du chemin 1, mais également l'ordre de diffraction -1 (resp. 0) du faisceau issu du chemin 2. L'information sur le chemin suivi est par conséquent

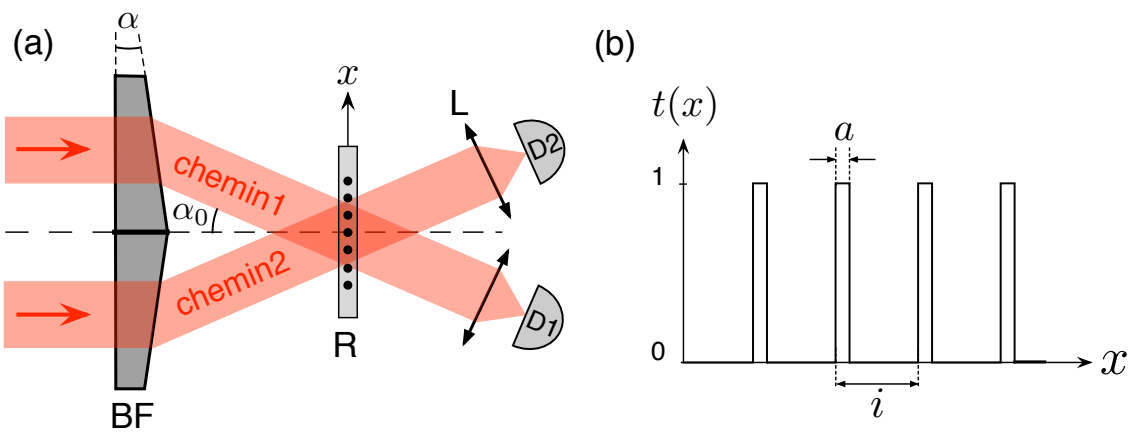


FIG. 2.5 – *Expérience d'Afshar avec un biprisme de Fresnel (BF). (a)-Deux détecteurs D1 et D2 sont positionnés loin de la zone de recouvrement des faisceaux issus du biprisme. La lumière issue de chacun des deux chemins de l'interféromètre est focalisée sur les détecteurs à l'aide de deux lentilles L. (b)- Un réseau (R) de transmission en amplitude $t(x)$ est par la suite positionné dans la zone de recouvrement des faisceaux.*

détériorée par le positionnement du réseau, chaque détecteur ne pouvant plus être strictement associé à un chemin de l'interféromètre.

Pour évaluer quantitativement le paramètre chemin-suivi I, nous suivons la procédure décrite au § 2.3.2. Les deux chemins de l'interféromètre étant initialement équilibrés, la distinction entre les chemins de l'interféromètre est réalisée *a posteriori*. Le paramètre I est ainsi évalué en bloquant consécutivement l'un puis l'autre chemin de l'interféromètre et en mesurant les quantités I_1 et I_2 définies par les équations (2.18) et (2.19). Compte tenu des équations (2.21) et (2.22), le paramètre chemin-suivi $I = I_1 + I_2$ s'écrit sous la forme :

$$I = \frac{1 - \mathrm{sinc}^2(2\pi u_0 a)}{1 + \mathrm{sinc}^2(2\pi u_0 a)} \tag{2.23}$$

Ainsi lorsque a tend vers 0, correspondant à un réseau constitué d'un peigne de Dirac en transmission, $I = 0$ et aucune information sur le chemin suivi est disponible. D'autre part, lorsque $a = i$, équivalent à une absence du réseau puisque sa transmission est uniformément égale à l'unité, nous retrouvons $I = 1$, correspondant bien à une information parfaite sur le chemin suivi.

Afin de mesurer l'information complémentaire ondulatoire, caractérisée par le contraste C des interférences, le réseau est translaté selon la direction transversale x (figure 2.5). Pour une translation d'une distance x_0, les amplitudes des champs diffractés s'écrivent :

$$\mathcal{S}_1'(u) = \mathrm{e}^{-2i\pi(u-u_0)x_0}\mathcal{S}_1(u) \tag{2.24}$$

$$\mathcal{S}_2'(u) = \mathrm{e}^{-2i\pi(u+u_0)x_0}\mathcal{S}_2(u) \tag{2.25}$$

où les amplitudes $\mathcal{S}_1(u)$ et $\mathcal{S}_1(u)$ sont données par les équations (2.21) et (2.22). L'intensité $\mathcal{I}_2$ délivrée par le détecteur D2 positionné en $u = u_0$ s'écrit ainsi :

$$\mathcal{I}_2 = \left|\mathcal{S}_1'(u_0) + \mathcal{S}_2'(u_0)\right|^2 \tag{2.26}$$

de sorte que l'intensité $\mathcal{I}_2$ est modulée lorsque x_0 varie. Le contraste de cette modulation nous fournit alors l'information ondulatoire recherchée :

$$C = \frac{2\,\mathrm{sinc}(2\pi u_0 a)}{1 + \mathrm{sinc}^2(2\pi u_0 a)} \,. \tag{2.27}$$

Cette expression varie entre $C = 0$ pour $a = i$, et $C = 1$ pour $a = 0$. En combinant les équations (2.23) et (2.27), nous retrouvons finalement la relation de complémentarité :

$$C^2 + I^2 = 1 \,. \tag{2.28}$$

Ce résultat établit que l'expérience d'Afshar ne révèle en rien une violation du principe de complémentarité onde-particule. Bien au contraire, elle fournit un cadre pour tester l'inégalité de complémentarité dans les situations intermédiaires correspondant à des informations ondulatoire et corpusculaire partielles. Il suffit pour cela de varier la largeur a de la porte de transmission du motif du réseau. Nous décrivons maintenant la réalisation expérimentale.

2.4.3 Mise en place et tests du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé pour illustrer l'inégalité de complémentarité dans la configuration proposée par S. S. AFSHAR est décrit par la figure 2.6-(a).

L'interfrange de la figure d'interférence obtenue à l'aide du biprisme de Fresnel est égale à $i = 87$ μm à la longueur d'onde $\lambda = 670$ nm, qui correspond au pic d'émission de la source de photons uniques utilisant un centre coloré NV (cf. Annexe § A.4.2). Nous avons ainsi utilisé une série de masques en amplitude ayant chacun le même pas égal à l'interfrange i, mais avec une

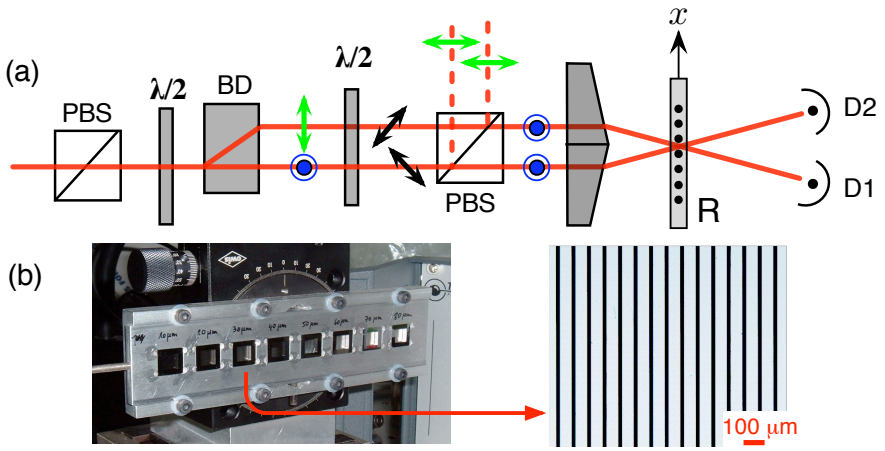


FIG. 2.6 – *(a)-Dispositif expérimental de l'expérience d'Afshar réalisée avec un biprisme de Fresnel. PBS : cubes séparateurs de polarisation. $\lambda/2$: lames demi-onde. BS : prisme décaleur de polarisation en YVO_4. R : réseau en amplitude. (b)-Monture de mécanique portant les réseaux en amplitude. Nous utilisons huit réseaux correspondant à des valeurs a de la largeur des portes de transmission égales à 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70 et 80 μm. La monture est positionnée sur un moteur pas à pas permettant de réaliser une translation des réseaux dans la direction transversale x avec une précision de l'ordre du micromètre. L'image de droite correspond à une image du réseau $a = 20$ μm obtenue au microscope optique. Ce réseau présente un pas de 87.0 ± 0.3 μm.*

largeur a des portes de transmission variable. La figure 2.6-(b) reproduit l'image obtenue au microscope optique de l'un de ces masques.

Nous avons établi au chapitre précédent que la figure d'interférence créée dans la zone de recouvrement des fronts d'onde présente une distribution spatiale en intensité avec de fortes variations en fonction de la distance z entre le biprisme et le plan d'observation des franges d'interférence (figure 1.12). Cet effet résulte de la distribution spatiale gaussienne du faisceau incident, séparé en deux par le biprisme de Fresnel. Pour s'affranchir de ce phénomène, ainsi que des effets de diffraction de bord d'écran lors de la coupure du faisceau incident par le biprisme, nous l'éclairons désormais en incidence normale à l'aide de deux faisceaux parallèles, suffisamment séparés spatialement pour que chacun ne traverse qu'une face donnée du biprisme de Fresnel (figure 2.5). Cette séparation spatiale du faisceau incident est réalisée à l'aide d'un prisme décaleur de polarisation en YVO_4 permettant de séparer spatialement les polarisations orthogonales S et P du faisceau incident d'une distance de 4 mm. L'utilisation d'optiques de polarisation adaptées permet de s'assurer que les deux chemins de l'interféromètre sont convenablement équilibrés et que les polarisations des deux faisceaux traversant le biprisme sont identiques (figure 2.6-(a)).

L'expérience est tout d'abord testée à l'aide d'une diode laser monomode émettant à la longueur d'onde $\lambda_{\text{laser}} = 637$ nm. A cette longueur d'onde, le pas des réseaux, choisi pour réaliser l'expérience à l'aide de photons uniques émis par un centre coloré NV unique, n'est plus convenablement adapté à la figure d'interférence. Afin de retrouver un ajustement fidèle du pas du réseau avec la figure d'interférence créée à cette longueur d'onde, il suffit de tourner le réseau d'un angle $\beta \approx 18°$. Dans ce cas, les divers ordres de diffraction créés par le réseau se recouvrent à nouveau sur les détecteurs D1 et D2. Notons enfin que la taille des faisceaux incidents sur le biprisme est de l'ordre de 2 mm, correspondant à l'illumination de plus de 20 motifs élémentaires du réseau.

Pour chaque réseau, le paramètre chemin-suivi est évalué en mesurant successivement les

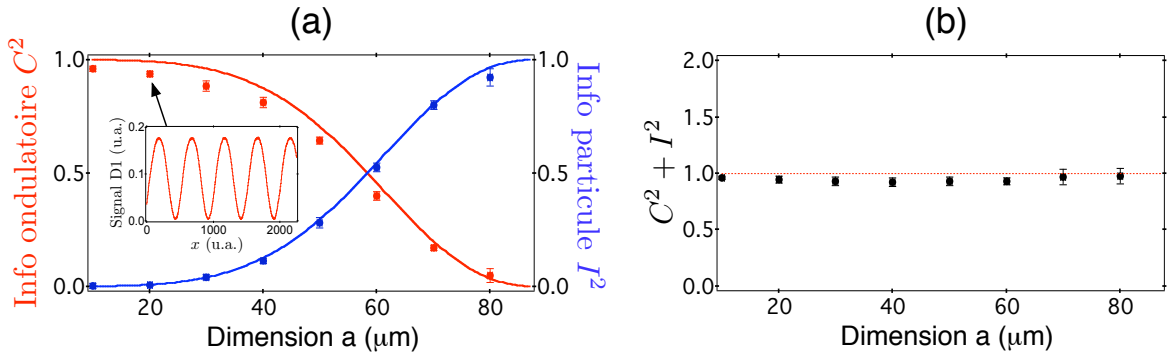


FIG. 2.7 – *Résultats de l'expérience d'Afshar réalisée avec un biprisme de Fresnel et un laser monomode émettant à 637 nm. (a)- Variation des paramètres I^2 (points en bleu) et C^2 (points en rouge) en fonction de la largeur spatiale a de la porte de transmission du réseau. Les courbes rouges et bleues correspondent respectivement aux prédictions théoriques données par les équations (2.23) et (2.27) sans aucun paramètre ajustable. L'insert décrit la modulation d'intensité mesurée par le détecteur D1, lorsque le réseau correspondant à une ouverture $a = 20$ μm des fentes est translaté suivant la direction transversale x. Le contraste de cette modulation est égal à $97 \pm 1\%$. Notons que le contraste mesuré est systématiquement inférieur à celui prédit par l'analyse théorique. Nous attribuons cet effet à un recouvrement spatial non optimal des différents ordres de diffraction sur les détecteurs D1 et D2. (b)-Valeur de $C^2 + I^2$ en fonction de l'ouverture a des fentes du réseau.*

quantités I_1 et I_2 définies par les équations (2.18) et (2.19), en coupant le chemin 2 de l'interféromètre puis le chemin 1.

L'information complémentaire ondulatoire est obtenue en mesurant le contraste de la modulation observée sur les détecteurs D1 et D2 lorsque le réseau est translaté dans la direction transverse x (figure 2.6). Les résultats de ces mesures, représentés sur la figure 2.7, nous permette de valider le principe de notre expérience. Cependant, nous avons insisté sur la nécessité de travailler en régime de photons uniques afin de pouvoir prétendre illustrer la complémentarité entre chemin suivi et interférence. Nous allons donc maintenant décrire cette expérience, effectuée à l'aide de la source déclenchée de photons uniques utilisant un centre coloré NV unique (cf. Annexe A).

2.4.4 Expérience en régime de photon unique

Un problème important par rapport aux tests effectués avec le laser réside dans la largeur du spectre de photoluminescence des centres colorés NV, de l'ordre de $\Delta\lambda \approx 100$ nm à température ambiante, qui conduit à une très faible longueur de cohérence temporelle. Pour pouvoir observer les interférences, il est ainsi nécessaire de modifier le dispositif expérimental afin de compenser les deux bras de l'interféromètre à l'aide d'un deuxième cristal décaleur de polarisation (figure 2.8). Une telle compensation permet de s'affranchir des effets de dispersion dans les cristaux mais également de régler l'interféromètre proche du contact optique, correspondant à une différence de chemin optique nulle entre les deux chemins.

De plus, l'ajustement de la figure d'interférence au pas de réseau étant sélective en longueur d'onde, nous avons dû également filtrer spectralement le faisceau de photons uniques à l'aide d'un filtre spectral interférentiel de largeur 10 nm centré sur $\lambda_0 = 670$ nm, afin d'optimiser le recouvrement spatial des ordres de diffraction créés par le réseau.

Dans un premier temps, nous nous assurons que l'expérience est réalisée avec des impulsions lumineuses contenant un photon et un seul. Pour cela, nous mesurons en sortie de l'interféromètre le paramètre de corrélation A, suivant la procédure décrite en détails au § 1.4.1. Rappelons que ce paramètre est strictement équivalent à la valeur $g^{(2)}(0)$ de la fonction d'autocorrélation du second ordre au retard nul (§1.2.4). Pour cette expérience de contrôle, la photoluminescence du centre coloré NV n'est pas filtrée spectralement et le réseau en amplitude est retiré, afin d'obtenir des taux de comptage conduisant à des durées d'acquisition raisonnables. Nous avons obtenu une

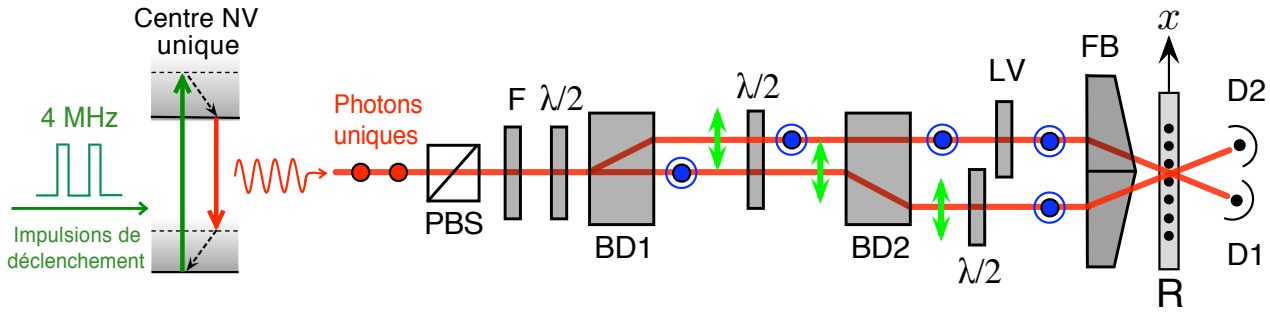


FIG. 2.8 – *Réalisation de l'expérience d'Afshar en régime de photons uniques à l'aide du biprisme de Fresnel. PBS : cube séparateur de polarisation. F : filtre interférentiel de largeur 10 nm centré sur $\lambda_0 = 670$ nm. $\lambda/2$: lames demi-onde. BS1 et BS2 : prismes décaleurs de polarisation en YVO_4 ajustés de façon à compenser les deux bras de l'interféromètre. LV : lame de verre compensatrice. R : réseau en amplitude. Le taux de répétition de la source déclenchée de photons uniques est fixé à 4 MHz pour cette expérience.*

valeur du paramètre de corrélation $A = 0.14 \pm 0.02$, bien inférieure à l'unité, confirmant ainsi sans ambiguïté que nous travaillons en régime de photon unique.

Pour chaque réseau de fentes, nous mesurons le contraste de la modulation observée sur les détecteurs D1 et D2 lorsque le réseau est translaté dans la direction transverse x à l'aide du moteur pas à pas. La figure 2.9 reproduit les interférogrammes obtenus pour diverses valeurs de la largeur a des fentes du réseau. En bloquant successivement l'un puis l'autre bras de l'interféromètre et pour chaque réseau d'amplitude, nous évaluons ensuite l'information disponible sur le chemin suivi en mesurant le paramètre I.

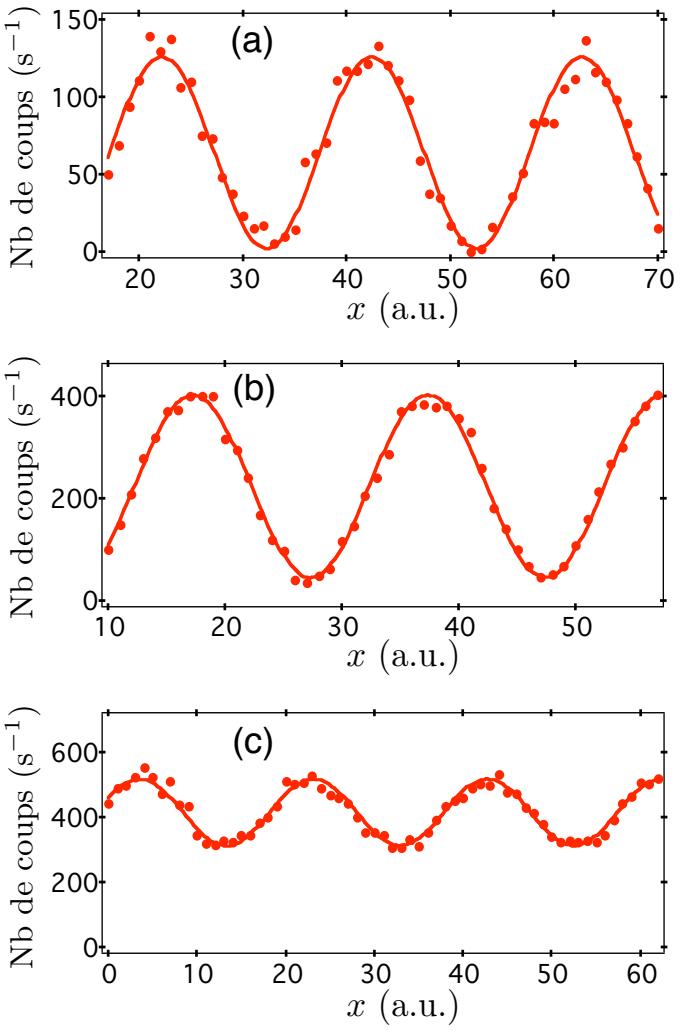


FIG. 2.9 – *Evolution du contraste de la figure d'interférence sur le détecteur D1 pour différents réseaux déplacés selon la direction transversale x. Les figures (a), (b), (c) correspondent respectivement aux largeurs de fente $a = 20$ μm ($C = 97 \pm 2\%$), $a = 50$ μm ($C = 81 \pm 2\%$), et $a = 80$ μm ($C = 23 \pm 2\%$). Chaque point correspond à une durée d'enregistrement de 3 secondes et les coups d'obscurité de la photodiode à avalanche, de l'ordre de 170 coups.s^{-1}, ont été soustraits des données. Des résultats identiques sont obtenus sur le détecteur D2. Les faibles taux de comptage résultent du filtrage spectral de la source de photon unique mais également des pertes importantes engendrées par l'utilisation des masques en amplitude.*

Les résultats de ces expériences, reproduits sur la figure 2.10, montrent que l'inégalité de complémentarité est parfaitement satisfaite. Nous obtenons en moyenne $C^2 + I^2 = 0.96 \pm 0.03$. Notons que dans l'expérience réalisée par S. S. AFSHAR, le réseau d'amplitude était constitué de traits opaques extrêmement fins. Ceci correspond dans notre cas à l'utilisation d'un réseau tel que $a \approx i$. Les résultats donnés sur la figure 2.7 indiquent que cette configuration d'expérience conduit à une information sur le chemin suivi quasiment parfaite ($I \approx 1$), associée à une absence d'information sur le comportement ondulatoire ($C \approx 0$). L'erreur du raisonnement developpé par AFSHAR consiste à penser que le simple positionnement du réseau sur les franges noires, sans aucun autre acte de mesure, permet d'obtenir une information parfaite sur les franges d'interférence.

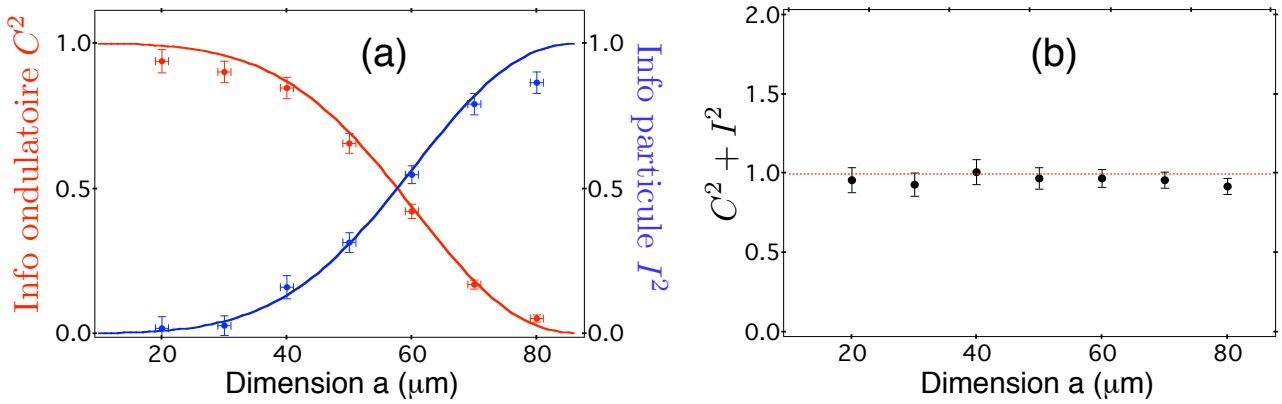


FIG. 2.10 – *Résultats de l'expérience d'Afshar en régime de photon unique. (a)- Variation des paramètres I^2 (points en bleu) et C^2 (points en rouge) en fonction de la largeur spatiale a des fentes du réseau. Les courbes rouges et bleues correspondent respectivement aux prédictions théoriques données par les équations (2.23) et (2.27), sans aucun paramètre ajustable. (b)- Valeur de C^2+I^2 en fonction du paramètre a. Nous obtenons $C^2 + I^2 = 0.96 \pm 0.03$ qui sature l'inégalité de complémentarité.*

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons donné les outils nécessaires à l'étude de la complémentarité entre interférence et chemin suivi pour un photon unique dans un interféromètre à deux voies.

Il est souvent indiqué que cette complémentarité interdit de pouvoir mettre simultanément en évidence les comportements ondulatoires et corpusculaires de la lumière. Nous voulons ici nuancer cette affirmation en indiquant qu'il est tout à fait possible de mettre en évidence ces deux comportements simultanément, sans aucune contradiction avec le formalisme quantique.

Pour illustrer ce point, considérons à nouveau l'expérience d'interférence à un photon décrite dans le chapitre précédent (§1.4.2), pour laquelle une caméra CCD est positionnée dans la zone de recouvrement des fronts d'onde issus du biprisme de Fresnel. Supposons que chaque pixel de la caméra CCD soit constitué par une photodiode à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photons. A l'aide de ce dispositif, il serait possible d'enregistrer les franges d'interférence et simultanément de mesurer le nombre de détections en coïncidence sur deux pixels différents du détecteur. Pour une source idéale de photon unique, chaque photon ne pourra être détecté qu'une seule fois et aucun événement de détection en coïncidence ne sera observé ($A = 0$). Nous aurons

ainsi révélé la nature corpusculaire de la source de lumière et observé **simultanément** un effet d'interférence associé à la nature ondulatoire de la lumière [40]. Il n' y a pas de contradiction avec le principe de complémentarité puisque la mesure du paramètre de corrélation A ne permet pas de recueillir de l'information sur le chemin suivi.

La notion de dualité onde-particule, qui conduit à considérer la lumière simultanément comme une onde et une particule, doit donc être dissociée de celle de complémentarité entre chemin suivi et interférence.

Le chapitre suivant est dédié à l'étude de ces notions dans le régime de choix retardé.

Chapitre 3

Réalisation de l'expérience de choix retardé de WHEELER

Sommaire

3.1 Introduction **69**
3.2 Proposition de J. A. Wheeler **71**
3.2.1 Contexte 71
3.2.2 Conditions requises pour la réalisation de l'expérience de choix retardé . . 73
3.2.3 Réalisations antérieures de l'expérience de choix retardé 73
3.3 Réalisation de l'interféromètre en configuration ouverte/fermée **76**
3.3.1 Interféromètre de Jamin en polarisation 76
3.3.2 Modulateur électro-optique : caractéristiques et commutation 80
3.3.3 Tests de l'interféromètre de Jamin avec un laser 81
3.4 Réglage de l'interféromètre en régime de photon unique **83**
3.4.1 Correction du chromatisme des lentilles utilisées dans les télescopes 83
3.4.2 Centre NV et cohérence temporelle 84
3.4.3 Recherche du contact optique : spectre cannelé de photon unique 84
3.4.4 Tests de l'interféromètre en régime de photon unique 86
3.4.5 Bilan 87
3.5 Rupture du lien causal **88**
3.5.1 Générateur aléatoire quantique de pile ou face 89
3.5.2 Electronique de contrôle de l'expérience 90
3.5.3 Séquence temporelle de l'expérience 93
3.6 Résultats de l'expérience de choix retardé **95**
3.6.1 Mesure du paramètre de corrélation A 95
3.6.2 Effet du tirage aléatoire de la configuration de l'interféromètre 95
3.6.3 Discussion 97
3.7 Test de l'inégalité de complémentarité en régime de choix retardé **99**
3.7.1 Principe de l'expérience 100
3.7.2 Résultats 101
3.8 Conclusion **103**

FIG. 3.1 – *Expérience d'interférence à un photon en régime de choix retardé réalisée dans le sous-sol de l'ancien batiment de l'Institut d'Optique, sur le campus d'Orsay.*

3.1 Introduction

Nous avons décrit au chapitre précédent l'objet de la première controverse entre Niels BOHR et Albert EINSTEIN à propos du principe de complémentarité, en analysant le dispositif des trous d'Young mobiles, proposé par EINSTEIN lors de la tenue du cinquième congrès Solvay en 1927 (§ 2.2.1). Trois années plus tard se tint le sixième congrès Solvay à Bruxelles, au cours duquel EINSTEIN proposa une nouvelle expérience de pensée pour tenter de mettre en défaut le principe de complémentarité, relançant ainsi le débat sur l'interprétation de la mécanique quantique. Cette expérience, connue sous le nom de « boîte à photon » [119], est décrite sur la figure 3.2.

Une boîte aux parois parfaitement réfléchissantes contient une quantité de rayonnement, laquelle contribue à la masse de la boîte suivant l'équation célèbre $E = mc^2$. Cette boîte est percée d'un trou pouvant être ouvert ou fermé à l'aide d'un obturateur qui est synchronisé par une horloge située à l'intérieur de la boîte. A un instant donné, l'obturateur s'ouvre pendant une durée très courte de telle manière qu'un seul photon s'échappe de la boîte. Il est alors a priori possible de connaître avec très grande précision l'instant d'émission du photon. De plus, il devrait être également possible d'effectuer une pesée de la boîte pour évaluer, avec une précision aussi grande que voulue, l'énergie du photon libéré par la boîte avec une précision parfaite. Ce résultat semble en contradiction manifeste avec la relation de dispersion liant les mesures complémentaires de temps et d'énergie en théorie quantique. Cet argument fût examiné par BOHR lors du sixième congrès Solvay, tenu à Bruxelles en 1930 [82].

Il est de coutume de raconter que BOHR fût secoué par cette astuce d'EINSTEIN pour laquelle il ne voyait pas de failles. Il finît cependant par triompher en utilisant une argumentation fondée en partie sur un résultat de relativité générale [104].

Pour reproduire l'argumentation de BOHR, remarquons d'abord que lors de la pesée permettant de mesurer l'énergie du photon libérée, il faut tenir compte de l'incertitude Δz sur la position de l'aiguille de la balance (figure 3.2). Cette incertitude se traduit alors par une incertitude sur l'impulsion de la boîte $\Delta P = \hbar/\Delta z$, en vertu de la relation d'Heisenberg liant la position et l'impulsion, qui implique à son tour une incertitude sur la mesure de la masse de la boîte. En effet, en tenant compte de l'impulsion que transfère le champ de gravitation à un corps de masse Δm pendant le temps T que dure l'expérience de pesée, la quantité ΔP vérifie la relation suivante :

$$\Delta P = (\Delta m) g T \tag{3.1}$$

En utilisant la relation d'Einstein liant masse et énergie, cette relation conduit à une incertitude sur l'énergie du photon qui s'échappe de la boîte :

$$\Delta E = \frac{(\Delta P)c^2}{gT} = \frac{\hbar}{\Delta z} \times \frac{c^2}{gT} \tag{3.2}$$

BOHR utilise alors un théorème de relativité générale qui indique que toute horloge déplacée de Δz dans le champ gravitationnel voit la durée T qu'elle mesure affectée d'une incertitude ΔT définie selon :

$$\frac{\Delta T}{T} = \Delta z \times \frac{g}{c^2} \tag{3.3}$$

En combinant les équations (3.2) et (3.3), il vient finalement :

$$\Delta E \times \Delta T = \hbar \,, \tag{3.4}$$

en parfaite conformité avec le principe de complémentarité pour les mesures temps-énergie.

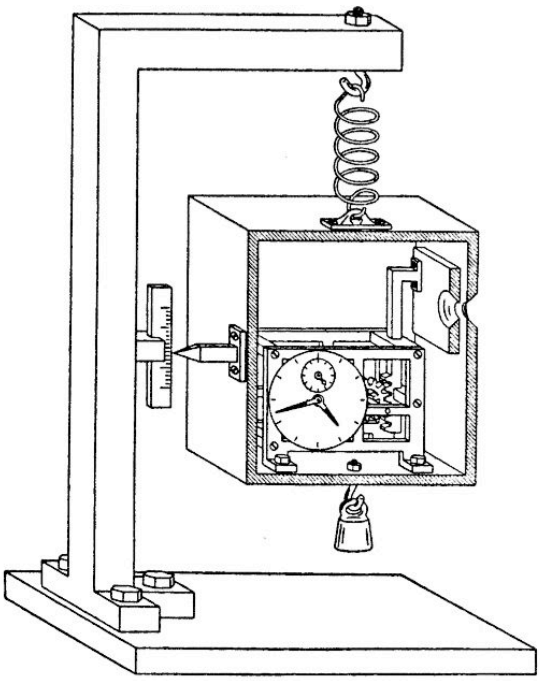


FIG. 3.2 – *Expérience de pensée de la boîte à photons. Une boîte contient de la lumière et à un instant donné, connu de manière aussi précise que désiré à l'aide d'une horloge positionnée à l'intérieur de la boîte, un obturateur est ouvert et laisse s'échapper un photon unique. En effectuant alors une nouvelle pesée de la boîte, il devrait être possible selon Einstein de mesurer également avec une précision parfaite l'énergie du photon. Un tel résultat serait alors en contradiction avec le relation de dispersion liant temps et énergie. Cette figure est extraite de la référence [120].*

Bien que ses efforts pour trouver une expérience qui invalide le principe de complémentarité semblaient à nouveau se solder par un échec, EINSTEIN continua cependant à approfondir les possibilités offertes par le dispositif de la boîte à photon. Il fit ainsi remarquer qu'après la pesée préliminaire de la boîte contenant l'horloge et l'échappée du photon qui suit cette pesée, l'expérimentateur a encore le choix entre une nouvelle pesée afin de déterminer l'énergie du photon libérée ou bien ouvrir la boîte pour lire l'indication de l'horloge [119]. Ainsi, le choix d'obtenir de l'information sur l'énergie du photon ou sur son instant d'émission peut être retardé à souhait alors que le photon est déjà sorti de la boîte et par exemple envoyé vers un coin de cube rétroréflecteur situé à plusieurs années lumière de la boîte. Le fait de réaliser une pesée de la boîte ou bien de l'ouvrir conditionne alors l'information disponible sur ce photon à son retour vers la boîte sans qu'il y ait eu besoin d'une quelconque interaction avec celui-ci. Si l'expérimentateur décide d'ouvrir la boîte et consulte l'horloge, il connaîtra le temps au bout duquel le photon reviendra vers celle-ci. Si par contre il décide de réaliser une pesée de la boîte, il saura l'énergie du photon mais ne pourra connaître avec précision son instant de retour. Tout cela bien entendu alors que le photon a déjà quitté la boîte et n'interagit plus avec elle. Cette situation, inexplicable à l'aide d'image héritées du sens commun, est vraisemblablement la première proposition d'une expérience de choix retardé entre la mesure de deux grandeurs complémentaires [119] [1]. Si nous

[1] L'idée de choix retardé a par la suite été évoquée par C. F. VON WEIZSÄCKER dans le cadre de l'expérience du microscope de Heisenberg [121, 122].

reprenons l'interprétation de BOHR, cette discussion illustre de façon frappante la nécessité de considérer l'objet quantique étudié et l'appareil de mesure comme une seule et même entité.

Dans ce chapitre, nous allons décrire la réalisation d'une telle expérience de choix retardé pour les mesures complémentaires « chemin suivi » et « interférence »discutées au chapitre précédent pour un photon unique. Dans une première partie, nous présenterons le principe de l'expérience, proposée par J. A. WHEELER dans les années 70 [14], et nous donnerons les conditions requises pour sa réalisation. Nous détaillerons ensuite sa réalisation expérimentale en régime de photons uniques [123]. Afin d'obtenir une illustration complète de la complémentarité entre chemin suivi et interférence pour une particule unique dans le régime de choix retardé, nous décrirons pour finir un test expérimental de l'inégalité de complémentarité introduite au chapitre précédent [124].

3.2 Proposition de J. A. Wheeler

3.2.1 Contexte

L'expérience de choix retardé proposée par J. A. WHEELER [14] est décrite sur la figure 3.3. Nous considérons une impulsion lumineuse contenant un seul photon envoyée dans un interféromètre de Mach-Zehnder, dont la première lame séparatrice $\mathrm{BS_{in}}$ sépare l'impulsion suivant deux chemins 1 et 2. En sortie de l'interféromètre, deux possibilités de mesure sont envisageables, associées à l'insertion ou non d'une deuxième lame séparatrice $\mathrm{BS_{out}}$ qui recombine ou non les deux chemins de l'interféromètre. Comme nous l'avons discuté dans les chapitres précédents, les deux configurations expérimentales correspondent respectivement à la mesure d'une interférence ou à celle complémentaire du chemin suivi par la particule dans l'interféromètre.

Dans la configuration *ouverte* de l'interféromètre, correspondant à l'absence de $\mathrm{BS_{out}}$, chacun des deux détecteurs D1 et D2 positionnés sur les voies de sortie du dispositif, est rigoureusement associé à un chemin donné de l'interféromètre. L'information sur le chemin suivi est alors déterminée avec une parfaite précision. En utilisant des états de lumière à un seul photon, chaque détection nous informe en effet sur lequel des deux chemins a été emprunté par la particule lors de son parcours de l'interféromètre. Ainsi pour une telle expérience et en reprenant les termes de WHEELER [14], « [either] one counter goes off, or the other. Thus the photon has traveled only one route ».

Si maintenant la lame séparatrice $\mathrm{BS_{out}}$ est positionnée afin de recombiner les deux chemins, correspondant à la configuration *fermée* de l'interféromètre, il apparaît une modulation de la probabilité de détection sur les deux voies de sortie en fonction de la différence de chemin optique Φ entre les deux chemins. Cet effet d'interférence est la signature d'un comportement ondulatoire signifiant que l'état de lumière emprunte simultanément les deux chemins de l'interféromètre. En citant à nouveau WHEELER [14], « [this] is evidence... that each arriving light quantum has arrived by both routes ». Bien entendu, les deux expériences ne peuvent pas être réalisées simultanément, en accord avec le principe de complémentarité.

Pour une telle expérience d'interférence à un photon, il est cependant possible de réconcilier le principe de complémentarité de Bohr avec une conception de réalité physique locale, en considérant que chaque particule en entrée de l'interféromètre peut avoir accès à une information cachée sur le choix de l'appareil de mesure (interféromètre *ouvert* ou *fermé*) et choisir d'ajuster sa nature ondulatoire **ou** corpusculaire en fonction de cette information [104]. Dans le cas où un instrument de mesure du chemin suivi serait installé en sortie de l'interféromètre, l'état de lumière se comporterait alors comme une particule tandis que si un dispositif d'interférence venait à être utilisé, il se comporterait comme une onde.

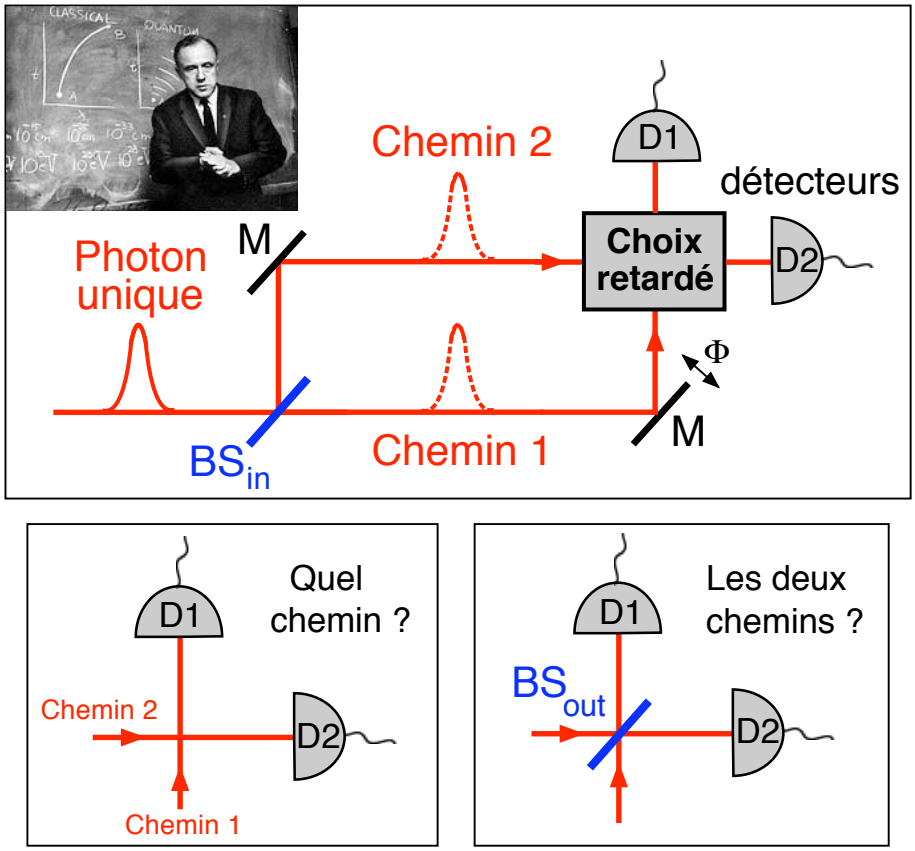


FIG. 3.3 – *Expérience de pensée de choix retardé proposée par J. A.* WHEELER *utilisant un interféromètre de Mach-Zehnder composé d'une lame séparatrice d'entrée* $\mathrm{BS_{in}}$*, de deux miroirs (M) et d'une lame de sortie amovible* $\mathrm{BS_{out}}$ *. La décision de positionner ou non* $\mathrm{BS_{out}}$ *est prise après que le photon soit entré dans l'interféromètre. On décide ainsi de mesurer l'une ou l'autre des grandeurs complémentaires chemin-suivi ou interférence, associées respectivement à des comportements corpusculaires et ondulatoires. Avec une représentation classique, le choix d'insérer ou non la lame* $\mathrm{BS_{out}}$ *sera pris alors que la particule aura déjà choisi de suivre l'une ou l'autre des voies de l'interféromètre.*

Afin de mettre en défaut une telle interprétation, J. A. WHEELER a proposé de réaliser l'expérience d'interférence à un photon décrite sur la figure 3.3 dans le régime de choix retardé [14] : la décision d'insérer ou non la lame séparatrice de sortie sera alors prise une fois le photon déjà entré dans l'interféromètre. Ainsi, « one decides the photon shall have come by one route or by both routes after it has already done its travel » [14]. Par analogie avec l'expérience de la boîte à photon que nous avons décrite en introduction de ce chapitre, les deux mesures complémentaires mutuellement exclusives sont réalisées ici en choisissant d'insérer ou non la lame séparatrice de sortie. Rappelons que dans l'expérience de la boîte à photon, ce choix est effectué en ouvrant la boîte et en lisant l'indication de l'horloge (détermination de l'instant d'émission du photon) ou en effectuant une pesée de la boîte (mesure de l'énergie du photon).

Avant de décrire la réalisation expérimentale de l'expérience de choix retardé proposée par J. A. WHEELER, nous allons dans un premier temps mentionner l'ensemble des conditions requises pour sa réalisation.

3.2.2 Conditions requises pour la réalisation de l'expérience de choix retardé

Nous avons déjà discuté la nécessité d'utiliser une source de photons uniques, qui seule permet de mettre en évidence une nature corpusculaire (non-classique) de l'état de lumière utilisé et de donner ainsi un sens non ambigü à la notion de chemin suivi. L'expérience de choix retardé a ainsi été réalisée à l'aide de la source de photons uniques basée sur la photoluminescence de centres colorés NV du diamant, caractérisée par un paramètre de corrélation $A \approx 0.1$ (cf. Annexe A). L'expérience doit être également réalisée avec un système interférométrique pour lequel le contraste C des interférences soit le plus proche possible de l'unité. Nous discuterons dans la suite de l'influence des paramètres C et A sur l'interprétation de l'expérience de choix retardé, en considérant différentes représentations de la lumière (§ 3.6.3).

Le régime de choix retardé est obtenu en choisissant d'insérer ou non la lame séparatrice de sortie alors que le photon est déjà entré dans l'interféromètre. Cependant, afin de contrer une théorie alternative selon laquelle la particule adapterait sa nature ondulatoire ou corpusculaire à l'appareil de mesure, il faut également s'assurer que le photon ne puisse bénéficier d'une quelconque information sur le choix de la configuration de l'interféromètre, *ouverte* ou *fermée*, avant d'y pénétrer. Il est par conséquent nécessaire de réaliser un tirage aléatoire de cette configuration qui soit séparé de l'entrée du photon dans l'interféromètre par un intervalle de genre espace au sens de la relativité restreinte. Ce critère permet d'annuler tout possible lien causal entre le comportement de la particule et le choix de la configuration de mesure.

3.2.3 Réalisations antérieures de l'expérience de choix retardé

Les premières tentatives de réalisation de l'expérience de choix retardé ont été effectuées au milieu des années quatre-vingt [125, 126], en particulier dans le groupe de H. WALTHER [127] (figure 3.4). Ces premières expériences furent réalisées avec des impulsions laser atténuées, qui ne

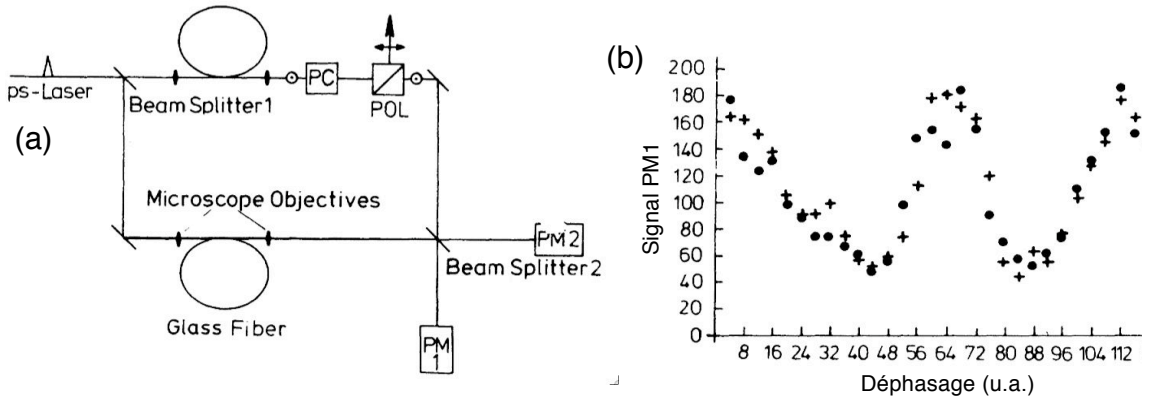


FIG. 3.4 – *Expérience de choix retardé, réalisée dans l'équipe de H.* WALTHER *[127]. (a)-Montage expérimental utilisant des impulsions lasers picosecondes atténuées. Les deux configurations ouverte et fermée de l'interféromètre de Mach-Zehnder sont obtenues en appliquant ou non une tension sur une cellule de Pockels (PC) alors que l'impulsion laser atténuée est déjà entrée dans l'interféromètre. (b)-Les résultats de l'expérience montrent que les interférences observées en régime de choix retardé (points) ont le même contraste que celles obtenus en choix non retardé (croix). Ces deux figures sont extraites de la référence [127].*

permettent pas de mettre en évidence la nature corpusculaire de l'état de lumière considéré. De plus, la séparation relativiste entre le choix de la configuration de mesure et l'entrée du photon dans l'interféromètre n'était pas satisfaite. Cependant, les résultats de cette expérience pionnière montrent sans ambiguïté que les mesures réalisées en régime de choix retardé sont identiques à celles obtenues lorsque la configuration de l'interféromètre est fixée avant que l'impulsion lumineuse ne pénètre dans l'interféromètre (figure 3.4-(b)). Malgré tout, il est toujours possible pour cette expérience de penser qu'une information cachée est disponible pour le photon en entrée de l'interféromètre de façon à lui permettre d'ajuster son comportement en fonction de la configuration de mesure.

La première expérience de choix retardé utilisant des photons uniques a été réalisée en 1989 dans l'équipe de W. MARTIENSSEN [128, 129], à partir de paires de photons produites par conversion paramétrique dans un cristal non-linéaire (figure 3.5). Notons que le concept de choix retardé a également été testé à l'aide de particules massives telles des neutrons [130] ou des atomes d'hydrogène métastable dans un interféromètre de Stern et Gerlach [131]. L'avantage de l'utilisation d'atomes par rapport aux expériences réalisées avec des états de lumière est la relative lenteur des particules, permettant de réaliser la commutation entre les configurations complémentaires de mesure sur des durées de l'ordre de plusieurs microsecondes. Cependant, la condition de séparation relativiste n'était pas remplie pour ces expériences.

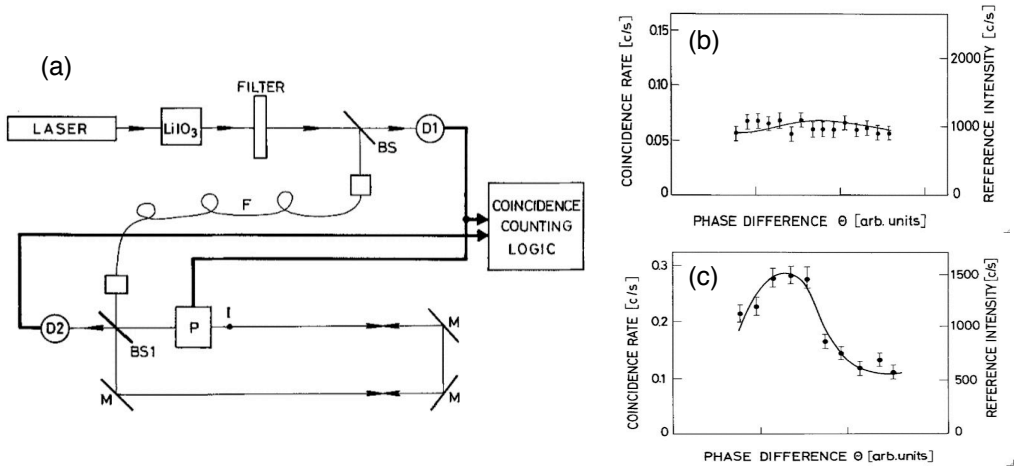


FIG. 3.5 – *Expérience réalisée dans l'équipe de* W. MARTIENSSEN *[128]. (a)-Des paires de photons obtenues par conversion paramétrique sont séparées par une lame séparatrice (BS), qui oriente l'un des photons de la paire vers un interféromètre de Sagnac tandis que le photon complémentaire est détecté par D1. Cette détection permet de déclencher une cellule de Pockels (P) introduite dans l'interféromètre. Si aucune tension n'est appliquée à P, on observe un effet d'interférence dans le taux de détection en coïncidence* R_{12} *entre les détecteurs D1 et D2, résultat de l'indiscernabilité des deux bras « clockwise » et « counterclockwise » de l'interféromètre. L'expérience est réalisée en déclenchant P une fois que le photon parcourant le bras « clockwise » a déjà traversé P. Seul le bras « counterclockwise » voit alors sa polarisation tourner de* $90°$*. Les deux chemins interférométriques deviennent ainsi discernables, conduisant à une disparition de l'effet d'interférence (b). La même expérience est réalisée en ajoutant une lame quart d'onde orientée à* $45°$ *juste après P. Dans ce cas, le déclenchement de P rend les deux chemins indiscernables, conduisant à l'observation d'un phénomène d'interférence (c). Il s'agit donc d'une expérience de choix retardé, dans un mode de fonctionnement cependant différent de celui proposé par Wheeler. Les figures sont extraites de la référence [128].*

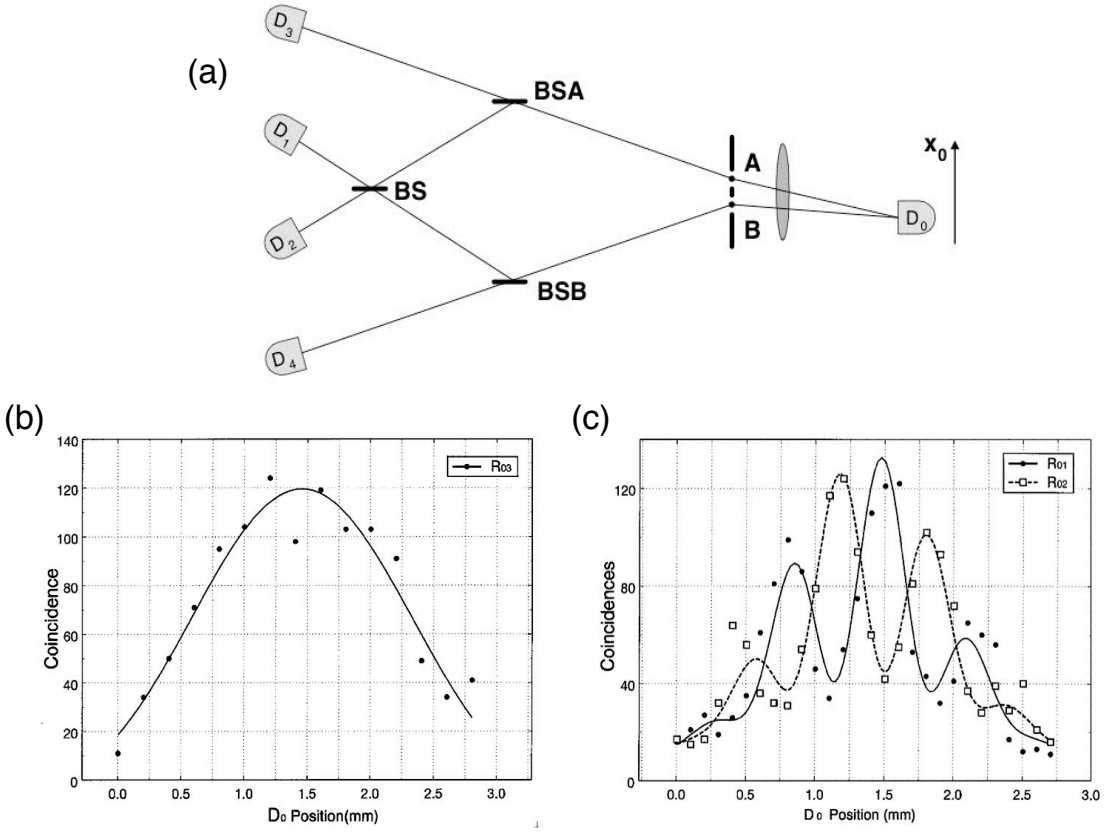


FIG. 3.6 – *Expérience de gomme quantique effectuée dans le régime de choix retardé [94]. (a)-Dispositif expérimental. Deux paires de photons uniques intriqués sont créées par conversion paramétrique aux points A et B pouvant être assimilés à deux trous d'Young. La distance qui sépare le détecteur* D_0 *des points A et B est beaucoup plus petite que celle les séparant des lames séparatrices BSA et BSB, lesquelles conditionnent l'observation des interférences ou la connaissance du chemin suivi. (c)-Lorsque le détecteur* D_0 *est translaté selon la direction* x_0 *un phénomène d'interférence est observé dans les taux de détections en coïncidence* R_{01} *et* R_{02}*. (b)-Par contre, les taux de coïncidences* R_{03} *et* R_{04} *ne révèlent pas d'interférence, puisque l'information sur le chemin suivi est alors parfaitement connue. Ces figures sont reproduites de la référence [94].*

Pour conclure ce bref état de l'art des expériences de choix retardé réalisées à ce jour, nous voulons mentionner une expérience remarquable réalisée dans l'équipe de Y. SHIH en 2000 [94] à l'Université du Maryland, en suivant une proposition d'expérience de M. O. SCULLY et K. DRÜHL [90]. Il s'agit d'une expérience de gomme quantique réalisée en régime de choix retardé, dont le dispositif expérimental est décrit sur la figure 3.6. Deux paires de photons jumeaux sont créées par conversion paramétrique dans deux cristaux non-linéaires positionnés aux points A et B, qui constituent l'analogue formel d'un dispositif interférentiel de trous d'Young. La paire de photons intriqués créée au point A - resp. au point B - est notée (A_g, A_d) - resp. (B_g, B_d) - où les indices g et d correspondent respectivement à une propagation vers la gauche et vers la droite du dispositif expérimental. Les photons A_d et B_d se propageant vers la droite sont détectés par le détecteur D_0, lequel peut être translaté selon l'axe x_0 afin d'observer des interférences. Les photons A_g et B_g se propageant vers la gauche sont quant à eux envoyés respectivement à travers les lames séparatrices BSA ou BSB, suivant que le photon ait été émis au point A ou au point B. Si les pho-

tons sont transmis par l'une de ces lames, les événements de détection sur les détecteurs D_3 et D_4 permettent alors de connaître entièrement l'information sur le chemin suivi par les photons A_g et B_g, et par conséquent celui suivi par les photons A_d et B_d en raison de l'intrication entre les deux photons jumeaux de chaque paire. Il suit une absence d'interférence sur le détecteur D_0 lorsque celui-ci est translaté suivant l'axe x_0. Dans le cas où les photons A_g et B_g sont réfléchis par BSA et BSB, ils rencontrent une nouvelle lame séparatrice BS qui les oriente de manière équiprobable vers les détecteurs D_1 ou D_2. Le déclenchement de ces détecteurs efface alors l'information sur le chemin suivi, ce qui restaure le phénomène d'interférence.

Le montage expérimental est réalisé de telle manière que la distance entre les points d'émission (A et B) et le détecteur D_0 soit plus petite que celle les séparant des lames séparatrices BSA et BSB, qui décident de manière totalement aléatoire le choix entre la connaissance du chemin suivi (transmission sur les lames) ou le brouillage de cette information (réflexion sur les lames) conduisant à l'observation d'un phénomène d'interférence. Ainsi, le choix de la mesure est retardé par rapport à la détection des photons A_d et B_d par D_0. L'expérience est réalisée en effectuant un balayage du détecteur D_0 selon l'axe x_0 et en enregistrant les taux de détection en coincidences R_{0i} entre le détecteur D_0 et les détecteurs D_i. Les taux R_{03} et R_{04} ne révèlent pas de modulation tandis que les taux R_{01} et R_{02}, pour lesquels l'information chemin-suivi a été effacée, révèlent un phénomène d'interférence (figure 3.6).

Bien que cette expérience soit différente dans son concept de celle proposée par J. A. WHEELER, il s'agit bien là d'une illustration concept de choix retardé entre la mesure de deux grandeurs complémentaires. Elle satisfait également à l'ensemble des conditions que nous avons énumérées précédemment (§3.2.2). Notons cependant que lors de cette expérience de choix retardé, l'inégalité de complémentarité $C^2 + I^2 \leq 1$ n'a pas été testée dans les situations intermédiaires correspondant à une information partielle sur le chemin suivi et un effet d'interférence imparfaitement contrasté. Ce test peut être réalisé en utilisant une lame séparatrice BS déséquilibrée (figure 3.6). Une expérience de ce type est actuellement en cours de réalisation dans l'équipe de A. ZEILINGER à l'Université de Vienne [132].

Après ce bref état de l'art, nous allons maintenant décrire une réalisation expérimentale de l'expérience de choix retardé très proche dans sa conception de celle proposée par J. A. WHEELER.

3.3 Réalisation de l'interféromètre en configuration ouverte/fermée

3.3.1 Interféromètre de Jamin en polarisation

Le dispositif expérimental que nous avons choisi pour la mise en œuvre de l'expérience de choix retardé repose sur un interféromètre en polarisation de type MACH-ZEHNDER, également appelé interféromètre de Jamin (figure 3.7-(a)). Ce dispositif a été installé dans un grand couloir situé au sous-sol de l'ancien bâtiment de l'Institut d'Optique, sur le campus d'Orsay.

Les photons uniques émis par un centre coloré NV individuel étant seulement partiellement polarisés, un premier cube séparateur de polarisation placé sur le trajet du faisceau permet d'obtenir une polarisation rectiligne fixée de ces photons uniques. Une lame demi-onde placée en amont de ce cube polarisant permet de séparer la luminescence du centre coloré en deux voies, la première conduisant à un dispositif de Hanbury Brown et Twiss permettant de s'assurer de l'unicité du centre émetteur et d'asservir le microscope confocal sur le maximum d'émission du centre coloré (cf. Annexe § A.2.2), et la deuxième voie correspondant à la transmission vers l'interféromètre (figure 3.7-(a)).

La lame séparatrice d'entrée BS_{in} de interféromètre est réalisée par un cristal décaleur de po-

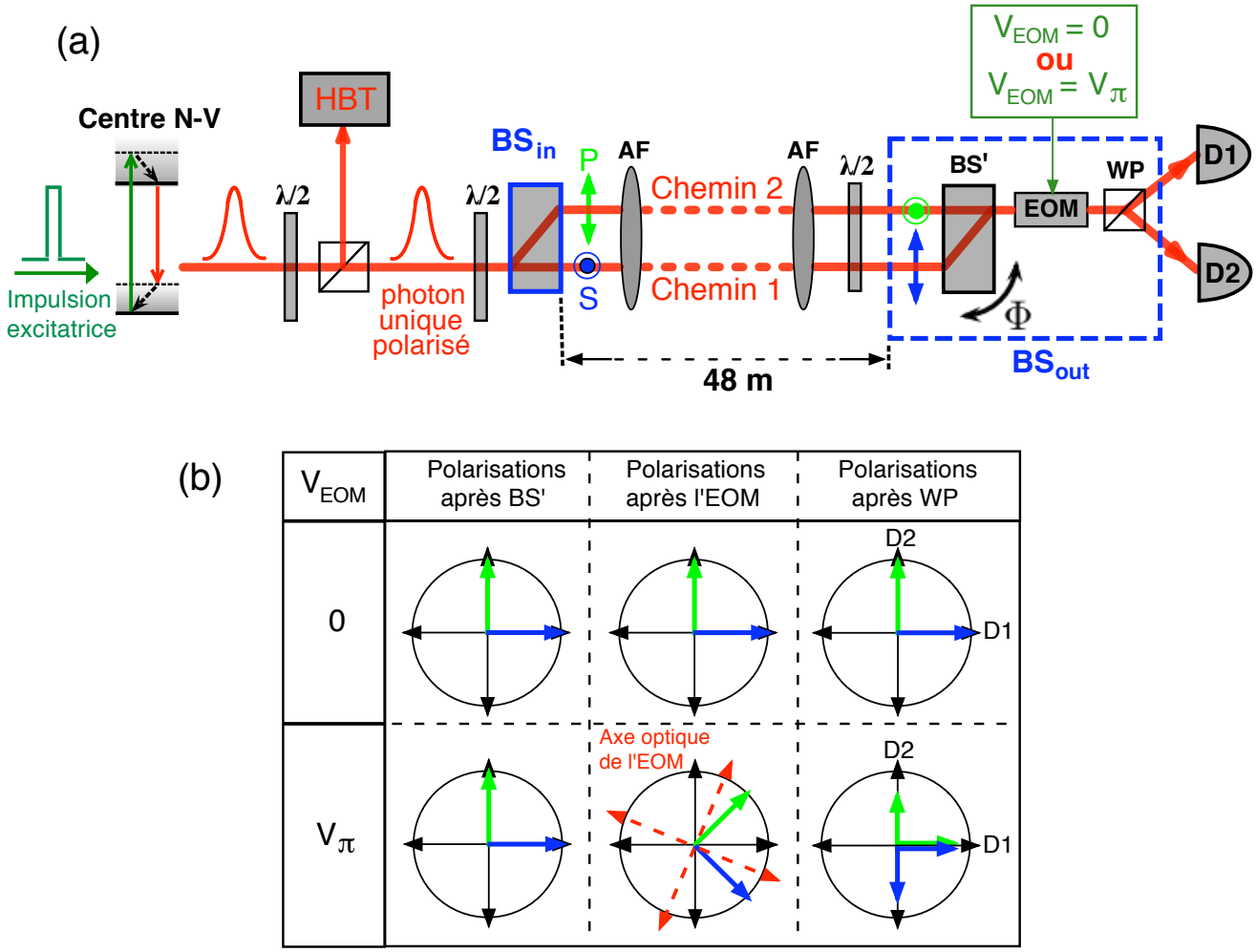


FIG. 3.7 – *(a)-Interféromètre de Jamin utilisé pour la réalisation expérimentale de l'expérience de choix retardé, à l'aide de photons uniques polarisés émis par un centre coloré NV unique. HBT : dispositif de Hanbury Brown et Twiss permettant de s'assurer de l'unicité du centre émetteur via une mesure de corrélation temporelle d'intensité.* $\mathrm{BS_{in}}$ *et* $\mathrm{BS'}$ *: cristaux décaleurs de polarisation en* YVO_4*. AFs : dispositifs afocaux de grandissement* $\times 5$*. EOM : modulateur électro-optique. WP : prisme de Wollaston. D1 et D2 : photodiodes à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photons (modules SPCM AQR14,* PERKIN ELMER*). La lame de sortie semi-réfléchissante,* $\mathrm{BS_{out}}$*, est obtenue par l'association de* $\mathrm{BS'}$*, EOM et WP. Le choix d'insérer ou non cette lame séparatrice revient à appliquer ou non la tension demi-onde* V_π *aux bornes de l'EOM. La variation de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre est assurée en inclinant BS' d'un angle* Φ*. (b)-Evolution des polarisations en sortie de l'interféromètre suivant la tension* V_{EOM} *appliquée à l'EOM, dont les axes optiques sont placés à* $22.5°$ *des polarisations* S *et* P *correspondant aux deux chemins de l'interféromètre. Lorsque la tension* V_π *est appliquée, ces polarisations sont recombinées, conduisant à la configuration fermée de l'interféromètre. Dans le cas où aucune tension est apliquée, chaque détecteur placé sur les voies de sortie de WP est strictement associé à un chemin de l'interféromètre, permettant ainsi d'étiqueter parfaitement le chemin suivi par le photon. Il s'agit alors de la configuration ouverte de l'interféromètre.*

larisation en YVO_4, BS_{in}, qui sépare spatialement les polarisations orthogonales S et P du faisceau incident par une distance de 4 mm [2]. Le diamètre du faisceau incident étant de l'ordre de 2 mm, cette séparation spatiale est suffisante pour éviter tout recouvrement des deux voies de l'interféromètre en sortie de BS_{in}. Une lame demi-onde est utilisée en amont du décaleur de polarisation afin d'équilibrer les deux voies de l'interféromètre en ajustant la polarisation incidente des photons uniques à $45°$ de l'axe optique du cristal de YVO_4.

Afin de se placer dans les conditions de l'expérience de choix retardé proposé par J. A. WHEELER nous avons construit un interféromètre d'une longueur de 48 mètres, équivalent à un temps de vol des photons dans l'interféromètre $\tau_{\text{interf}} = 160$ ns. C'est par rapport à cette échelle temporelle que le dispositif expérimental devra être basculé entre les deux configurations *ouverte* et *fermée* de l'interféromètre. Afin de limiter les effets dus à la diffraction du faisceau lors de sa propagation à l'air libre, nous utilisons un système afocal de grandissement $\times 5$, conduisant à des faisceaux de diamètre 10 mm séparés de 20 mm, dont la longueur de Rayleigh est de l'ordre d'une centaine de mètres aux longueurs d'onde considérées. Après 48 mètres de propagation, un système afocal identique permet de retrouver les caractéristiques des faisceaux issus de la lame séparatrice d'entrée BS_{in}.

Une lame demi-onde est alors utilisée pour retourner les polarisations associées à chacun des deux bras de l'interféromètre d'un angle de $90°$, afin de réaliser une compensation de l'interféromètre[3]. Les deux bras de l'interféromètre sont ensuite superposés spatialement à l'aide d'un deuxième cristal décaleur de polarisation en YVO_4 (BS'), fonctionnant de façon parfaitement symétrique à BS_{in}. Une fois superposées spatialement à la sortie de BS', les deux polarisations S et P traversent un modulateur électro-optique (EOM) dont les axes optiques sont orientés à $22.5°$ par rapport aux directions de polarisation S et P liées à l'interféromètre. Cet EOM est suivi d'un prisme de Wollaston (WP) dont les axes propres de polarisation sont orientés selon les directions S et P. Enfin, deux photodiodes à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photon sont positionnées sur les voies de sortie de l'interféromètre.

L'EOM peut être utilisé selon deux configurations différentes : soit aucune tension ne lui est soumise, soit sa tension demi-onde V_π est appliquée à ses bornes, correspondant respectivement aux configurations *ouverte* et *fermée* de l'interféromètre comme le décrit la figure 3.7-(b).

Lorsque qu'aucune tension n'est appliquée à l'EOM, tout se passe comme si celui-ci était absent. Les deux polarisations incidentes S et P ne sont pas modifiées par la traversée de l'EOM et sont finalement séparées par le prisme de Wollaston. Dans cette configuration, chacun des détecteurs est alors strictement associé à un chemin donné de l'interféromètre, permettant de déterminer parfaitement l'information sur le chemin-suivi par le photon. Puisque les deux bras de l'interféromètre ne sont pas recombinés, il s'agit bien là de la configuration *ouverte* de l'expérience de pensée proposée par WHEELER.

Lorsque la tension demi-onde V_π est appliquée à l'EOM, celui-ci se comporte comme une lame demi-onde qui tourne les polarisations incidentes d'un angle de $45°$ compte tenu de son orientation. Les polarisations en sortie de l'EOM sont alors recombinées par le prisme de Wollaston, conduisant à un phénomène d'interférence sur les deux voies complémentaires de détection lorsque la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre varie. Il s'agit bien là de la configuration *fermée* de l'interféromètre au sens de la proposition de WHEELER.

[2] Le métériau YVO_4 est parfaitement transparent pour les longueurs d'onde d'émission du spectre de photoluminescence des centres colorés NV. Sa biréfringence, de type uniaxe, est plus élevée que celle de la calcite. Les cristaux en YVO_4, ainsi que l'ensemble des optiques utilisées pour l'expérience, ont été réalisées par la société OPTIQUE FICHOU.

[3] Nous verrons qu'en raison de la largeur du spectre d'émission des centres colorés NV, cette lame de compensation est nécessaire pour obtenir des interférences bien contrastées au voisinage de la différence de marche nulle.

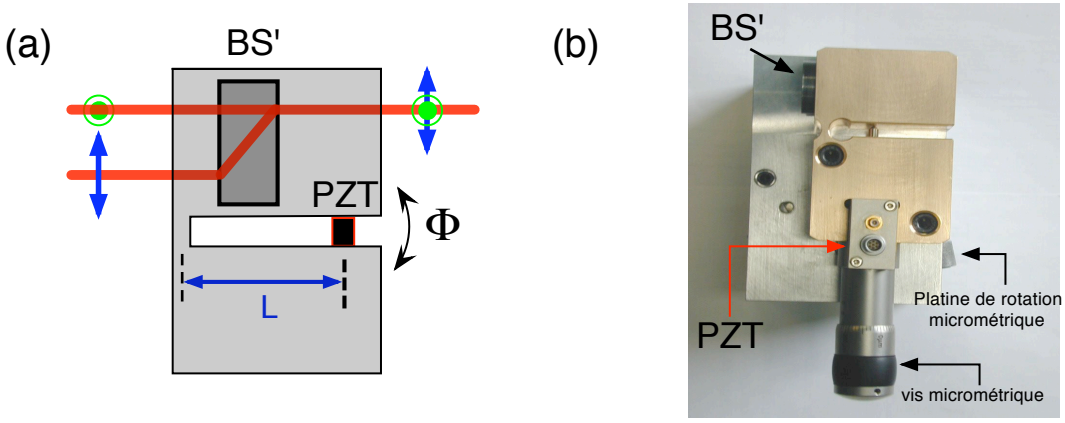


FIG. 3.8 – *(a)-Principe de fonctionnement de la monture mécanique permettant de varier la différence de marche entre les deux voies de l'interféromètre, par l'intermédiaire d'une rotation d'un angle* Φ *du prisme décaleur de polarisation* BS′. *(b)-Photographie de l'ensemble mécanique. La rotation est obtenue par déformation mécanique, contrôlée au moyen d'une vis micrométrique associée à un transducteur piezoélectrique (PZT). Le PZT est positionné à* $L = 2$ *cm de l'axe de rotation de la pièce. Afin d'obtenir une bonne élasticité et le moins d'hystérésis possible dans la déformation, la pièce a été réalisée en bronze beryllium. De plus, pour pouvoir réaliser des rotations plus grossières, l'ensemble de la pièce en bronze est positionnée sur une platine de rotation micrométrique. Cet ensemble mécanique a été réalisé par* J. P. MADRANGE, *mécanicien au laboratoire SATIE de l'ENS Cachan.*

Pour un angle d'incidence i (resp. j) sur le cristal décaleur de faisceaux $\mathrm{BS_{in}}$ (resp. BS′), la différence de marche Δ entre les deux bras de l'interféromètre s'écrit, dans l'approximation des petits angles et au premier ordre en i et en j (cf. Annexe C) :

$$\Delta = e \times \left[\frac{\left[(\frac{1}{n_e})^2 - (\frac{1}{n_o})^2 \right] \sin\psi \cos\psi}{\left[(\frac{\sin\psi}{n_e})^2 - (\frac{\cos\psi}{n_o})^2 \right]} \times (i - j) \right], \tag{3.5}$$

où n_o et n_e sont respectivement les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire du cristal, ψ l'angle que fait l'axe optique du cristal par rapport à la normale et e la longueur du cristal, égale à 37 mm pour le composant optique utilisé.

Nous avons choisi de varier la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre en effectuant une rotation du deuxième cristal décaleur de faisceaux BS′ (figure 3.8). Une application numérique montre que pour faire varier Δ d'une longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm, correspondant au maximum d'émission des centres colorés NV, il faut réaliser une rotation d'un angle de l'ordre de $0.5'$ d'arc. Une telle rotation est réalisée par déformation mécanique d'une pièce de bronze dans laquelle est placée la pièce optique BS′. La rotation est contrôlée à l'aide d'une vis micrométrique associée à un transducteur piézoélectrique (PZT), comme le décrit la figure 3.8. Le PZT est positionné à une distance $L = 2$ cm de l'axe de déformation mécanique. L'excursion maximale du PZT étant $\delta = 30\ \mu\mathrm{m}$, il est alors possible d'effectuer une rotation de BS′ d'un angle de l'ordre de $\delta/L \approx 5'$ d'arc, correspondant au balayage d'une dizaine de franges d'interférence lorsqu'une rampe de tension variant entre 0 et 70 V est appliquée au PZT.

Pour conclure cette section, insistons sur le fait que la lame de sortie semi-réfléchissante amovible de la proposition de WHEELER, $\mathrm{BS_{out}}$ (cf. figure 3.3), est réalisée dans notre expérience en

associant le prisme décaleur de polarisation en YVO_4 (BS′), le modulateur électro-optique (EOM) et le prisme de Wollaston (WP). Le choix d'insérer cette lame $\mathrm{BS_{out}}$ revient alors simplement à appliquer une tension demi-onde aux bornes du modulateur électro-optique.

3.3.2 Modulateur électro-optique : caractéristiques et commutation

Le modulateur électro-optique que nous avons utilisé est un modèle LINOS LM0202, composé de quatre cristaux de KDP en configuration croisée, assurant la compensation en longueur d'onde du modulateur et permettant de basculer une polarisation rectiligne de $90°$ sans avoir à appliquer une tension trop importante.

Pour mesurer la tension demi-onde V_π de cet EOM, un laser vert à la longueur d'onde de 532 nm, polarisé circulairement à l'aide d'une lame quart d'onde convenablement orientée, est envoyée à travers le modulateur. Lorsqu'une tension quart d'onde $V_{\frac{\pi}{2}}$ est appliquée aux bornes de l'EOM, celui-ci se comporte comme une lame quart d'onde qui transforme la polarisation circulaire incidente en une polarisation rectiligne, ceci quelque soit l'orientation des cristaux de KDP. A l'aide d'un système d'analyse en polarisation, composé d'une lame demi-onde et d'un cube séparateur de polarisation, il est alors possible de mesurer précisément la valeur de $V_{\frac{\pi}{2}}$ et d'en déduire celle de la tension demi-onde V_π. Cette mesure conduit à $V_\pi = 172 \pm 1$ V pour la longueur d'onde de 532 nm, .

La valeur de la tension demi-onde est reliée à la longueur d'onde λ selon la relation :

$$V_\pi = \frac{\lambda d}{n_0^3\, r_{63}\, L} \tag{3.6}$$

où d est la distance entre les électrodes, n_0 l'indice de réfraction ordinaire du cristal non-linéaire, r_{63} son coefficient électro-optique et L sa longueur. A la longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm, correspondant au maximum d'émission des centres colorés NV [4], la tension demi-onde est donc égale à $V_\pi = 217 \pm 1$ V.

Afin de basculer entre les configurations *ouverte* et *fermée* de l'interféromètre, il s'agit donc de commuter cette tension sur le modulateur électro-optique de façon suffisamment rapide pour se placer dans les conditions de choix retardé. L'alimentation du modulateur est effectuée au moyen d'une électronique de commutation rapide développée par Frédéric MORON et André VILLING, ingénieurs électroniciens à l'Institut d'Optique[5]. Fondée sur des composants électroniques de puissance, l'alimentation du modulateur électro-optique permet de commuter une tension de l'ordre de 300 V en 40 ns et à une cadence de 5 MHz. Le commutateur haute tension est commandé par deux signaux TTL, que nous appelerons par la suite V_0 et V_{2+}. La commande V_{2+} permet de réaliser la transition $0 \rightarrow V_\pi$, le niveau de repos du commutateur étant l'état 1 du signal TTL. Inversement, la commande V_0 permet de réaliser la transition $V_\pi \rightarrow 0$, le niveau de repos du commutateur étant l'état 0 du signal TTL. La durée minimale des impulsions TTL de commande V_0 et V_{2+} est de 50 ns. Une séquence typique de commutation de la haute tension est représentée sur la figure 3.9, révélant un temps caractéristique de montée de l'ordre de 40 ns pour commuter la tension demi-onde $V_\pi = 217$ V. Cette durée étant bien plus courte que le temps de vol des photons le long de l'interféromètre ($\tau_{\mathrm{interf}} = 160$ ns), la réalisation de l'expérience de choix retardé à l'aide de ce système expérimental devient réaliste.

[4] Nous négligeons ici la dispersion spectrale de l'EOM pour le large spectre de photoluminescence des centres NV.

[5] Cette électronique de commutation rapide avait été mise au point durant la thèse d'A. BEVERATOS pour la réalisation d'un système de cryptographie à photons uniques avec un codage en polarisation selon le protocole BB84 [77]. Son fonctionnement est décrit en détails dans le mémoire de thèse correspondant [13].

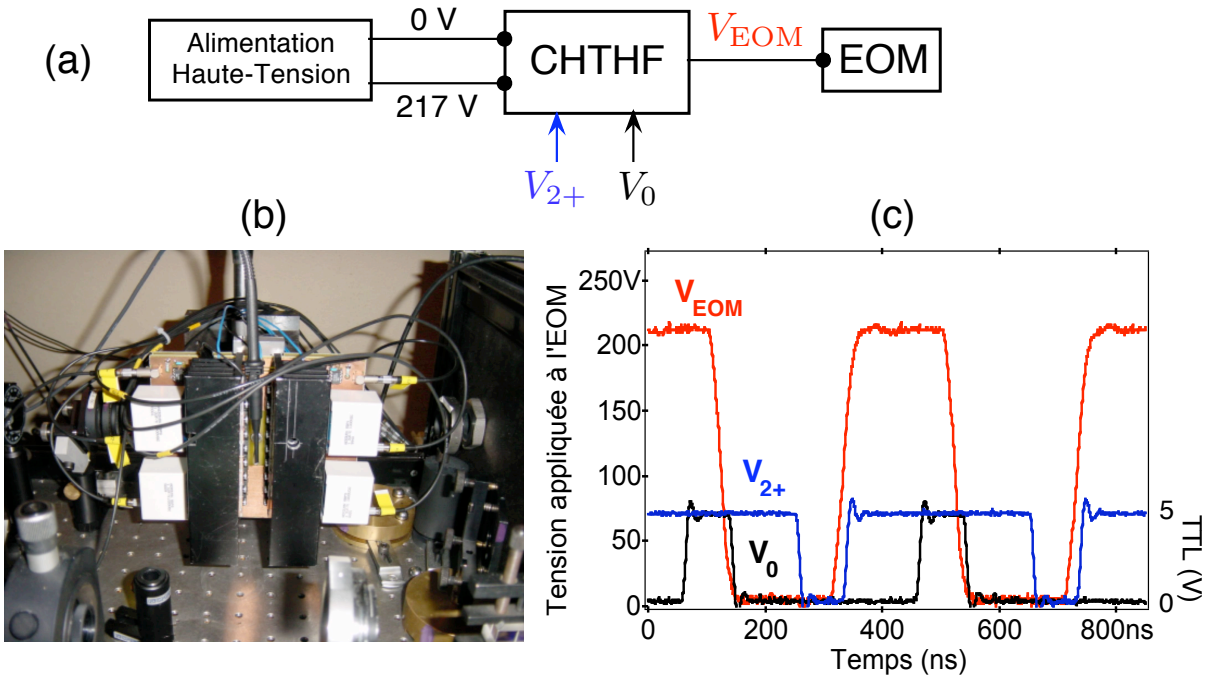


FIG. 3.9 – *(a)-Principe de fonctionnement du commutateur haute tension haute fréquence (CHTHF). Une alimentation haute tension applique deux niveaux de tensions ajustables (ici* 0 *V et* 217 *V) au CHTHF, lequel permet de basculer le signal de sortie entre ces deux niveaux de tension en fonction des impulsions TTL de commande* V_0 *et* V_{2+}*. (b)-Photographie du CHTHF, fixé directement sur l'EOM. (c)-Cette électronique permet de commuter la tension aux bormes de l'EOM,* V_{EOM}*, de* 0 *V à* $V_\pi = 217$ V *en* 40 *ns à une cadence maximale de* 5 *MHz (courbe rouge). En noir et en bleu sont respectivement représentées les impulsions de commande* V_0 *et* V_{2+}*. La commutation de la haute tension génère des champs électromagnétiques intenses qui peuvent interférer avec le reste de l'électronique. Afin de s'affranchir de ces perturbations, l'ensemble de l'électronique de commutation est isolée par une cage de Faraday, démontée pour la photographie.*

3.3.3 Tests de l'interféromètre de Jamin avec un laser

La première étape de l'expérience consiste à tester la stabilité du dispositif interférentiel. Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'interféromètre d'une longueur de 48 mètres a été installé dans un grand couloir situé au sous-sol de l'ancien bâtiment de l'Institut d'Optique, sur le campus d'Orsay.

Afin de stabiliser mécaniquement le système interférométrique, toutes les optiques le constituant ont été placées sur des poutres en granit, elles-même fixées sur des tables optiques. Une première poutre située en sortie de la source de photons uniques, constitue ce que nous appellerons le *départ* de l'interféromètre et 48 mètres plus loin, une deuxième poutre fixée sur une deuxième table optique, porte la *réception* de l'interféromètre, avec notamment le modulateur électro-optique. Afin d'éviter les courants d'air qui affecteraient inévitablement la phase des faisceaux durant la propagation, ceux-ci se propagent à travers un assemblage de tuyaux de PVC habituellement utilisés pour l'évacuation des eaux de pluie (figure 3.1).

Les tests préliminaires de l'interféromètre sont réalisés à l'aide du laser vert impulsionnel à la longueur d'onde $\lambda_{\mathrm{exc}} = 532$ nm utilisé pour exciter la photoluminescence des centres colorés NV. Lors de ces tests l'interféromètre, estt constamment utilisé dans sa configuration *fermée*, en

appliquant de manière continue la tension demi-onde $V_\pi = 172$ V au modulateur électro-optique (§3.3.2).

Dans un premier temps, nous vérifions que l'interféromètre permet d'obtenir un effet d'interférence avec un contraste aussi proche de l'unité que possible. La différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre est modifiée en appliquant une rampe de tension à une fréquence de quelques hertz au transducteur piézoélectrique permettant d'incliner le prisme décaleur de polarisation BS′ (figure 3.8). Les résultats, reproduits sur la figure 3.10-(a), révèlent un contraste de la figure d'interférence de l'ordre de 99% pour chacune des deux voies complémentaires de détection. Cette valeur est essentiellement limitée par les imperfections des optiques de polarisation.

Afin de tester la stabilité de l'interféromètre, nous enregistrons également les variations d'intensité en sortie de l'interféromètre pour une valeur donnée de la différence de chemin optique entre les deux chemins. Les variations d'intensité les plus importantes sont attendues en se plaçant à une différence de chemin optique Δ telle que $\Delta = (2p+1)\frac{\pi}{2}$, correspondant à la zone de l'interférogramme où la dérivée du signal est maximale. La stabilité du système interférométrique est évaluée par le rapport entre l'écart quadratique moyen de l'intensité lumineuse détectée divisé par sa valeur moyenne, pour une durée d'enregistrement de 40 s. Nous obtenons un rapport de 5.3%, équivalent à une variation de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre de l'ordre de quelques nanomètres, à comparer avec la longueur de 48 mètres des bras (figure 3.10-(b)). Ce résultat confirme la remarquable stabilité de l'interféromètre.

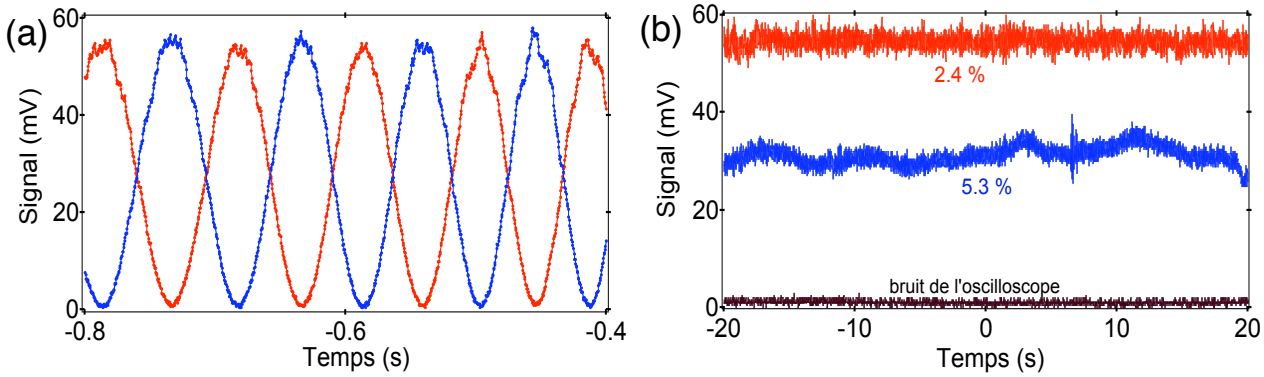


FIG. 3.10 – *Tests de l'interféromètre effectué à l'aide du laser impulsionnel à la longueur d'onde de* 532 *nm. (a)-Figure d'interférence révélant un contraste d'environ* 99% *sur chacune des deux voies complémentaires de détection lorsque la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre varie. (b)-Stabilité du système optique évaluée en se plaçant entre une frange sombre et une frange brillante (courbe bleue). Le valeur indiqué de* 5.3% *correspond au rapport entre l'écart quadratique moyen de l'intensité divisé par sa valeur moyenne, pour la durée d'enregistrement de* 40 *s. Les courbes rouge et noire correspondent respectivement à des positionnements sur une frange brillante et une frange sombre. Dans ce dernier cas, les fluctuations du signal sont confondues avec le bruit de l'oscilloscope.*

3.4 Réglage de l'interféromètre en régime de photon unique

Nous cherchons maintenant à reproduire les expériences décrites dans le paragraphe précédent en se plaçant dans le régime d'impulsions à un photon. Afin d'aligner l'interféromètre pour les photons uniques émis par un centre coloré NV individuel, nous tirons profit du fait que ceux-ci suivent le même trajet optique que le laser vert impulsionnel d'excitation. Ainsi, en ôtant le filtre spectral usuellement placé en sortie du microscope confocal afin de couper la lumière de pompe, le laser vert permet en quelque sorte de marquer le faisceau de photons uniques. Nous pensions alors qu'une fois l'interféromètre convenablement aligné sur le laser d'excitation, il en serait de même pour le faisceau de photons uniques. Nous allons voir dans cette partie, qu'il n'en est rien, en raison du chromatisme des lentilles utilisées dans les systèmes afocaux de grandissement des faisceaux, et du large spectre d'émission des centres colorés NV, conduisant à une très faible longueur de cohérence temporelle.

3.4.1 Correction du chromatisme des lentilles utilisées dans les télescopes

Un des points cruciaux pour l'alignement de l'interféromètre réside dans l'ajustement du parallélisme des faisceaux en entrée du second décaleur de polarisation (BS′), afin d'obtenir un recouvrement spatial optimal des fronts d'onde issus de chacun des deux bras de l'interféromètre. Le réglage de ce parallélisme est réalisé en ajustant, à l'aide d'une platine de translation micrométrique, la distance entre les deux lentilles du système afocal de sortie, de sorte que leurs foyers soient confondus. Comme nous l'avons déjà mentionné, l'alignement de l'interféromètre est préalablement réalisé à l'aide du laser de pompe à la longueur d'onde $\lambda_{\text{exc}} = 532\ \text{nm}$, qui suit exactement le même trajet optique que les photons uniques émis par un centre coloré NV, dont le spectre est centré autour de la valeur $\lambda_0 = 670\ \text{nm}$. En raison du chromatisme résiduel des lentilles constituant les système afocaux, qui sont pourtant des doublets, les positions de leurs foyers sont différentes aux longueurs d'onde λ_0 et λ_{exc}. Ainsi, bien que convenablement réglé pour le laser vert, l'interféromètre n'est plus suffisamment bien aligné pour les photons uniques.

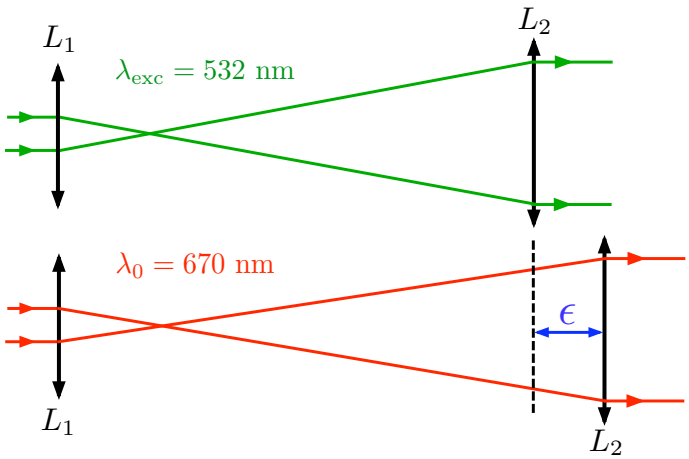


FIG. 3.11 – *Effet du chromatisme des lentilles utilisées pour les systèmes afocaux. Chacun d'entre eux est constitué de deux doublets L_1 et L_2 commercialisés par* THORLABS, *de focales respectives $f_1 = 100$ mm et $f_2 = 500$ mm et conduisant à un grandissement $\times 5$. Il est nécessaire d'augmenter la distance entre L_1 et L_2 d'une longueur ϵ pour retrouver l'alignement de l'interféromètre sur les photons de fluorescence à $\lambda_0 = 670$ nm, à partir du réglage préliminaire effectué avec le laser vert d'excitation à $\lambda_{\text{exc}} = 532$ nm.*

Pour retrouver un bon alignement de l'interféromètre dans le régime de photons uniques, il faut donc modifier d'une longueur ϵ la distance entre les deux lentilles pour chacun des deux systèmes afocaux, afin de compenser leur chromatisme résiduel, et retrouver le parallélisme des faisceaux en entrée du second décaleur de polarisation BS' (figure 3.11). La valeur de ϵ est obtenue en réalisant une simulation numérique du disposif afocal à l'aide du logiciel de calcul optique Code5 [6]. Le résultat de cette simulation donne $\epsilon \approx 800\ \mu\mathrm{m}$, qui correspond effectivement à la valeur optimale du décalage trouvée expérimentalement. Ainsi, après l'alignement de l'interféromètre à l'aide du laser vert d'excitation, nous augmentons la distance entre les lentilles de chaque dispositif afocal d'une longueur de $800\ \mu\mathrm{m}$ pour que l'interféromètre soit alors convenablement réglé pour les photons uniques.

3.4.2 Centre NV et cohérence temporelle

Un autre problème important par rapport aux tests effectués avec le laser vert, réside dans la largeur du spectre de photoluminescence des centres colorés NV, de l'ordre de $\Delta\lambda \approx 100\ \mathrm{nm}$ à température ambiante (cf. Annexe A). Cette largeur spectrale conduit à une très faible longueur de cohérence temporelle : ainsi réaliser des interférences à l'aide de photons uniques émis par un centre coloré NV est très similaire à une expérience d'interférence en lumière blanche. C'est la raison pour laquelle il est nécessaire de compenser l'interféromètre à l'aide d'une lame demi-onde, introduite avant le cristal décaleur de polarisation BS', afin de retourner les polarisations liées à chacun des chemins de l'interféromètre (figure 3.7) et symétriser ainsi les voies de l'interféromètre. Ne pas introduire cette lame reviendrait à chercher des franges d'interférences en lumière blanche pour un interféromètre de Michelson non équipé d'une lame compensatrice [133].

Pour une source de lumière de largeur spectrale $\Delta\lambda$, centrée en λ_0, l'ordre de grandeur du nombre N de franges d'interférence observables autour du contact optique, correspondant à une différence de chemin optique nulle ($\Delta = 0$) entre les deux bras de l'interféromètre, est de l'ordre de

$$N \approx \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda} \tag{3.7}$$

soit environ une dizaine de franges pour la photoluminescence des centres NV. Ainsi, au fur et à mesure que la différence de chemin optique Δ entre les deux bras de l'interféromètre augmente en valeur absolue, le contraste des franges diminue pour finir par une teinte blanche uniforme, communément dénommée *blanc d'ordre supérieur*, dès que $|\Delta|$ dépasse quelques λ_0. Pour espérer mettre en évidence un phénomène d'interférence sur les détecteurs positionnés sur les voies de sortie de l'interféromètre, il faut donc que la différence de chemin optique $|\Delta|$ soit inférieure à quelques micromètres... et cela pour un interféromètre dont les bras ont une longueur d'environ cinquante mètres.

Nous allons voir dans le paragraphe suivant comment il est possible d'atteindre le contact optique, à l'aide de l'enregistrement de spectres cannelés.

3.4.3 Recherche du contact optique : spectre cannelé de photon unique

Pour une différence de chemin optique donnée Δ, correspondant au *blanc d'ordre supérieur*, le phénomène d'interférence ne peut être mis en évidence directement sur les détecteurs placés en sortie de l'interféromètre. Les interférences n'ont cependant pas disparu. En effet, si une analyse spectrale de la lumière est réalisée en sortie de l'interféromètre, il apparaît une modulation

[6] Cette simulation a été réalisée par Hervé SAUER, de l'Institut d'Optique.

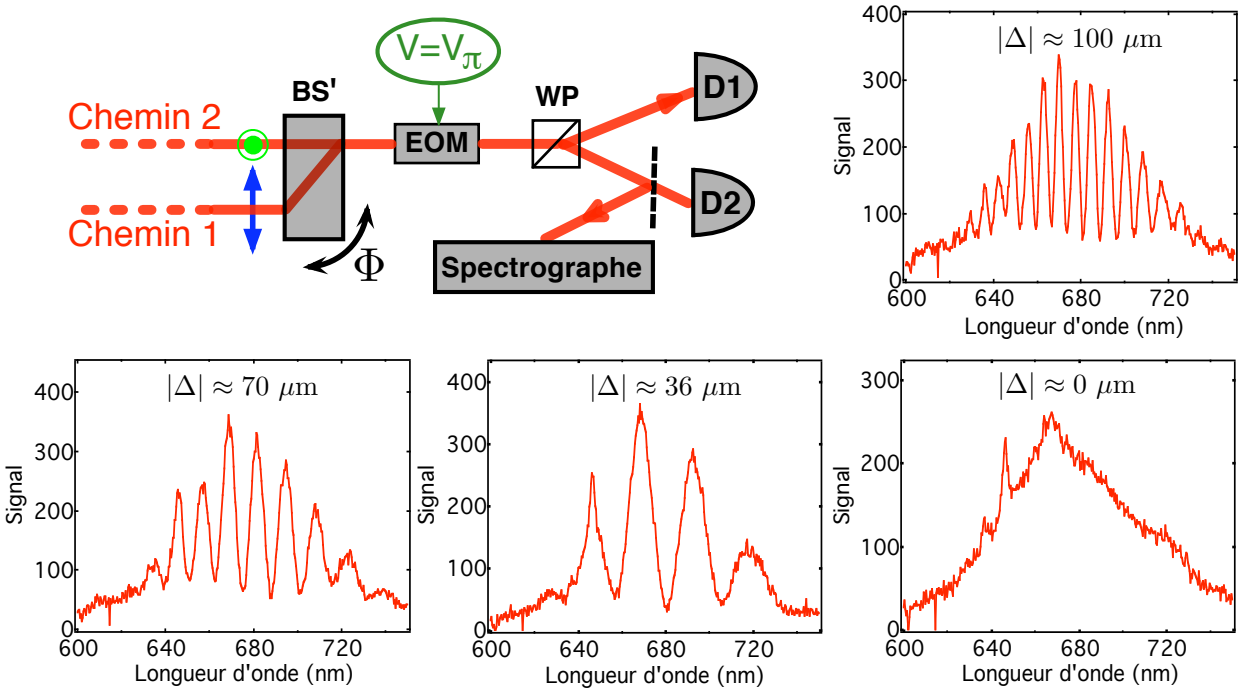


FIG. 3.12 – *Recherche du contact optique en enregistrant le spectre de photoluminescence des centres colorés NV en sortie de l'interféromètre. Cette expérience est réalisée en régime de photon unique en appliquant en continu la tension demi-onde de 217 V sur l'EOM. Les spectres sont enregistrés avec un spectrographe imageur associé à une matrice CCD (*ANDOR TECHNOLOGY*) refroidie à la température de* $-20°$C*, pour une durée d'intégration de* 30 s*. Ils présentent des cannelures dont l'écart spectral est directement relié à la différence de marche* $|\Delta|$ *entre les deux chemins de l'interféromètre. En diminuant pas à pas cette différence de chemin optique, le nombre de cannelure diminue pour finalement totalement disparaître lorsque le contact optique* $|\Delta| = 0$ *est atteint.*

périodique dans le spectre, correspondant à une succession de longueurs d'onde respectivement allumées et éteintes (figure 3.12). Il s'agit d'un *spectre cannelé* qui permet de remonter très simplement à la valeur de $|\Delta|$ et de s'approcher pas à pas du contact optique $|\Delta| = 0$. En effet, l'écart spectral entre deux cannelures, exprimé en terme de nombre d'onde $\delta\sigma_{\text{can}}$, est relié au déphasage entre les deux bras de l'interféromètre suivant la relation $\delta\sigma_{\text{can}} = \frac{1}{|\Delta|}$. Ainsi, en modifiant le déphasage entre les deux bras de l'interféromètre, c'est-à-dire en tournant de manière contrôlée le support portant le cristal décaleur de polarisation BS' à l'aide d'une platine micrométrique de rotation, nous pouvons nous rapprocher du contact optique en réduisant progressivement le nombre de cannelures. Dès lors que le spectre enregistré en sortie de l'interféromètre ne présente plus de cannelures, le contact optique est atteint. Il est alors possible de retirer le spectrographe et d'observer les interférences en photons uniques à l'aide des détecteurs positionnés sur les voies de sortie de l'interféromètre. Insistons sur le fait que les spectres cannelés reproduits sur la figure 3.12 ont été enregistrés en régime de photons uniques, illustrant à nouveau que tous les phénomènes du premier ordre prédits par l'optique classique, tels la diffraction ou les interférences, sont exactement identiques à ceux prédits par l'optique quantique, y compris pour les champs non-classiques comme les états à un photon (§ 1.2.3).

3.4.4 Tests de l'interféromètre en régime de photon unique

• Contraste des interférences

Les interférences en régime de photon unique, observées lorsque le contact optique est atteint, présentent un contraste de l'ordre de 65%, bien loin de la valeur 99% obtenue lors des tests réalisés à l'aide du laser vert d'excitation (figure 3.13-(a)). Cette mauvaise valeur du contraste est due au chromatisme des lentilles utilisées dans les systèmes afocaux, que nous avons décrit au paragraphe § 3.4.1 [7]. En effet, la correction que nous avons réalisée est efficace à la longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm, mais pas pour l'ensemble du spectre d'émission des centres colorés NV. Nous devons donc finalement filtrer spectralement le faisceau de photon unique afin de limiter ces problèmes de chromatisme. Nous retrouvons un contraste de l'ordre de 99% en utilisant un filtre spectral interférentiel de largeur 10 nm centré sur $\lambda_0 = 670$ nm [8] (figure 3.13-(d)).

Afin de réaliser des mesures non ambiguës, nous choisissons par conséquent de sacrifier une partie importante des photons émis par le centre coloré NV, afin d'obtenir un montage interférométrique dont le contraste soit optimal. La suite de l'expérience a donc été réalisée en filtrant spectralement l'émission des centres colorés NV. Notons que malgré ce filtrage spectral, qui conduit à la perte d'environ 90% des photons uniques, les taux de comptage en sortie de l'interféromètre sont encore conséquents, de l'ordre de quelques milliers de coups par seconde. Ces taux de comptage sont bien supérieurs au niveau des coups d'obscurité des photodiodes à avalanche qui correspondent à environ 100 coups par seconde pour les modèles utilisés.

• Stabilité de l'interféromètre

Nous testons également la stabilité de l'ensemble de l'expérience, constitué par l'association du microscope confocal utilisé pour détecter les centres colorés NV individuels, puis collecter les photons uniques, et de l'interféromètre. Comme précédemment lors des tests réalisés avec le laser vert d'excitation (§ 3.3.3), nous mesurons le rapport entre l'écart quadratique moyen du nombre de photons détectés par seconde divisé par sa valeur moyenne, pour une durée d'enregistrement de 100 s et en se plaçant entre une frange sombre et une frange brillante de l'interférogramme. Nous avons obtenu un rapport de 5.2%, valeur identique à celle obtenue précédemment lors des tests préliminaires avec le laser vert [9](figure 3.13-(b)).

• Mesure du paramètre chemin-suivi I

Pour clore ces tests, nous avons aussi vérifié que lorsqu'une tension nulle est appliquée à l'EOM, correspondant à la configuration *ouverte* de l'interféromètre, chacun des détecteurs D1 et D2 positionnés sur les voies de sortie est bien strictement associé à un chemin donné de l'interféromètre. Pour ce faire, nous évaluons le paramètre « chemin-suivi » I, introduit au chapitre précédent (§ 2.2.3). A titre de rappel, ce paramètre estime l'information disponible sur le chemin ayant été suivi par la particule dans l'interféromètre, une information parfaite correspondant à $I = 1$.

[7] Une autre raison à cela peut être liée au fait que la tension demi-onde appliquée au modulateur électro-optique n'est pas optimale pour l'ensemble des composantes spectrales de la photoluminescence des centres colorés NV.

[8] Le paquet d'onde présente alors une longueur spatiale de l'ordre du micromètre.

[9] Notons que lors de l'expérience de choix retardé que nous décrirons par la suite, le temps d'intégration utilisé pour l'enregistrement de chacun des points de l'interférogramme est de 1.9 s. Les résultats que nous venons de décrire montrent clairement que le système optique est d'une stabilité suffisante à cette échelle de temps de réalisation de l'expérience.

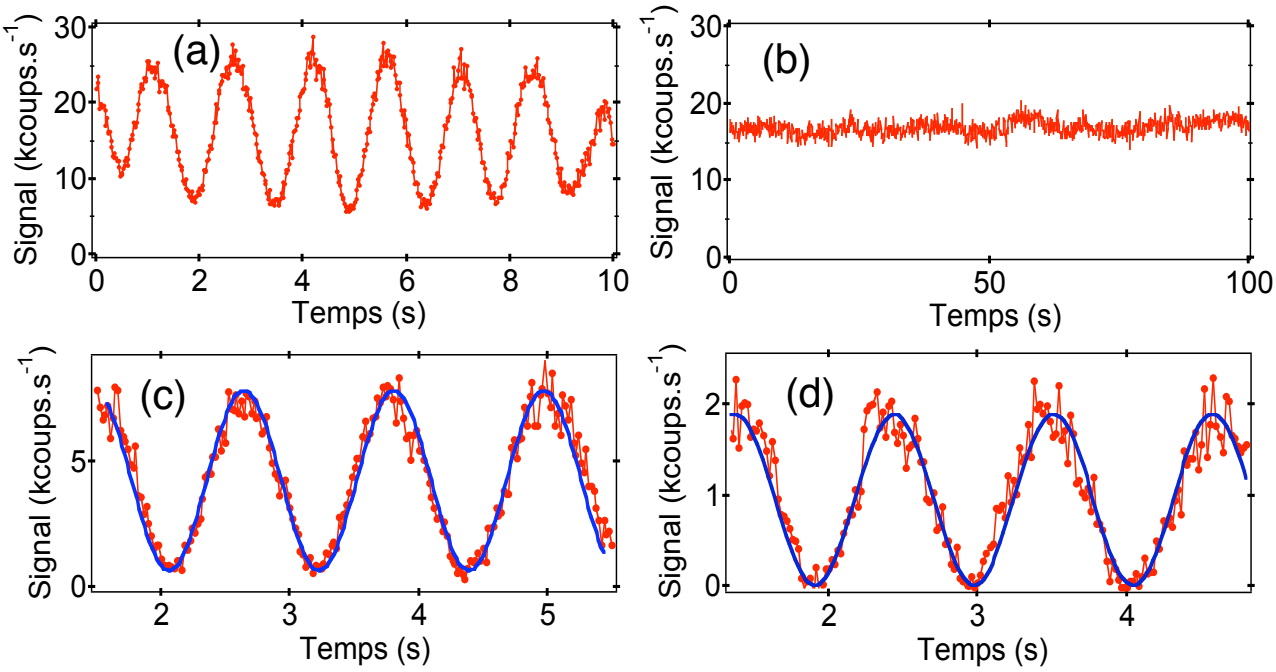


FIG. 3.13 – *Test de l'interféromètre de Jamin en régime de photons uniques après réglage de celui-ci au contact optique. Les courbes (a), (c), et (d) correspondent respectivement aux interférences obtenues sans filtrage spectral, avec un filtre spectral de largeur* 50 *nm centré à* 700 *nm et avec un filtre spectral de largeur* 10 *nm centré sur* 670 *nm. Sans filtrage (a), un contraste d'environ* 65% *est obtenu, limité par le chromatisme résiduel des doublets utilisées pour les systèmes afocaux. Sur l'enveloppe de l'interférogramme se devine également la réduction du contraste due aux effets de cohérence temporelle de la source. La courbe (d), ajustée par une sinusoïde, correspond à un contraste de l'ordre de* 99%*, tandis que le même ajustement réalisé sur la courbe (c) conduit à un contraste de* 86%*. L'enregistrement des interférogrammes est réalisé en appliquant une rampe de tension sur le transducteur piézoélectrique à une fréquence de l'ordre de* 100 *mHz. Ces données sont corrigées des coups d'obscurité des photodiodes à avalanche. (b)-Test de stabilité du montage expérimental associé à l'interférogramme (a). En se plaçant entre une frange sombre et une frange brillante de l'interférogramme, un rapport de* 5.2% *entre l'écart quadratique moyen du nombre de photons détectés par seconde et sa valeur moyenne, pour une durée d'enregistrement de* 100 *s, est obtenu.*

Dans l'esprit de la discussion sur les diverses méthodes permettant d'obtenir de l'information sur le chemin suivi que nous avons donné au § 2.3, nous sommes ici dans le cadre d'une information chemin suivi *a posteriori*, puisque que la lame séparatrice d'entrée de l'interféromètre est équilibrée. L'évaluation expérimentale du paramètre I est ainsi réalisée suivant la démarche détaillée au § 2.3.2, en bloquant successivement un bras de l'interféromètre puis l'autre, et en mesurant les quantités I_1 et I_2, définies par les équations (2.18) et (2.19). Nous obtenons un paramètre $I = I_1 + I_2 = 99 \pm 1\%$. Cette valeur confirme que dans la configuration *ouverte* de l'interféromètre, nous avons accès à une évaluation presque idéale du chemin suivi par le photon.

3.4.5 Bilan

Les résultats préliminaires obtenus en utilisant le laser vert d'excitation (§ 3.3.3) sont parfaitement reproduits en régime de photon unique. Dans la configuration *fermée* de l'interféromètre,

nous mesurons un effet d'interférence avec un contraste de 99%, tandis que la configuration *ouverte* conduit à une information sur le chemin suivi $I = 99\%$. Le prix à payer pour obtenir de telles performances est une diminution des taux de comptage en sortie de l'interféromètre, résultat du filtrage spectral que le chromatisme des doublets constituant les systèmes afocaux placés dans l'interféromètre rend nécessaire.

La procédure générale d'alignement de l'interféromètre peut finalement être résumée de la manière suivante :

1. L'interféromètre est dans un premier temps aligné au moyen du laser vert d'excitation des centres colorés NV.
2. La distance entre les lentilles constituant chacun des deux systèmes afocaux est augmentée d'une distance de $800\ \mu\mathrm{m}$ afin d'assurer l'alignement de l'interféromètre pour la source de photon unique.
3. A l'aide de l'enregistrement de spectres cannelés, l'interféromètre est amené au contact optique, correspondant à une différence de chemin optique nulle entre les deux bras de l'interféromètre.
4. Une fois l'interféromètre au contact optique, un phénomène d'interférence est mis en évidence sur les deux voies complémentaires de détection, lorsque la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre varie.
5. Un filtrage spectral de largeur 10 nm autour de la longueur d'onde centrale 670 nm permet d'obtenir des interférences avec un contraste de 99%.

On pourrait penser que l'utilisation du filtrage spectral dès le début de la procédure d'alignement permettrait de se passer de l'enregistrement de spectres cannelés. Cependant le nombre N de franges observables pour le spectre de photoluminescence filtré sur une largeur de 10 nm est de l'ordre de la centaine (equation (3.7)). Ainsi, le *blanc d'ordre supérieur* est atteint pour une différence de chemin optique de l'ordre de $50\ \mu$m. Les spectres cannelés décrits sur la figure 3.12 montrent que la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre peut être supérieure à cette valeur après l'alignement préliminaire au moyen du laser vert. Ainsi, même en filtrant il est beaucoup plus commode d'amener le dispositif proche du contact optique à l'aide de spectres cannelés dès les premières étapes de la procédure de réglage, pour obtenir un phénomène d'interférence fortement contrasté.

3.5 Rupture du lien causal

Une des conditions essentielles pour réaliser l'expérience de choix retardé consiste à s'assurer que le photon unique ne puisse bénéficier d'aucune information sur la configuration de l'interféromètre avant d'y pénétrer. Afin de satisfaire expérimentalement à cette condition, le choix de la configuration de l'interféromètre, *ouverte* ou *fermée*, doit être effectué aléatoirement. Pour ce faire, nous avons choisi d'utiliser un générateur aléatoire quantique de pile ou face, situé au niveau de la partie *réception* du dispositif. De plus, nous devons vérifier que les conditions de l'expérience sont telles que les deux événements « entrée du photon dans l'interféromètre » et « choix aléatoire de la configuration de l'interféromètre » soient séparés par un intervalle de genre espace au sens de la relativité restreinte. Dans ce cas, l'existence d'un possible lien causal entre le comportement du photon en entrée du dispositif et le choix de la configuration expérimentale sera annulé

L'objet de cette section est de décrire comment cette rupture de lien causal est réalisée expérimentalement. Nous commencerons par décrire succintement le générateur aléatoire quantique de

pile ou face, puis nous donnerons le shéma de principe de l'électronique de contrôle de l'expérience. Enfin, en décrivant la chronologie de l'expérience, nous montrerons que la condition de séparation relativiste est bien vérifiée.

3.5.1 Générateur aléatoire quantique de pile ou face

Nous voulons que le choix de la configuration de l'interféromètre, correspondant au choix de mesure entre les deux grandeurs complémentaires chemin-suivi et interférence, soit réalisé de manière aléatoire et en temps réel. En effet, dans le cas où la séquence de mesure, bien qu'issue d'une génération de nombres aléatoires, serait stockée par exemple sur un disque dur d'ordinateur, il est possible d'imaginer (cas extrême...) que le photon puisse potentiellement avoir accès à cette information pour ensuite ajuster son comportement au dispositif expérimental choisi.

Le générateur aléatoire de pile ou face est réalisé à partir du bruit de grenaille amplifié d'une photodiode. Ce bruit, communément dénommé « shot noise » en anglais, est de nature intrinsèquement quantique et peut être interprété comme la conséquence de la nature corpusculaire des porteurs de charges [134] [10]. Le nombre de porteur suit une loi de Poisson, qui de manière imagée se traduit par une arrivée désordonnée des porteurs de charge. Ainsi, lorsqu'un détecteur produit en moyenne N porteurs pendant un temps d'intégration τ, l'écart-type du nombre de porteurs est égal à $\sqrt{N}$. Ces fluctuations se traduisent par des fluctuations sur le courant moyen I_{ph} délivré par le photodétecteur, dont l'écart quadratique moyen σ_{SN} est donné par [134] :

$$\sigma_{\mathrm{SN}} = \sqrt{\frac{eI_{\mathrm{ph}}}{\tau}} \tag{3.8}$$

où e est la charge électrique de l'électron. En fonction de la bande spectrale d'analyse B, cette expression conduit à la formule de SCHOTTKY

$$\sigma_{\mathrm{SN}} = \sqrt{2eI_{\mathrm{ph}}B}\ , \tag{3.9}$$

de sorte que la variance σ_{SN}^2 du bruit de grenaille est proportionnelle à l'intensité moyenne $\overline{I_{\mathrm{ph}}}$ du photocourant délivré par la photodiode [135].

Le dispositif expérimental que nous utilisons pour réaliser le générateur aléatoire de pile ou face est constitué d'une lampe blanche alimentée en continu, d'une lentille de focalisation et d'une photodiode en silicium BPX65 (figure 3.14)). Un circuit électronique à base d'amplificateurs de tension bas bruit (AH0013) coupe la composante continue du signal délivré par la photodiode et amplifie les fluctuations du photocourant [136]. Au taux de répétition de l'expérience, qui correspond à l'horloge de l'excitation impulsionnelle d'un centre coloré NV individuel à la fréquence de 4.2 MHz, un nombre aléatoire 0 ou 1 est obtenu en échantillonnant le bruit de grenaille amplifié et en mesurant son signe par l'intermédiaire d'un comparateur électronique rapide dont le temps de réponse est de l'ordre de quelques nanosecondes. Lorsque le signe mesuré est positif, le nombre 1 est tiré, et induit l'application de la tension demi-onde V_π aux bornes du modulateur électro-optique (configuration *fermée* de l'interféromètre). Inversement, lorsque le signe mesuré est négatif, le nombre 0 est tiré, et induit une tension nulle sur le modulateur électro-optique (configuration *ouverte* de l'interféromètre).

Une analyse des performances de ce générateur aléatoire de pile ou face est donnée en annexe du manuscrit. Elle montre en particulier que le bruit utilisé pour générer une séquence de

[10] Notons qu'il est également possible d'interpréter le bruit de grenaille comme la conséquence de la nature corpusculaire de la lumière. Nos expériences ayant pour but d'illustrer la dualité onde-corpuscule pour la lumière, nous n'avons pas choisi ce point de vue.

tirages aléatoires est bien du bruit de grenaille, en vérifiant expérimentalement l'équation (3.9). De plus, l'étude de la fonction d'autocorrélation d'une séquence de tirages aléatoires montre qu'il n'existe pas de corrélations significatives entre deux tirages au sort. Nous avons ainsi réalisé un générateur aléatoire quantique de pile ou face à haut débit, dont l'aléa provient d'un phénomène quantique intrinséquement probabiliste, contrairement aux générateurs pseudo-aléatoires fondés sur l'application d'algorithmes mathématiques [137]. Ce générateur aléatoire est actuellement en cours d'optimisation, en collaboration avec le groupe de recherche dirigé par Heping ZENG à l'East China Normal University (Shanghai), dans le but de mettre au point un dispositif compact pouvant fonctionner à haute cadence.

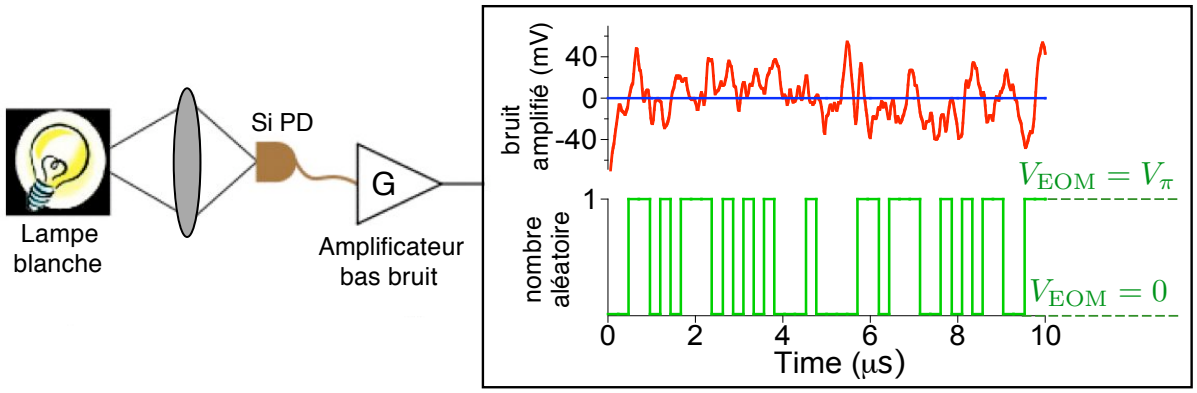


FIG. 3.14 – *Générateur quantique de pile ou face fondé sur le bruit de grenaille amplifié d'une photodiode. Au taux de répétition τ_{rep} de l'expérience , c'est-à-dire toutes les* 238 *ns, un comparateur électronique rapide mesure le signe du bruit de grenaille amplifié. Lorsque le signe mesuré est positif (resp. négatif), le nombre* 1 *(resp. 0) est tiré et la tension demi-onde V_π (resp. la tension nulle) est appliquée à l'EOM, correspondant à la configuration fermée (resp. ouverte) de l'interféromètre.*

3.5.2 Electronique de contrôle de l'expérience

Nous décrivons maintenant l'électronique de contrôle utilisée lors de l'expérience de choix retardé. La synchronisation de l'émission des photons uniques avec l'ensemble de cette électronique, permettant notamment de basculer aléatoirement entre les deux configurations de l'interféromètre, est un élément clef de l'expérience. Cette synchronisation est en effet nécessaire afin d'assurer que l'ensemble des conditions de choix retardé sont bien respectées.

Toute l'électronique est synchronisée sur les « tops » d'horloge fournis par le laser vert impulsionnel qui déclenche l'émission de photons uniques par un centre coloré NV. Pour l'expérience de choix retardé, la fréquence de cette horloge est fixée à 4.2 MHz, correspondant à une impulsion laser excitant un centre coloré toutes les $\tau_{\mathrm{rep}} = 238$ ns. Une partie du laser impulsionnel d'excitation, envoyée vers la partie *réception* du dispositif où est positionné le générateur aléatoire de pile ou face, permet ainsi d'obtenir les « tops » d'horloge au niveau de la *réception*, de façon synchrone avec l'émission des photons uniques (figure 3.15-(a)).

L'électronique a été réalisée par André CLOUQUEUR, ingénieur électronicien au Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire. Ce dispositif, décrit de manière shématique sur la figure 3.15-(a), est construit autour de deux circuits progammables FPGA (XILINX), qui assurent les opérations suivantes :

1. Le tirage du nombre aléatoire (0 ou 1) à partir du bruit de grenaille amplifié ;
2. La commande du commutateur haute-tension qui pilote la tension appliquée à l'EOM ;
3. Le fenêtrage temporel des photodiodes à avalanche permettant de réduire de façon significative le nombre effectif de coups d'obscurité de ces détecteurs.

Le premier circuit programmable FPGA1 est essentiellement utilisé pour réaliser le tirage aléatoire et pour générer un ensemble de signaux d'horloge qui seront utilisés dans le deuxième circuit programmable FPGA2. Sans entrer dans les détails, une logique combinatoire permet de générer un signal que nous dénommerons « cycle en cours » (CEC). Ce signal, d'une durée de 200 ns et déclenché tous les $\tau_{\mathrm{rep}} = 238$ ns, correspond à la fenêtre temporelle durant laquelle toutes les autres opérations seront réalisées dans le deuxième circuit, avec une précision de 10 ns et une gigue temporelle de l'ordre de la nanoseconde. Notons que le tirage du nombre aléatoire (NA) est réalisé au début du CEC, sur son front descendant (figure 3.15-(b)), suivant la procédure d'échantillonnage du bruit de grenaille décrite au paragraphe précédent.

Le deuxième circuit programmable FPGA2 utilise le résultat du tirage aléatoire ainsi que les signaux d'horloge produits dans le circuit FPGA1 pour générer les impulsions V_0 et V_{2+} qui commandent le commutateur haute-tension associé au modulateur électro-optique (§ 3.3.2). Si le nombre aléatoire 1 est tiré (resp. 0), une impulsion V_{2+} (resp. V_0) est appliquée au commutateur, permettant ainsi de basculer dans la configuration *fermée* (resp. *ouverte*) de l'interféromètre en appliquant la tension V_π (resp. une tension nulle) sur l'EOM. Pour des raisons de commodité expérimentale, nous avons également besoin d'appliquer une tension continue à l'EOM, afin de réaliser l'alignement préalable de l'interféromètre. Pour ce faire, un interrupteur permet de basculer sur trois positions différentes A, B et C, correspondant respectivement au mode de commutation aléatoire, à la tension V_π appliquée en continu à l'EOM et à une tension nulle aux bornes de l'EOM.

Le circuit FPGA2 réalise également le fenêtrage des photodiodes à avalanche. Cette opération permet de réduire le nombre de coups d'obscurité des détecteurs et sert également à rendre la totalité de la séquence temporelle parfaitement déterministe. En effet, la détection d'un photon unique en sortie de l'interféromètre à l'instant t_0, correspond à son entrée dans l'interféromètre à l'instant $t_0 - \tau_{\mathrm{interf}}$, où τ_{interf} est le temps de vol des photons dans l'interféromètre.

Le fenêtrage des détecteurs est réalisé à l'aide de 6 bascules D électroniques, permettant en quelque sorte de prendre une photographie d'un signal électrique à un instant donné. La programmation en langage VDHL du FPGA permet de choisir le nombre de bascules actives ainsi que leur positionnement dans le CEC. La largeur temporelle de la fenêtre de détection est imposée par la durée de vie radiative τ_{sp} des centres colorés NV, de l'ordre de 40 ns pour un centre coloré isolé dans un nanocristal de diamant (cf. Annexe § A.4.1). Nous avons donc choisi d'utiliser trois bascules D distantes de 20 ns, conduisant à une fenêtre de détection d'une durée $\tau_d = 40$ ns. Cette fenêtre de détection est positionnée à la fin du CEC, 160 ns après le tirage aléatoire de la configuration de l'interféromètre (figure 3.15-(b)). Cette durée étant équivalente au temps de vol des photons dans l'interféromètre, cette séquence temporelle assure que lorsqu'un photon est détecté en sortie de l'interféromètre, le choix aléatoire a été réalisé simultanément avec l'entrée de ce même photon dans le dispositif interférométrique. A l'aide de deux lignes à retards électroniques, LAR1 et LAR2 (figure 3.15-(a)), le signal de synchronisation de l'électrique de contrôle est retardé afin que les photons uniques arrivent en sortie de l'interféromètre dans la fenêtre de détection de largeur 40 ns. Ce retard correspond finalement à une translation temporelle de l'ensemble de la séquence d'opérations effectuées durant le CEC, qui est décrite sur la figure 3.15-(b).

En sortie du circuit électronique, les signaux correspondant au nombre aléatoire, aux photo-

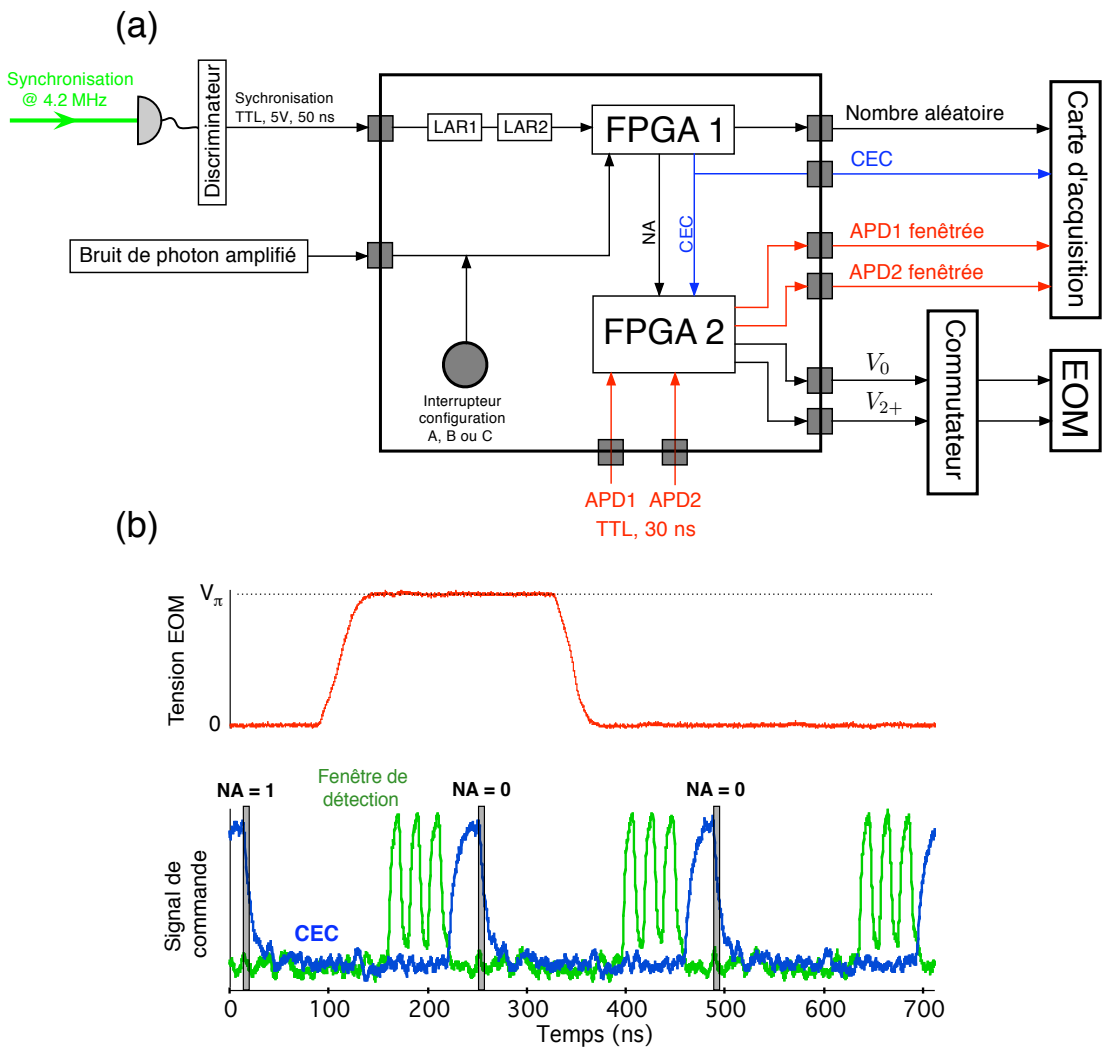


FIG. 3.15 – *(a)-Description simplifiée de l'électronique de contrôle de l'expérience de choix retardé, fondée sur deux circuits progammables de type FPGA. LAR1(resp. LAR2) : ligne à retard d'excursion* 200 *ns (resp.* 50 *ns) avec un pas de* 20 *ns (resp.* 5 *ns). (b)-Séquence temporelle typique des opérations générées par l'électronique de contrôle. Le « cycle en cours » CEC (en bleu) est déclenché par une partie du laser impulsionnel d'excitation des centres colorés NV, assurant ainsi la synchronisation entre l'électronique d'acquisition située au niveau de la partie réception du dispositif et l'émission des photons uniques. Le CEC représente la fenêtre temporelle, d'une durée de* 200 *ns, durant laquelle sont effectuées toutes les opérations. Sur le front descendant du CEC est tiré le nombre aléatoire (NA), qui permet de générer les impulsions de commande* V_0 *et* V_{2+} *qui pilotent la commutation de la haute tension sur l'EOM. A la fin du CEC, une fenêtre de détection de largeur* $\tau_d = 40$ *ns permet de diminuer le nombre de coups d'obscurité des photodiodes à avalanche. Enfin, le front montant du CEC est utilisé pour déclencher la carte d'acquisition informatique, laquelle permet d'enregistrer pour chaque CEC le résultat du tirage aléatoire et les détections de photons uniques sur les détecteurs placés sur les voies de sortie de l'interféromètre. Les lignes à retard LAR1 et LAR2 permettent d'ajuster temporellement le déclenchement du CEC afin que la fenêtre de détection de largeur temporelle* τ_d *coïncide avec l'arrivée des photons uniques.*

diodes à avalanche et au CEC sont envoyés dans une carte d'acquisition dont le déclenchement est réalisé à partir du front montant du CEC. Cette carte, interfacée au moyen du logiciel IGOR PRO permet ainsi d'enregistrer pour chaque impulsion laser appliqué à un centre coloré NV unique, la configuration de l'interféromètre ainsi que la détection éventuelle d'un photon sur l'un des deux détecteurs positionnés sur les voies de sortie de l'interféromètre.

Nous allons décrire maintenant comment cette séquence temporelle conduit à une séparation de genre espace au sens relativiste entre l'entrée du photon dans l'interféromètre et le choix de la configuration de l'interféromètre.

3.5.3 Séquence temporelle de l'expérience

La chronologie de l'expérience de choix retardé est représentée sur la figure 3.16, à l'aide d'un diagramme temps-espace.

A l'origine de l'axe d'espace se trouve l'entrée de l'interféromètre et à l'extrémité de cet axe, la sortie de l'interféromètre où est installée l'ensemble de l'électronique d'acquisition. Un centre coloré NV individuel est excité par le laser impulsionnel vert à 4.2 MHz, déclenchant ainsi l'émission d'un photon unique toutes les $\tau_{rep} = 238$ ns, dans une fenêtre d'émission de durée $\tau_{\mathrm{sp}} \approx 40$ ns, correspondant à la durée de vie de la transition de photoluminescence des centres colorés NV isolés dans un nanocristal de diamant[11]. Le photon unique se propage par la suite à la vitesse de la lumière le long de l'interféromètre de 48 mètres, correspondant à un temps de vol $\tau_{\mathrm{interf}} = 160$ ns [12]. Notons que puisque $\tau_{\mathrm{rep}} > \tau_{\mathrm{interf}}$, une seule impulsion à un photon est présente à la fois dans le dispositif expérimental.

Comme nous l'avons indiqué ci-dessus, une partie du laser vert impulsionnel d'excitation est envoyée en sortie de l'interféromètre pour synchroniser l'ensemble de l'électronique d'acquisition sur l'émission des photons uniques. Afin de tenir compte des délais de propagation ainsi que des divers temps de réponse de l'électronique de contrôle, la séquence d'opération appliquée au photon « n » est synchronisée par l'impulsion d'excitation « $n-1$ », laquelle a déclenché l'émission du photon unique « $n-1$ ».

A titre d'exemple, considérons la séquence d'opération appliquée à ce photon « n » (figure 3.16). Le tirage aléatoire de la configuration de l'interféromètre, déclenché à l'aide de l'impulsion d'excitation « $n-1$ », est réalisé simultanément avec l'entrée du photon « n » dans l'interféromètre. En fonction du résultat du tirage aléatoire (0 pour le photon « n »), la tension appliquée à l'EOM est commutée en 40 ns, après un retard électronique de 80 ns. Enfin, le photon est détecté sur les voies de sortie de l'interféromètre durant la fenêtre de détection de durée $\tau_d = 40$ ns.

Une telle chronologie assure que la commutation aléatoire de l'EOM, permettant de basculer entre les configurations *ouverte* et *fermée* de l'interféromètre, intervient bien alors que le photon est déjà entré dans l'interféromètre. En particulier, si le photon unique apparaît au début (resp. à la fin) de la fenêtre d'émission de durée τ_{sp}, il est entré dans l'interféromètre depuis 80 ns (resp. 40 ns), correspondant à une propagation de 24 m (resp. 12 m), lorsque la tension appliquée à l'EOM commence à commuter.

De plus, en tirant profit du fait que le tirage aléatoire est réalisé au niveau de la partie *réception*

[11] En pratique, la source de photons uniques n'a bien entendu pas une efficacité quantique unité. Par conséquent, nous ne détectons pas un photon unique pour chaque impulsion laser appliquée au centre coloré NV. L'explication de la séquence temporelle de l'expérience est cependant plus claire en considérant une efficacité quantique parfaite. Ceci n'altère en rien l'ensemble des conclusions que nous pourrons tirer par la suite.

[12] Par souci de clarté, la vitesse de la lumière est prise égale à l'unité dans le diagramme spatio-temporel représenté sur la figure 3.16.

du dispositif, cette chronologie nous permet de séparer les deux événements « entrée du photon dans l'interféromètre » et « choix aléatoire de la configuration de l'interféromètre » par un intervalle de genre espace au sens de la relativité restreinte. En effet, l'entrée du photon dans l'interféromètre est clairement hors du cône futur de lumière associé au choix aléatoire de configuration (figure 3.16). Plus précisément, le photon se propageant dans l'interféromètre ne croise le cône futur de lumière associé au choix aléatoire que lorsqu'il se situe approximativement au milieu de l'interféromètre. Ceci permet d'annuler tout possible lien causal entre le comportement du photon en entrée du dispositif et le choix de la configuration expérimentale. Nous sommes donc bien dans les conditions requises pour la réalisation de l'expérience de choix retardé, le photon ne pouvant disposer d'aucune information sur le dispositif expérimental de mesure avant de pénétrer dans l'interféromètre [13].

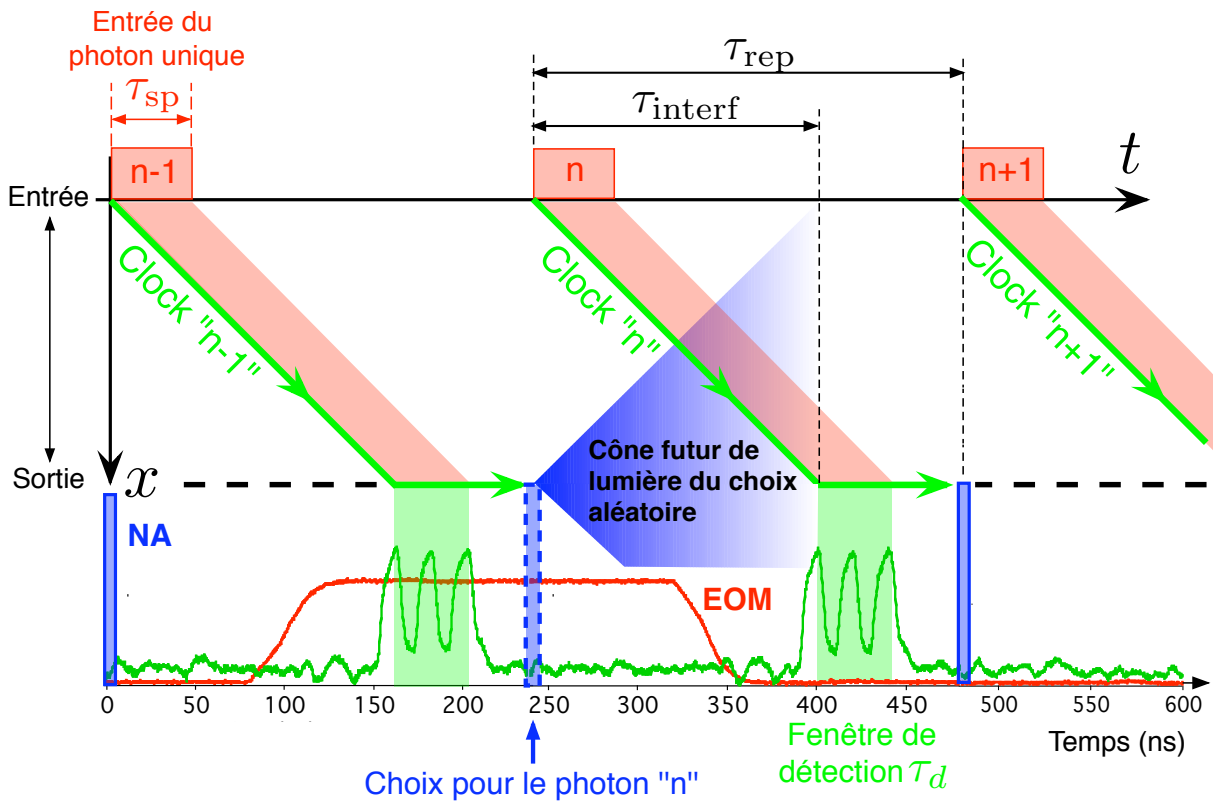


FIG. 3.16 – *Séquence temporelle de l'expérience de choix retardé représentée sous la forme d'un diagramme temps-espace. Le tirage aléatoire de la grandeur mesurée (chemin suivi ou interférence) est effectuée simultanément avec l'entrée du photon dans l'interféromètre. Ainsi, le cône futur de lumière associé au choix de la configuration de l'interféromètre croise le photon lorsque celui-ci se situe approximativement au milieu de l'interféromètre. Ceci assure sans ambiguïté la condition de séparation relativiste qui est requise pour la réalisation de l'expérience de choix retardé.*

[13] Nous admettons bien entendu pour ce raisonnement que la relativité restreinte est valide et qu'il ne peut donc y avoir de transmission d'information à une vitesse supérieure à la vitesse de la lumière dans le vide.

3.6 Résultats de l'expérience de choix retardé

3.6.1 Mesure du paramètre de corrélation A

Nous avons vérifié que nous bénéficions d'un interféromètre dont le contraste est proche de l'unité (§3.4.3) et que la condition de séparation relativiste est bien vérifiée (§ 3.5). Pour remplir complètement le cahier des charges imposé pour la réalisation de l'expérience de choix retardé, il nous reste à nous assurer que l'expérience est bien réalisée avec des impulsions lumineuses contenant un photon et un seul. Pour cela, nous réalisons en sortie de l'interféromètre une mesure du paramètre de corrélation A, dont la définition est donnée au § 1.2.4. A titre de rappel, ce paramètre est strictement équivalent à la valeur $g^{(2)}(0)$ de la fonction d'autocorrélation du second ordre au retard nul . En considérant N_T impulsions lasers de pompe appliquées au centre coloré NV, correspondant à N_1 (resp. N_2) détections sur le chemin 1 (resp. 2) , et N_C détections en coïncidence, rappelons que le paramètre de corrélation A s'écrit (cf. § 1.4.1) :

$$A = \frac{N_C \times N_T}{N_1 \times N_2} \tag{3.10}$$

La mesure du paramètre A est dans un premier temps réalisée en utilisant continûment l'interféromètre dans sa configuration *ouverte*, correspondant à l'application d'une tension nulle à l'EOM. Pour cette expérience de contrôle, la photoluminescence du centre coloré NV n'est pas filtrée spectralement, afin d'obtenir des taux de comptages en sortie de l'interféromètre conduisant à des durées d'acquisition qui ne soient pas trop longues. Nous avons obtenu une valeur du paramètre de corrélation $A = 0.11 \pm 0.02$, confirmant sans ambiguïté que nous travaillons bien en régime de photon unique. L'ensemble des conditions requises pour la réalisation de l'expérience de choix retardé est donc désormais rempli.

3.6.2 Effet du tirage aléatoire de la configuration de l'interféromètre

L'expérience de choix retardé est finalement réalisée en choisissant de manière aléatoire la tension appliquée à l'EOM, correspondant au choix aléatoire entre la configuration *ouverte* ou *fermée* de l'interféromètre, et en filtrant la photoluminescence des centres colorés NV pour optimiser le contraste des interférences (cf. § 3.4.4).

Pour chaque photon envoyé dans l'interféromètre, nous enregistrons le résultat du tirage aléatoire ainsi que la potentielle détection d'un photon par les détecteurs D1 et D2 positionnés sur les voies de sortie de l'interféromètre. Pour piloter l'expérience et enregistrer les données, nous avons conçu un programme à l'aide du logiciel IGOR PRO, qui permet d'une part de contrôler la tension appliquée au PZT, qui contrôle la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre, et d'autre part de lire les informations enregistrées sur la carte d'acquisition (figure 3.15-(a)). La tension appliquée au PZT est modifiée pas à pas, avec un pas typique de l'ordre de 0.5 V qui correspond à une modification de la différence de marche d'environ 40 nm. La durée d'enregistrement est fixée à 1.9 s pour chaque position du PZT, correspondant à la détection d'environ 2000 photons. Toutes les données sont sauvegardées en temps réel et sont traitées à la fin de l'expérience. Pour chaque position du PZT, le programme IGOR trie alors les événements correspondant à chacune des deux configurations de l'interféromètre, faisant alors apparaître les résultats reproduits sur la figure 3.17.

Pour les événements correspondant à la configuration *fermée* de l'interféromètre, nous observons un phénomène d'interférence avec un contraste $C = 94 \pm 1\%$, dont l'écart à l'unité est attribué à un recouvrement imparfait des fronts d'onde associés aux deux chemins d'interférence.

Lorsque le tirage aléatoire conduit à la configuration *ouverte* de l'interféromètre, le phénomène d'interférence disparaît, et des probabilités de détection égales ($50 \pm 1\%$) sont mesurées sur les voies de sortie de l'interféromètre. Pour les données enregistrées en configuration ouverte de l'interféromètre, nous évaluons un paramètre de corrélation $A = 0.12$, compatible avec le résultat obtenu sans se placer en régime de choix retardé (§ 3.6.1).

Nous avons également évalué indépendamment le paramètre chemin-suivi I en régime de choix retardé en coupant l'un des deux bras de l'interféromètre, suivant la procédure décrite au § 2.2.3. Dans la configuration *ouverte*, nous mesurons $I = 99\%$ correspondant à une quasi parfaite connaissance du chemin suivi par le photon dans l'interféromètre. Dans la configuration *fermée*, un paramètre $I = 2\%$ est obtenu, traduisant une absence quasi-totale d'information sur le chemin-suivi.

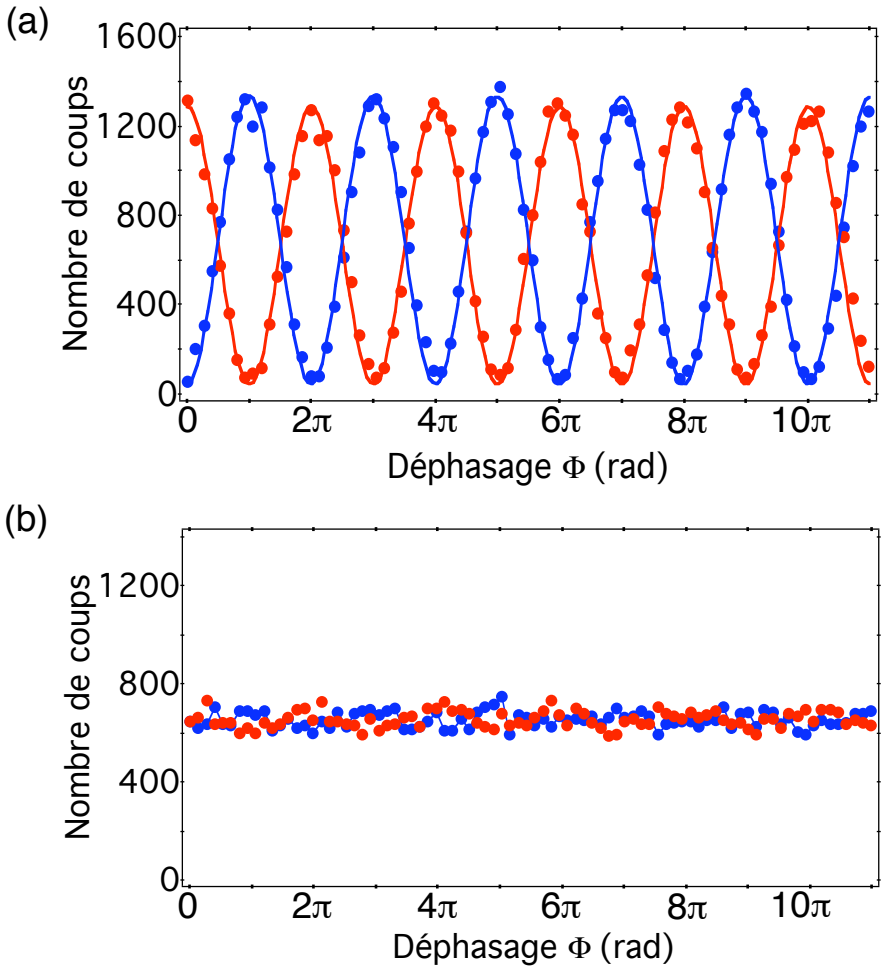


FIG. 3.17 – *Résultat final de l'expérience de choix retardé. (a)-Lorsque la tension demi-onde V_π est appliquée aléatoirement à l'EOM, un phénomène d'interférence avec un contraste de $94 \pm 1\%$ est obtenu. (b)-Lorsqu'une tension nulle est appliquée à l'EOM, les interférences disparaissent, correspondant à une parfaite détermination du chemin suivi par le photon dans l'interféromètre. Notons que les coups d'obscurité des photodiodes à avalanche, 59 coups.s^{-1} pour D1 (en bleu) et 70 coups.s^{-1} pour D2 (en rouge), ont été soustraits des données.*

3.6.3 Discussion

Rappelons que le but de l'expérience de choix retardé est de mettre en défaut une interprétation de la dualité onde-corpuscule selon laquelle une impulsion de lumière se comporterait comme une onde **ou** une particule en fonction du dispositif expérimental utilisé. Nous donnons maintenant une analyse quantitative d'une telle interprétation et nous confrontons ses prédictions aux résultats expérimentaux que nous venons de décrire [138].

Dans une théorie « onde **ou** particule », qui permettrait de conférer une réalité physique de type soit onde ou soit particule à l'état de lumière considéré, le comportement de celui-ci est quantifié par la probabilité p_w de se comporter comme une onde et la probabilité complémentaire $p_p = 1 - p_w$ de se comporter comme une particule. La dépendance de la probabilité p_w avec la configuration de l'interféromètre est caractérisée par les probabilités $p_{w|o}$ et $p_{w|f}$ d'un comportement ondulatoire quand l'interféromètre est respectivement *ouvert* ou *fermé*. La probabilité p_w est ainsi définie par la relation :

$$p_w = p_f \times p_{w|f} + p_o \times p_{w|o} \tag{3.11}$$

où p_o et p_f correspondent respectivement aux probabilités que l'interféromètre soit dans la configuration *ouverte* ou *fermée*.

Pour une expérience de choix retardé, la rupture de lien causal entre le choix de la configuration de l'interféromètre et l'entrée de l'état de lumière dans l'interféromètre impose la contraine :

$$p_{w|o} = p_{w|f} \ . \tag{3.12}$$

Lorsque l'interféromètre est *fermé*, le contraste C des interférences quantifie la nature ondulatoire de l'état de lumière, qui emprunte simultanément les deux voies de l'interféromètre. Si l'état de lumière se comporte comme une particule, elle doit choisir entre l'un des deux chemins et n'est pas sensible à leur différence de marche, conduisant à $C = 0$. Ainsi, le contraste des interférences et la probabilité $p_{w|f}$ d'un comportement ondulatoire quand l'interféromètre est *fermé* sont liés par l'inégalité :

$$C \leq p_{w|f} \ . \tag{3.13}$$

Lorsque l'interféromètre est *ouvert*, le paramètre de corrélation A constitue une mesure de la nature corpusculaire de l'état de lumière. Il obéit à l'inégalité $A \geq 1$ lorsque celui-ci se comporte comme une onde et devient égal à 0 pour un comportement de type corpuscule. Ce paramètre est lié à la probabilité $p_{w|o}$ d'un comportement ondulatoire pour la configuration *ouverte* de l'interféromètre par l'inégalité :

$$A \geq p_{w|o} \ . \tag{3.14}$$

En utilisant la relation (3.12), le contraste C et le paramètre de corrélation A doivent ainsi vérifier l'inégalité :

$$A \geq C \tag{3.15}$$

Cette relation indique que les résultats d'une expérience de choix retardé réalisée avec des impulsions lasers atténuées pour lesquelles $A = 1$ peuvent entièrement être expliqués à l'aide d'une théorie « onde **ou** particule », même lorsque la condition de séparation relativiste est vérifiée (figure 3.18). Par contre, les résultats expérimentaux décrits au paragraphe précédent, correspondant à $C = 94\%$ et $A = 12\%$, ne peuvent être expliqués à l'aide d'une telle théorie, à moins de considérer une imperfection du générateur aléatoire de pile ou face, conduisant à une corrélation entre tirages au sort successifs et partant à une fuite d'information du générateur aléatoire vers l'état de lumière en entrée de l'interféromètre.

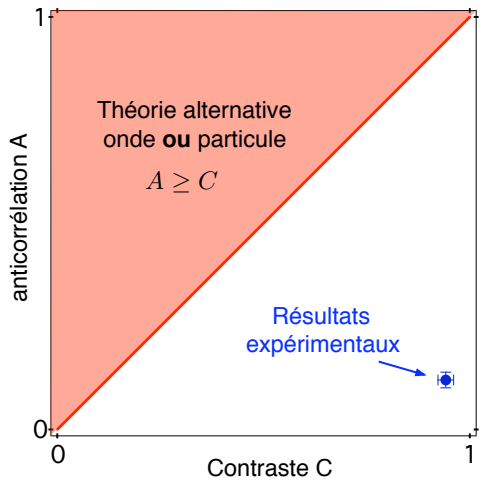


FIG. 3.18 – *Critère quantitatif permettant de discuter les résultats d'une expérience de choix retardé réalisée en remplissant la condition de séparation relativiste. L'utilisation d'une théorie alternative pour laquelle l'état de lumière se comporte soit comme onde, soit comme particule conduit à l'inégalité $A \geq C$ (zone représentée en rouge). Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus (point bleu) invalident sans ambiguité cette relation.*

Afin de quantifier la fuite d'information nécessaire pour pouvoir expliquer nos résultats expérimentaux à l'aide d'une théorie « onde **ou** particule », il est nécessaire d'évaluer une borne inférieure pour la probabilité que l'état de lumière « devine » correctement la configuration de l'interféromètre. Cette probabilité est caractérisée par la probabilité conditionnelle $p_{f|w}$ (resp. $p_{o|p}$) que l'interféromètre soit fermé (resp. ouvert) sachant que l'état de lumière a choisi de se comporter comme une onde (resp. une particule). Pour évaluer cette probabilité, nous utilisons le théorème de BAYES qui stipule que :

$$p_{f,w} = p_f \times p_{w|f} = p_w \times p_{f|w} \ , \tag{3.16}$$

où $p_{f,w}$ est la probabilité conjointe que l'interféromètre soit fermé et que la particule se comporte comme une onde. Cette relation peut également s'écrire sous la forme :

$$p_{f|w} = \frac{p_f \times p_{w|f}}{p_w} = \frac{p_f \times p_{w|f}}{p_o \times p_{w|o} + p_f \times p_{w|f}} \ . \tag{3.17}$$

Dans les conditions expérimentales que nous nous sommes fixées, les probabilités p_f et p_o sont égales à $1/2$. La relation (3.17) devient ainsi :

$$p_{f|w} = \frac{p_{w|f}}{p_{w|f} + p_{w|o}} \tag{3.18}$$

En utilisant les relations (3.14) et (3.15), la probabilité conditionnelle $p_{f|w}$ pour que l'interféromètre soit *fermé* sachant que l'état de lumière a choisi de se comporter comme une onde est contrainte par l'inégalité :

$$p_{f|w} \geq \frac{C}{C + A} \ . \tag{3.19}$$

En suivant une démarche similaire, la probabilité conditionnelle $p_{o|p}$ pour que l'interféromètre soit ouvert sachant que l'état de lumière a choisi de se comporter comme une particule satisfait à

la relation :

$$p_{o|p} = \frac{1 - p_{w|o}}{2 - p_{w|o} - p_{w|f}} \geq \frac{1 - A}{2 - C - A}. \tag{3.20}$$

En utilisant les résultats expérimentaux de l'expérience de choix retardé, nous obtenons finalement :

$$p_{f|w} \geq 88\% \text{ et } p_{o|p} \geq 93\% \tag{3.21}$$

En considérant que la probabilité de deviner correctement la configuration de l'interféromètre est symétrique, c'est-à-dire que $p_{f|w} = p_{o|p}$, cette probabilité doit ainsi être supérieure à 93% pour expliquer les résultats expérimentaux. Cette valeur est incompatible avec les performances du générateur aléatoire de pile ou face (cf. Annexe B) qui présente une corrélation maximale entre tirages au sort de l'ordre de 4%, correspondant à $p_{f|w} = p_{o|p} = 52\%$.

Pour expliquer nos résultats à l'aide de la théorie « onde **ou** particule » que nous venons de décrire, il faudrait par conséquent admettre qu'une information non-locale soit disponible par la particule en entrée de l'interféromètre...

L'autre solution est de choisir une théorie duale « onde **et** particule », telle l'interprétation standard de la mécanique quantique, pour laquelle l'état de lumière se comporte simultanément comme onde **et** particule, bien que ces deux images classiques soient mutuellement exclusives et indissociables de la configuration de mesure selon le principe de complémentarité. Aucune non-localité n'est alors nécessaire pour expliquer les résultats expérimentaux.

Nous voulons également mentionner une interprétation alternative à la mécanique quantique standard, due à D. J. BOHM et L. DE BROGLIE, et traditionnellement dénommée « théorie de l'onde pilote » [139, 140]. Selon cette interprétation, décrite en détail dans la référence [141], les trajectoires des particules s'orientent en fonction d'un potentiel quantique agissant sur la fonction d'onde satisfaisant à l'équation de Schrödinger. Cette interprétation permet d'expliquer l'ensemble des résultats de l'expérience de choix retardé sans qu'il soit nécessaire d'introduire la non-localité [142] et en donnant à l'état de lumière une réalité physique simultanée d'onde et de particule. A notre connaissance, aucune expérience n'a été réalisée à ce jour, qui permette d'invalider l'interprétation de l'onde pilote. Notons cependant que cette interprétation ne conduit à aucune prédiction différente de celles proposées par l'interprétation standard de la mécanique quantique. En particulier, la théorie de l'onde pilote nécessite également l'introduction de non localité pour expliquer les expériences à deux particules, telles celles réalisées lors de violation des inégalités de BELL [143].

3.7 Test de l'inégalité de complémentarité en régime de choix retardé

Lors du chapitre précédent (§ 2.2.3), nous avons introduit l'inégalité de complémentarité :

$$C^2 + I^2 \leq 1 \tag{3.22}$$

où C est le contraste de la figure d'interférence, constituant une mesure de l'information sur la nature ondulatoire de la source, et I est le paramètre chemin-suivi, permettant de quantifier l'information disponible sur le chemin suivi par la particule dans l'interféromètre, et par conséquent associé à une information de nature corpusculaire sur l'état de lumière.

Pour l'expérience de choix retardé que nous venons de décrire, nous avons finalement réalisé une expérience en « tout ou rien ». En effet, lorsque l'interféromètre est utilisé dans la configuration *fermée*, nous obtenons une information presque parfaite sur la nature ondulatoire de l'état de

lumière, en mesurant un contraste des interférences proche de l'unité. L'information sur le chemin suivi par la particule dans l'interféromètre est alors indisponible, soit $I \approx 0$ (§ 3.6.2). Inversement, lorsque l'interféromètre se trouve dans la configuration *ouverte*, l'information sur le chemin suivi est égale à l'unité ($I = 1$) mais aucune information sur la nature ondulatoire de la lumière n'est mesurable puisque les interférences ont disparu ($C \approx 0$).

Afin de tester la validité de l'inégalité de complémentarité en régime de choix retardé et en utilisant des photons uniques, nous nous intéressons désormais à des régimes intermédiaires pour lesquels les informations de type ondulatoire (C) et corpusculaire (I) sont partielles.

3.7.1 Principe de l'expérience

Dans l'esprit de la discussion donnée § 2.3, seule une information chemin suivi *a posteriori* offre la possibilité d'un test expérimental de l'inégalité de complémentarité en régime de choix retardé.

A l'aide de notre dispositif expérimental, ceci est réalisé lorsque la lame de sortie de l'interféromètre $\mathrm{BS_{out}}$, constituée par l'association du décaleur de polarisation en $\mathrm{YVO_4}$ (BS′), du modulateur électro-optique (EOM) et du prisme de Wollaston (WP), est déséquilibrée (figure 3.19). Le coefficient de réflexion en intensité R d'une telle lame de sortie dépend de la tension V_{EOM} appliquée aux bornes de l'EOM selon la relation :

$$R = \sin^2 2\beta \left(\sin \frac{\pi V_{\mathrm{EOM}}}{2\, V_\pi} \right)^2 \tag{3.23}$$

où V_π est la tension demi-onde de l'EOM et β l'angle que font ses axes optiques avec les directions de polarisation S et P liées aux deux chemins de l'interféromètre. Ainsi, lorsque $\beta = 22.5°$, correspondant à un alignement optimal de l'interféromètre, il est possible de varier continûment la valeur du coefficient de réflexion entre $R = 0$ lorsque $V_{\mathrm{EOM}} = 0$ et $R = \frac{1}{2}$ lorsque $V_{\mathrm{EOM}} = V_\pi$.

Pour une valeur donnée R du coefficient de réflexion, le calcul de l'intensité en sortie de l'interféromètre effectuée pour une onde classique conduit à la relation :

$$C = 2\sqrt{R(1-R)}\,. \tag{3.24}$$

En utilisant un raisonnement fondé sur le comportement d'une particule classique en incidence sur la lame séparatrice de sortie, nous avons montré au § 2.3.2, que l'information disponible

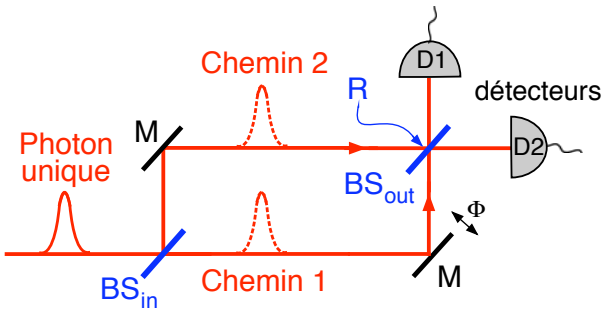


FIG. 3.19 – *Principe de l'expérience de test de l'inégalité de complémentarité en régime de choix retardé. La valeur du coefficient de réflexion en intensité R de la lame de sortie $\mathrm{BS_{out}}$ d'un interféromètre de Mach-Zehnder est basculée aléatoirement entre les valeurs zéro et R alors que l'impulsion à un photon a déjà traversé la lame séparatrice d'entrée $\mathrm{BS_{in}}$ de l'interféromètre.*

sur le chemin suivi est quantifiée dans une telle situation par :

$$I = 1 - 2R\,. \tag{3.25}$$

Afin de tester la validité de l'inégalité de complémentarité en régime de choix retardé, il s'agit donc, pour une valeur donnée de la tension V_{EOM} appliquée ou non à l'EOM de façon aléatoire (associé à une valeur R du coefficient de réflexion de la lame de sortie), de mesurer de manière indépendante le contraste de la figure d'interférence et le paramètre chemi-suivi I. Ce dernier est évalué en mesurant successivement les quantités I_1 et I_2 définies par les équations (2.18) et (2.19), en coupant le chemin 2 de l'interféromètre puis le chemin 1 (cf. § 2.3.2).

3.7.2 Résultats

A nouveau, nous vérifions dans un premier temps que nous travaillons bien en régime de photons uniques, en mesurant le paramètre de corrélation A en sortie de l'interféromètre. Pour la série d'expériences que nous décrivons maintenant, une valeur $A = 0.15 \pm 0.01$ a été obtenue [14].

Expérience en régime de choix non retardé

L'expérience est d'abord testée sans réaliser le tirage aléatoire de la configuration de l'interféromètre. Une tension V_{EOM} est ainsi appliquée en continu au modulateur électro-optique, correspondant à une lame séparatrice de sortie déséquilibrée ayant un coefficient de réflexion en intensité R donné par la relation (3.23).

Nous mesurons tout d'abord le contraste C de la figure d'interférence, puis en bloquant successivement un bras puis l'autre de l'interféromètre, nous évaluons le paramètre chemin suivi I, qui nous renseigne sur l'information disponible sur le chemin suivi par le photon dans l'interféromètre.

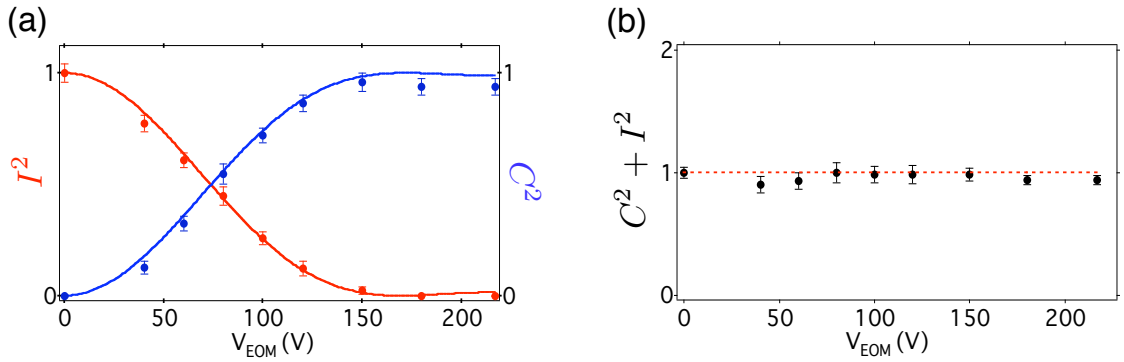


FIG. 3.20 – *Résultats de l'expérience de test de l'inégalité de complémentarité sans tirage aléatoire de la configuration de l'interféromètre. (a)- Mesure des paramètres I^2 (points en rouge) et C^2 (points en bleu) en fonction de la tension appliquée à l'EOM. L'ajustement des données (lignes en trait plein) à l'aide des équations* (3.25) *et* (3.24) *conduit à $\beta = 24.0 \pm 0.5°$. (b)-Valeur de $C^2 + I^2$ en fonction de la tension appliquée à l'EOM. Une moyenne de l'ensemble des résultats conduit à $C^2 + I^2 = 0.96 \pm 0.03$, saturant ainsi l'inégalité de complémentarité en régime de photon unique.*

[14] La raison pour laquelle cette valeur de A est différente de celle obtenue au § 3.6.1 résulte simplement de l'utilisation d'un centre coloré NV individuel différent.

Les résultats de cette expérience, décrits sur la figure 3.20, montrent que l'inégalité de complémentarité est bien vérifiée. Un ajustement des résultats expérimentaux à l'aide des formules (3.24) et (3.25) en fonction de la tension appliquée à l'EOM, conduit à la valeur $\beta = 24.0 \pm 0.5°$. Notons que lors de cette opération, β est le seul paramètre ajustable, puisque la tension demi-onde V_π avait été mesurée indépendamment égale à 217 V (cf. § 3.3.2).

Cet ajustement révèle ainsi un défaut dans l'alignement de l'interféromètre lors des expériences de test de l'inégalité de complémentarité. Cet alignement étant délicat et fastidieux, nous avons décidé de ne pas modifier l'orientation de l'EOM pour les expériences en choix retardé. Pour un tel angle β, la valeur $R = \frac{1}{2}$ du coefficient de réflexion en intensité de $\mathrm{BS_{out}}$, est obtenue pour une tension $V_{\mathrm{EOM}} \approx 170$ V appliquée à l'EOM.

Expérience dans le régime de choix retardé

L'expérience est reproduite en se plaçant en régime de choix retardé. La tension appliquée aux bornes du modulateur électro-optique est ainsi choisie de manière aléatoire entre la valeur nulle ($V_{\mathrm{EOM}} = 0$) et une valeur V_{EOM} ajustable, suivant la séquence temporelle décrite au § 3.5.3 qui assure les conditions de choix retardé.

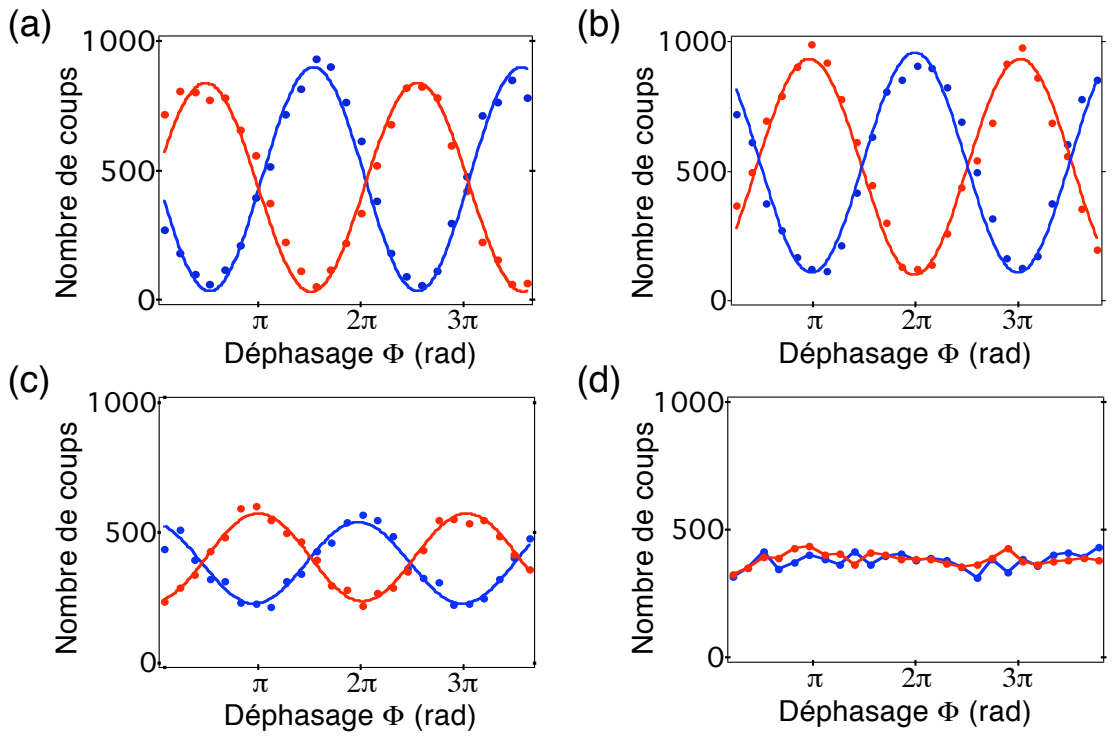


FIG. 3.21 – *Evolution du contraste de la figure d'interférence pour différentes valeurs de la tension appliquée aléatoirement à l'EOM. Les figures (a), (b), (c) et (d) correspondent respectivement à des tensions égales à* 150 *V* ($C = 93 \pm 2\%$), 90 *V* ($C = 80 \pm 2\%$), 40 *V* ($C = 42 \pm 2\%$), *et* 0 *V* ($C = 0$). *La durée d'enregistrement est fixée à* 1.9 *s pour chaque point de l'interférogramme et les coups d'obscurité des photodiodes à avalanche,* 59 *coups.s*$^{-1}$ *pour le détecteur D1 (en bleu) et* 70 *coups.s*$^{-1}$ *pour le détecteur D2 (en rouge), ont été soustraits des données.*

L'enregistrement puis le traitement des données sont effectués suivant la procédure décrite au § 3.6.2. Pour une valeur donnée de la tension V_{EOM} appliquée aléatoirement à l'EOM, nous mesurons dans un premier temps le contraste de la figure d'interférence. La figure 3.21 reproduit les interférogrammes obtenus pour diverses valeurs de la tension V_{EOM}.

En bloquant successivement l'un puis l'autre bras de l'interféromètre et pour chaque valeur de la tension appliquée aléatoirement à l'EOM, nous évaluons ensuite l'information disponible sur le chemin suivi en mesurant le paramètre I. Notons que cette mesure est également réalisée en régime de choix retardé.

Les résultats de ces expériences, reproduits sur la figure 3.22, montrent que l'inégalité de complémentarité est bien satisfaite en régime de choix retardé. Aucune différence n'est observée entre ces résultats et ceux obtenus précédemment en fixant la configuration de l'interféromètre (figure 3.20).

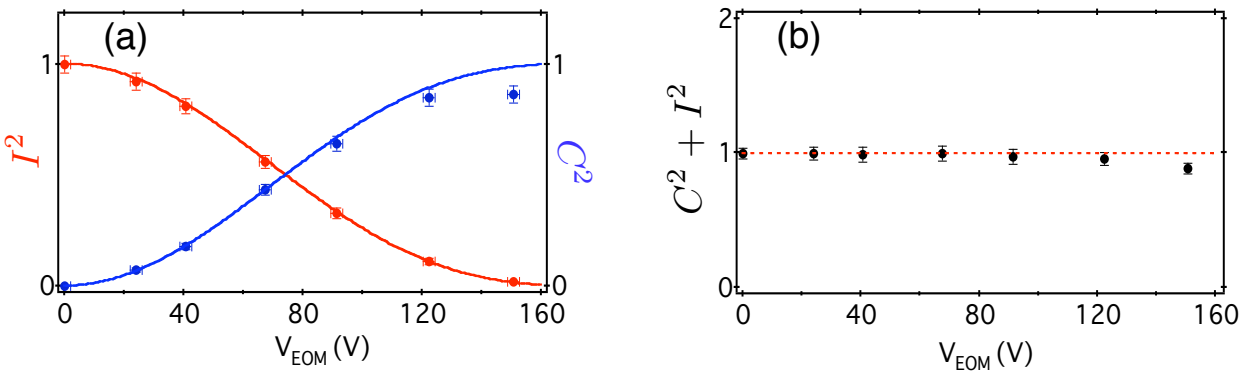


FIG. 3.22 – *(a)-Paramètres I^2 (points en rouge) et C^2 (points en bleu) en fonction de la tension appliquée à l'EOM. Les lignes en trait plein représentent les fonctions théoriques données par les équations 3.25 et 3.24, avec $V_\pi = 217$ V et $\beta = 24.0°$. (b)-Valeur de $C^2 + I^2$ en fonction de la tension appliquée à l'EOM. Une moyenne de l'ensemble des résultats conduit à $C^2 + I^2 = 0.97 \pm 0.04$, confirmant la validité de l'inégalité de complémentarité dans le régime de choix retardé.*

3.8 Conclusion

Les résultats de l'expérience de choix retardé illustrent la nécessité de considérer l'objet quantique d'étude et l'appareil de mesure comme une seule et même entité. En particulier, le comportement d'un état de lumière à un photon dans un interféromètre dépend du choix de la configuration de mesure, même lorsque ce choix est réalisé aléatoirement et séparé par un intervalle de genre espace de l'entrée du photon dans l'interféromètre. Ainsi, aucune réalité physique classique ne saurait être attribuée au photon indépendamment de l'appareil de mesure, comme le stipule le principe de complémentarité. Comme le souligne Niels BOHR, « it obviously can make no difference as regards observable effects obtainable by a definite experimental arrangement, whether our plans of constructing or handling the instrument are fixed beforehand or whether we prefer to postpone the completion of our planning until a later moment when the particle is already on its way from one instrument to another » [144].

Cependant, il n'est pas possible de considérer que l'état de lumière en entrée de l'interféromètre

adapte sa nature ondulatoire **ou** corpusculaire en fonction du dispositif expérimental de mesure. Pour expliquer les résultats de l'expérience de choix retardé, il est nécessaire de considérer que l'état de lumière se comporte simultanément comme une onde **et** une particule, bien que ces deux images classiques soient mutuellement exclusives.

Deuxième partie

Amélioration des performances de sources de photons uniques

Chapitre 4

Source de photons uniques dans le proche infrarouge pour la cryptographie quantique

Sommaire

4.1 Introduction **107**
4.2 Le centre coloré NE8 du diamant **109**
4.3 Détection de centres NE8 uniques dans le diamant massif **110**
4.3.1 Dispositif expérimental de microscopie confocale 110
4.3.2 Spectre de luminescence et dispersion spectrale 112
4.3.3 Photostabilité 113
4.3.4 Mesure de corrélations de photons 114
4.4 Analyse des paramètres photophysiques des centres NE8 . . . . . **116**
4.4.1 Modèle à trois niveaux 116
4.4.2 Durée de vie du niveau excité 118
4.4.3 Niveau métastable 120
4.4.4 Courbe de saturation 122
4.5 Conclusion et perspectives **124**

4.1 Introduction

Les expériences décrites dans la première partie du mémoire ont pu être menées à bien en raison de la grande fiabilité de la source déclenchée de photons uniques utilisant la photoluminescence des centres colorés NV du diamant, dont les principaux avantages sont leur parfaite photostabilité à température ambiante ainsi que la grande efficacité quantique de leur transition de luminescence [1].

Rappelons que cette source de photons uniques a été initialement mise au point pour réaliser un système de cryptographie quantique utilisant un codage en polarisation des photons. Une telle expérience de distribution quantique de clef de cryptage en régime de photon unique fût réalisée

[1] L'efficacité quantique de la transition de luminescence des centres colorés NV du diamant est considérée comme égale à l'unité [71].

en 2002 par Alexios BEVERATOS et collaborateurs, en installant les protagonistes de la cryptographie, Alice et Bob, dans le même couloir de l'ancien bâtiment de l'Institut d'Optique [77, 13] que celui où nous avons réalisé l'expérience d'interférence à choix retardé. Ce travail fut par la suite prolongé par Romain ALLÉAUME et collaborateurs en réalisant la transmission des photons en espace libre, entre deux ailes du bâtiment de l'Institut d'Optique [78, 15].

Mentionnons cependant les inconvénients inhérents à l'utilisation de photons uniques émis par un centre coloré NV pour de telles expériences de cryptographie quantique en espace libre.

Le premier d'entre eux réside dans la largeur du spectre de photoluminescence des centres colorés NV, de l'ordre de 100 nm à température ambiante (cf. Annexe § A.4.2). Une expérience de cryptographie quantique en espace libre nécessite la sélection spectrale des photons uniques portant l'information par rapport à la lumière ambiante, qui est uniquement réalisable au moyen d'un filtre spectral fortement sélectif. En utilisant la luminescence de centres colorés NV, ce filtrage conduit à une diminution drastique du nombre de photons uniques utilisables. Pour cette raison, les expériences de cryptographie quantique en espace libre menées par Romain ALLÉAUME et collaborateurs ne purent être réalisées en plein jour, mais plutôt la nuit venue [15].

Lors d'une expérience de cryptographie quantique en régime de photons uniques, la portée d'une transmission parfaitement sécurisée est limitée par les coups d'obscurité des détecteurs de photons. Une méthode efficace permettant de réduire ces coups d'obscurité, et par conséquent augmenter la distance maximale de transmission, consiste à réaliser un fenêtrage temporel des détecteurs au taux de répétition de l'expérience, comme nous l'avons d'ailleurs réalisé pour l'expérience d'interférence à choix retardé. En synchronisant ce fenêtrage avec les instants d'émission des photons, les détecteurs ne sont fonctionnels qu'aux instants où les impulsions lumineuses arrivent sur les détecteurs. Un tel fenêtrage conduit à une diminution du taux de coups d'obscurité des détecteurs d'un facteur de l'ordre de τ_{rep}/w, où τ_{rep} est la période d'horloge de l'expérience, et w la durée de la fenêtre de détection. La durée de vie radiative des centres colorés NV dans des nanocristaux de diamant, qui constitue la fenêtre temporelle d'émission des photons uniques, est de l'ordre de $\tau_{\mathrm{sp}} \approx 40$ ns, fixant ainsi une limite inférieure à la durée w de la fenêtre de détection. En effet, si la durée de la fenêtre de détection est choisie telle que $w \leq \tau_{\mathrm{sp}}$, le nombre de photons uniques détectés chûte considérablement, diminuant alors le débit de la transmission. Ainsi, la longue durée de vie radiative des centres colorés NV ne permet pas de diminuer de manière très significative les coups d'obscurité des détecteurs de photons, et partant d'améliorer la portée de la communication secrète. Notons également que cette longue durée de vie radiative ne permet pas d'exciter les centres colorés NV à une cadence de répétition élevée afin d'augmenter le débit de la transmission. En effet, afin de s'assurer que les impulsions lumineuses à un photon produites par un centre coloré NV sont bien séparées temporellement les unes des autres, il est nécessaire que $\tau_{\mathrm{rep}} > \tau_{\mathrm{sp}}$.

Au regard des avantages et des inconvénients liés à l'utilisation des centres colorés NV, les caractéristiques d'un émetteur de photons uniques idéal pour la cryptographie quantique en espace libre sont les suivantes :

• Photostabilité à température ambiante ;

• Transition radiative à fort rendement quantique :

• Spectre de photoluminescence fin, de l'ordre du nanomètre de façon à pouvoir isoler spectralement les photons uniques par rapport à la lumière ambiante ;

• Courte durée de vie de l'état excité, de l'ordre de la nanoseconde afin de réduire les coups d'obscurité des détecteurs et également pouvoir travailler à cadence d'émission élevée afin d'augmenter le débit de la transmission.

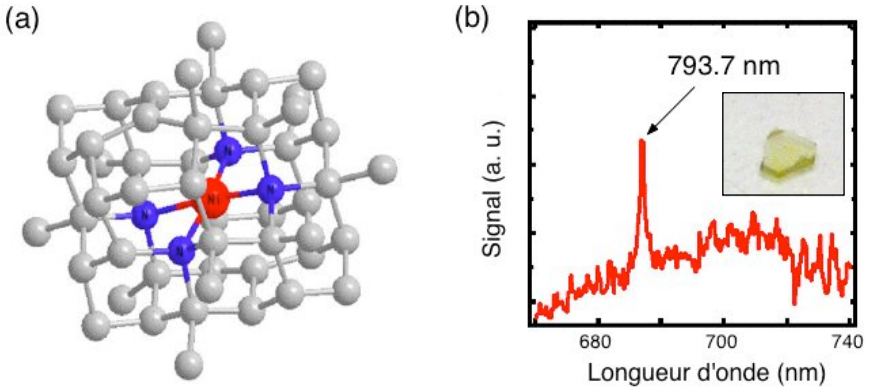


FIG. 4.1 – *(a)-Représentation du centre coloré NE8 du diamant, correspondant à l'association d'un atome de nickel et de quatre atomes d'azote dans la maille cristalline de diamant. (b)-Spectre de photoluminescence de centres colorés NE8 repartis uniformément dans un cristal synthétique de diamant créé par une technique haute pression haute température (HPHT) dans un environnement catalytique nourri de fer, de nickel et de cobalt (Fe-Ni-C).*

En 2004, en cherchant à exciter les centres colorés NV du diamant via une transition à deux photons, le groupe de recherche dirigé par Yoerg WRACHTRUP et Fédor JELEZKO à l'université de Stuttgart eut la surprise de détecter à l'échelle unique des centres colorés du diamant à base d'impuretés de nickel et d'azote, communément dénommées NE8 [145]. Nous allons voir dans ce chapitre que ce centre coloré du diamant satisfait remarquablement bien à l'ensemble des conditions que nous venons de mentionner [146, 74]. En particulier, la photoluminescence des centres colorés NE8 est concentrée dans la raie à zéro phonon, et cela même à température ambiante. De plus, la durée de vie radiative de ces centres colorés est de l'ordre de la nanoseconde.

Après avoir présenté brièvement la structure des centres colorés NE8 (§ 4.2), nous décrirons le dispositif expérimental permettant de les détecter à l'échelle individuelle à température ambiante, et nous donnerons les caractéristiques importantes de leur photoluminescence (§ 4.3). Nous effectuerons par la suite une analyse détaillée des paramètres photophysiques de ces centres colorés, permettant de mieux comprendre la dynamique d'émission (§ 4.4). Pour conclure, nous effectuerons une comparaison entre les caractéristiques des centres NV et NE8 montrant que ces derniers sont d'excellents candidats pour de la réalisation d'un système de cryptographie quantique en plein jour à l'aide de photons uniques (§ 4.5).

Le travail présenté dans ce chapitre a été réalisé avec E WU, également doctorante dans l'équipe de recherche dirigée par Jean-François ROCH, durant ma première année de thèse. Par la suite, E WU a poursuivi ce travail qui a aboutit à la réalisation d'une source déclenchée de photons uniques fondée sur l'émission d'un centre coloré NE8 du diamant [147].

4.2 Le centre coloré NE8 du diamant

Lorsqu'un diamant synthétique est créé par synthèse haute pression, haute température (HPHT) dans un environnement catalytique nourri de fer, de nickel et de cobalt (Fe-Ni-C) [148], des impuretés de nickel s'insèrent dans la matrice cristalline de diamant [149]. L'association de ces atomes de nickel avec des impuretés d'azote conduit alors à la création d'une famille de centres colorés,

chacun d'entre eux étant caractérisé par le nombre d'impuretés d'azote liées à un atome de nickel [150, 151].

L'un de ces centres colorés, communément dénommé NE8, est composé d'un atome de nickel associé à quatre atomes d'azote dans la maille cristalline de diamant (figure 4.1-(a)). La photoluminescence de ces centres colorés est concentrée dans la raie à zéro phonon à 1.463 eV, correspondant à une longueur d'onde $\lambda_{\mathrm{ZPL}} = 793.7$ nm (figure 4.1-(b)). Le faible couplage de la transition de luminescence avec les phonons de la matrice diamant est probablement dû au poids important des atomes de nickel (nombre atomique 58.6), ne leur permettant pas de vibrer de manière significative dans la matrice de diamant. Le résultat est une quasi absence de répliques de phonons dans le spectre de luminescence des centres colorés NE8.

4.3 Détection de centres NE8 uniques dans le diamant massif

La technique de synthèse HPHT des diamants conduit usuellement à une densité de centres colorés NE8 trop élevé pour permettre leur adressage optique à l'échelle individuelle. Nous avons entrepris la recherche de tels centres colorés à l'échelle unique dans des échantillons de diamant naturel massifs.

4.3.1 Dispositif expérimental de microscopie confocale

L'exploration des échantillons de diamant est réalisée à l'aide d'un montage de microscopie optique confocale décrit par la figure 4.2-(a), identique dans son principe à celui décrit dans l'Annexe A et utilisé pour la détection des centres colorés NV. Les seules modifications à apporter concernent le laser d'excitation et les optiques de filtrage spectral, permettant d'isoler la lumière émise par l'échantilon de celle du laser de pompe. Les expériences qui seront décrites par la suite ont été réalisées à l'aide d'une diode laser d'excitation continue émettant à la longueur d'onde $\lambda_{\mathrm{exc}} = 687$ nm. Nous n'avons pas cherché à réaliser dans un premier temps une source de photons uniques déclenchée, en remettant à plus tard les expériences en régime d'excitation impulsionnelle [2]

Un échantillon de diamant naturel de type II-a [3] (dimensions $2 \times 2 \times 0.32$ mm), fourni par la société ELEMENT 6 (Hollande), est sondé en focalisant le laser d'excitation à une distance d'environ 4 μm sous la surface de l'échantillon, à l'aide d'un objectif de microscope de grande ouverture numérique travaillant à l'air (Olympus $\times 100$, $\mathrm{ON} = 0.95$). Cet objectif de microscope est monté sur un transducteur piézoélectrique afin de pouvoir ajuster précisément la distance z de l'objectif à l'échantillon. Les photons de photoluminescence sont collectés par le même objectif de microscope et séparés de la lumière de pompe par filtrage spectral. En suivant les techniques de microscopie confocale, la lumière collectée est ensuite focalisée dans un diaphragme de diamètre 100 μm, puis détectée par une photodiode à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photons. Cette configuration permet de sélectionner la lumière provenant sélectivement d'un volume de l'échantillon de l'ordre de 1 $\mu\mathrm{m}^3$, réduisant ainsi, par rapport à la microscopie classique, la lumière parasite due à la fluorescence de toute la zone de substrat illuminée par le faisceau d'excitation laser [152].

La luminescence d'une zone de l'échantilllon de dimensions de l'ordre de 9×9 μm est explorée en modifiant pas à pas les angles θ et ϕ de focalisation du faisceau laser sur l'échantillon. Ceci est

[2] Cette étude est présenté dans le mémoire de thèse de E WU.

[3] Les diamants sont classifiés selon leur niveau d'impuretés en azote. L'appellation II-a désigne des diamants naturels à faible teneur en impuretés d'azote.

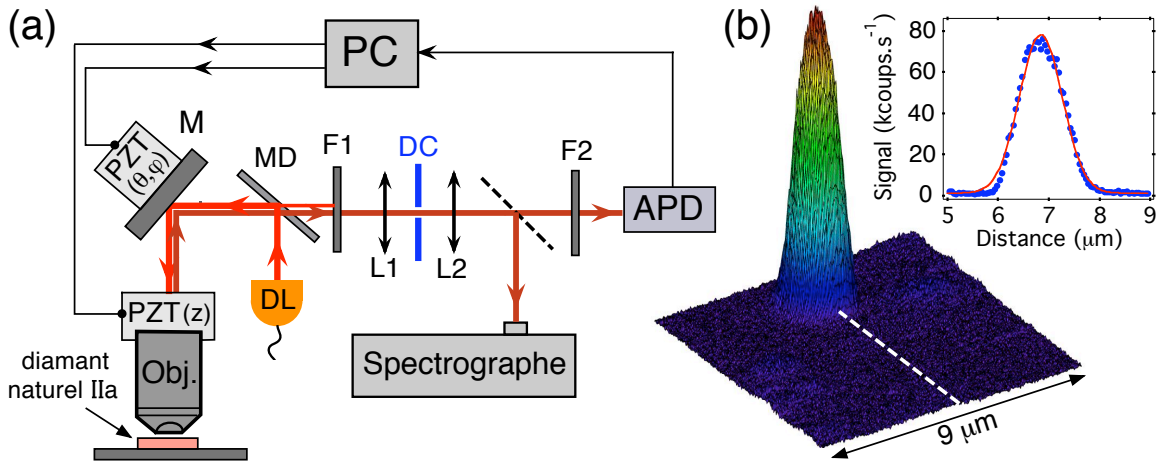


FIG. 4.2 – ***(a)***-*Dispositif de microscopie confocale permettant de détecter les centres colorés NE8 à l'échelle individuelle dans un échantillon de diamant massif de type II-a. DL : diode laser continue émettant à* $\lambda_{\text{exc}} = 687$ *nm. Obj : objectif de microscope* $\times 100$ *et* $\text{ON} = 0.95$*, monté sur un transducteur piézoélectrique (PZT (z)) permettant d'ajuster la distance* z *de l'objectif à l'échantillon. MD : miroir dichroïque. F1 : filtre passe-haut à* 740 *nm. DC : diaphragme de diamètre* 100 μm *qui assure la confocalité de la détection optique. F2 : filtre passe-bande de largeur* 10 *nm. APD : photodiode à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photons (Perkin-Elmer, AQR14). PC : ordinateur de contrôle de l'expérience. Le balayage de l'échantillon est assuré par un moteur piezoélectrique monté sur un miroir (M), permettant de modifier les angles* θ *et* ϕ *d'incidence du laser impulsionnel de pompe.* ***(b)***-*Scan typique de fluorescence d'un échantillon de diamant massif sous excitation laser continue à* $\lambda_{\text{ex}} = 687$ *nm avec une puissance incidente de* 9.2 *mW. Un centre coloré est détecté avec un rapport signal sur bruit supérieur à* 60*, uniquement limité par les coups d'obscurité des photodiodes à avalanche de l'ordre de* 200 *coups.s*$^{-1}$*. Nous avons également représenté une coupe transversale (trait en pointillé) du spot de luminescence, convenablement ajustée par une fonction gaussienne de largeur à mi-hauteur* 1 μm.

réalisé en positionnant un transducteur piézoélectrique sur le miroir de renvoi précédent l'objectif de microscope. Le mouvement de ce transducteur, ainsi que celui portant l'objectif de microscope, sont commandés par ordinateur et synchronisés avec le système de détection, à l'aide d'un programme de pilotage de l'expérience écrit avec le logiciel IGOR.

Afin de pouvoir isoler des émetteurs de lumière avec un rapport signal sur bruit satisfaisant, il est nécessaire de filtrer la raie de diffusion Raman à un phonon du diamant. Le déplacement Raman est de l'ordre de 1335 cm^{-1} pour le diamant [71], conduisant à une raie de diffusion à la longueur d'onde $\lambda_{\text{Raman}} \approx 756$ nm pour une excitation à 687 nm. Cette raie est bien séparée du domaine spectral dans lequel nous recherchons les centres colorés à base de nickel, autour de la longueur d'onde de 790 nm, et elle peut par conséquent être supprimée efficacement à l'aide d'un filtre passe-bande de largeur 10 nm qui sélectionne uniquement la luminescence des centres colorés recherchés.

La figure 4.2-(b) décrit un balayage typique de l'échantillon de diamant massif excité à la longueur d'onde de 687 nm. Le pic d'émission révèle la présence d'un centre coloré avec un rapport signal à bruit supérieur à 60, essentiellement limité par les coups d'obscurité des photodiodes à avalanche. La très faible valeur du fond est le résultat du filtrage spectral sélectif de la lumière

de fluorescence, permettant de supprimer efficacement la lumière de pompe ainsi que la raie de diffusion Raman du diamant. Ceci est possible en raison de l'extrême finesse du spectre de luminescence attendu pour les centres colorés à base de nickel.

Lorsqu'un tel émetteur est détecté, le programme IGOR de pilotage de l'expérience permet d'asservir le microscope confocal sur son émission, en ajustant en temps réel la position des transducteurs piézoélectriques afin d'optimiser le signal de détection. Un tel asservissement permet de compenser les dérives du dispositif expérimental.

Pour une excitation laser de puissance 9.2 mW, le centre coloré isolé sur le scan décrit par la figure 4.2-(b), présente un taux de comptage de l'ordre de 70 kcoups.s^{-1}. Nous allons maintenant montrer que cet émetteur présente effectivement les caractéristiques des centres colorés NE8 du diamant.

4.3.2 Spectre de luminescence et dispersion spectrale

Le spectre de photoluminescence de l'émetteur considéré est enregistré à l'aide d'un spectrographe imageur associé à une matrice CCD refroidie à la température de -20°C (ANDOR TECHNOLOGIE), comme le décrit la figure 4.2-(a). Comme attendu pour les centres colorés à base d'impuretés de nickel, ce spectre présente une raie à zéro phonon étroite dans laquelle se concentre la majeure partie de l'émission (figure 4.3).

Nous avons indiqué au paragraphe 4.2 que le centre coloré NE8 du diamant est caractérisé par une raie à zéro phonon à 793.7 nm [71], différente de celle mesurée, qui correspond à la longueur d'onde $\lambda_{\mathrm{ZPL}} = 782$ nm. Cependant, la finesse du spectre de photoluminescence laisse penser qu'il s'agit bien là de la signature de l'émission d'un centre coloré à base de nickel, dont la configuration cristalline est certainement différente de celle du centre NE8. Notons que lors des premières expériences effectuées dans le groupe de J. WRACHTRUP et F. JELEZKO ayant permis de détecter

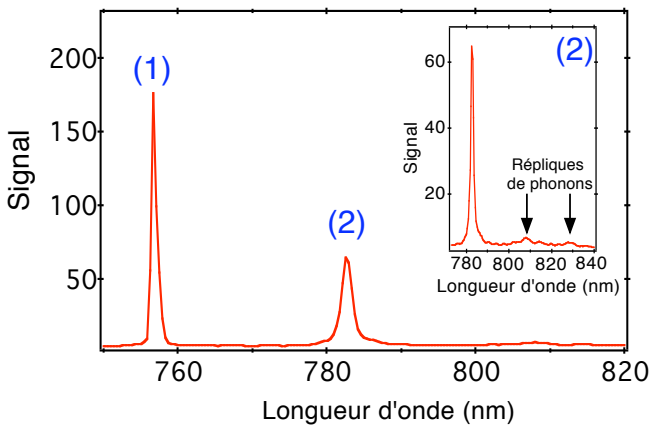


FIG. 4.3 – *Spectre de photoluminescence de l'émetteur isolé sur le scan décrit par la figure 4.2-(b). Cet enregistrement est obtenu en intégrant durant* 10 *secondes et en corrigeant les données de l'efficacité quantique du détecteur, qui varie de* 85% *à* 53% *dans le domaine spectral considéré* ($740 - 840$ *nm). Le pic (1) à la longueur d'onde de* 756 *nm correspond à la raie de diffusion Raman du diamant excité à* 687 *nm. Le centre coloré d'étude présente un spectre de photoluminescence concentré dans la raie à zéro phonon (2) à* $\lambda_{\mathrm{ZPL}} = 782$ *nm, de largeur à mi-hauteur de l'ordre de* 2 *nm à température ambiante. Un zoom de cette raie permet de visualiser l'existence de répliques de phonons de très faible intensité.*

des centres NE8 uniques dans le diamant, la raie à zéro phonon était à la longueur d'onde de 802 nm [145].

Il semble ainsi exister une dispersion spectrale dans les raies d'émission des centres colorés à base de nickel dans le diamant massif. Par la suite, nous avons isolé d'autres émetteurs à l'échelle individuelle, présentant une dispersion entre 780 à 800 nm dans la position spectrale de la raie à zéro phonon . A chaque fois, le spectre de photoluminescence étant très fin, nous avons attribué ces émetteurs à des centres colorés à base de nickel. Nous n'avons cependant pas étudié en détail ce phénomène de dispersion spectrale, le laissant de côté pour de futures investigations. Par la suite, nous ne parlerons plus de centres colorés NE8 mais plutôt de centres colorés du diamant à base d'atomes de nickel.

Pour de tels émetteurs, la fraction de l'émission dans la raie à zéro phonon par rapport à l'ensemble du spectre de photoluminescence est quantifié par le facteur de DEBYE-WALLER défini par :

$$\alpha_{\mathrm{DW}} = \frac{I_{\mathrm{ZPL}}}{I_{\mathrm{ZPL}} + I_{\mathrm{phonon}}} \tag{4.1}$$

où I_{ZPL} et I_{phonon} correspondent respectivement aux intensités dans la raie à zéro phonon et dans les répliques de phonons. L'évaluation du facteur de DEBYE-WALLER associé au spectre décrit sur la figure 4.3 conduit à $\alpha_{\mathrm{DW}} = 68\%$. Cette valeur illustre le très faible couplage entre la transition radiative et les phonons de la matrice cristalline, conduisant à une forte concentration de l'émission dans la raie à zéro phonon. A titre de comparaison le facteur de DEBYE-WALLER associé au spectre de photoluminescence des centres colorés NV (cf. figure A.7) est de l'ordre de 2%.

4.3.3 Photostabilité

Nous avions fortement insisté sur la photostabilité à température ambiante des centres colorés NV du diamant. De la même manière, il est possible de trouver des centres colorés à base de nickel présentant une parfaite photostabilité à température ambiante, comme le décrit la figure 4.4. En particulier, l'émission ne présente aucun phénomène de clignotement, tel celui observé pour

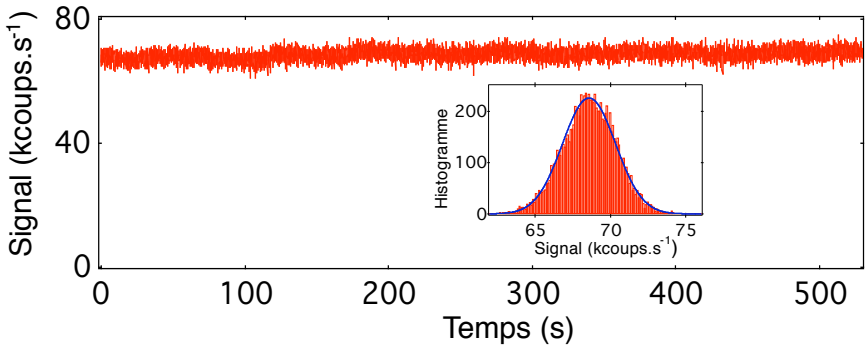


FIG. 4.4 – *Trace temporelle de l'intensité de luminescence du centre coloré étudié. Chaque point d'acquisition est le résultat d'une intégration de 30 ms. Afin de quantifier la photostabilité de cet émetteur, nous avons également représenté l'histogramme des taux de comptage pour cette trace de fluorescence, avec un pas d'échantillonnage de 100 coups.s^{-1}. Cet histogramme est ajusté par une fonction gaussienne de demi-largeur à mi-hauteur, $w = 2068 \pm 7$ kcoups/s. La valeur moyenne du nombre de photons détectés par seconde est égal à $< N >= (68 \pm 1) \times 10^3$ kcoups/s.*

les molécules, les nanocristaux de CdSe ou les boîtes quantiques semi-conductrices [153, 154]. Notons cependant que nous avons également observé pour certains émetteurs un phénomène de photoblanchiment, correspondant à l'arrêt irréversible du processus de luminescence.

Tous les expériences décrites dans la suite de ce chapitre ont été réalisées à l'aide du centre coloré identifié sur la figure 4.2-(b). Ces expériences ayant duré plusieurs semaines, nous espérons ainsi convaincre le lecteur de la photostabilité de certains centres colorés à base de nickel, détectés à l'échelle individuelle dans le diamant massif.

4.3.4 Mesure de corrélations de photons

Afin de vérifier que nous adressons un émetteur individuel et que l'émission de lumière se fait dans un régime quantique photon par photon, nous avons réalisé une mesure de la fonction de corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ à l'aide d'un montage standard de type Hanbury-Brown et Twiss (HBT), décrit sur la figure 4.5-(a). Deux détecteurs D1 et D2 fonctionnant en régime de comptage de photons sont positionnés de part et d'autre d'une lame séparatrice $50/50$, sur laquelle est envoyée la lumière détectée par le microscope confocal.

Si l'émetteur est effectivement un objet quantique individuel, il ne peut émettre qu'un seul photon à la fois. Ainsi, en enregistrant l'histogramme des intervalles de temps entre deux détections successives sur le détecteur D1 puis sur le détecteur D2, on attend un *trou* dans la distribution au retard nul, traduisant le fait que deux photons uniques émis l'un à la suite de l'autre sont au moins séparés temporellement par une durée de l'ordre de la durée de vie de l'état excité de l'émetteur. Il s'agit là du phénomène d'*anticorrélation*, que nous avons discuté en détail dans le première partie du mémoire et qui constitue la signature de l'émission de lumière photon par photon.

L'histogramme des retards entre détections successives sur les voies de sortie du montage

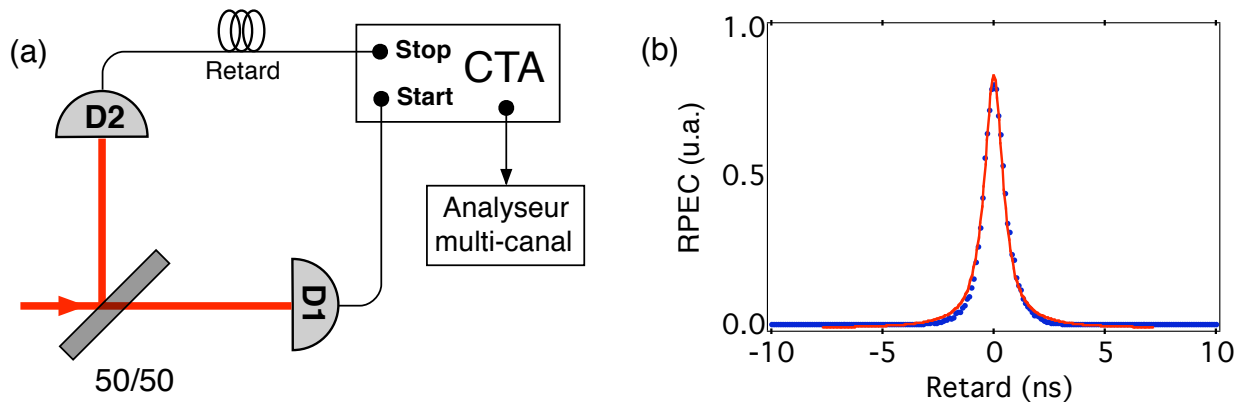


FIG. 4.5 – *(a)-Montage de type Hanbury-Brown et Twiss permettant de mesurer la fonction de corrélation en intensité de l'émission des centres colorés du diamant à base de nickel. D1 et D2 : photodiodes à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photons* (PERKIN-ELMER, AQR14*), positionnées sur les voies de sortie d'une lame séparatrice 50/50. CTA : convertisseur temps-amplitude fonctionnant en régime Start-Stop. Les tensions délivrées par le CTA sont envoyées dans un analyseur multi-canal qui construit l'histogramme des intervalles de temps entre deux détections successives sur le détecteur D1 puis sur le détecteur D2. (b)-Evaluation de la réponse percussionnelle de l'électronique de mesure de coïncidence (RPEC) par l'enregistrement de l'autocorrélation en intensité d'une impulsion laser femtoseconde. La RPEC est convenablement ajustée par une fonction gaussienne de demi-largeur à mi-hauteur $w = 0.6$ ns.*

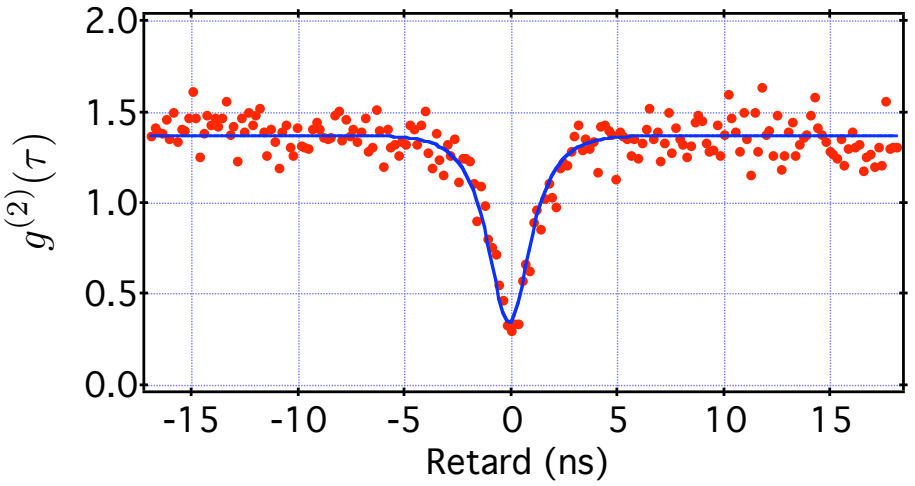


FIG. 4.6 – *Fonction de corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ de l'émission d'un centre coloré à base de nickel. Cet enregistrement est obtenu pour une puissance d'excitation de 9.2 mW, conduisant à des taux de comptage sur chacun des détecteurs D1 et D2 du montage de corrélation de photons, $N_1 = 37$ kcoups.s^{-1} et $N_2 = 48$ kcoups.s^{-1}. La durée d'intégration est égale à $T = 590$ s et l'échantillonnage temporel de la fonction de corrélation est réalisé avec un pas de 0.17 ns. L'ajustement des données (courbe bleue) est obtenue en convoluant la fonction théorique attendue de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ pour un émetteur unique avec la réponse percussionnelle de l'électronique de mesure de coïncidence (RPEC).*

HBT est obtenu à l'aide d'un convertisseur temps amplitude (CTA) fonctionnant en régime Start-Stop. La détection d'un photon par le détecteur D1 (Start) déclenche une rampe de tension qui est stoppée lorsque le détecteur D2 détecte à son tour un photon (Stop). Le CTA délivre alors une tension dont la valeur est proportionnelle à l'intervalle de temps entre ces deux événements de détection. Le programme d'acquisition de l'expérience récupère les tensions délivrées par le CTA et construit en temps réel l'histogramme recherché. Notons que le montage à deux détecteurs permet de s'affranchir du temps mort des photodiodes à avalanche, de l'ordre de 40 ns. La résolution temporelle du montage de corrélation de photons est ainsi limitée par la gigue des détecteurs, qui est de l'ordre de 700 ps pour les photodiodes à avalanche que nous utilisons.

Sous certaines conditions de validité [155], l'histogramme mesuré est directement relié, via une normalisation adéquate [76], à la fonction de corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ que nous avons définie au chapitre 1 (§-1.2.4). La figure 4.6 représente la fonction de corrélation en intensité associée à l'émission du centre coloré du diamant à base de nickel identifié sur la figure 4.2-(b). Elle révèle un fort effet d'*anticorrélation* au retard nul traduisant sans ambiguïté l'unicité du centre coloré étudié. Cette mesure indique également que la durée de vie radiative du centre coloré est très courte, de l'ordre de 1 ns. Nous verrons dans la section suivante que celle-ci peut être évaluée en ajustant la fonction $g^{(2)}(\tau)$ aux temps courts par une décroissance exponentielle ayant pour temps caractéristique la durée de vie de l'état excité de la transition luminescente.

L'effet d'*anticorrélation* observé ne permet pas d'atteindre la valeur attendue $A = 0$ pour une source idéale de photons uniques. Dans le cas de l'émission de photons uniques par un centre coloré NV individuel, nous avons vu que l'imperfection de la valeur mesurée de l'effet d'*anticorrélation* est le résultat d'un résidu de photoluminescence de l'échantillon et de la raie de diffusion Raman à deux phonons de la matrice de diamant (cf. Annexe §-A.3). Dans le cadre de

l'étude des centres colorés du diamant à base de nickel, un tel argument ne permet pas d'expliquer l'écart observé. En effet, nous avons vu que le spectre d'émission très fin de ces centres permet de les adresser optiquement avec un rapport signal sur bruit supérieur à 60 et de supprimer efficacement la raie de diffusion Raman.

Pour expliquer l'écart de la valeur mesurée de l'anticorrélation à la valeur idéale $A = 0$, il faut tenir compte du temps de réponse de l'électronique d'acquisition permettant d'enregistrer l'histogramme des intervalles de temps entre détections successives sur les détecteurs D1 et D2 du montage de Hanbury-Brown et Twiss [64]. Cette électronique est constituée des détecteurs de photon et du convertisseur temps amplitude. Nous avons effectué une mesure de la réponse percusionnelle de cette électronique d'acquisition en envoyant une impulsion laser femtoseconde atténuée dans le montage de corrélation de photon. La fonction d'autocorrélation mesurée est ajustée par une fonction gaussienne de demi-largeur à mi-hauteur $w = 0.6$ ns (figure 4.5-(b)). Cette valeur, due à la gigue temporelle des photodiode à avalanche, est du même ordre de grandeur que la durée de vie de l'état excité, limitant ainsi la précision de la mesure de la fonction de corrélation en intensité au retard nul. Afin d'ajuster les résultats expérimentaux, il faut ainsi tenir compte de cet artefact en réalisant une opération de convolution entre la réponse percussionnelle mesurée de l'électronique de coïncidence et la fonction de corrélation en intensité théorique attendue pour un émetteur individuel [4]. En effectuant cette convolution, les données expérimentales sont parfaitement ajustées comme en témoigne la figure 4.6. Ceci illustre finalement la qualité de la source de photon unique, puisque une absence quasi-totale d'événements multiphotoniques est obtenue, soit $A \approx 0$.

Dans cette section, nous avons démontré qu'il est possible de réaliser une source de photon unique performante et photostable à température ambiante, en utilisant l'émission de centres colorés à base de nickel du diamant. Ces centres colorés ont l'avantage de concentrer l'ensemble de la photoluminescence dans la raie à zéro phonon, située dans le proche infrarouge vers 800 nm.

4.4 Analyse des paramètres photophysiques des centres NE8

Cette section est consacrée à l'étude de l'évolution de la fonction de corrélation en intensité en fonction de la puissance d'excitation laser. Cette étude va nous permettre d'effectuer une analyse détaillée des paramètres photophysiques des centres colorés à base de nickel. L'ensemble des résultats qui sont présentés dans cette partie a été obtenu à l'aide du centre coloré identifié sur la figure 4.2-(b).

4.4.1 Modèle à trois niveaux

La fonction de corrélation en intensité décrite sur la figure 4.6 prend des valeurs supérieures à l'unité. Ce phénomène, communément dénommé *groupement de photon*, est la signature de l'existence d'un état métastable dans lequel le centre coloré peut être piégé. Nous modélisons ainsi la luminescence des centres colorés à base de nickel par un système à trois niveaux (figure 4.7). Les états (1) et (2) correspondent respectivement aux niveau fondamental et excité de la transition radiative et l'état (3) est un état métastable, vers lequel peut transiter le centre coloré par croissement inter-système depuis son niveau excité (2). Lorsque le niveau (3) est peuplé, la luminescence est interrompue jusqu'à ce que le système revienne dans son niveau fondamental en émettant un

[4] Nous donnerons dans la section suivante la fonction de corrélation en intensité théorique attendue pour un émetteur individuel.

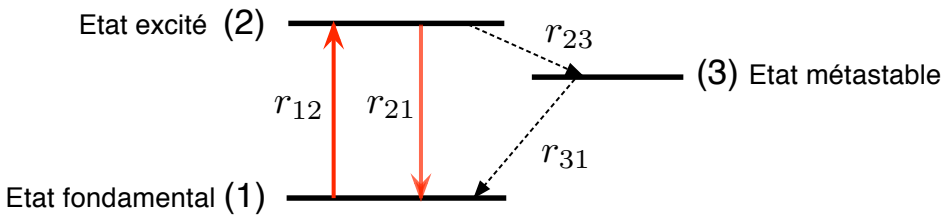


FIG. 4.7 – *Modélisation de l'émission des centres colorés du diamant à base de nickel à l'aide d'un système à trois niveaux. Les coefficients r_{nm} $(n, m = 1, 2, 3)$ correspondent aux taux de transition d'un niveau (n) vers un niveau (m).*

photon de phosphorescence à des longueurs d'onde qui ne sont pas détectées.

L'évolution des populations de ce système est régie par le système d'équations de taux :

$$\frac{d}{dt}\begin{pmatrix} p_1 \\ p_2 \\ p_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_{12} & r_{21} & r_{31} \\ r_{12} & -(r_{21}+r_{23}) & 0 \\ 0 & r_{23} & -r_{31} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} p_1 \\ p_2 \\ p_3 \end{pmatrix} \tag{4.2}$$

où p_i est la population du niveau (i) et r_{nm} le taux de transition du niveau (n) vers le niveau (m), avec $(n, m = 1, 2, 3)$.

Nous cherchons maintenant à exprimer la fonction de corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ en fonction des populations p_i. A partir de la définition de cette fonction donnée par l'équation (1.16) (cf. chapitre 1, § 1.2.4), il est possible d'écrire :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{P(t+\tau|t)}{P(t)} \tag{4.3}$$

où $P(t+\tau|t)$ est la probabilité conditionnelle de détecter un photon à l'instant $t+\tau$ sachant qu'un premier photon a été détecté à l'instant t, et $P(t)$ celle de détecter un photon à n'importe quel instant. Il ne reste donc plus qu'à évaluer ces probabilités pour un émetteur individuel.

La détection d'un photon à l'instant t correspond à une projection du système dans son niveau fondamental. La probabilité de détecter un deuxième photon à l'instant $t+\tau$ est donc régie par la dynamique d'évolution de la population du niveau excité (2) de la transition radiative. Soit :

$$P(t+\tau|t) = P(\tau|0) = \eta_{\text{tot}} \times r_{21}p_2(\tau) \tag{4.4}$$

avec $p_1(0) = 1$ et $p_2(0) = 0$, et où η_{tot} est l'efficacité globale de détection du dispositif expérimental. La probabilité $P(t)$ correspond à la probabilité de détecter un photon émis à n'importe quel instant t. Nous pouvons donc l'écrire :

$$P(t) = \eta_{\text{tot}} \times r_{21}p_2(\infty) \tag{4.5}$$

où $p_2(\infty)$ correspond à la population stationnaire du niveau excité (2). Nous obtenons ainsi finalement :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{p_2(\tau)}{p_2(\infty)}\ . \tag{4.6}$$

La résolution analytique du système d'équations (4.2) est effectuée en considérant que la dynamique de peuplement (r_{23}) et de dépeuplement (r_{31}) du niveau métastable (3) est réalisée sur

une échelle de temps grande devant la durée de vie du niveau excité associé à la transition de luminescence $(2) \rightarrow (1)$. En supposant $(r_{23}\ ,\ r_{31}) \ll r_{21}$, nous obtenons alors :

$$g^{(2)}(\tau) = \left[1 - (1+a)\mathrm{e}^{(-\lambda_1\tau)} + a\mathrm{e}^{(-\lambda_2\tau)}\right] \tag{4.7}$$

avec les paramètres a, λ_1 et λ_2, définis par :

$$\lambda_1 = r_{12} + r_{21} \tag{4.8}$$

$$\lambda_2 = r_{31} + \frac{r_{23}r_{12}}{(r_{12}+r_{21})} \tag{4.9}$$

$$a = \frac{r_{12}r_{23}}{r_{31}(r_{12}+r_{21})} \tag{4.10}$$

L'expression (4.7) correspond bien à un effet d'*anticorrélation* $g^{(2)}(0) = 0$ aux temps courts et à la limite $g^{(2)}(\tau) \rightarrow 1$ pour $\tau \rightarrow +\infty$, qui traduit une perte totale de corrélations aux temps longs devant λ_1^{-1} et λ_2^{-1}.

Le taux de population r_{12} du niveau (2) est lié à la puissance P_{ex} du laser d'excitation à la longueur d'onde λ_{ex} par la relation :

$$r_{12} = \frac{\sigma(\lambda_{\mathrm{ex}})}{S} \times P_{\mathrm{ex}} \times \frac{\lambda_{\mathrm{ex}}}{hc} \tag{4.11}$$

où $\sigma(\lambda_{\mathrm{ex}})$ est la section efficace d'absorption du centre coloré à la longueur d'onde λ_{ex}, h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans la vide et S la surface du spot d'excitation laser sur l'échantillon, de l'ordre de $1\ \mu\mathrm{m}^2$ (figure 4.2).

L'équation (4.7) correspond ainsi à l'évolution de la fonction de corrélation $g^{(2)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation laser appliquée au centre émetteur.

Pour une puissance d'excitation donnée, l'équation (4.7) indique que cette évolution se fait selon deux temps caractéristiques λ_1^{-1} et λ_2^{-1}, respectivement liés à la durée de vie r_{21}^{-1} du niveau excité et à la dynamique d'évolution de la population du niveau métastable. A l'aide des hypothèses que nous avons formulées précédemment, on montre que $\lambda_1^{-1} \ll \lambda_2^{-1}$, traduisant le fait que la durée de vie du niveau métastable est grande devant les autres temps caractéristiques du système. Nous pouvons ainsi séparer l'étude de la fonction d'autocorrélation en intensité suivant deux échelles de temps différentes. Aux temps courts, c'est-à-dire pour $|\tau| \approx \lambda_1^{-1}$, l'équation (4.7) peut être approximée par :

$$g^{(2)}(\tau) \simeq 1 - (1+a)\mathrm{e}^{-\lambda_1 t} + a \tag{4.12}$$

et aux temps longs, soit $|\tau| \approx \lambda_2^{-1}$, par :

$$g^{(2)}(\tau) \simeq 1 + a\mathrm{e}^{-\lambda_2 t} \tag{4.13}$$

Nous allons maintenant pouvoir déterminer l'ensemble des paramètre photophysiques, en étudiant à ces deux échelles de temps la variation de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation.

4.4.2 Durée de vie du niveau excité

La fonction d'autocorrélation en intensité est enregistrée aux temps courts pour plusieurs valeurs de la puissance d'excitation P_{ex}. Pour chacune d'entre elles, les données expérimentales

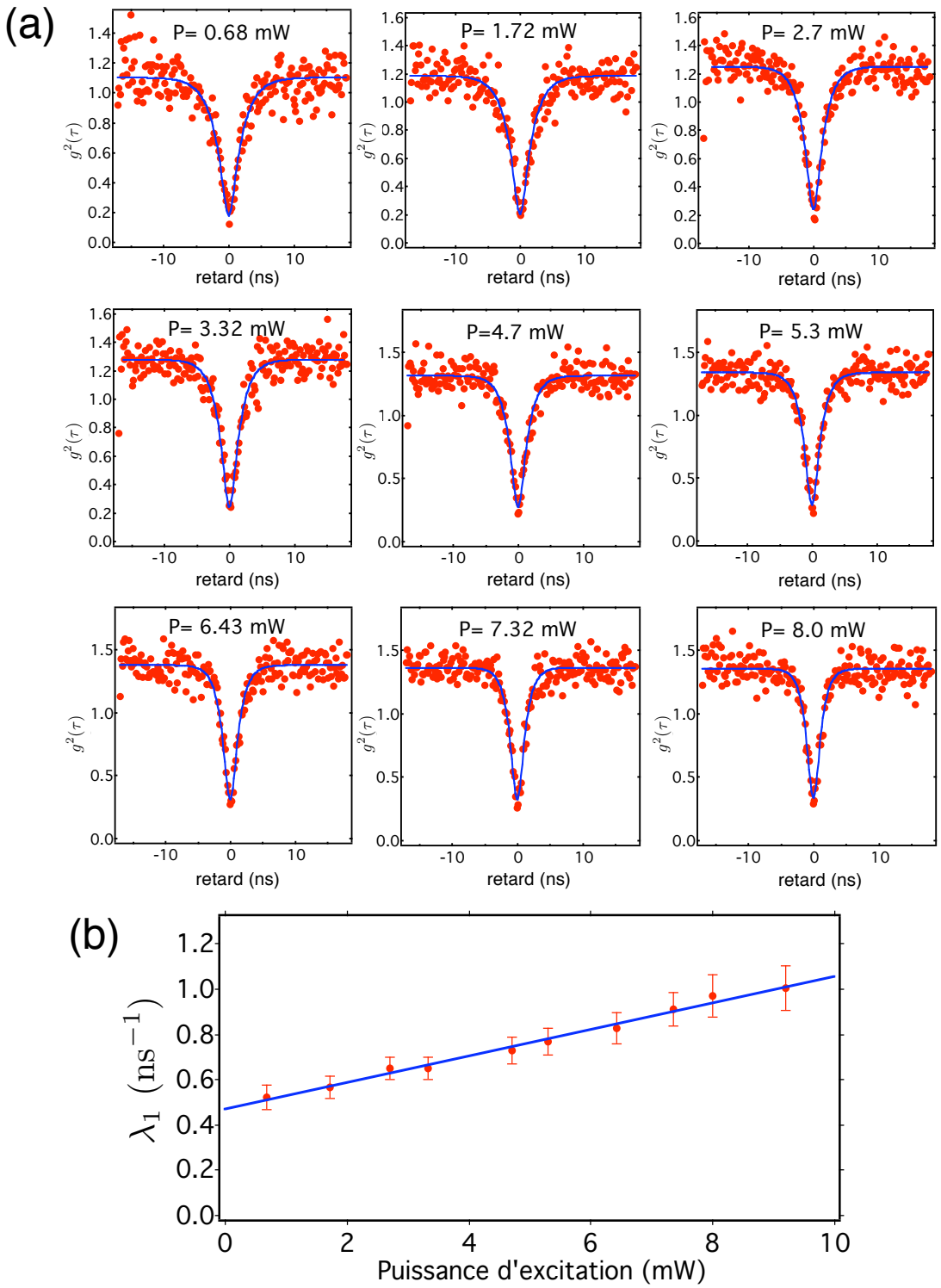


FIG. 4.8 – *(a)-Fonction de corrélation en intensité aux temps courts enregistrée pour différentes puissances d'excitation. Le pas de l'échantillonnage temporel est égal à* 0.17 *ns. Pour chaque enregistrement, les données sont ajustées par la fonction donnée par l'équation (4.12) convoluée avec la réponse percussionnelle de l'électronique de corrélation (figure (4.2). (b)-Paramètre* λ_1 *en fonction de la puissance d'excitation. Un ajustement linéaire des données conduit à la durée de vie du niveau excité* $r_{21}^{-1} = 2.12 \pm 0.04$ ns.

sont ajustées à l'aide de l'équation (4.12) en la convoluant par la réponse percussionnelle de l'électronique de corrélation, caractérisée par une fonction gaussienne de demi-largeur à mi-hauteur $w = 0.6$ ns (figure 4.6). Nous obtenons ainsi la valeur du paramètre λ_1 pour les différentes puissances d'excitation. En combinant les équations (4.8) et (4.11), le paramètre λ_1 s'écrit :

$$\lambda_1 = r_{21} + \frac{\sigma(\lambda_{\text{ex}})}{s} \times \frac{\lambda_{\text{ex}}}{hc} \times P_{\text{ex}} \tag{4.14}$$

de sorte qu'un ajustement linéaire des mesures de λ_1 en fonction de P_{ex} permet de déterminer la durée de vie r_{21}^{-1} du niveau excité ainsi que la section efficace d'absorption pour la longueur d'onde $\lambda_{\text{ex}} = 687$ nm. Un tel ajustement, décrit sur la figure 4.8-(b), conduit aux valeurs :

$$r_{21}^{-1} = 2.12 \pm 0.04 \text{ ns} \tag{4.15}$$

$$\sigma(\lambda_{\text{ex}}) = (1.70 \pm 0.07) \times 10^{-16} \text{ cm}^{-2} \tag{4.16}$$

La durée de vie du niveau excité est donc beaucoup plus courte que celle associée aux centres colorés NV dans des nanocristaux de diamant, de l'ordre de 40 ns (cf. Annexe § A.4.1). Ceci constitue un nouvel avantage des centres colorés à base de nickel par rapport aux critères établis en introduction

4.4.3 Niveau métastable

La présence d'un niveau métastable dans lequel le centre coloré peut être piégé conduit à un phénomène de *groupement de photon* correspondant à $g^{(2)}(\tau) > 1$ et traduisant le fait que les photons uniques sont groupés par « paquets » sur une certaine échelle de temps. Afin d'étudier les paramètres photophysiques liés à l'état métastable, nous enregistrons maintenant la fonction d'autocorrélation en intensité aux temps longs, pour différentes puissances d'excitation laser. Pour chaque puissance d'excitation, l'ajustement des données à l'aide de la fonction décrite par l'équation (4.13) nous permet d'obtenir les valeurs des paramètres λ_2 et a. L'évolution de ces paramètres en fonction de la puissance d'excitation laser est ensuite ajustée à l'aide des équations (4.9), (4.10) et (4.11), afin de déterminer les paramètres photophysiques r_{23} et r_{31} liés au niveau métastable.

Nous avons cependant remarqué que ces fonctions ne permettent pas d'ajuster les données de manière satisfaisante. Afin d'améliorer la qualité de l'ajustement nous pouvons envisager plusieurs phénomènes.

D'une part, il est possible, sous forte excitation laser, de repomper le système du niveau (3) vers le niveau (2) par croissement inter-système inverse. Ce phénomène peut être modélisé en écrivant le taux de transition r_{23} sous la forme $r_{23} = r_{23}^{(0)}(1 - \beta P_{\text{ex}})$, où β est une constante positive exprimée en W^{-1}. Ainsi, lorsque la puissance d'excitation augmente le taux de peuplement du niveau (3) diminue en raison de repompage par le laser vers le niveau (2). L'ajustement des données en introduisant cette modification n'est pas non plus satisfaisante.

Un autre phénomène envisageable est une diminution de la durée de vie du niveau métastable sous forte excitation laser. Ce phénomène, déjà observé dans le cadre d'expériences de spectroscopie de molécules individuelles [156], correspond à un pompage par le laser d'excitation du niveau métastable vers un niveau excité de plus haute énergie qui se désexcite rapidement vers le niveau fondamental (1). Ce phénomène peut être modélisé en écrivant le taux de transition r_{31} sous la forme $r_{31} = r_{31}^{(0)}(1+\beta P_{\text{ex}})$, qui traduit bien une diminution de la durée de vie du niveau métastable lorsque la puissance d'excitation augmente. L'ajustement des paramètres λ_2 et a en fonction de la

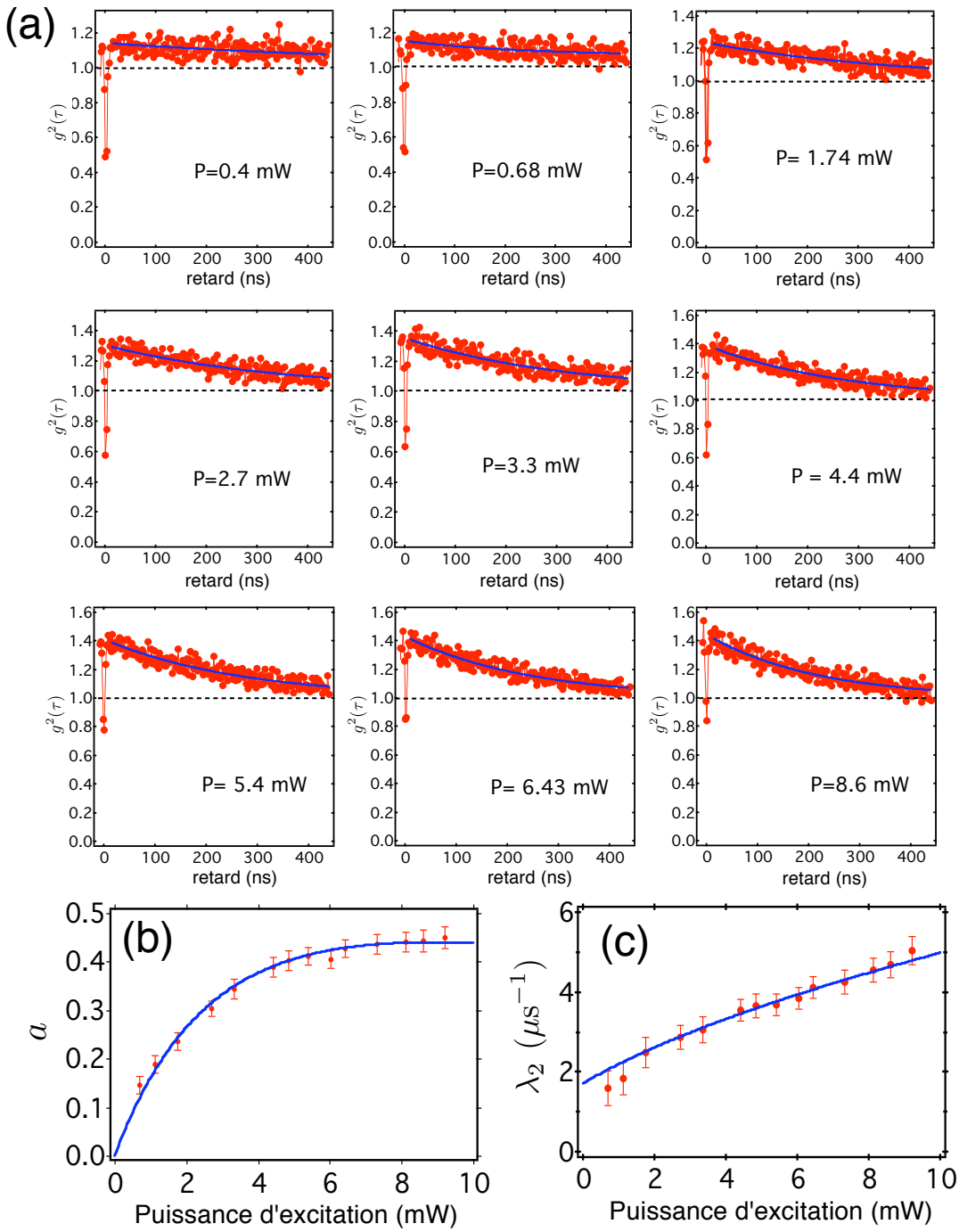


FIG. 4.9 – *(a)-Fonction de corrélation en intensité enregistrée aux temps longs pour diverses puissances d'excitation. Les valeurs de $g^{(2)}(\tau)$ supérieure à l'unité (ligne noire en pointillé) correspondent à un phénomène de groupement de photon associé à l'existence d'un niveau métastable. Le pas de l'échantillonnage temporel est égal à 2.3 ns. Pour chaque enregistrement, les données sont ajustées par la fonction donnée par l'équation (4.13). (b) et (c)- Paramètres λ_2 et a en fonction de la puissance d'excitation. L'ajustement des données est réalisé à l'aide des équations (4.9) et (4.10), en introduisant une dépendance de r_{31} en fonction de la puissance d'excitation sous la forme $r_{31} = r_{31}^{(0)}(1 + \beta P_{\text{ex}})$.*

puissance d'excitation en introduisant cette dépendance en puissance du paramètre r_{31} est satisfaisante, comme le montrent les figures 4.9-(b) et (c). Notons que ces ajustements sont réalisés en utilisant les valeurs de r_{21} et de $\sigma_{\lambda_{\text{ex}}}$ obtenues précédemment lors de l'étude de la fonction d'autocorrélation aux temps courts et les paramètres ajustables sont donc uniquement r_{23}, $r_{31}^{(0)}$, et β. Nous obtenons finalement :

$$r_{31}^{(0)} = 1.71\ \mu\text{s}^{-1} \tag{4.17}$$

$$\beta = 0.102\ \text{mW}^{-1} \tag{4.18}$$

$$r_{23} = 2.75\ \mu\text{s}^{-1} \tag{4.19}$$

A partir de ces valeurs, nous pouvons estimer la dynamique d'émission des centres colorés lorsqu'ils seront excités par une source laser impulsionnelle, afin de réaliser une source déclenchée de photons uniques. Considérons un laser impulsionnel à un taux de répétition de 10 MHz, soit une impulsion toutes les 100 ns, avec une énergie par impulsion suffisante pour saturer les centres colorés, et une durée des impulsions δt très petite devant tous les temps caractéristiques du système ($\delta t \ll (r_{21}^{-1}, r_{23}^{-1}, r_{31}^{-1})$). Chaque impulsion laser d'excitation porte le centre coloré dans son niveau excité, et nous pouvons ensuite considérer que l'évolution des populations se fait à excitation nulle, soit $r_{31} = r_{31}^{(0)}$.

Le rapport $r_{21}/r_{23} \approx 1000$ indique que le centre coloré a environ une chance sur 1000 d'effectuer une transition vers le niveau métastable par croisement inter-système. Une fois dans cet état, il y reste pendant une durée de l'ordre de $r_{31}^{-1} = 1.71\ \mu$s, correspondant à l'application de 17 impulsions au centre coloré. Ainsi, l'état métastable est peuplé en moyenne durant environ 2% du temps, soit 1 impulsion sur 50. La source de photons uniques déclenchée devrait ainsi avoir une efficacité de production des photons de l'ordre de 98%.

Ce résultat, à comparer par exemple avec le temps de piégeage non radiatif d'un nanocristal de CdSe (quelques minutes), est très encourageant pour la réalisation d'une source déclenchée de photons uniques à l'aide de ces centres colorés à base de nickel.

4.4.4 Courbe de saturation

Pour terminer cette étude, nous avons mesuré la courbe de saturation du centre coloré (figure 4.10). L'intensité de photoluminescence R est reliée à la population stationnaire du niveau excité $p_2(\infty)$ selon la relation

$$R = \eta_{\text{det}}\ \eta_Q\ r_{21}\ p_2(\infty) \tag{4.20}$$

où η_{det} et η_Q correspondent respectivement à l'efficacité de détection du dispositif expérimental et au rendement quantique de la transition de luminescence. En utilisant les équations (4.2) d'évolution des populations et l'approximation (r_{23}, r_{31})$\ll r_{21}$, nous obtenons :

$$R = \eta_{\text{det}}\eta_Q \frac{r_{21}}{r_{21}/r_{12} + r_{23}/r_{31} + 1} \tag{4.21}$$

L'efficacité globale de détection du dispositif expérimental η_{det} peut être évaluée approximativement de la manière suivante.

L'efficacité de collection de la photoluminescence par l'objectif de microscope est fortement limitée en raison du fort indice de réfraction $n = 2.4$ de la matrice de diamant (cf. Annexe § A.1.2) [157]. En effet, la majeure partie de la luminescence est piégée dans la matrice de diamant par réflexion totale à l'interface diamant-air. L'angle limite de réflexion totale est $i_{\text{lim}} = 22.6°$.

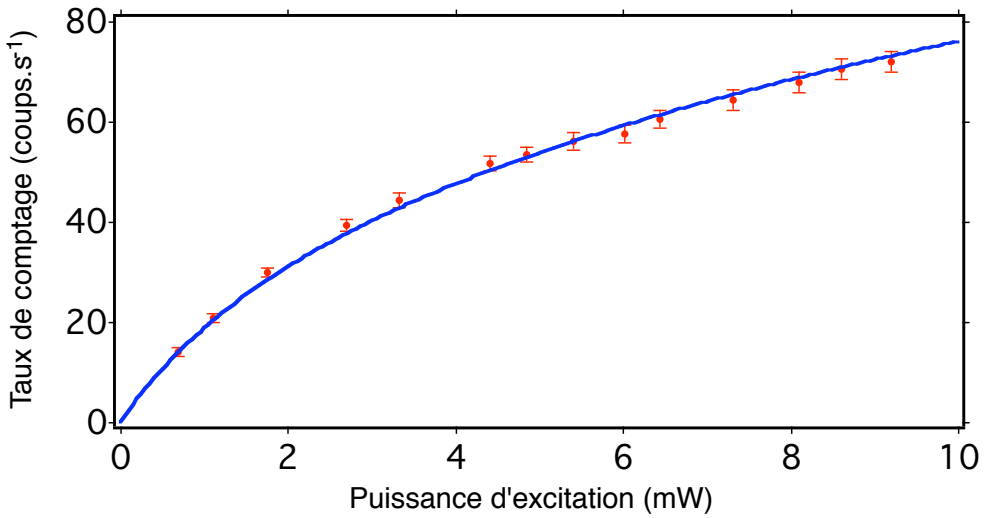


FIG. 4.10 – *Courbe de saturation du centre coloré étudié. L'ajustement des données, représentée en bleu, est réalisé à l'aide de l'équation (4.21).*

Ainsi, bien que nous utilisions un objectif de microscope de grande ouverture numérique ($ON = 0.95$), la collection de la luminescence est en fait limitée par l'angle solide défini par i_{lim}. Nous pouvons ainsi estimer que l'efficacité de collection η_{col} par l'objectif de microscope est de l'ordre de $i_{\text{lim}}/4\pi$, soit $\eta_{\text{col}} \approx 3.1\%$.

La transmission de l'objectif de microscope dans le proche infrarouge est de l'ordre de $\eta_{\text{obj}} = 80\%$. D'autre part cet objectif induit de fortes aberrations sphériques qui conduisent à des pertes importantes lors de la focalisation de la lumière collectée dans le diaphragme de confocalité. L'efficacité du filtrage spatial assurant la confocalité du dispositif expérimental est évaluée par $\eta_{\text{abr}} = 20\%$. Nous devons également tenir compte de la transmission de l'ensemble des optiques utilisées (lentilles, miroir dichroïque, filtre spectral) conduisant à $\eta_{\text{opt}} = 35\%$. Enfin, l'efficacité de détection des photodiodes à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photons est de l'ordre de $\eta_{\text{APD}} = 55\%$ dans le domaine spectral dans lequel émettent les centres colorés. Nous obtenons finalement une évaluation de l'efficacité globale de détection du dispositif expérimental :

$$\eta_{\text{det}} = \eta_{\text{col}} \times \eta_{\text{obj}} \times \eta_{\text{abr}} \times \eta_{\text{opt}} \times \eta_{\text{APD}} \approx 0.09\% \tag{4.22}$$

La courbe de saturation du centre coloré étudié est représentée sur la figure 4.10. En ajustant les données des taux de comptage (nombre de coups par seconde délivrés par la photodiode à avalanche de détection) en fonction de la puissance du laser d'excitation à l'aide de l'équation 4.21, nous obtenons la valeur du paramètres $\eta_{\text{det}}\eta_Q = 0.042\%$. Notons que cet ajustement est réalisé en utilisant les valeurs des divers taux de transition obtenus précédemment. L'estimation de l'efficacité η_{det} de détection effectuée ci-dessus conduit à un rendement quantique de la transition de photoluminescence :

$$\eta_{\text{Q}} \approx 46\% \tag{4.23}$$

Pour les centres colorés NV dans le diamant, le rendement quantique de la transition de luminescence est donné comme égal à l'unité [71]. Nos estimations conduisent donc à un rendement quantique plus faible pour les centres colorés à base de nickel. Notons cependant que nous n'avons pas pris en compte l'orientation du dipôle associé au centre coloré, qui est un facteur

important pour évaluer l'efficacité de collection η_{col} par l'objectif de microscope. Nous pouvons ainsi considérer que la valeur de l'efficacité de collection η_{col} que nous avons estimée est une borne supérieure. Nous n'avons pas chercher à mesurer l'orientation du dipôle du centre coloré étudié, qui peut par exemple être déterminée par des techniques d'imagerie défocalisée [158]. La valeur η_{Q} du rendement quantique de photoluminescence donnée ci-dessus doit donc être prise comme une estimation, mais nous pouvons raisonnablement penser qu'elle est très certainement supérieure à 50%. Ce résultat est à nouveau très encourageant dans la perspective d'une application de ces centres colorés comme source déclenchée de photon unique.

4.5 Conclusion et perspectives

Cette étude détaillée des paramètres photophysiques des centres colorés à base de nickel du diamant n'a été effectuée que pour un seul émetteur. Au regard de la dispersion spectrale de la position de la raie à zéro phonon pour les divers centres colorés que nous avons pu détecter dans l'échantillon (§ 4.3.2), cette étude ne saurait avoir une trop grande généralité.

Cependant, nous venons de montrer qu'il est possible d'isoler des centres colorés à base de nickel à l'échelle individuelle dans du diamant massif, qui présentent des propriétés très intéressantes pour la réalisation d'une source déclenchée de photons uniques : rendement quantique de photoluminescence élevé, durée de vie du niveau excité de l'ordre de la nanoseconde, largeur spectrale de l'ordre du nanomètre (figure 4.11) et photostabilité à température ambiante. Ces émetteurs remplissent ainsi l'ensemble des conditions requises pour réaliser une expérience de cryptographie quantique en espace libre et en régime de photons uniques, que nous avons énumérées dans l'introduction de ce chapitre.

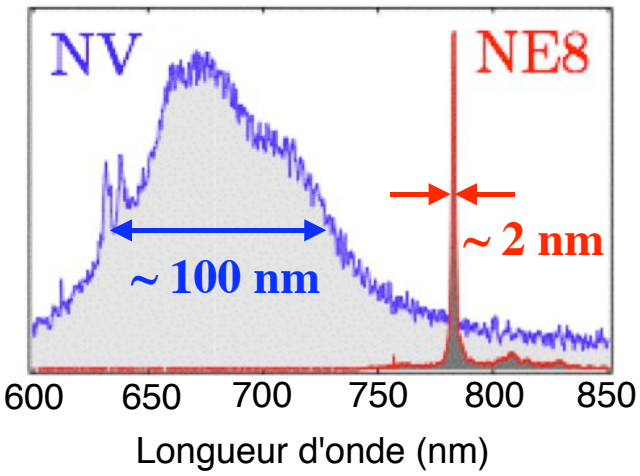


FIG. 4.11 – *Comparaison des spectres de photoluminescence des centres colorés NV (en bleu) et des centres colorés à base d'impuretés de nickel (en rouge).*

Pour conclure, mentionnons que parmi les dix échantillons de diamant naturel achetés auprès de la société ELEMENT 6 que nous avons étudiés, un seul a permis d'isoler des centres colorés à base de nickel à l'échelle individuelle...Pour l'anecdote, le groupe dirigé par J. WRACHTRUP et F. JELEZKO à l'université de Stuttgart n'a également pu détecter ces émetteurs que dans un seul échantillon et au vu des numéros de série, il est vraisemblable que ces deux échantillons provienne

d'une coupe d'un même diamant naturel de départ...

Ce problème d'échantillon est de toute évidence un important verrou pour le développement d'une source pratique de photons uniques fondé sur l'émission de centres colorés du diamant à base d'impuretés de nickel. Cependant, les propriétés remarquables de ces émetteurs conduisent naturellement à tenter de les créer artificiellement et plus précisément à explorer la voie de synthèse de diamant assistée par plasma [148], appelée technique CVD pour Chemical Vapor Deposition en anglais. En particulier, J. RABEAU, alors membre de l'équipe de recherche animée par S. PRAWER à l'Université de Melbourne en Australie, a montré que les centres colorés à base de nickel peuvent être générés à l'échelle individuelle dans un film de diamant CVD polycristallin [159]. La création des centres colorés est simplement obtenue en insérant un peu de poudre de nickel dans le réacteur de synthèse. De plus, en contrôlant les paramètres de la croissance du film de diamant CVD, il est possible de créer des nanocristaux de diamant bien dispersés et de dimension de l'ordre de 50 nm [5]. Un tel échantillon synthétisé par J. RABEAU a été étudié par E WU au Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire, qui a pu mettre en évidence l'existence de centres colorés NE8 uniques dans ces nanocristaux de diamant. E WU a par la suite réalisé une source déclenchée de photons uniques à l'aide d'un centre coloré NE8 individuel, excité en régime impulsionnel [147].

L'équipe de recherche du LPQM envisage maintenant de mettre en œuvre un système de cryptographie quantique en espace libre à l'aide de photons uniques émis par un centre coloré NE8 individuel. Les deux protagonistes traditionnel de la cryptographie devraient ainsi être prochainement installés sur les toits des bâtiments de l'Ecole Normale Supérieure de Cachan (figure 4.12).

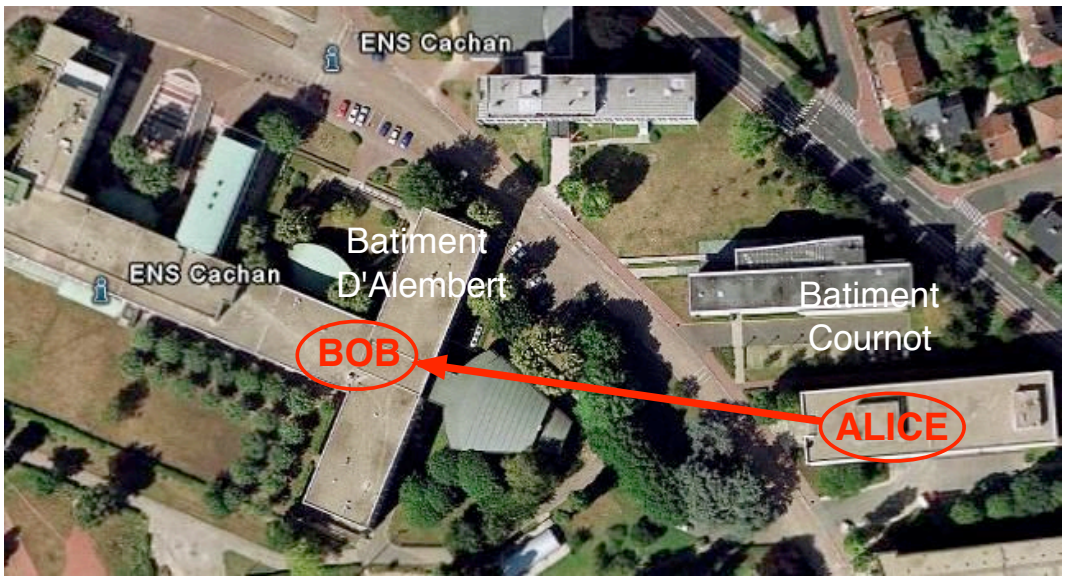


FIG. 4.12 – *Alice et Bob prochainement sur les toits de l'ENS de Cachan pour une réalisation de distribution quantique de clef de cryptage en espace libre, entre les bâtiments Cournot et d'Alembert.*

[5] L'utilisation de tels nanocristaux de diamant permet de contourner le problème de la faible efficacité de collection de la photoluminescence, qui résulte du fort indice de réfraction du diamant massif (cf. Annexe §A.1.2) [157].

Chapitre 5

Amélioration de la photostabilité de molécules uniques

Sommaire

5.1 Introduction **127**
5.2 Observation de molécules uniques à température ambiante **129**
5.2.1 Schéma de Perrin-Jablonsky 129
5.2.2 Dispositif expérimental de détection de molécules uniques 130
5.3 Caractéristiques de la fluorescence de molécules uniques **132**
5.3.1 Taux de comptage 132
5.3.2 Sauts quantiques vers le niveau triplet 133
5.3.3 Extinction irréversible de la fluorescence 134
5.4 Processsus associés au photoblanchiment **135**
5.4.1 Effet de l'environnement et de l'excitation optique 135
5.4.2 Photoblanchiment et passage dans le niveau triplet 136
5.5 Hypothèse de travail **139**
5.6 Amélioration de la photostabilité de molécules uniques **140**
5.6.1 Principe de l'expérience 140
5.6.2 Augmentation de la photostabilité de molécules uniques de $DiIC_{18}(3)$ . . . 141
5.7 Gain en photostabilité G **144**
5.7.1 Estimation du gain en photostabilité 144
5.7.2 Paramètre G et seuil de détection des sauts quantiques vers le niveau triplet 144
5.7.3 Paramètre G et puissance d'excitation laser 145
5.8 Généralisation de la méthode **146**
5.8.1 Molécule de terrylène 147
5.8.2 Amélioration de la photostabilité de molécules uniques de terrylène 147
5.9 Conclusion **148**

5.1 Introduction

Les premières tentatives de réalisation d'une source déclenchée de photons uniques à température ambiante reposaient sur l'émission de molécules fluorescentes individuelles en solution et

couplées à des cavités planaires [16, 17]. Ces expériences ne purent cependant pas mettre en évidence une statistique de photons aux propriétés quantiques, la régularité de l'émission étant brouillée par les fluctuations du nombre de molécules émettrices dues au mouvement brownien [17], qui conduisent à un excès de bruit classique [53].

Une solution naturelle pour contourner ce problème consiste à immobiliser les molécules fluorescentes dans une matrice hôte, pouvant être soit un cristal organique dont la structure de maille permet l'insertion de molécules fluorescentes [160], soit un film polymère [156]. Ces deux systèmes ont conduit en régime d'excitation impulsionnelle à la réalisation de sources déclenchées de photons uniques à température ambiante [18, 59]. Cependant, leur mise en œuvre est fortement contrainte par le phénomène de « photoblanchiment » qui ce traduit par une extinction irréversible de la fluorescence après quelques secondes d'excitation optique de la molécule considérée [1] (figure 5.1).

Il nous a semblé intéressant d'étudier le phénomène de photoblanchiment et de tenter d'améliorer la photostabilité de molécules individuelles à température ambiante.

Notons que l'amélioration de la photostabilité d'une molécule unique est un enjeu qui dépasse largement le cadre de la réalisation d'une source efficace de photons uniques. En effet, la détection par fluorescence de molécules individuelles est devenue une technique couramment utilisée en laboratoire [162, 163, 164] et qui a eu un fort impact dans le domaine de la biologie, notamment pour l'étude de protéines fluorescentes [165] ou bien pour sonder des dynamiques réactionnelles à l'échelle de l'objet individuel [166, 167, 168]. Toute ces expériences sont confrontées au problème du photoblanchiment qui limite la durée d'observation de la molécule et par conséquent le temps pendant lequel le phénomène étudié peut être observé.

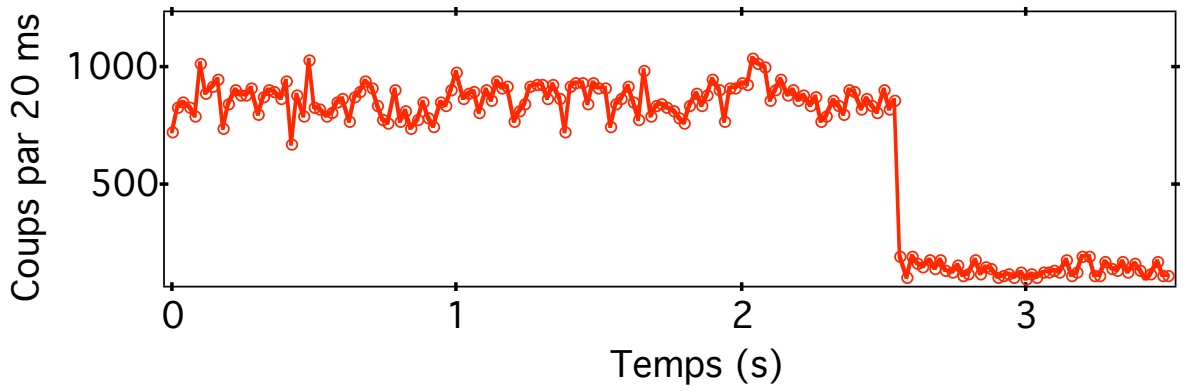


FIG. 5.1 – *Trace temporelle de la fluorescence d'une molécule unique de carbocyanine immobilisée dans un film polymère. Après quelques secondes d'illumination, le phénomène de photoblanchiment se traduit par une disparition irréversible du signal de fluorescence.*

Dans ce chapitre, nous démontrerons une technique expérimentale originale permettant de considérablement améliorer la photostabilité de molécules individuelles. Nous commencerons par décrire le dispositif expérimental utilisé pour détecter la fluorescence de molécules uniques dispersées dans un film polymère (§ 5.2) et nous donnerons les caractéristiques importantes de

[1] Notons que le système constitué par des molécules de terrylène piégées dans un cristal de *p*-terphényl est de ce point de vue remarquable puisque la photostabilité des molécules est dans ce cas beaucoup plus élevée que pour les autres systèmes organiques [161].

la fluorescence (§ 5.3). Nous présenterons ensuite le phénomène de photoblanchiment, qui reste aujourd'hui encore relativement incompris (§ 5.4). Nous élaborerons alors une hypothèse pour expliquer le photoblanchiment des molécules, stipulant que la majeure partie des mécanismes réactionnels conduisant à l'extinction irréversible de la fluorescence sont photo-induits à partir du niveau triplet de la molécule (§ 5.5). A partir de cette hypothèse, nous présenterons une technique expérimentale visant à améliorer la photostabilité des molécules étudiées [169], dont le principe consiste à éteindre le laser d'excitation pendant les périodes temporelles durant lesquelles la molécule est dans son niveau triplet (§ 5.6).

5.2 Observation de molécules uniques à température ambiante

Dans cette section, nous rappelons les propriétés photophysiques importantes des molécules de colorant dont nous étudierons la photostabilité. Nous décrivons ensuite comment ces propriétés permettent la détection de molécules à l'échelle individuelle et à température ambiante par microscopie optique confocale.

5.2.1 Schéma de Perrin-Jablonsky

Les propriétés d'absorption et d'émission de molécules de colorant peuvent être interprétées au moyen de la description schématique des niveaux d'énergie électronique de Perrin-Jablonsky [170, 171], représentée sur la figure 5.2. Par souci de simplification, trois niveaux énergétiques sont pris en compte : deux niveaux singulets de spin S_0 et S_1, ainsi qu'un niveau triplet de spin T_1. A chacun de ces niveaux est également associée une multiplicité de niveaux vibrationnels représentée en trait fins sur la figure 5.2.

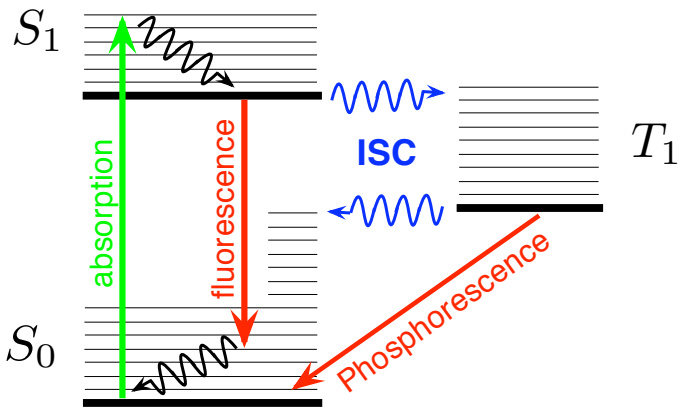


FIG. 5.2 – *Diagramme de Perrin-Jablonsky modélisant de façon schématique les niveaux d'énergie d'une molécule de colorant. Les niveaux S_0 et S_1 correspondent à des niveaux singulets de spin tandis que le niveau T_1 est un niveau triplet de spin. En traits fins sont représentées les multiplicités vibrationnelles associées à chacun de ces niveaux. La fluorescence est le résultat de cycle d'absorption-émission entre les deux niveaux singulets S_0 et S_1. Une molécule de colorant peut également relaxer de S_1 vers S_0 en passant par le niveau triplet T_1 via un croisement inter-système (ISC).*

Sous excitation laser, une molécule peut être portée de son niveau fondamental singulet S_0 vers l'un des états vibrationnels du premier niveau singulet excité S_1. La molécule se désexcite

alors très rapidement ($\approx 10^{-12}$ s) et de manière non-radiative vers le niveau vibrationnel de plus basse énergie de la multiplicité S_1. A ce stade, deux processus conduisent à la relaxation de la molécule vers son niveau fondamental S_0.

D'une part, la molécule peut se désexciter de manière radiative en émettant un photon de *fluorescence*. Ce processus se réalise suivant un temps caractéristique de l'ordre de quelques nanosecondes, qui correspond à la durée de vie radiative du niveau excité S_1.

La molécule peut également effectuer de manière non-radiative une transition vers le niveau triplet T_1. Ce processus correspond à un *croissement inter-système* que nous noterons par la suite ISC, en référence à la dénomination anglaise « Inter-System Crossing ». Les régles de sélection interdissent à priori cette transition pour satisfaire la conservation du moment magnétique. Cependant les interactions spin-orbite permettent une occupation du niveau triplet T_1 avec une faible probabilité [170]. La transition $T_1 \rightarrow S_0$ étant également interdite, la durée de vie du niveau triplet est très longue devant la durée de vie radiative du niveau excité S_1. Suivant la nature de la molécule et son environnement, cette durée de vie peuvent varier de quelques microsecondes à plusieurs centaines de millisecondes. Durant ce processus la fluorescence moléculaire est interrompue, et le niveau triplet peut être qualifié d'*état noir* ou d'*état piège*. La molécule finit par se désexciter vers son niveau fondamental, soit de manière non radiative par couplage entre les multiplicités vibrationnelles des niveaux T_1 et S_0, soit de manière radiative en émettant un photon de *phosphorescence* que nous ne chercherons pas à détecter.

Les temps caractéristiques qui interviennent dans la dynamique de fluorescence d'une molécule de colorant sont résumés par le tableau suivant :

Processus de relaxation	temps caractéristique
vibrationnel	10^{-12} s, non radiatif
fluorescence	10^{-9} s, radiatif
ISC	10^{-6} à 10^{-1} s, non radiatif

5.2.2 Dispositif expérimental de détection de molécules uniques

Molécules étudiées

L'ensemble des expériences décrites dans ce chapitre ont été réalisées avec deux molécules différentes : la molécule de carbocyanine $\mathrm{DiIC}_{18}(3)$ et la molécule de terrylène, dont les structures chimiques ainsi que les spectres d'absorption-émission sont présentés sur la figure 5.3.

La détection de molécule individuelles fluorescentes à température ambiante tire profit du décalage Stokes vers le rouge du spectre de fluorescence par rapport au spectre d'absorption (figure 5.3). Comme pour les centres colorés du diamant, ce décalage permet d'exciter les molécules à une longueur d'onde λ_{ex} en dehors du spectre de fluorescence, permettant ainsi de séparer efficacement la lumière de pompage et la fluorescence émise par une molécule par le biais d'un filtrage spectral adapté.

Préparation des échantillons

Les molécules fluorescentes sont incorporées dans un film mince de polymère déposé sur une lamelle de microscope afin de les immobiliser dans une matrice solide. Les échantillons sont

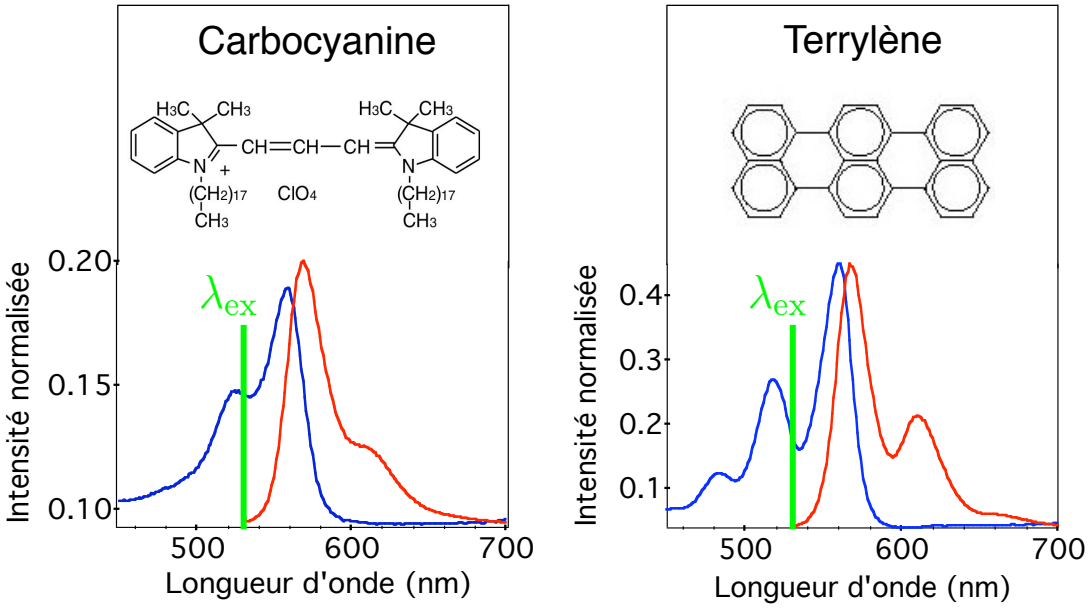


FIG. 5.3 – *Structures chimiques et spectres d'absorption-émission des molécules de carbocyanine et de terrylène. Le décalage vers le rouge des spectres de fluorescence (en rouge) par rapport aux spectres d'absorption (en bleu) se comprend aisément à l'aide de la figure 5.2. Ce décalage permet de réaliser une excitation des molécules étudiées à l'aide d'un laser à la longueur d'onde* $\lambda_{ex} = 532$ *nm, en dehors de la bande de fluorescence.*

réalisés dans la salle blanche du LPQM selon une procédure mise au point lors d'études antérieures sur les molécules individuelles [156, 59].

Nous préparons une solution nanomolaire de molécules fluorescentes dans l'anisole, qui est ensuite mélangée à une solution de polymère (PMMA, polymethyl methacrylate, à 3% dans l'anisole). La solution obtenue est déposée à la tournette sur une lamelle de microscope préalablement décapée à l'aide d'un plasma à oxygène qui détruit efficacement l'ensemble des impuretés organiques, qui conduiraient inévitablement à un signal de fluorescence parasite. Les paramètres de rotation du dépôt à la tournette sont fixés de façon à réaliser un film polymère de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur dans lequel les molécules de colorant sont dispersées et immobilisées (figure 5.4-(a)). Chaque échantillon est testé à l'aide du dispositif de microscopie confocale décrit dans la section suivante, afin de s'assurer que la concentration en molécules de colorant est suffisamment faible pour permettre de les adresser optiquement à l'échelle individuelle.

Dispositif de microscopie confocale

Les molécules de colorant dispersées dans un film polymère de PMMA sont détectées à température ambiante par microscopie optique confocale, à l'aide d'un dispositif expérimental similaire à celui utilisé pour la détection de centres colorés dans le diamant (cf. figure 4.2). Les seules modifications à apporter concernent le laser d'excitation et les optiques de filtrage spectral, pour isoler la lumière de fluorescence des molécules de celle du laser de pompe [2].

[2]Notons également que l'étude des molécules fluorescentes est effectuée au moyen d'un objectif de microscope à immersion de grande ouverture numérique (NIKON ×60, ON = 1.3), alors que celle sur les centres colorés du diamant a été réalisée avec un objectif métallographique travaillant à l'air (OLYMPUS ×100, ON = 0.95)

Pour les expériences que nous décrivons dans ce chapitre, la fluorescence des molécules est excitée continûment à l'aide d'un laser monomode à la longueur d'onde $\lambda_{\text{ex}} = 532$ nm (Torus, LASER QUANTUM). Un balayage typique d'un échantillon de molécules de carbocyanine dispersées dans un film de PMMA est décrit sur la figure 5.4. Les points émetteurs correspondent à la fluorescence de molécules individuelles, avec un rapport signal à bruit supérieur à 10.

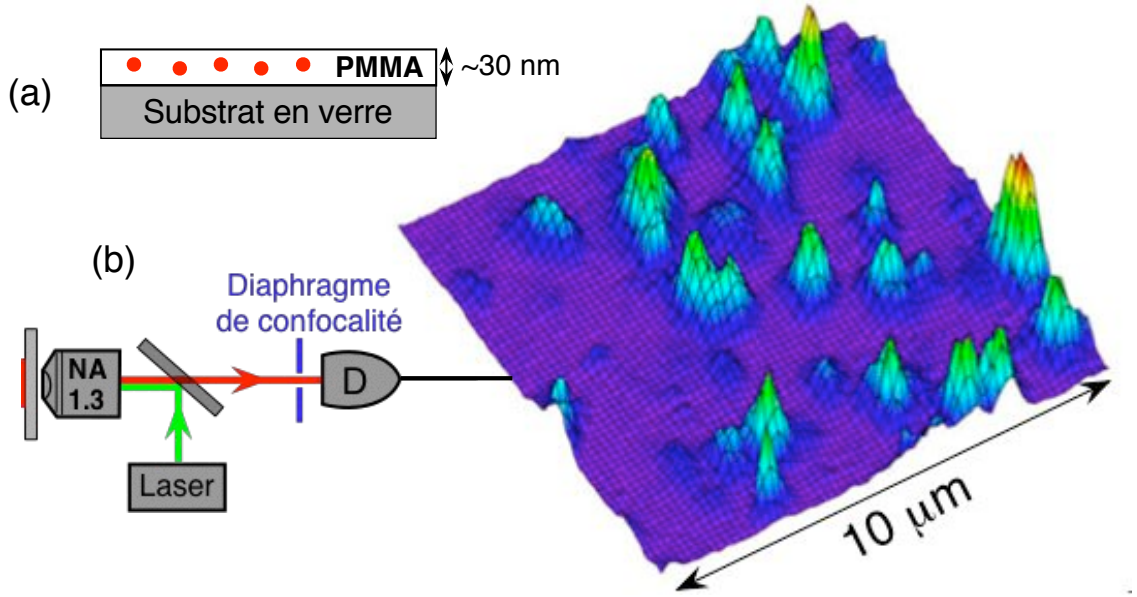


FIG. 5.4 – *(a)-Echantillon de molécules de colorant dispersées dans un film de PMMA, puis déposé à la tournette sur une lamelle de microscope. (b)-Scan typique de l'échantillon par microscopie confocale en régime d'excitation continue à l'aide d'une diode laser à* $\lambda_{\text{ex}} = 532$ nm, *et en utilisant un objectif de microscope à immersion de grande ouverture numérique (Nikon* $\times 60$, ON $= 1.3$*). La quasi totalité des points émetteurs sont des molécules uniques, dont la fluorescence est isolée avec un rapport signal à bruit supérieur à* 10. *L'intensité d'excitation laser est fixée à* $I_{\text{ex}} \approx 0.3$ kW.cm^{-2} *afin d'éviter de détruire les molécules dès le balayage de l'échantillon.*

5.3 Caractéristiques de la fluorescence de molécules uniques

5.3.1 Taux de comptage

Les molécules de colorant sont excitées avec une intensité laser incidente $I_{\text{ex}} \approx 1$ kW.cm^{-2}, proche de la saturation de l'absorption (figure 5.5). Pour cette puissance d'excitation, les flux de photons mesurés pour l'émission de fluorescence d'une molécule individuelle sont compris entre 20 kcoups.s^{-1} et 200 kcoups.s^{-1}. Cette dispersion est attribuée à l'orientation aléatoire du dipôle associé à la molécule individuelle considérée [172]. Notons cependant que la majeure partie des molécules observées correspondent à des taux de comptage de l'ordre de 50 kcoups.s^{-1}, qui sont compatibles avec une efficacité globale de collection du système expérimental de l'ordre de quelques % [59].

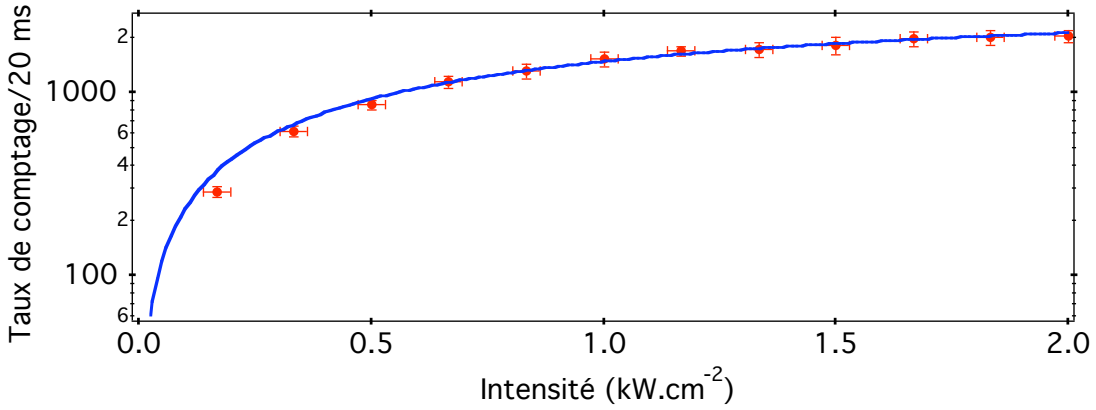


FIG. 5.5 – *Courbe de saturation de la transition de fluorescence d'une molécule unique de carbocyanine. L'ajustement des données par la formule donnant le taux de fluorescence d'un système à trois niveaux en fonction de l'intensité d'excitation [173] conduit à une valeur* $I_{\mathrm{sat}} = 1.5 \pm 0.2\ \mathrm{kW.cm^{-2}}$ *de l'intensité de saturation.*

5.3.2 Sauts quantiques vers le niveau triplet

Nous avons mentionné au paragraphe 5.2.1 qu'une molécule individuelle de colorant sous excitation laser peut effectuer une transition du niveau excité S_1 vers le niveau triplet T_1 par croissement inter-système 5.2. Lorsque cette transition intervient, la fluorescence est interrompue pendant une durée équivalente à la durée de vie τ_{t} du niveau triplet, durant laquelle la molécule reste piégée dans ce niveau. Cette extinction temporaire de la fluorescence est l'illustration de la transition d'un électron entre les deux niveaux d'énergie S_1 et T_1 et correspond à un « saut quantique ».

Depuis les débuts de la mécanique quantique, la notion de « saut quantique » a été l'objet de nombreux débats, en particulier sur la possibilité de les observer expérimentalement [174], positionnant une fois de plus le problème de la mesure et de la réduction du paquet d'onde qui y est associé au coeur de la théorie de la mécanique quantique. L'observation de sauts quantiques est devenue envisageable grâce aux développement des techniques expérimentales permettant l'isolation d'objets quantiques à l'échelle individuelle. Ainsi, la première mise en évidence expérimentale de sauts quantiques a été obtenue simultanément par trois équipes en 1986 à l'aide d'ions uniques piégés, dont la structure des niveaux fait apparaître un état « noir » tout comme le niveau triplet des molécules [175, 176, 177]. Très récemment de tels sauts quantiques ont également été observés pour le champ électromagnétique dans l'équipe de recherche animée par M. BRUNE, J. M. RAIMOND et S. HAROCHE au laboratoire Kastler-Brossel, en enregistrant la naissance, la vie et la mort d'un photon dans une cavité micro-onde de très grand facteur de qualité [178, 179].

L'observation de sauts quantiques pour une molécule unique est délicate compte tenu de la durée de vie relativement courte de l'état triplet par rapport aux flux de photons de fluorescence pouvant être détectés. La première mise en évidence expérimentale de sauts quantiques associés au passage vers le niveau triplet a été obtenue en 1995, en étudiant à des température cryogéniques la fluorescence de molécules individuelles de terrylène dispersées dans des cristaux de *p*-terphényl [153]. Dans ces conditions expérimentales la molécule de terrylène présente une durée de vie du niveau triplet de l'ordre de 0.5 ms, valeur suffisamment grande pour observer les sauts quantiques. Plus récemment, la mise en évidence de sauts quantiques dans la fluorescence de molécules de carbocyanine dans un film polymère de PMMA a été réalisée à température

ambiante, grace à un dispositif de microscopie optique en champ proche ayant une efficacité de collection élevée des photons de fluorescence [3] [180].

Notre dispositif expérimental de microscopie confocale permet également d'observer les sauts quantiques dans la fluorescence d'une molécule unique, comme le décrit la figure 5.6. Les extinctions de la fluorescence se font sur une échelle temporelle de l'ordre de la durée de vie τ_t du niveau triplet, de l'ordre de 200 μs pour les molécules étudiées de carbocyanine et de terrylène. Nous verrons par la suite que la possibilité de détecter ces sauts quantiques sera au coeur de notre méthode visant à augmenter la photostabilité de molécules individuelles.

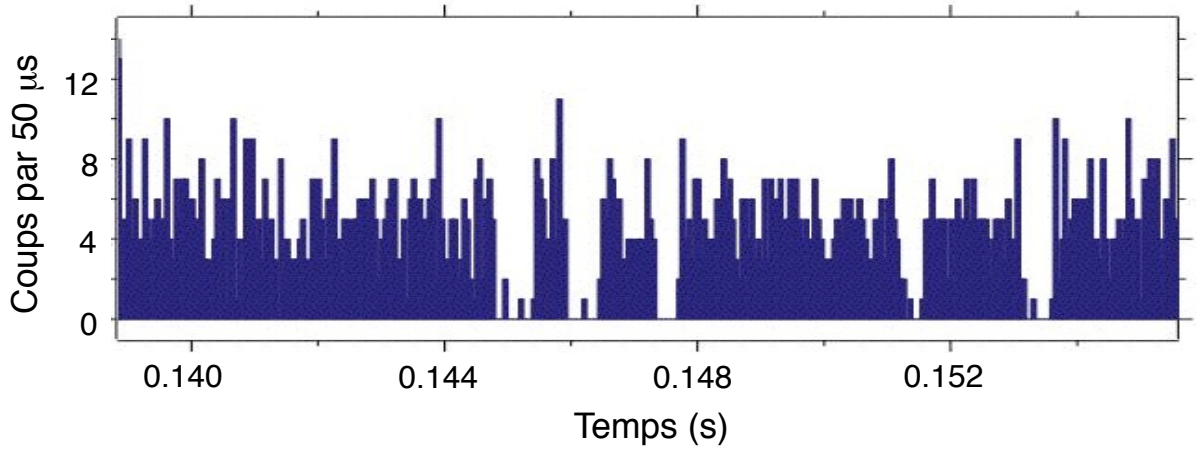


FIG. 5.6 – *Mise en évidence de sauts quantiques vers le niveau triplet T_1. Le signal de fluorescence d'une molécule de carbocyanine, intégré toute les 50 μs, met en évidence des périodes noires durant lesquelles aucun photon de fluorescence n'est détecté. La durée de ces extinctions est de l'ordre de la durée de vie τ_t du niveau triplet, soit environ 200 μs.*

5.3.3 Extinction irréversible de la fluorescence

Le phénomène de photoblanchiment correspond à une transformation irréversible d'un fluorophore organique en une entité non fluorescente sous excitation lumineuse. Typiquement, dans les conditions usuelles de pression et de température et lorsque les molécules sont excitées à saturation, leur temps de survie est de l'ordre de quelques secondes, conduisant uniquement à la détection de 10^5 à 10^6 photons avant le phénomène irréversible de photoblanchiment (figure 5.1). Ce phénomène limite irrémédiablement les études photophysiques de molécules individuelles ainsi que toute application les utilisant comme émetteur de lumière.

Notons cependant que certaines techniques expérimentales, visant notamment à l'étude de la mobilité moléculaire dans les cellules vivantes, tirent profit du phénomène de photoblanchiment. C'est par exemple le cas de la technique de redistribution de fluorescence après photoblanchiment, dénommée par l'acronyme FRAP, pour « Fluorescence Recovery After Photobleaching » [171]. Pour une distribution homogène d'une population moléculaire fluorescente, il est possible d'inhiber de manière irréversible la fluorescence dans une zone restreinte de l'échantillon par photoblanchiment, en exposant très brièvement cette zone avec un laser intense. Deux populations de

[3] L'avantage de cette technique de microscopie par rapport à la microscopie confocale réside dans l'abscence du trou de confocalité qui conduit à la perte d'une quantité non négligeable des photons de fluorescence.

molécules, une fluorescente l'autre pas, spatialement distinctes sont ainsi créées. Si les molécules peuvent se déplacer dans le milieu, on assiste alors à une redistribution des deux populations entre la zone « photoblanchie » et le milieu adjacent jusqu'à une homogénéisation des populations. La zone initialement photoblanchie redevient ainsi progressivement fluorescente. L'analyse de la cinétique de récupération de la fluorescence permet de déduire le coefficient de diffusion des molécules dans le milieu considéré [181].

Dans le cadre des expériences que nous présentons dans ce chapitre, nous trouverons également un aspect bénéfique au phénomène de photoblanchiment, en l'utilisant comme diagnostic d'unicité de l'émetteur étudiée. En effet, lorsque plusieurs molécules sont excitées simultanément la trace temporelle de fluorescence présente des paliers correspondant à la photo-destruction successive de chacune des molécules illuminées (figure 5.7). Ce critère d'unicité est bien attendu beaucoup plus simple qu'une mesure de corrélation de photons, non adaptée aux molécules uniques en raison de leur mauvaise photostabilité.

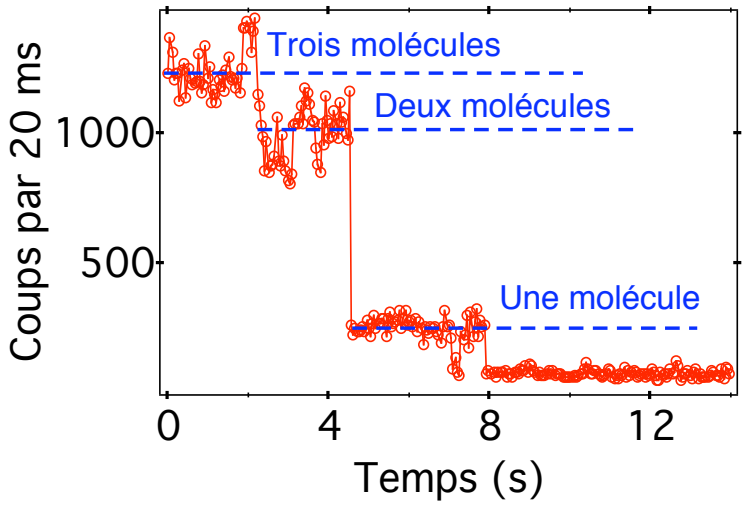


FIG. 5.7 – *Le phénomène de photoblanchiment est un diagnostic, malheureusement destructif, de l'unicité de l'émetteur. Lorsque plusieurs molécules sont excitées simultanément, la fluorescence décroit par paliers, chacun d'entre eux correspondant à la photo-destruction d'une des molécules illuminées.*

5.4 Processsus associés au photoblanchiment

5.4.1 Effet de l'environnement et de l'excitation optique

Les processus réactionnels impliqués dans le phénomène de photoblanchiment sont aujourd'hui encore incompris [182, 183]. Bien que de nombreux mécanismes aient été proposés, chacun d'entre eux n'est valable que pour des conditions expérimentales spécifiques, liées au choix de la molécule étudiée et à son environnement. Cependant, les nombreuses études entreprises pour comprendre le phénomène de photoblanchiment ont permis de montrer expérimentalement l'importance de certains paramètres que nous décrivons brièvement dans cette partie.

Influence de l'oxygène

A température ambiante, la présence d'oxygène dans l'environnement des molécules illuminées est considérée comme l'un des paramètres les plus importants intervenant dans le phénomène de photoblanchiment. L'extinction de la fluorescence résulterait d'une réaction d'oxydation de la molécule de colorant considérée. Le mécanisme d'oxydation serait initié par un passage de la molécule dans son niveau triplet, chimiquement très réactif, permettant la création d'oxygène radicalaires, qui oxydent la molécule de colorant et lui font perdre ses propriétés de fluorescence. La transition vers le niveau triplet à l'origine de ce mécanisme n'étant possible que sous excitation lumineuse, on parle souvent de photooxydation.

Cette hypothèse a été confirmée par de nombreuses expériences pour lesquelles les molécules étaient isolées de l'oxygène. Ceci peut être réalisé par exemple grâce à l'insertion de molécules individuelles dans des cristaux de *p*-terphényl [184, 161], ou bien par l'utilisation d'inhibiteurs d'oxygène [185], ou encore en utilisant une atmosphère riche en diazote [186].

Il a cependant été démontré que l'effet de l'oxygène peut également être inverse, à savoir induire une augmentation de la photostabilité ! A titre d'exemple, pour les deux molécules que nous nous proposons d'étudier, la présence d'oxygène améliore la photostabilité de la carbocyanine tandis qu'elle détériore celle du terrylène [187]. Par conséquent, il n'existe pas une règle générale qui explique le photoblanchiment uniquement par l'action des molécules d'oxygène.

Influence de la température

Les mécanismes réactionnels conduisant au photoblanchiment nécessitent généralement le passage d'une barrière énergétique pour effectivement amorcer une réaction chimique. Cette énergie peut par exemple être fournie au système par agitation thermique. Une stratégie efficace pour augmenter considérablement la photostabilité de molécules individuelles consiste à travailler à des températures cryogéniques. Une telle méthode est cependant inadaptée pour des applications utilisant des molécules individuelles comme sondes pour le vivant.

Influence de l'excitation optique

De nombreuses expériences ont également cherché à comprendre l'influence de l'intensité d'excitation des molécules dans le phénomène de photoblanchiment. Un moyen pour augmenter la durée de survie de molécules uniques consiste à les exciter à une puissance très inférieure à la puissance de saturation. En contrepartie, les taux de comptage sont alors très faibles, mais il a cependant été montré que le nombre total de photons détectés avant photoblanchiment pouvait être augmenté lorsque les molécules sont excitées à faible puissance [188]. Pour expliquer cette observation, il a été proposé que certains processus conduisant au photoblanchiment sont le résultat d'une transition du niveau triplet T_1 vers un niveau triplet excité T_n, induite par l'absorption d'un ou plusieurs photons du laser d'excitation [188, 189]. Ces niveaux triplets excités sont de plus connus pour être extrêmement réactifs avec les molécules d'oxygène. Nous qualifierons ces processus de photo-induits, puisqu'ils sont favorisés lorsque la molécule est éclairée dans son niveau triplet.

5.4.2 Photoblanchiment et passage dans le niveau triplet

Remarquons que pour la majeure partie des processus conduisant au photoblanchiment que nous venons d'évoquer, le niveau triplet T_1 joue un rôle central. En effet, de nombreux mécanismes

débutent par un croissement-inter système vers le niveau triplet T_1, qui constitue ainsi un des points de départ des mécanismes de photoblanchiment.

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons tenté de mesurer la durée d'illumination de molécules individuelles avant photoblanchiment en fonction de leur taux de passage dans le niveau triplet. Dans ce but, le signal de sortie de la photodiode à avalanche détectant la fluorescence de molécules uniques en sortie du dispositif de microscopie confocale (figure 5.4), est envoyé dans une carte de comptage qui dénombre le nombre de passage dans le niveau triplet.

Le fonctionnement de la carte de comptage est décrit schématiquement sur la figure 5.8 : si aucun photon de fluorescence n'est détecté durant un intervalle de temps ajustable τ_d, un passage dans le niveau triplet est comptabilisé. Ce paramètre τ_d doit évidemment être inférieur à la durée de vie τ_t du niveau triplet de la molécule considérée, durant laquelle la fluorescence est momentanément interrompue.

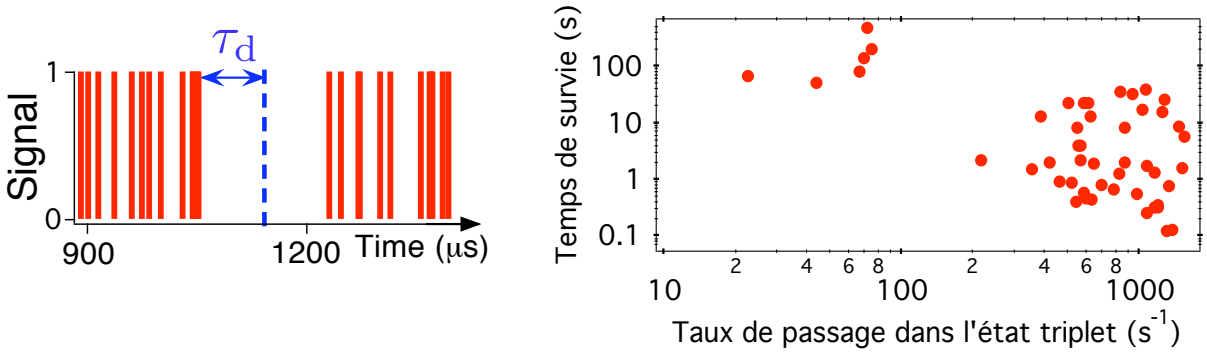


FIG. 5.8 – *Temps de survie de molécules individuelles et taux de passage dans le niveau triplet. (a)-La trace temporelle de fluorescence d'une molécule unique, détectée par microscopie confocale, présente des périodes d'extinction, révélatrices des sauts quantiques vers le niveau triplet. Les « clicks » de détection du signal de fluorescence sont envoyés dans une carte d'acquisition qui compte le nombre de passages dans le niveau triplet.* τ_d *est un seuil temporel ajustable permettant de discriminer les photons de fluorescence des sauts quantiques vers le niveau triplet. Si aucun photon n'est détecté durant l'intervalle de temps* τ_d*, alors un passage dans le niveau triplet est comptabilisé. (b)-Résultats de l'expérience réalisée sur un ensemble de* 50 *molécules uniques de carbocyanine dispersées dans un film de PMMA, en fixant* $\tau_\mathrm{d} = 100$ μs.

L'expérience est réalisée avec des molécules uniques de carbocyanine, dont la durée de vie du niveau triplet est de l'ordre de 200 μs. Il a cependant été montré que cette durée de vie peut varier considérablement d'une molécule à l'autre, très probablement en raison de variations de l'environnement local des molécules considérées [180]. La figure 5.13, tirée de la référence [180], décrit la statistique de la durée de vie du niveau triplet pour un ensemble de 56 molécules de carbocyanine isolées dans un film mince de PMMA. Cette mesure illustre très clairement la grande dispersion de ce paramètre, variant entre 50 et 600 μs.

Le choix de la valeur du paramètre τ_d doit tenir compte d'un autre temps caractéristique important de l'expérience, à savoir l'intervalle de temps moyen τ_fluo entre la détection de deux photons de fluorescence successifs. Ce temps caractéristique est directement relié à la durée de vie du niveau excité de la molécule ainsi qu'à l'efficacité globale de collection du système expérimental. Afin de pouvoir détecter l'occurence d'un saut quantique vers le niveau triplet, il est nécessaire de satisfaire à la relation $\tau_\mathrm{d} \gg \tau_\mathrm{fluo}$. Nous avons indiqué que notre dispositif expérimental conduit à des flux de photons détectés compris entre 20 kcoups.s^{-1} et 200 kcoups.s^{-1} (§ 5.3.1) lorsque les

molécules sont excitées à saturation, correspondant à des valeurs τ_{fluo} comprises entre 5 et 50 μs.

L'expérience est donc réalisée en fixant $\tau_{\text{d}} = 100$ μs, qui permet de distinguer sans ambiguïté les transitions vers le niveau triplet. Sur un ensemble de 50 molécules uniques nous avons mesuré le temps d'illumination laser avant photoblanchiment ainsi que le nombre de passage que chaque molécule effectue dans son niveau triplet.

Les résultats de cette expérience, représentés sur la figure 5.8, révèlent l'existence de deux populations de molécules très différentes : la majorité des molécules ont une durée de vie avant photoblanchiment de quelques secondes, mais un petit nombre de molécules survivent au-delà d'une minute. Cette minorité de molécules, auxquelles se restreignent parfois les études de molécules uniques, semblent correspondre aux molécules qui « explorent » le moins souvent le niveau triplet.

Notons cependant que cette expérience ne permet pas en réalité de savoir si les molécules à longue durée de survie peuplent peu souvent le niveau triplet ou bien si la durée de vie du niveau triplet elle-même est courte. En particulier, pour les molécules telles que $\tau_{\text{t}} < \tau_{\text{d}}$, aucun passage vers le niveau triplet ne peut être mesuré à l'aide de notre méthode. Or nous avons vu que certaines molécules peuvent présenter une durée du niveau triplet inférieure à 100 μs (figure 5.13). Il n'est donc pas possible de tirer des informations quantitatives de cette expérience. Nous pouvons seulement conclure que les molécules les plus photostables sont celles qui peuplent peu souvent le niveau triplet ou bien celles qui le peuplent peu de temps, confirmant ainsi le rôle central du niveau triplet dans la dynamique réactionnelle du photoblanchiment.

D'un point de vue de l'ingénierie chimique, cette étude confirme qu'il est possible d'obtenir des fluorophores photostables en synthétisant des molécules ayant un très faible taux de croissement inter-système, conduisant à une diminution de la probabilité de peupler le niveau triplet [190]. A notre connaissance, la molécule la plus photostable à ce jour est un colorant de type terrylene diimide, synthétisée dans l'équipe de Klaus MULLEN à l'université de Mainz en Allemagne [191] (figure 5.9).

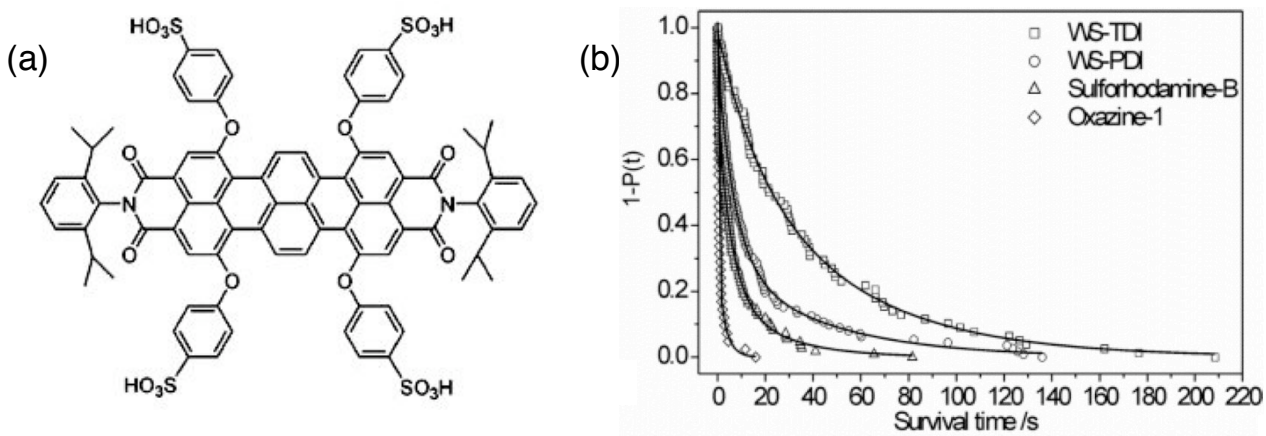


FIG. 5.9 – *(a)-Molécule de colorant de type terrylène diimide dénommée WS-TDI et synthétisée dans l'équipe de K.* MULLEN. *(b)-Comparaison de la photostabilité de diverses molécules étudiées à l'échelle individuelles dans un film polymère. $P(t)$ est la probabilité qu'une molécule soit détruite à l'instant t. La molécule WS-TDI est sans conteste la molécule la plus photostable, en raison de sa faible probabilité de réaliser une transition vers le niveau triplet [190]. Ces figures sont tirées de la référence [191].*

5.5 Hypothèse de travail

Nous avons vu dans la section précédente que les processus mis en jeux dans le phénomène de photoblanchiment sont multiples et complexes, et restent encore relativement incompris à ce jour. Nous avons cependant établi l'importance du niveau triplet dans les mécanismes réactionnels conduisant au photoblanchiment.

Dans la suite de ce chapitre, nous faisons le choix de nous intéresser uniquement aux processus photo-induits à partir du niveau triplet, c'est-à-dire aux mécanismes impliquant l'absorption de lumière par la molécule lorsque celle-ci se trouve dans ce niveau [188, 189]. Nous faisons de plus l'hypothèse que ce sont ces mécanismes qui sont prépondérants dans la dynamique de photoblanchiment. Ainsi le schéma réactionnel de photoblanchiment que nous considérons peut être décrit par la figure 5.10 : l'activation du processus de photoblanchiment se fait par absorption d'un ou plusieurs photons du laser d'excitation, une fois que la molécule se trouve dans son niveau triplet.

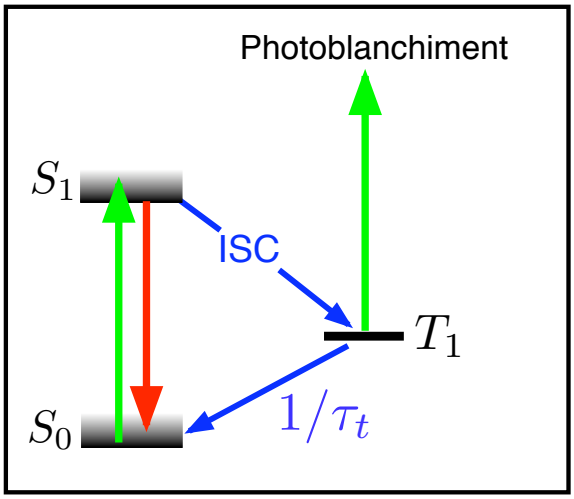


FIG. 5.10 – *Schéma simplifié du processus de photoblanchiment pour lequel seuls les processus photo-induits à partir du niveau triplet sont pris en compte.*

En partant de cette hypothèse, une stratégie naturelle visant à améliorer la photostabilité de molécules individuelles consiste à couper l'excitation optique de la molécule dès lors que celle-ci est dans son niveau triplet. Ceci peut être automatiquement réalisé à l'aide d'une excitation laser impulsionnelle qui satisfait aux des deux conditions suivantes :

1. La durée des impulsions est courte devant la durée de vie radiative de la molécule ;
2. La période de répétition est grande devant la durée de vie τ_{t} du niveau triplet.

Lorsque ces deux conditions sont réunies, une molécule ne peut alors effectuer qu'un unique cycle de fluorescence pour chaque impulsion excitatrice. De plus, si une transition vers le niveau triplet intervient par croissement inter-système, la molécule bénéficie du temps nécessaire pour relaxer vers le niveau fondamental avant d'être à nouveau excitée par l'impulsion suivante. Ainsi, une molécule n'est jamais irradiée lorsqu'elle est dans son niveau triplet. Cette stratégie d'excitation impulsionnelle est utilisée depuis longtemps pour réaliser des lasers à colorant impulsionnel de forte énergie [192]. Notons que cette approche est également utilisée dans le cadre de la microscopie à haute résolution STED, acronyme pour Stimulated Emission Depletion, mise au point

par l'équipe de S. HELL à l'université de Göttingen (Allemagne) [193, 194].

Une telle méthode est cependant difficile à mettre en œuvre à l'échelle des molécules individuelles. En effet, les molécules de colorant présentent des durées de vie du niveau triplet allant de 10^{-3} s à 10^{-5} s suivant la nature de la molécule et de son environnement. De telles valeurs conduisent à un taux de répétition maximum d'excitation de l'ordre de 10 kHz, pour satisfaire à la deuxième condition indiquée précédemment. En considérant les efficacités de collection typiques des dispositifs de microscopie confocale (quelques $\%$), le taux de comptage attendu pour l'émission de fluorescence d'une molécule unique serait alors de l'ordre d'une centaine de coups par seconde, voisin du niveau des coups d'obscurité des détecteurs actuels fonctionnant en régime de comptage de photons. Ainsi, il est pour l'instant peu réaliste d'espérer pouvoir détecter la fluorescence d'une molécule unique dans ce régime d'excitation impulsionnelle. Nous pourrions cependant envisager l'utilisation de détecteurs supraconducteurs de photon unique, qui ont un niveau de bruit bien inférieur à celui des photodiodes à avalanche [195].

5.6 Amélioration de la photostabilité de molécules uniques

En partant de l'hypothèse que nous venons de formuler dans la section précédente pour expliquer le phénomène de photoblanchiment, nous allons maintenant décrire un dispositif permettant d'améliorer de manière très significative la photostabilité de molécules individuelles. L'idée consiste simplement à couper l'excitation laser lorsque que la molécule a effectué un saut quantique vers son niveau triplet T_1. L'expérience repose ainsi sur une boucle de rétroaction vers l'excitation laser, fondée sur la détection en temps réel de sauts quantiques d'une molécule unique vers le niveau triplet. En comparaison de la méthode d'excitation impulsionnelle décrite dans la section précédente, ce dispositif a une sensibilité intrinsèque au niveau de la molécule unique.

5.6.1 Principe de l'expérience

Le montage expérimental est construit autour du microscope confocal décrit au § 5.2.2 et est schématiquement représenté sur la figure 5.11. Le signal de fluorescence émis par une molécule individuelle révèle des intermittence liées à des transitions vers le niveau triplet (figure 5.11-(a)). Ce signal de fluorescence est envoyé dans une carte d'acquisition qui, une fois qu'un saut quantique est détecté, commande en temps réel un modulateur acousto-optique (AOM) qui permet d'éteindre l'excitation optique (figure 5.11-(b)). Le résultat est une boucle de rétroaction basée sur la détection de sauts quantiques vers le niveau triplet, qui assure une adaptation de l'excitation laser à l'état énergétique de la molécule. Ainsi, lorsque la molécule peuple son état triplet, l'excitation laser est suspendue.

Le fonctionnement de la boucle de rétroaction repose sur deux temps caractéristiques ajustables τ_{d} et τ_{off}, comme décrit sur la figure 5.11-(b). Le temps τ_{d} est la constante de temps pour laquelle il est effectivement décidé que la molécule a été piégée dans le niveau triplet. Ce temps agit comme un seuil temporel permettant de différencier les cycles de fluorescence des sauts quantiques. Ainsi, si aucun photon n'est détecté durant un intervalle de temps de longueur τ_{d}, le laser est éteint pendant une durée τ_{off} plus longue que la durée de vie τ_{t} de l'état triplet, afin de laisser à la molécule le temps nécessaire pour relaxer vers son niveau fondamental, avant de l'exciter à nouveau.

Un autre temps caractéristique important de l'expérience est l'intervalle de temps moyen τ_{fluo} séparant la détection de deux photons de fluorescence successifs. Afin d'éviter que le laser soit éteint en permanence, il est nécessaire de satisfaire à la relation $\tau_{\mathrm{fluo}} < \tau_{\mathrm{d}}$.

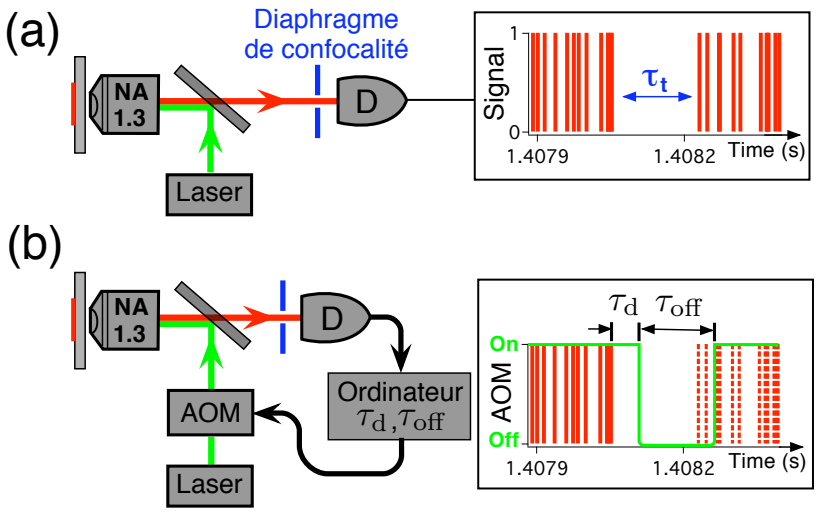


FIG. 5.11 – *Boucle de rétroaction sur l'excitation laser utilisant la détection de sauts quantiques vers le niveau triplet. (a)- La trace temporelle de fluorescence d'une molécule unique, détectée par microscopie confocale, présente des périodes d'extinction, révélatrices de ces sauts quantiques. Ce signal de fluorescence est directement le signal obtenu en sortie du détecteur, sans aucune intégration. (b)- La détection d'un saut quantique déclenche un modulateur acousto-optique (AOM), utilisée comme interrupteur optique pour le laser d'excitation. Si aucun photon n'est détecté durant une fenêtre temporelle de durée fixée* τ_d*, le laser est éteint pendant une durée* τ_{off} *supérieure à la durée de vie du niveau triplet. La figure représente en vert la commande qui serait appliquée à l'AOM pour la trace de fluorescence représentée sur la figure 5.11-(a). Le temps caractéristique de réponse de l'AOM est de* 600 *ns, bien inférieur à toutes les autres constantes de temps impliquées dans l'expérience.*

5.6.2 Augmentation de la photostabilité de molécules uniques de DiIC$_{18}$(3)

L'expérience est dans un premier temps réalisée avec les molécules de carbocyanine DiIC$_{18}$ qui sont communément utilisées en biologie pour sonder les potentiels trans-membranaires [196]. Les molécules sont excitées à une intensité de $1\ \mathrm{kW.cm^{-2}}$, proche de la saturation de la transition de fluorescence (cf. figure 5.5). Nous avons indiqué que pour cette puissance d'excitation, les taux de comptage obtenues sur la photodiode à avalanche sont compris entre 20 kcoups.s^{-1} et 200 kcoups.s^{-1}.

Les statistiques réalisées sur des ensembles de molécules individuelles souffrent inévitablement de biais résultant de la sélection de sous-populations dans l'échantillon étudié. Par exemple, certaines molécules, parmi les moins photostables, photoblanchissent lors du balayage de l'échantillon, avant même qu'une étude spécifique ait pu être entreprise. Afin d'éviter au maximum de perdre cette population de molécules, les balayages sont réalisés à très faible intensité, en pratique une centaine de $W.cm^{-2}$, leur utilité se bornant à localiser spatialement les émetteurs. Une autre cause de biais dans les études de statistiques de molécules individuelles consiste à étudier uniquement les molécules présentant des taux de comptage importants. Afin de limiter ces biais, nous avons décidé d'étudier toutes les molécules présentant des taux de comptage supérieurs à 30 kcoups.s^{-1}, correspondant à un intervalle de temps moyen entre deux détections successives $\tau_{\mathrm{fluo}} = 33\ \mu$s. Le seuil temporel τ_d de détection d'un saut quantique vers le niveau triplet est alors fixé à 70 μs.

La durée de vie du niveau triplet de molécules de carbocyanine est de l'ordre de 200 μs. Ce-

pendant, nous avons indiqué que cette durée de vie varie considérablement en fonction de l'environnement de la molécule [180] (figure 5.13). Afin d'être assuré que la molécule bénéficie du temps nécessaire pour relaxer du niveau triplet vers son niveau fondamental S_0 avant que le laser d'excitation ne soit rallumé, le paramètre τ_{off} est fixé à $400\ \mu$s.

Pour deux ensembles de molécules individuelles, nous avons mesuré le nombre total de photons détectés avant photoblanchiment, avec et sans la boucle de rétroaction. Cette grandeur, directement reliée à la quantité d'information qu'il est possible d'extraire optiquement d'une molécule unique, nous semble être le paramètre pertinent pour les études de photostabilité. A partir des données correspondant à l'étude d'un ensemble constitué de N_{tot} molécules uniques, nous représentons la probabilité cumulée $P(N)$ pour qu'une molécule photoblanchisse après la détection de N photons. Cette probabilité cumulée $P(N)$ décroit de $1/N_{\text{tot}}$ dès lors qu'une molécule de l'ensemble est détruite après l'émission de N photons. Lorsque toutes les molécules de l'ensemble d'étude ont photoblanchi $P(N) = 0$. Ces probabilités cumulées $P(N)$ sont évaluées à l'aide d'un premier ensemble de $N_{\text{tot}} = 56$ molécules sans boucle de retroaction, puis à l'aide d'un second ensemble de 56 molécules en utilisant la boucle de retroaction sur l'excitation laser. Les résultats sont décrits sur la figure 5.12-(a). Ils montrent sans ambiguïté une forte amélioration de la photostabilité des molécules individuelles de carbocyanine lorsque la boucle de rétroaction est appliquée.

Afin de vérifier que la différence observée entre les données obtenues avec et sans la boucle de rétroaction n'est pas le résultat de fluctuations statistiques, mais révèle bien des distributions de probabilité différentes, nous avons effectué pour ces données un test statistique de Kolmogorov-Smirnov [137]. Ce test est quantifié par la grandeur Q_{ks} qui estime la probabilité pour que deux statistiques différentes proviennent de la même distribution de probabilité. Ainsi, pour deux statistiques issues de la même distribution de probabilité, $Q_{\text{ks}} = 1$. Pour les données mesurées avec et sans la boucle de rétroaction décrites sur la figure 5.12-(a), nous obtenons $Q_{\text{ks}} = 2.2 \times 10^{-4}$.

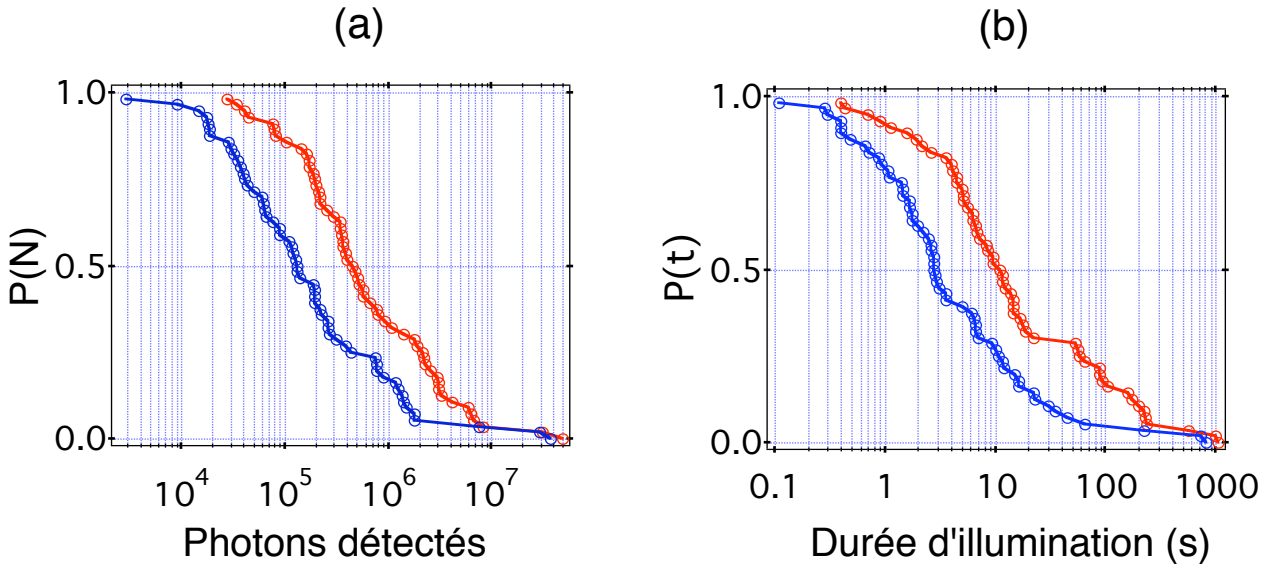


FIG. 5.12 – *Augmentation de la photostabilité de molécules uniques de carbocyanines DiIC$_{18}$. Les probabilités cumulées de nombre de photons détectés $P(N)$ (a) et de durée d'illumination $P(t)$ (b) avant photoblanchiment, sont évaluées sur un ensemble de 56 molécules uniques sans utiliser la boucle de rétroaction (en bleu) et avec un autre ensemble de 56 molécules en appliquant la boucle de rétroaction (en rouge).*

Ce résultat indique avec un grand degré de confiance que la statistique de photoblanchiment est fortement modifiée par l'application la boucle de rétroaction.

Une autre grandeur intéressante pour l'évaluation de la photostabilité de molécules uniques, est la durée totale d'illumination avant photoblanchiment. Pour les échantillons de molécules uniques étudiées avec et sans la boucle de rétroaction, nous avons également mesuré cette durée. Comme précédemment, nous représentons les résultats en introduisant la probabilité cumulée de survie $P(t)$ pour qu'une molécule photoblanchisse après une durée d'illumination t. Afin de ne pas biaiser les résultats, les durées d'illumination obtenues lorsque la boucle de rétroaction est appliquée ont été corrigées des périodes durant lesquelles le laser était éteint. La durée d'illumination avant photoblanchiment est également nettement améliorée en appliquant la boucle de rétroaction (figure 5.12-(b)).

Remarquons enfin qu'une population de molécules, qui présente naturellement une bonne photostabilité, ne semble pas affectée par l'utilisation de la boucle de rétroaction. Cette observation peut s'expliquer en utilisant les résultats de la référence [180], qui donne une mesure de la distribution de durée de vie du niveau triplet de molécules uniques de carbocyanine $\mathrm{DiIC_{18}}$ dispersées dans un film mince de PMMA (figure 5.13). Cette étude montre qu'environ 10% des molécules ont une durée de vie du niveau triplet inférieure à $70\ \mu\mathrm{s}$. Ces molécules, dont on peut penser qu'elles sont les plus photostables en raison de la faible durée de peuplement du niveau triplet, ne sont évidemment pas affectée par la boucle de rétroaction réglée avec une valeur $\tau_\mathrm{d} = 70\ \mu\mathrm{s}$ pour le seuil de détection des sauts quantiques. C'est effectivement ce que nous observons dans l'expérience.

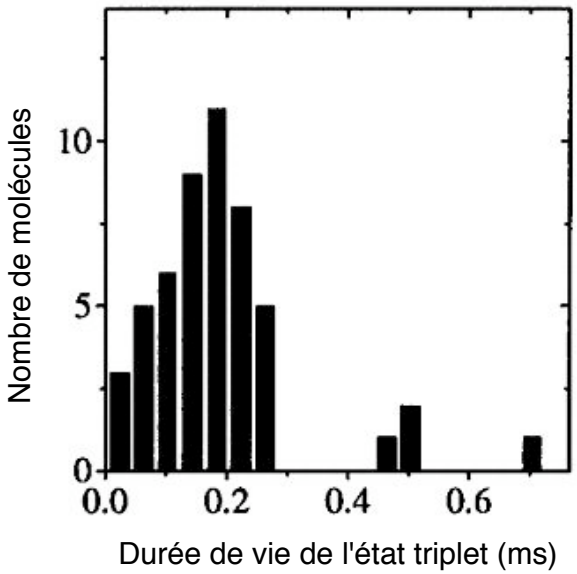


FIG. 5.13 – *Distribution de la durée de vie du niveau triplet pour un ensemble de molécules uniques de carbocyanine* $\mathrm{DiIC_{18}}$ *dispersées dans un film mince de PMMA. Ces résultats, extraits de la référence [180], mettent en évidence qu'environ* 10% *des molécules correspondent à des durées de vie du niveau triplet inférieures à* $70\ \mu\mathrm{s}$.

5.7 Gain en photostabilité G

5.7.1 Estimation du gain en photostabilité

Nous cherchons maintenant à quantifier le gain en photostabilité obtenu en utilisant la boucle de rétroaction. Pour cela, nous introduisons un modèle simplifié de photoblanchiment, pour lequel, conformément à notre hypothèse de départ, les seuls chemins réactionnels pris en compte sont ceux photo-induits à partir du niveau triplet.

Selon cette hypothèse, la probabilité de photoblanchiment est nulle lorsque le niveau triplet n'est pas peuplé ou bien lorsque le laser d'excitation est éteint. Après une transition vers le niveau triplet par croissement inter-système, on peut supposer très simplement que la probabilité pour que la molécule photoblanchisse est proportionnelle à la durée $\mathcal{T}$ pendant laquelle elle reste dans ce niveau en étant sous excitation laser. L'effet de la boucle de rétroaction consiste finalement en une diminution de cette durée $\mathcal{T}$, de la durée de vie τ_{t} du niveau triplet au seuil temporel de détection d'un saut quantique τ_{d} (figure 5.11). Nous attendons ainsi un gain en photostabilité de l'ordre de :

$$G = \frac{\tau_{\mathrm{t}}}{\tau_{\mathrm{d}}} \tag{5.1}$$

Pour un ensemble donné de molécules uniques, les durée de vie du niveau triplet sont distribuées selon des statistiques complexes, comme en témoigne la figure 5.13. Ce résultat conduit à des gains en photostabilité différents pour chaque sous population de molécules correspondant à une valeur donnée de la durée de vie du niveau triplet. Il a de plus été démontré expérimentalement que le phénomène de photoblanchiment est gouverné par des statistiques de Lévy, conduisant à des lois de puissance, que ce soit à l'échelle de la molécule unique [197] ou bien dans le cas de mesures d'ensemble [198]. Pour ce type de distribution statistique, la valeur moyenne ainsi que la variance sont théoriquement infinies. Nous avons donc choisi d'évaluer le gain en photostabilité G en utilisant la valeur médiane des distributions de nombre de photons détectés avant photoblanchiment, mesurées avec et sans la boucle de rétroaction et notées respectivement $\mathrm{Med}_{\mathrm{on}}$ et $\mathrm{Med}_{\mathrm{off}}$. La médiane est en effet connue comme étant un estimateur robuste dans le cas de statistiques complexes [137]. Finalement, l'évaluation du gain en photostabilité G est obtenu en réalisant le rapport $\mathrm{Med}_{\mathrm{on}}/\mathrm{Med}_{\mathrm{off}}$ des médianes.

L'analyse des résultats décrits par la figure 5.12-(a) conduit à un gain en photostabilité $G = 3.6$, lorsque $\tau_{\mathrm{d}} = 70\ \mu\mathrm{s}$. Nous avons choisi d'estimer G à partir des probabilités de nombre de photons détectés avant photoblanchiment plutôt qu'à l'aide des probabilités de durée d'illumination. A notre sens le paramètre pertinent dans l'étude du photoblanchiment est bien le nombre de photons détectés, qui est directement relié à l'information qu'il est possible d'extraire de la fluorescence d'une molécule unique avant son photoblanchiment. Notons cependant que l'évaluation de G à partir des durées d'illumination conduit à $G = 3.8$, valeur proche de celle obtenue avec les probabilités de nombre de photons détectés. Par la suite, nous évaluerons systématiquement le paramètre G à partir des mesures de probabilités de nombre de photons détectés avant photoblanchiment.

5.7.2 Paramètre G et seuil de détection des sauts quantiques vers le niveau triplet

Afin de tester la validité de l'équation (5.1) donnant le gain en photostabilité à l'aide de notre modèle, nous mesurons la statistique du nombre de photons détectés avant photoblanchiment pour différentes valeurs du paramètre τ_{d} de la boucle de rétroaction. Pour chacune de ces valeurs, les probabilités $P(N)$ sont évaluées pour un ensemble de 50 molécules uniques de carbocyanine

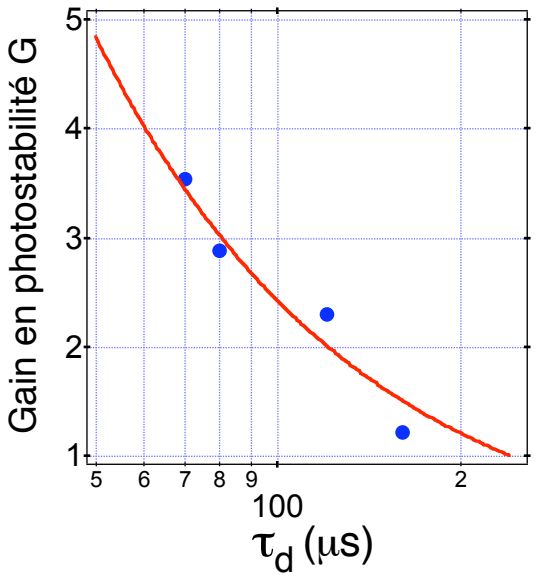


FIG. 5.14 – *Gain en photostabilité en fonction du seuil temporel τ_d de détection d'un saut quantique. La courbe représentée en rouge est le résultat de l'ajustement des données expérimentales par la fonction décrite par l'équation 5.1, donnant $\tau_{\mathrm{t}} = 240$ μs.*

en leur appliquant la boucle de rétroaction. Les données obtenues nous permettent alors d'évaluer le gain en photostabilité G pour chaque valeur de τ_{d}, en suivant la procédure décrite dans le paragraphe précédent.

Les résultats expérimentaux reproduits sur la figure 5.14 confirment bien que le gain en photostabilité G augmente lorsque le paramètre τ_{d} diminue. Les résultats expérimentaux sont ajustés avec la fonction donnée par l'équation (5.1). Le résultat de l'ajustement donne $\tau_{\mathrm{t}} = 240$ μs, valeur dans le même ordre de grandeur que les mesures précédentes de durée de vie du niveau triplet de molécules de carbocyanine [59, 180, 199] et qui est compatible avec les mesures reproduites sur la figure 5.13.

Même si cet ajustement hyperbolique associé à seulement quatre points de mesure ne saurait avoir une grande précision, ce résultat confirme sans ambiguïté l'importance des processus photo-induits à partir du niveau triplet dans la dynamique réactionnelle de photoblanchiment.

5.7.3 Paramètre G et puissance d'excitation laser

A titre de rappel, toutes les expériences que nous venons de décrire ont été réalisées en excitant les molécules avec une intensité laser incidente de $1\ \mathrm{kW.cm^{-2}}$, proche de la saturation de la transition de fluorescence des molécules de carbocyanine (figure 5.5). Dans le paragraphe précédent, nous avons vu que l'évolution du gain en photostabilité prédite par l'équation (5.1) semble bien vérifiée expérimentalement, le gain maximal en photostabilité étant atteint en fixant le seuil de détection des sauts quantiques vers le niveau triplet à la valeur minimale $\tau_{\mathrm{d}} = 70$ μs. Notons qu'à l'intensité d'excitation considérée, il n'est pas possible de diminuer davantage la durée de ce seuil de détection. En effet, nous avons mentionné qu'il est nécessaire de satisfaire à la relation $\tau_{\mathrm{d}} > \tau_{\mathrm{fluo}}$, où τ_{fluo} est l'intervalle moyen entre deux détections successives, afin d'éviter d'éteindre le laser d'excitation en permanence.

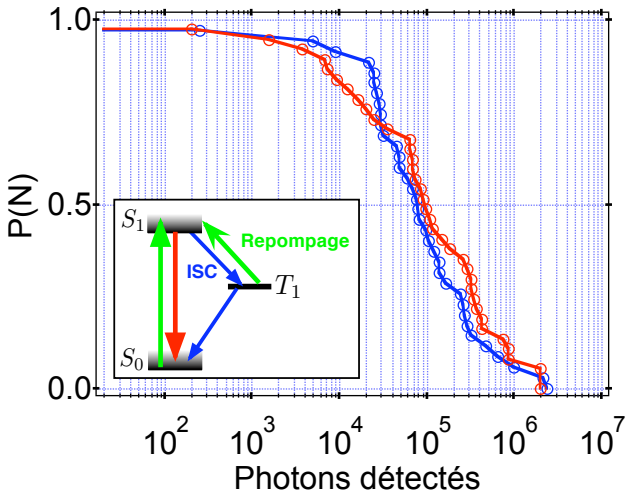


FIG. 5.15 – *Influence de l'intensité d'excitation laser sur le gain en photoqtabilité. Les molécules de carbocyanine sont excitées avec une intensité de* $2\ \mathrm{kW.cm^{-2}}$*. La probabilité cumulée du nombre de photons détectés* $P(N)$ *est évaluée sur un ensemble de* 35 *molécules uniques sans utiliser la boucle de rétroaction (en bleu) et avec un autre ensemble de* 36 *molécules en appliquant la boucle de rétroaction (en rouge). Aucun gain en photostabilité n'est observé. Ce résultat est attribué au phénomène de croisement inter-système inverse, conduisant à une diminution de la durée de vie de l'état triplet, comme décrit dans l'insert.*

Nous pouvons espérer améliorer le gain en photostabilité en excitant les molécules à une intensité supérieure. En effet, le flux de photons émis par une molécule individuelle est alors augmenté, conduisant à une diminution de la durée τ_{fluo}. Il devient alors possible de diminuer le seuil temporel τ_{d} de détection des sauts quantiques vers le niveau triplet.

Nous avons réalisé l'expérience en excitant les molécules de carbocyanine à une intensité de $2\ \mathrm{kW.cm^{-2}}$. Le paramètre τ_{d} est alors fixé à $50\ \mu\mathrm{s}$. Contrairement au résultat attendu, la boucle de rétroaction se révéle inefficace pour ces conditions expérimentales, comme le montre la figure 5.15. Ceci s'explique par un phénomène de repompage de la molécule de son niveau triplet vers le niveau excité S_1, communément appelé croissement inter-système inverse [160, 156]. Le résultat de ce processus de repompage, uniquement efficace sous forte illumination laser, est une diminution de la durée de vie effective du niveau triplet, qui compense l'effet attendu de la diminution de τ_{d} pour le gain en photostabilité.

Nous n'avons pas cherché à effectuer une étude systématique du phénomène de croissement inter-système inverse et de son influence sur le gain G en photostabilité. Nous nous sommes contentés de trouver un compromis expérimental entre une faible intensité d'excitation laser, conduisant à flux de photons trop faible pour permettre de détecter efficacement les sauts quantiques vers le niveau triplet, et une forte intensité d'excitation laser, conduisant à une diminution de la durée de vie du niveau triplet par croissement inter-système inverse.

5.8 Généralisation de la méthode

Nous avons vu dans la section précédente que la photostabilité de molécules individuelles de carbocyanine peut être améliorée en utilisant une boucle de réaction sur l'excitation laser, fondée sur la détection de sauts quantiques de la molécule vers le niveau triplet. Nous nous posons

maintenant la question de savoir si cette méthode a un caractère général et peut être appliquée à d'autres molécules de colorant.

5.8.1 Molécule de terrylène

Nous avons mentionné au § 5.4.1 de ce chapitre que la nature de l'environnement constitue un paramètre important intervenant dans la dynamique du photoblanchiment. En particulier, la présence de molécules d'oxygène peut conduire à l'extinction de la fluorescence par une réaction d'oxydation de la molécule de colorant étudiée, qui est souvent considérée comme le ressort principal du photoblanchiment [199, 182, 183].

Il a été cependant démontré que la photostabilité de certaines molécules de colorant est considérablement améliorée lorsque celles-ci sont étudiées sous une atmosphère riche en oxygène. C'est notamment le cas de la molécule de carbocyanine étudiée précédemment [187]. Pour cette molécule, qui ne souffre pas à priori de l'effet de l'oxygène, nous avons montré l'importance des mécanismes réactionnels photo-induit à partir du niveau triplet dans la dynamique de photoblanchiment.

Afin de voir si la méthode que nous proposons possède un caractère général, nous l'avons appliquée à des molécules uniques de terrylène qui, comme l'ensemble des molécules à chaînes aromatiques hydrocarbonées, voient leur photostabilité considérablement diminuée sous atmosphère d'oxygène [200]. Pour ce type de molécules, il est admis que l'oxygène est le facteur prépondérant dans le phénomène de photoblanchiment. Si tel est le cas, notre méthode d'amélioration de la photostabilité ne devrait pas être efficace.

5.8.2 Amélioration de la photostabilité de molécules uniques de terrylène

Les caractéristiques photophysiques des molécules de terrylène nous permettent de les étudier avec exactement le même dispositif expérimental que celui utilisé pour l'étude des molécules de carbocyanine (Fig. 5.3). L'intensité d'excitation laser est fixée à $1.5\ \mathrm{kW.cm^{-2}}$. Cette valeur, proche de l'intensité de saturation de la transition de fluorescence, conduit à des taux de comptage équivalents à ceux obtenus avec les molécules de carbocyanine (§ 5.3.1). La constante de temps τ_d de la boucle de rétroaction est donc à nouveau fixée à $70\ \mu\mathrm{s}$. D'autre part, la durée de vie du niveau triplet est de l'ordre de $200\ \mu\mathrm{s}$ pour des molécules de terrylène dispersées dans un film mince de polymère [156]. Le temps caractéristique τ_off de la boucle de rétroaction est à nouveau fixé à $400\ \mu\mathrm{s}$.

Sur deux ensembles de molécules uniques de terrylène, nous mesurons comme précédemment la durée totale d'illumination ainsi que le nombre de photons détectés avant photoblanchiment, avec et sans la boucle de rétroaction. Les résultats, représentés sur la figure 5.16, montrent à nouveau une amélioration significative de la photostabilité des molécules de terrylène en utilisant la boucle de rétroaction. En utilisant la procédure introduire au § 5.7.1, un gain en photostabilité $G = 3.1$ est obtenu, dans le même ordre de grandeur que la grandeur $\tau_\mathrm{t}/\tau_\mathrm{d}$ prédite par l'équation (5.1).

Ainsi, même pour une molécule souffrant fortement des effets de l'oxygène, la procédure de rétroaction est efficace, positionnant à nouveau les processus photo-induits à partir du niveau triplet comme prépondérants dans la dynamique de photoblanchiment. Nous pouvons dès lors penser que la réaction d'oxydation engendrée par les molécules d'oxygène est elle aussi photo-induite. En effet, les niveaux triplets excités d'une molécules de colorant sont fortement réactifs. On pourrait ainsi penser que les réactions de photoblanchiment faisant intervenir l'oxygène ne se

font pas à partir du niveau triplet fondamental T_1 mais plutôt à partir d'un niveau triplet excité T_n, accessible à partir du niveau T_1 par absorption de un ou plusieurs photons de l'excitation laser.

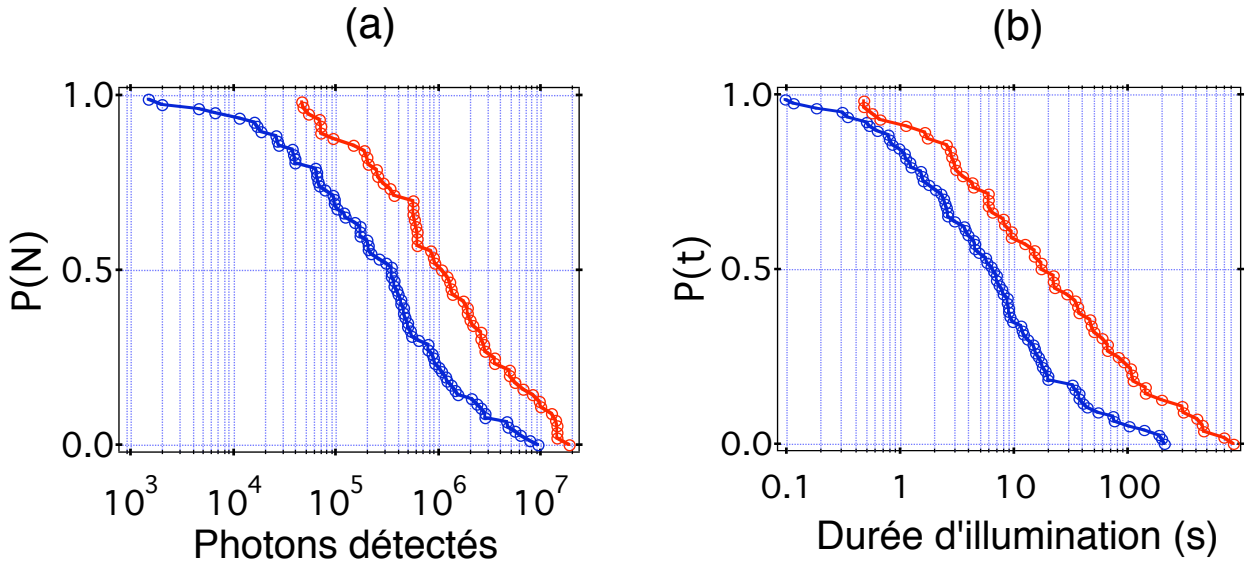


FIG. 5.16 – *Augmentation de la photostabilité de molécules uniques de terrylène. Les probabilités cumulées de nombre de photons détectés $P(N)$ -(a)- et de durée d'illumination $P(t)$ -(b)- avant photoblanchiment, sont mesurées à l'aide d'un ensemble de 72 molécules uniques sans utiliser la boucle de rétroaction (en bleu) et avec un autre ensemble de 57 molécules en appliquant la boucle de rétroaction (en rouge). Un gain en photostabilté $G = 3.1$ est obtenu.*

5.9 Conclusion

Nous avons montré qu'une adaptation en temps réel de l'excitation laser à la dynamique d'évolution d'une molécule individuelle permet de considérablement améliorer sa photostabilité. Cette technique tout optique, fondée sur la détection de sauts quantiques vers le niveau triplet, permet de mieux comprendre la dynamique du photoblanchiment.

De meilleures performances de la méthode devraient également pouvoir être obtenues en diminuant le seuil τ_d de détection d'un saut quantique vers le niveau triplet. Il est pour cela nécessaire d'augmenter l'efficacité de collection du montage expérimental ou bien de diminuer la durée de vie radiative de la transition de fluorescence, qui conduisent tous deux à une augmentation du flux de photons de fluorescence détecté pour une molécule unique. Ceci pourrait par exemple obtenu en couplant la fluorescence d'une molécule unique avec un substrat nanostructuré [201, 202].

Les résultats que nous avons présentés montrent que les processus photo-induits à partir du niveau triplet de la molécule sont des mécanismes réactionnels cruciaux dans la dynamique du photoblanchiment. Afin de réaliser une étude plus précise de ces mécanismes, il serait intéressant de changer la puissance d'excitation laser lorsque le niveau triplet est peuplé. Ceci pourrait être réalisé en remplaçant le modulateur acousto-optique par un modulateur électro-optique (EOM). En variant la tension appliquée à l'EOM, il serait alors possible de varier l'intensité d'excitation

laser lorsqu'un saut quantique vers le niveau triplet est détecté et devrait permettre de modéliser plus précisément la dynamique réactionnelle de photoblanchiment.

Conclusion et perspectives

Dans la première partie du mémoire, nous avons étudié la dualité onde-corpuscule pour un photon unique en partant de l'expérience des trous d'Young, jusqu'à la réalisation de l'expérience d'interférence à choix retardé proposée par J. A. WHEELER. Les résultats de cette expérience nous ont permis de discuter diverses interprétations de la physique quantique, pour finalement conclure qu'aucune réalité physique classique ne saurait être attribuée au photon indépendamment de l'appareil de mesure, comme le stipule le principe de complémentarité sur lequel repose l'interprétation de Copenhague de la physique quantique.

La réalisation expérimentale de cette expérience de pensée est aujourd'hui possible en raison des progrès obtenus ces dernières années dans la détection et la manipulation d'objets quantiques à l'échelle individuelle, dont l'une des conséquences est la mise au point de sources efficaces de photon unique. Au delà de leur possible utilisation pour la réalisation d'expériences testant les fondements de la physique quantique, l'amélioration des performances de ces sources constitue un enjeu de taille pour le développement de l'information quantique. Dans cette perspective, nous avons décrit dans la deuxième partie du mémoire la réalisation d'une source de photon unique fondée sur l'émission d'un centre coloré à base d'impuretés de nickel dans le diamant, que nous pensons être bien adaptée à la réalisation d'un système de cryptographie quantique en espace libre. Nous avons également mis en œuvre une technique permettant d'améliorer de manière significative la photostabilité de molécules individuelles à température ambiante.

Cependant, les principales applications des sources de photons uniques aux communications et au calcul quantique nécessitent que les photons émis par la source soient indiscernables, c'est-à-dire appartiennent au même mode spatio-temporel. En particulier, E. KNILL, L. LAFLAMME et G. J. MILBURN ont proposé en 2001 un schéma de réalisation d'un ordinateur quantique fondé sur l'utilisation de tels photons uniques indiscernables [56], la réalisation d'opérations logiques quantiques étant assurée par le phénomène de « coalescence » de photons. Ce terme désigne le phénomène apparaissant quand deux photons indiscernables sont incidents de part et d'autre d'une lame séparatrice. Il se produit alors une interférence qui annule la probabilité d'avoir simultanément un photon transmis et un photon réfléchi sur les deux voies de sortie de la lame séparatrice [203] (figure 5.17). Ce phénomène, lié au caractère bosonique des photons, a été prédit et observé par C. K. HONG, Z. Y. OU et L. MANDEL en 1987, au moyen de paires de photons produites par conversion paramétrique [204]. Le paramètre assurant un bon contraste à ce phénomène d'interférence à deux photons est le rapport entre la durée de vie radiative T_1 et le temps de cohérence du dipôle émetteur T_2. Le cas optimal, conduisant à une parfaite coalescence de photons, est atteint pour $T_2/(2T_1) = 1$ qui correspond à des impulsions à un photon pour laquelle les profils spectral et temporel sont limités par transformée de Fourier.

Si la coalescence de photon est à la base de la réalisation de portes logiques quantiques [57], elle peut également être utilisée pour générer des paires de paires de photons intriquées [114] ainsi que pour la réalisation de protocoles de téléportation quantique [205]. Notons enfin que dans le

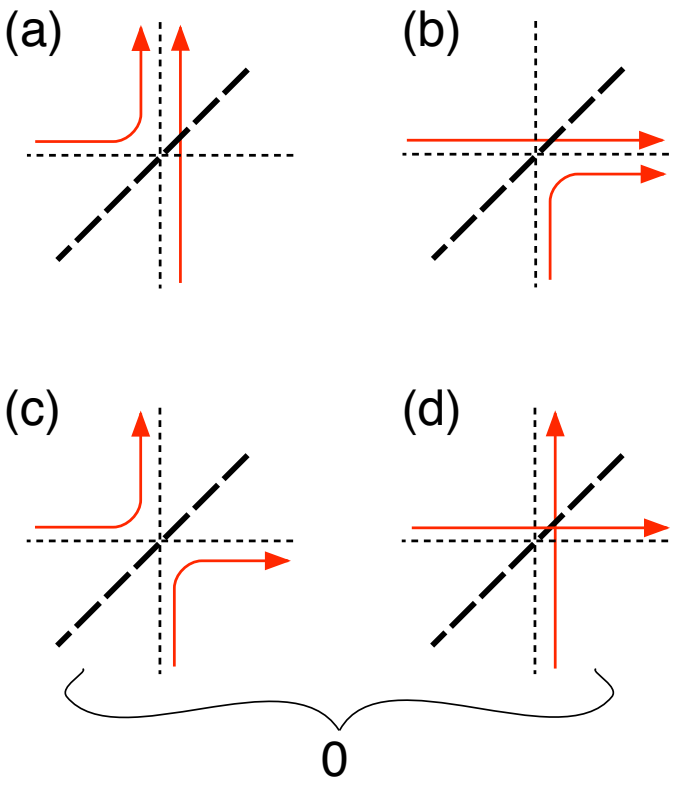


FIG. 5.17 – *Phénomène de coalescence pour lequel deux photons indiscernables se « regroupent » en sortie d'une lame séparatrice. Dans le cas où la lame séparatrice est une lame pour laquelle les coefficients de réflexion et de transmission sont égaux à* 50%*, les amplitudes de probabilité associées aux comportements représentés sur les figures (c) et (d), pour lequels les deux photons incidents sont soit transmis, soit réfléchis, sont de signe opposé et s'annihilent en interférant destructivement. Les photons sortent ainsi toujours du même coté de la lame séparatrice, correspondant aux situations décrites par les figures (a) et (b).*

cas où les deux photons qui interférent sont produits par deux centres émetteurs indépendants, la coalescence des photons permet de réaliser une intrication conditionnelle de l'état quantique de ces deux émetteurs [206].

Au vu de ces multiples applications, la mise au point d'une source de photons uniques indiscernables constitue un domaine de recherche extrêmement actif. A ce jour, le phénomène de coalescence de photon a pu être mis en évidence à l'aide des photons émis par une boîte quantique semi-conductrices en micro-cavité [113, 207] ou en cristal photonique [68], par des ions piégés [208] et des atomes piégés [209].

Une expérience pionnière utilisant l'émission de la raie à zéro phonon d'une molécule portée à la température de 1.4 K a également montré que les photons uniques émis ont un très long temps de cohérence [210] et conduisent à un effet partiel de coalescence [211].

Source de photons uniques indiscernables à base de centres colorés du diamant

Des résultats obtenus récemment dans le groupe de recherche dirigé par J. WRACHTRUP et F. JELEZKO à l'université de Stuttgart ont montré que la réalisation d'une source de photons

uniques indiscernables à partir de la raie à zéro phonon des centres colorés NV du diamant portés à température cryogénique est envisageable [212]. De plus, il semble qu'il soit possible de réaliser une expérience de coalescence avec des photons indiscernables produits par deux centres colorés NV indépendants. Dans ce cas, il sera nécessaire d'appliquer un champ électrique aux émetteurs afin d'ajuster par effet Stark la position spectrale de leurs raies d'émission à zéro phonon [213]. La coalescence entre les photons émis par deux centres colorés indépendants permettrait alors de réaliser une intrication conditionnelle entre les états de spin de ces deux centres colorés [214], lesquels peuvent être adressés optiquement et contrôlés de façon cohérente au moyen d'impulsions micro-ondes [215, 216]. Nous aurions alors les éléments requis pour un système de traitement quantique de l'information. Ce système fonctionnerait avec des registres locaux constitués par les spins électroniques des centres colorés NV couplés à des spins nucléaires voisins [217, 218], et pouvant être intriqués les uns aux autres par coalescence des photons indiscernables émis par ces centres colorés.

Notons qu'il serait également intéressant de porter les centres colorés du diamant à base d'impuretés de nickel à basse température afin de voir s'ils peuvent également produire des photons indiscernables.

La démonstration d'une source de photons uniques indiscernables à l'aide de centres colorés NV ainsi que l'intrication conditionnelle de deux centres colorés par coalescence constitue le projet de recherche d'un séjour post-doctoral qui je débuterai au mois de Janvier 2008 à l'université de Stuttgart.

Annexe A

Source déclenchée de photons uniques à l'aide de centres colorés NV du diamant

Sommaire

A.1 Centre coloré NV du diamant . . . 156
A.1.1 Structure des niveaux d'énergie . . . 156
A.1.2 Emission dans le diamant massif . . . 157
A.1.3 Echantillons de nanocristaux de diamant dopés en centres NV . . . 158
A.2 Détection de centres colorés NV dans des nanocristaux de diamant . . . 160
A.2.1 Laser d'excitation impulsionnel . . . 160
A.2.2 Dispositif de microscopie confocale . . . 160
A.3 Diagnostic d'émission de photons uniques . . . 162
A.4 Caractéristiques de la photoluminescence des centres NV . . . 164
A.4.1 Durée de vie radiative des centres colorés dans un nanocristal . . . 164
A.4.2 Spectre d'émission . . . 165

Nous présentons dans cette annexe la source déclenchée de photons uniques sur laquelle reposent les expériences décrites dans la première partie de ce manuscrit. Cette source, qui utilise la photoluminescence de centres colorés NV individuel du diamant, a été entièrement mise en œuvre par Alexios BEVERATOS durant sa thèse de doctorat réalisée à l'Institut d'Optique sous la direction de Jean-Philippe POIZAT et Philippe GRANGIER [13]. Ce travail a débuté par la création et de l'identification de centres colorés uniques NV dans le diamant [76], qui ont par la suite été utilisés pour réaliser une source déclenchée de photons uniques [219] pour finalement aboutir à la réalisation d'une expérience de cryptographie quantique à l'aide des photons uniques ainsi produits [77].

Nous nous contenterons de décrire brièvement les propriétés des centres colorés NV ainsi que le dispositif expérimental permettant de les adresser à l'échelle individuelle, renvoyant le lecteur désireux de plus amples détails au mémoire de thèse correspondant [13].

A.1 Centre coloré NV du diamant

A.1.1 Structure des niveaux d'énergie

Le centre coloré NV correspond à l'association d'une impureté atomique d'azote ^{14}N en substitution (N), associée à une lacune électronique (V pour *vacancy* selon la terminologie anglaise) dans un site adjacent de la matrice cristalline de diamant (figure A.1-(a)). La substitution d'un atome de carbone par un atome d'azote apporte un électron excédentaire non apparié, pouvant rester localisé sur ce défaut.

Les centres colorés NV existent sous deux formes différentes. Lorsque un élément donneur d'électrons (par exemple un autre atome d'azote) se trouve à proximité du défaut NV dans la matrice de diamant, celui-ci peut fournir un deuxième électron non apparié au centre coloré [1], conduisant à la création du centre coloré dénommé NV$^-$ [71] qui possède finalement deux électrons non appariés. Pour un défaut NV isolé d'éléments donneurs d'électrons, il s'agit du centre coloré appelé NV^0, qui possède des propriétés physiques très différentes du centre NV$^-$ [220, 221].

Dans la suite de cette annexe nous nous intéressons uniquement aux centres colorés NV$^-$, que nous noterons NV par souci de simplification.

Un centre coloré NV du diamant se comporte exactement comme une molécule artificielle piégée dans la matrice de diamant. Cependant, une différence notable avec les molécules de colorant se situe dans la structure des niveaux d'énergie. En effet, le niveau fondamental du centre NV est un état triplet de spin du fait de l'existence de deux électrons non appariés, alors que le niveau fondamental des molécules correspond à un état singulet. Notons que, compte tenu des règles de sélection liées au spin lors de transitions radiatives d'un centre coloré NV unique [222], il est possible de déterminer optiquement l'état de spin électronique et de détecter des manipulations cohérentes de ce spin individuel au moyen d'impulsion micro-ondes [215]. Cette propriété a été mise à profit dans une série d'expériences remarquables qui ont montré qu'il est possible d'utiliser le spin d'un centre NV unique comme bit quantique à l'état solide, afin de réaliser des opérations logiques quantiques [223, 216, 224] ainsi qu'un registre quantique à l'état solide [217, 218].

La structure des niveaux d'énergie des centres colorés NV est décrite shématiquement sur la figure A.1-(b). Les niveaux triplets fondamental ^{3}A et excité ^{3}E, sont fortement couplés par des transitions dipolaires électriques, dont la raie à zéro phonon est située à 1.945 eV, correspondant à une longueur d'onde $\lambda_{\mathrm{ZPL}} = 637$ nm. Le couplage de ces transitions radiative avec les phonons de la matrice diamant est à l'origine d'un important élargissement du spectre d'émission d'un centre coloré NV à température ambiante. Ainsi, à cause des répliques de phonons, la largeur spectrale du spectre d'émission est de l'ordre de 100 nm à température ambiante, centrée à la longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm (§ A.4.2).

Un troisième niveau ^{1}A correspond à un état singulet de spin vers lequel peut transiter le centre coloré NV par croisement inter-système $^3\mathrm{E} \rightarrow {}^1\mathrm{A}$. Lorsque cet état est peuplé, la luminescence du centre NV est momentanément interrompu. Cet état singulet métastable est l'analogue de l'état triplet intervenant dans la dynamique de fluorescence de molécules de colorant.

La détection de centres NV à température ambiante tire profit du décalage vers le rouge du spectre d'émission par rapport au spectre d'absorption. Ce décalage, communément appelé *décalage Stokes*, permet d'exciter efficacement les centres colorés NV à une longueur d'onde λ_{exc} qui ne chevauche pas le spectre d'émission, permettant ainsi de séparer efficacement la lumière

[1] Ceci est facilité par l'importante mobilité des charges dans le diamant.

de pompage et la photoluminescence émise par un centre coloré. En pratique, la longueur d'onde d'excitation choisie est $\lambda_{\text{ex}} = 532$ nm.

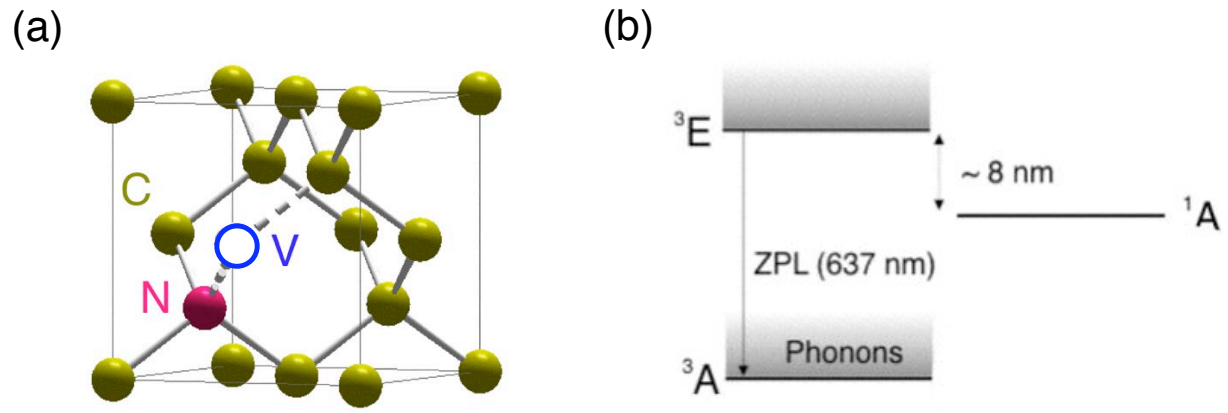


FIG. A.1 – *(a)-Centre coloré NV dans la maille cristalline de diamant, constitué de l'association d'une impureté d'azote (N) et d'une lacune électronique (V). (b)-Description schématique des niveaux d'énergie du centre coloré NV$^-$. Les états fondamental et excité sont des états triplets de spin, respectivement dénotés* ^{3}A *et* ^{3}E *selon la nomenclature associée à la symétrie cristalline C_{3v} du centre coloré NV. Nous avons également représenté en grisé les multiplicités vibrationnelles qui leur sont associées. La raie à zéro phonon (ZPL), correspondant à la transition entre sous-niveaux vibrationnels de plus basse énergie, est à la longueur d'onde $\lambda_{\text{ZPL}} = 637$ nm. Le centre coloré porté dans son état excité peut également transiter vers un état métastable singulet* ^{1}A *par croissement inter-système. Cette fuite non radiative s'accompagne d'une interruption momentanée de la luminescence.*

A.1.2 Emission dans le diamant massif

Une des caractéristiques de la matrice hôte de diamant est son fort indice de réfraction $n = 2.4$, conduisant à un angle limite de réflexion totale à l'interface diamant-air de seulement $22.6°$. Il en résulte que la lumière émise par un centre coloré reste en majeure partie piégée dans la matrice de diamant, conduisant à une mauvaise efficacité de collection des photons de luminescence. L'effet de l'indice de réfraction élevé du diamant massif conduit également à des aberrations optiques importantes, qui dégradent le rapport signal sur fond de la détection d'un centre coloré unique par microscopie optique confocale.

Pour contourner ce problème, il a été proposé durant la thèse d'A. BEVERATOS de remplacer les échantillons de diamant massif par des nanocristaux de diamant dont les dimensions sont très inférieures à la longueur d'onde d'émission des centres colorés [157]. Dans ces conditions, un centre coloré NV isolé dans un nanocristal de diamant peut être assimilé à un point source rayonnant dans le milieu diélectrique entourant le nanocristal, permettant ainsi de contourner les problèmes liés à la valeur de l'indice de réfraction du diamant [157]. L'angle solide sous lequel est collectée la luminescence est alors déterminé par l'ouverture numérique de l'objectif de microscope utilisé, sans être affecté par la forte réfraction à l'interface diamant-air.

A.1.3 Echantillons de nanocristaux de diamant dopés en centres NV

Les centres colorés NV existent naturellement dans le diamant de type Ib, mais en général en très faible proportion. En effet, bien que ce type de diamant contienne une forte quantité d'impuretés d'azote, dans une proportion pouvant aller jusqu'à 500 ppm, elles ne sont pas forcément associées à une lacune électronique. Pour augmenter la concentration en centres NV, il est nécessaire de créer des lacunes par irradiation électronique. L'irradiation électronique est suivie d'un recuit à une température de 800°C durant deux heures, conduisant à la migration des lacunes autour des atomes d'azote et permettant ainsi de stabiliser les centres colorés et leur photoluminescence [225]. La figure A.2 met clairement en évidence une forte création de centres colorés NV en appliquant cette procédure.

La technique de préparation des échantillons sous forme de nanocristaux a été mise au point par T. GACOIN du Groupe de Chimie Physique au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (LPMC, Ecole Polytechnique) [157]. Un gramme de poudre commerciale de diamant synthétique Ib est tout d'abord irradié pour y créer des lacunes, puis recuit. Un dosage adéquat de la dose d'irradiation électronique, en pratique de l'ordre de 1.5 MeV, permet de créer des centres colorés NV à l'échelle individuelle dans les cristaux de la poudre de diamant.

La poudre est ensuite dispersée dans un polymère en solution (polyvinylpyrrolidone à 1% en masse dans le propanol) par sonication. Le polymère utilisé a été choisi pour ses propriétés stabilisatrices de la solution colloïdale de nanocristaux ainsi formée. Une centrifugation à 11 000 tours/min, effectuée durant 30 minutes, permet ensuite de sélectionner en taille les plus petits cristaux. La distribution en taille des nanocristaux dopés en centre NV ainsi obtenus, est mesurée par les techniques usuelles de diffusion de la lumière et est ensuite contrôlée par microscopie électronique à balayage. La taille typique des nanocristaux de diamant que nous avons utilisé durant ce travail de thèse est de l'ordre de 90 nm, bien inférieure à la longueur d'onde d'émission des centres colorés NV.

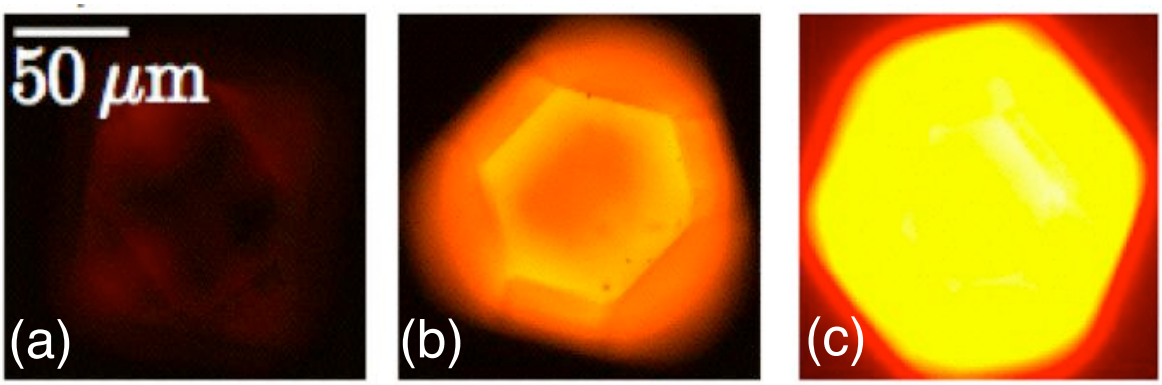


FIG. A.2 – *Evolution de la photoluminescence d'un microcristal de diamant de type Ib excité dans le vert, lors des diverses étapes aboutissant à la création de centres colorés NV. Les images (a), (b) et (c) correspondent respectivement à la photoluminescence initiale du microcristal, puis après irradiation électronique et enfin après le recuit à 800°C, qui permet de stabiliser les lacunes créées par irradiation autour des impuretés d'azote. Bien entendu, les doses d'irradiation utilisées pour la réalisation de ces images sont beaucoup plus fortes que celles utilisées pour créer des centres colorés NV en faible concentration, adaptée à l'étude d'émetteurs individuels par microscopie optique confocale.*

Afin d'augmenter encore l'efficacité de collection de la luminescence de centres NV, les nanocristaux de diamant en solution colloïdale sont finalement déposés à la tournette sur un miroir de Bragg, afin de pouvoir récupérer la lumière de fluorescence émise à l'opposé de l'objectif de microscope [13]. Ce miroir de Bragg, constitué d'une alternance de couches de silice SiO_2 et d'oxyde de niobium Nb_2O_5, a été fabriqué par la société LAYERTEC (Allemagne) et possède une réflectivité maximale de 99.99% à la longueur d'onde 670 nm, correspondant au pic d'émission des centres NV.

Durant mes trois années de thèse, François TREUSSART a lancé une nouvelle activité de recherche au sein du Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire, qui consiste à utiliser les nanoparticules de diamant comme marqueurs fluorescents en biologie [226, 227]. Il s'est alors avéré nécessaire de pouvoir diminuer au maximum la taille des nanocristaux en s'assurant que des centres colorés NV y soient bien toujours présents. Notons que pour cette problématique, il n'est absolument pas nécessaire d'obtenir des centres colorés à l'échelle individuelle, mais au contraire de créer un maximum de centres colorés NV dans un nanocristal de taille la plus petite possible. J'ai participé à des expériences préliminaires qui nous ont permis d'obtenir des nanocristaux d'une taille typique de 50 nm riches en centres NV (figure A.3) [228]. L'optimisation de la taille des nanocristaux dans la perspective d'une utilisation en biologie se poursuit dans le cadre de la thèse d'Oretsis FALKARIS. Il est en particulier envisagé d'utiliser des nanoparticules de diamant produites par des techniques de détonation qui conduisent à des tailles nettement inférieures à 10 nm [229].

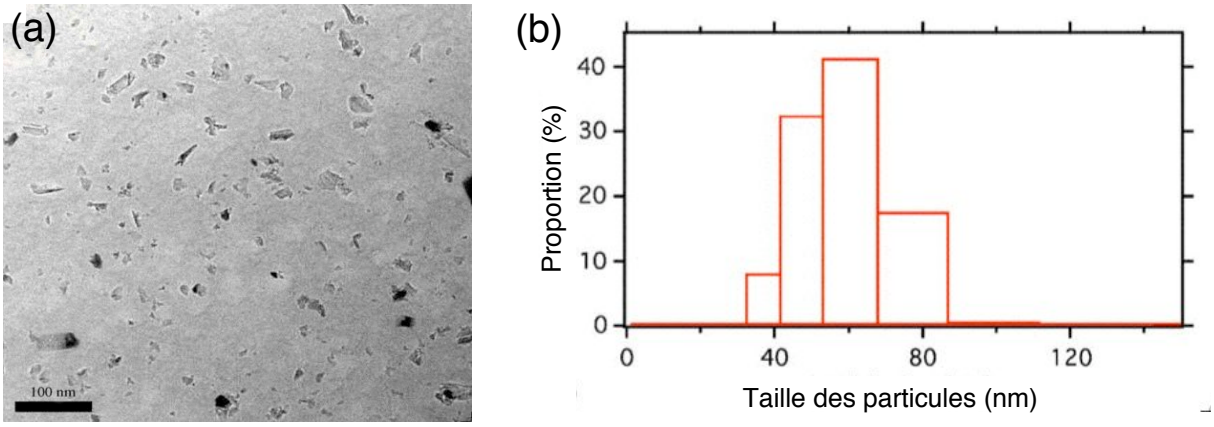


FIG. A.3 – *(a)-Image de microscope électronique à balayage d'une solution de nanocristaux de diamant déposée sur une grille de microscope. (b)-Histogramme de la distribution en taille des nanoparticules de diamant. Une taille typique de l'ordre de* 50 *nm est obtenue.*

Pour conclure cette section, notons que la création de centres colorés NV peut également être réalisée par implantation directe d'ions N^+ dans un substrat de diamant ultra-pur de type IIa, contenant initialement des impuretés d'azote dans une proportions inférieure à 0.1 ppm [224, 230, 231]. Cette méthode a le grand avantage de contrôler précisément la position des centres NV dans l'échantillon. En introduisant un faisceaux d'ions N^+ à travers une pointe de microscope à force atomique, le groupe dirigé par J. MEIJER à l'université de Bochum (Allemagne) a démontré qu'il est possible d'atteindre des précisions spatiales d'implantation de l'ordre de quelques nanomètres [232]. Notons enfin qu'une proposition récente, fondée sur l'utilisation d'un piège à ions N^+, vise à réaliser une implantation des centres NV avec une résolution de l'ordre de l'angström [233].

A.2 Détection de centres colorés NV dans des nanocristaux de diamant

La détection de centres colorés NV à l'échelle unique dans le diamant a été mise en évidence pour la première fois en 1997, dans le groupe de J. WRACHTRUP [234]. Les propriétés quantiques d'émission de la lumière par ces émetteurs individuels ont été ensuite mises en évidence de façon indépendante par le groupe de P. GRANGIER à l'Institut d'Optique [76] et le groupe de H. WEINFÜRTER à Munich [75], en observant un phénomène d'*anticorrélation* dans les détections sur les voies de sortie d'une lame séparatrice $50/50$.

Nous donnerons dans un premier temps les caractéristiques importantes du laser impulsionnel d'excitation, puis nous verrons comment détecter les centres NV à l'échelle unique à l'aide d'un dispositif de microscopie confocale.

A.2.1 Laser d'excitation impulsionnel

Le laser impulsionnel d'excitation, conçu spécifiquement par A. BEVERATOS pour l'étude des centres colorés NV [13], permet de générer des impulsions de durée $\delta t = 0.8$ ns à la longueur d'onde $\lambda_{\text{exc}} = 532$ nm. L'énergie par impulsion est de l'ordre de $E_p \approx 1$ nJ, permettant de saturer les centres colorés NV pour chaque impulsion de pompe.

Nous verrons par la suite que la durée de vie radiative des centres NV dans des nanocristaux de diamant est de l'ordre de $\tau_{\text{sp}} \approx 40ns$. Afin d'éviter que plus d'un photon soit émis pour une impulsion d'excitation donnée, il est nécessaire que l'émetteur soit encore dans son état excité à la fin de l'impulsion de pompe [16, 157]. Cette condition est bien entendu d'autant mieux réalisée que la durée δt de l'impulsion excitatrice est courte devant τ_{sp}. Compte tenu des caractéristiques du laser d'excitation, la probabilité que le photon soit émis avant la fin de l'impulsion excitatrice est égale à $1 - \exp(-\delta t/\tau_{\text{sp}}) \approx 2 \times 10^{-2}$. Le centre coloré est donc encore dans son état excité avec une probabilité proche de l'unité à la fin de chaque impulsion excitatrice, réduisant ainsi la probabilité d'événements multiphotoniques [2].

Le taux de répétition du laser impulsionnel se situe autour de 16 MHz. Cependant, en raison de la longue durée de vie radiative des centres NV, il est nécessaire de réduire cette cadence afin d'obtenir des impulsions à un photon bien séparées dans le temps. Ceci est réalisé à l'aide d'un modulateur acousto-optique permettant de sélectionner une impulsion d'excitation laser sur n. En pratique, nous avons travaillé à un taux de répétition de l'ordre de 5 MHz voire inférieur en fonction des nécessités expérimentales.

A.2.2 Dispositif de microscopie confocale

Les centres colorés NV, créés dans des nanocristaux de diamant selon la procédure que nous avons décrite au § A.1.3, sont détectés à l'aide du montage de microscopie optique confocale décrit par la figure A.4-(a) [219].

Le laser impulsionnel est réfléchi par un miroir dichroïque incliné à $45°$, avant d'être focalisé sur l'échantillon à l'aide d'un objectif de microscope de grande ouverture numérique travaillant à l'air (Olympus $\times 100$, ON $= 0.95$). Cet objectif de microscope est monté sur un transducteur piézoélectrique afin de pouvoir ajuster précisément la distance z de l'objectif à l'échantillon et ainsi optimiser la focalisation du faisceau. Les photons de photoluminescence sont collectés par le

[2] Une étude des centres colorés NV en régime d'excitation femtoseconde, permettant à priori de diminuer encore la probabilité des événements multiphotoniques, a mis en évidence un phénomène de photocréation de centres colorés, ne permettant pas finalement de préserver l'unicité de l'émetteur [235].

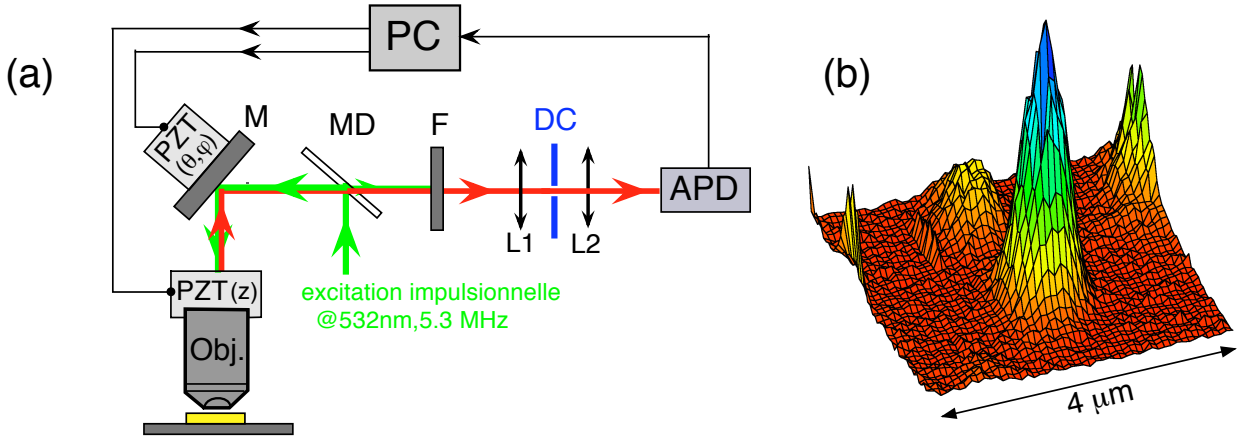


FIG. A.4 – *(a)-Dispositif de microscopie confocale permettant de détecter des centres colorés NV à l'échelle individuelle. Obj : objectif de microscope* $\times 100$ *et* $\mathrm{ON} = 0.95$*, monté sur un transducteur piézoélectrique (PZT (z)) permettant d'ajuster la distance* z *de l'objectif à l'échantillon. MD : miroir dichroïque. F : filtre passe-haut de détection de la luminescence. DC : diaphragme de diamètre* $100\ \mu\mathrm{m}$ *qui assure la confocalité de la détection optique. APD : photodiode à avalanche fonctionnant en régime de comptage de photons (*PERKIN-ELMER*, AQR14). PC : ordinateur de contrôle de l'expérience. Le balayage de l'échantillon est assuré par un moteur piézoélectrique monté sur un miroir (M), permettant de modifier pas à pas les angles* θ *et* ϕ *de focalisation du laser impulsionnel de pompe sur l'échantillon. (b)-Scan typique d'un échantillon de nanocristaux de diamant déposé sur la surface d'un miroir de Bragg. Un centre coloré NV est isolé avec un rapport signal sur bruit supérieur à* 20.

même objectif de microscope, séparés de la lumière de pompe par filtrage spectral, puis focalisés dans un trou de diamètre $100\ \mu$m qui assure la confocalité du système de microscopie. Cette configuration permet de sélectionner la lumière provenant sélectivement d'un volume de l'échantillon de l'ordre de $1\ \mu\mathrm{m}^3$, réduisant ainsi la lumière parasite due à l'émission de lumière de toute la zone de substrat illuminée par le faisceau d'excitation laser [152].

La luminescence d'une zone de l'échantilllon d'une taille d'environ $9 \times 9\ \mu$m est explorée en modifiant pas à pas les angles θ et ϕ de focalisation du faisceau laser sur l'échantillon. Ceci est réalisé en positionnant un moteur piézoélectrique sur le miroir de renvoi de l'objectif de microscope (figure A.4-(a)). Le mouvement de ce moteur, ainsi que celui du transducteur portant l'objectif de microscope, sont commandés par ordinateur et synchronisés avec le système de détection, à l'aide d'un programme d'acquisition écrit avec le logiciel IGOR. La figure A.4-(b) décrit un balayage typique d'un échantillon de nanocristaux de diamant dopés en centres colorés NV et déposés sur un miroir de Bragg. Le pic de détection révèle la présence d'un centre coloré NV avec un rapport signal sur bruit supérieur à 20.

Lorsqu'un tel centre coloré NV est détecté, le programme IGOR d'acquisition de l'expérience permet d'asservir le microscope confocal sur son émission, en ajustant en temps réel la position des transducteurs piézoélectriques afin d'optimiser le signal de détection. Cet asservissement permet de compenser les dérives potentielles du dispositif expérimental.

Pour un échantillon de nanocristaux de diamant dopés en centre NV et déposés sur un miroir de Bragg, les taux de comptage correspondant à la photoluminescence d'un centre coloré NV individuel sont typiquement de l'ordre de 100 kcoups.s^{-1} pour une excitation impulsionnelle réalisée à une cadence d'environ 5 MHz. Cette valeur correspond à une efficacité globale de détection η

de l'ordre de 2%, correspondant à la probabilité d'obtenir un « click » de détection par impulsion d'excitation pour la configuration expérimentale de la figure A.4.

A.3 Diagnostic d'émission de photons uniques

La vérification de l'unicité de l'émetteur est réalisée par une mesure de corrélations temporelles de l'intensité de fluorescence $I(t)$ au moyen d'un montage de type Hanbury-Brown et Twiss [51] décrit sur la figure A.5.

Si l'émetteur de lumière est effectivement un objet quantique individuel, il ne peut émettre qu'un seul photon pour chaque impulsion d'excitation [16]. Ainsi, en enregistrant l'histogramme des intervalles de temps entre deux détections successives sur un port de sortie d'une lame séparatrice $50/50$ puis sur l'autre, un *trou* dans la distribution est attendu au retard nul, traduisant le fait que deux photons uniques émis l'un à la suite de l'autre sont au moins séparés par l'intervalle de temps entre deux impulsions d'excitation (figure A.5). Sous certaines conditions de validité [155], cet histogramme est directement relié, via une normalisation adéquate [157], à la fonction de corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ dont nous avons rappelé les principales caractéristiques au § 1.2.2, et qui est définie par :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{<: I(t)I(t+\tau) :>}{< I(t) >^2} \tag{A.1}$$

où $I = \hat{E}^{(-)}\hat{E}^{(+)}$ et :: désigne l'ordonnancement des opérateurs dans l'ordre normal, correspondant à un positionnement des opérateurs de création de photon $\hat{a}^\dagger$ à gauche des opérateur d'annihilation $\hat{a}$.

Une fonction de corrélation en intensité typique de l'émission associée à un centre coloré NV unique en régime d'excitation impulsionnel est présentée sur la figure A.6. Celle-ci se compose de pics régulièrement espacés correspondant à la période de répétition du laser impulsionnel d'excitation, et présente un fort effet d'*anticorrélation* au retard nul. En mesurant l'aire du pic résiduel

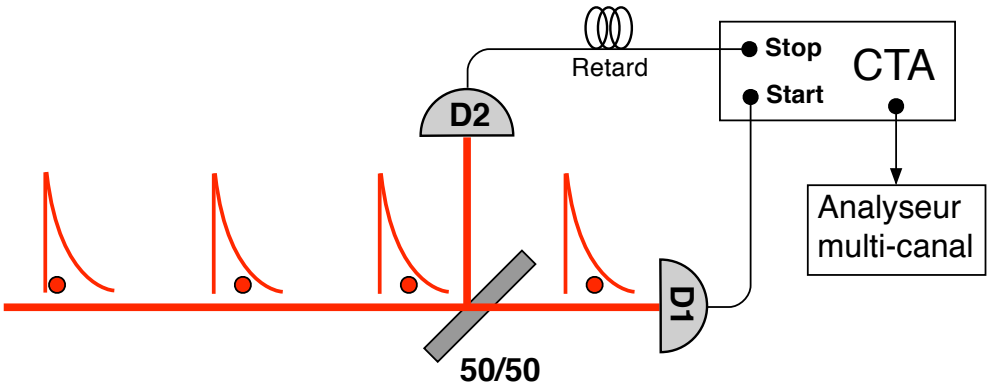


FIG. A.5 – *Montage de type* HANBURY-BROWN *et* TWISS *permettant de mesurer la fonction de corrélation en intensité d'un champ lumineux. Deux détecteurs D1 et D2 sont positionnées sur les ports de sortie d'une lame séparatrice* $50/50$ *sur laquelle est envoyée la photoluminescence d'un centre coloré NV excité en régime impulsionnel. Un montage de type « Start-Stop » utilisant un convertisseur temps amplitude (CTA) permet de mesurer les intervallles de temps qui séparent deux détections successives sur le détecteur D1 puis sur le détecteur D2. Ces informations sont envoyées dans un analyseur multi-canal qui bâtit l'histogramme de ces intervalles de temps.*

au retard nul, nous accédons alors à la valeur de $g^{(2)}(0)$, typiquement de l'ordre de 0.1 pour des centres colorés NV isolés à l'échelle individuelle dans des nanocristaux de diamant suffisamment bien dispersés à la surface de l'échantillon. Cette valeur illustre sans ambiguïté l'émission de photons uniques un par un.

L'écart à la valeur idéale $g^{(2)}(0) = 0$ est dû à un résidu d'émission de l'échantillon ainsi qu'à la raie de diffusion Raman à deux phonons du diamant excité à $\lambda_{\text{exc}} = 532$ nm (figure A.7), qui présentent tous deux une statistique d'émission poissonnienne.

Pour illustrer cela, supposons que l'intensité du signal de photoluminescence $I(t)$ est constituée par l'association de l'émission $I_1(t)$ d'un émetteur unique et d'un fond $I_2(t)$ dont la statistique d'émission est poissonnienne. La fonction de corrélation en intensité peut alors s'écrire en utilisant l'équation A.1 comme :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{<: I_1(t)I_1(t+\tau) + I_2(t)I_2(t+\tau) + I_1(t)I_2(t+\tau) + I_2(t)I_1(t+\tau) :>}{< I(t) >^2} \tag{A.2}$$

Les intensités $I_1(t)$ et $I_2(t)$ ne sont pas corrélées ainsi que les intensités $I_2(t)$ et $I_2(t+\tau)$, puisque la statistique d'émission du fond est poissonnienne. Nous obtenons ainsi :

$$<: I_1(t)I_2(t+\tau) :>= <: I_2(t)I_1(t+\tau) :>=< I_1(t) >< I_2(t) > \tag{A.3}$$

$$<: I_2(t)I_2(t+\tau) :>= < I_2(t) >^2 \tag{A.4}$$

De plus, l'intensité provenant d'en émetteur individuel assure que $<: I_1(t)I_1(t) :>= 0$, traduisant un effet d'*anticorrélation* parfait au retard nul. En supposant que le nombre de photons correspondant au fond d'émission de l'échantillon est proportionnel au nombre de photon provenant de l'émettteur individuel, soit $< I_2(t) >= \beta < I_1(t) >$, la fonction de corrélation en intensité au retard nul s'écrit alors :

$$g^{(2)}(0) = \frac{2\beta + \beta^2}{(1+\beta)^2} = 1 - \frac{1}{(1+\beta)^2} \,. \tag{A.5}$$

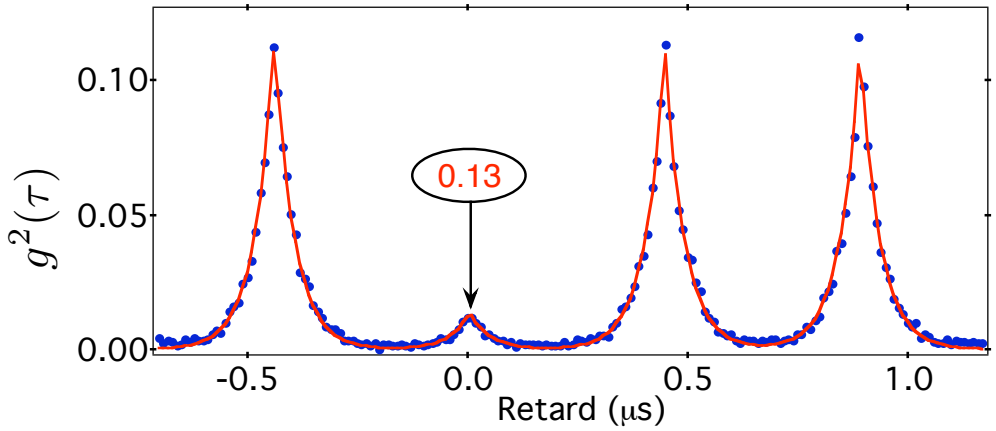


FIG. A.6 – *Fonction de corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ d'un centre coloré NV unique, révélant un fort effet d'anticorrélation $g^{(2)}(0) = 0.13$. Le taux de répétition du laser impulsionnel d'excitation est de 2.2 MHz et le temps d'acquisition de 148 s. L'ajustement de la décroissance des pics par une fonction exponentielle (ligne en rouge) conduit à la durée de vie radiative du centre coloré étudié $\tau_{\text{sp}} = 44.6 \pm 0.8$ ns.*

Pour l'expérience que nous considérons, le fond d'émission asssocié à une statistique poissonnienne est du à un résidu de fluorescence de l'échantillon ainsi qu'à la raie de diffusion Raman à deux phonons de la matrice de diamant. L'analyse du spectre des centres colorés NV (figure A.7) excités $\lambda_{\text{ex}} = 532$ nm révèle que la part de la raie de diffusion Raman dans l'ensemble du spectre d'émission d'un centre coloré NV détectée, est de l'ordre de 2% (figure **??**. D'autre part nous avons vu que la détection des centres colorés NV à l'aide du microscope confocal est réalisée avec un rapport signal sur fond de l'ordre de 20 (figure A.4-(b)). Ainsi, environ 5% du signal détecté provient d'une lumière parasite de l'échantillon. Nous obtenons donc un facteur β de l'ordre de 7%. L'application de l'équation (A.5) en utilisant cette estimation conduit à $g^{(2)}(0) \approx 0.12$, en bon accord avec la mesure expérimentale décrite par la figure A.6.

A.4 Caractéristiques de la photoluminescence des centres NV

Nous terminons cette annexe par la description de quelques caractéristiques importantes de la photoluminescence des centres colorés NV, en nous concentrant essentiellement sur la durée de vie radiative puis sur le spectre d'émission des centres colorés NV. Une analyse détaillée des paramètres photophysiques du centre NV est disponible dans le manuscrit de thèse d'A. BEVERATOS [13].

A.4.1 Durée de vie radiative des centres colorés dans un nanocristal

Les premières études sur l'émission des centres colorés dans les nanocristaux de diamant ont révélé que la durée de vie radiative du centre NV est notablement modifiée par rapport à celle dans le diamant massif, donnée dans la littérature égale à 11.6 ns [236].

Cette modification de durée de vie est attribuée au changement d'indice de réfraction n du milieu diélectrique entourant le centre NV, paramètre qui intervient directement dans l'expression du taux d'émission spontanée puisqu'il modifie la densité d'états des modes du champ électromagnétique vers lesquels l'émetteur peut se désexciter par émission spontanée. Ainsi, le taux d'émission spontanée d'un centre NV dans le nanocristal vaut $\Gamma_n = n\Gamma_v$, où Γ_v est le taux d'émission spontanée dans le vide. Compte tenu de la dimension sub-longueur d'onde des nanocristaux, on peut considérer que l'émission des centres NV qu'ils contiennent se fait comme dans le milieu qui entoure les nanocristaux, à savoir un demi-espace d'air et un demi-espace constitué des multicouches diélectriques constituant le miroir de Bragg. Cette interprétation conduit à un bon accord quantitatif pour la modification de la durée de vie, de l'ordre de 40 ns pour un centre NV dans un nanocristal de diamant [157].

Cependant des études complémentaires ont montré que la durée de vie radiative du centre coloré NV dans un nanocristal présente également une grande dispersion d'un émetteur à l'autre, typiquement de 20 à 50 ns [15]. Nous attribuons cet effet à la dispersion en position des centres colorés NV au sein des nanocristaux de diamant, ainsi qu'à la dispersion en taille de ces nanocristaux, qui conduisent tous deux à des variations du champ local effectivement vu par les émetteurs. Notons que l'orientation du dipôle émetteur doit également jouer un rôle important dans la dispersion de la durée de vie radiative observée pour les centres NV dans des nanocristaux de diamant

Nous n'avons pas entrepris une étude approfondie de ce phénomène durant mon travail de thèse, nous contentant simplement de mesurer, pour chaque centre coloré unique utilisé, la valeur de la durée de vie de l'état excité et d'en prendre acte. Une telle mesure peut être réalisée simplement en ajustant par une fonction exponentielle la décroissance de chacun des pics de la fonction

de corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ mesurée en régime impulsionnel (cf. figure A.6) [13]. Les centres uniques que nous avons utilisés lors des expériences décrites dans ce mémoire présente une durée de vie de l'ordre de 40 ns.

A.4.2 Spectre d'émission

Le couplage de la transition radiative $^3\mathrm{A} \rightarrow ^1\mathrm{E}$ avec les phonons de la matrice de diamant conduit à un important élargissement du spectre d'émission d'un centre coloré NV à température ambiante. Un spectre typique de centre coloré NV individuel, décrit sur la figure A.7, montre une largeur spectrale du spectre d'émission de l'ordre de 100 nm, due aux multiples répliques de phonons. Notons également l'existence de deux pics caractéristiques (1) et (2), qui correspondent respectivement à la raie zéro phonon du centre coloré NV à la longueur d'onde $\lambda_{\mathrm{ZPL}} = 637$ nm, constituant la signature de l'émission d'un centre coloré de type NV, et à la raie de diffusion Raman à deux phonons de la matrice de diamant excitée pour une excitation à 532 nm. Le déplacement Raman est de l'ordre de 1335 cm^{-1} pour le diamant [71], conduisant pour une excitation à 532 nm, à une raie de diffusion Raman à deux phonons à la longueur d'onde $\lambda_{\mathrm{R2}} \approx 625$ nm.

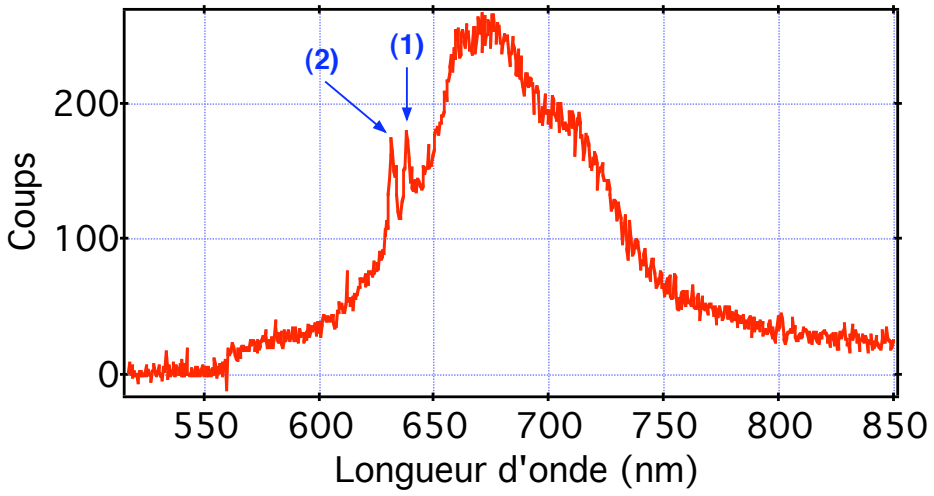


FIG. A.7 – *Spectre de photoluminescence d'un centre coloré NV unique dans un nanocristal de diamant obtenu par excitation laser à la longueur d'onde de* 532 *nm.. Les pics (1) et (2) correspondent respectivement à la raie zéro phonon du centre coloré NV à* $\lambda_{\mathrm{ZPL}} = 637$ *nm et à la raie de diffusion Raman à deux phonons de la matrice de diamant.*

Annexe B

Caractéristiques du générateur aléatoire quantique de pile ou face

Sommaire

B.1 Caractérisation du bruit **168**
B.2 Séquence de nombres aléatoires **170**

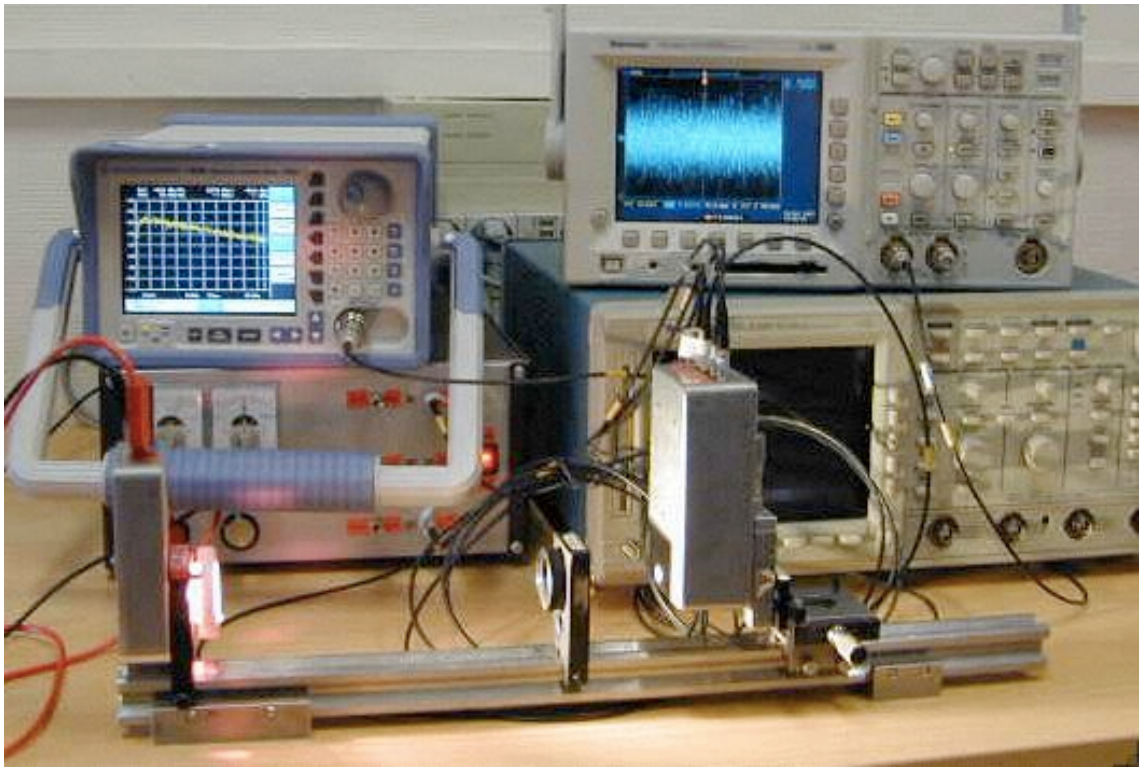


FIG. B.1 – *Générateur aléatoire quantique de pile ou face basé sur le bruit de grenaille amplifié d'une photodiode.*

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser le générateur aléatoire de pile ou face est décrit par les figures B.1 et B.2. Il est simplement constitué d'une lampe blanche alimentée en continu, d'une lentille de focalisation et d'une photodiode silicium. Un circuit électronique à base d'amplificateurs de tension bas bruit coupe la composante continue du signal délivré par la photodiode et amplifie les fluctuations à haute fréquence du photocourant. Un nombre aléatoire 0 ou 1 est obtenu en échantillonnant le signe du bruit de grenaille amplifié par l'intermédiaire d'un comparateur électronique rapide dont le temps de réponse est de l'ordre de quelques nanosecondes. Lorsque le signe correspond à une fluctuation positive, le nombre 1 est tiré et inversement, pour des fluctuations négatives, le nombre 0 est tiré.

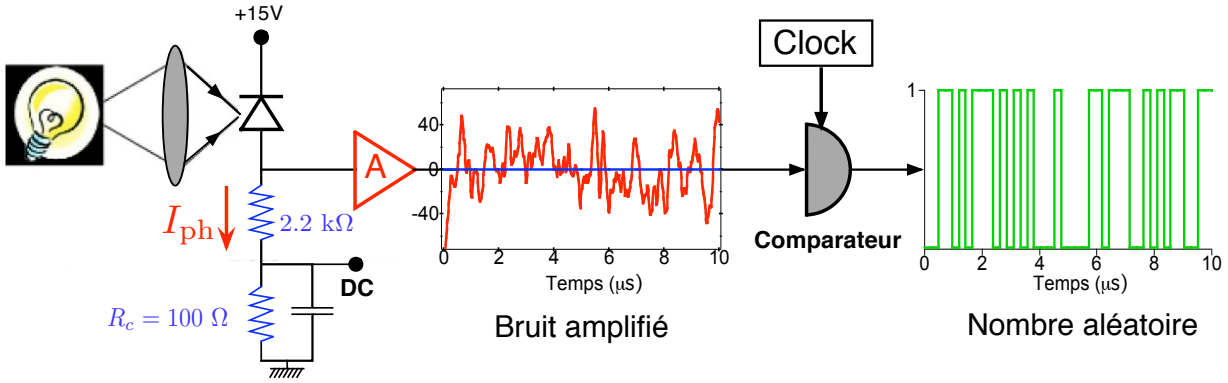


FIG. B.2 – *Principe de fonctionnement du générateur aléatoire de pile ou face. Au taux de répétition de l'expérience, un comparateur électronique rapide échantillonne le signe du bruit de grenaille amplifié. Lorsque le signe mesuré est positif (resp. négatif), le nombre* 1 *(resp. 0) est tiré. La mesure du courant photonique* $I_{\rm ph}$ *est mesuré aux bornes d'une résistance de charge* $R_c = 100\ \Omega$.

Dans cette annexe nous donnons les caractéristiques principales de ce générateur aléatoire de pile ou face. Nous vérifions dans un premier temps que le bruit utilisé pour générer une séquence de tirages aléatoires est bien du bruit de grenaille. Nous étudierons par la suite l'éventuelle existence de corrélations entre différents tirages au sort.

B.1 Caractérisation du bruit

Afin de montrer que le bruit utilisé pour la génération de tirages aléatoires présente bien les caractéristiques du bruit de grenaille, nous cherchons à illustrer expérimentalement l'équation (3.8), donnée au § 3.5.1.

Le bruit amplifié présente a priori trois composantes : un bruit électronique dû au bruit des amplificateurs, une composante classique, et enfin le bruit de grenaille qui nous intéresse. Les variances associées à ces trois composantes de bruit indépendantes s'ajoutent et la variance globale du bruit mesuré est donnée par :

$$\sigma^2_{\rm total} = \sigma^2_{\rm ampli} + \sigma^2_{\rm class} + \sigma^2_{\rm SN} \tag{B.1}$$

Les amplificateurs de tension bas bruit fonctionnent dans un régime linéaire, et nous pouvons considérer que le bruit introduit par les amplificateurs ne dépend pas de l'intensité lumineuse incidente sur la photodiode. Nous considérons ainsi que $\sigma^2_{\rm ampli}$ est égal à une constante. D'autre

part, la variance des composantes éventuelles de bruit classique est proportionnelle à la valeur moyenne de l'intensité I_{ph} délivrée par la photodiode prise au carré I_{ph}^2. Enfin, nous avons vu au § 3.5.1 que l'équation (3.8) implique que la variance du bruit de grenaille est proportionnelle à I_{ph}. L'équation (B.1) peut donc finalement s'écrire :

$$\sigma_{\mathrm{total}}^2 = A + C \times I_{\mathrm{ph}}^2 + Q \times I_{\mathrm{ph}} \tag{B.2}$$

où les paramètres A, C et Q sont des constantes.

Nous cherchons à caractériser le poids statistique de chacune de ces composantes dans le bruit mesuré. Pour cela, la variance du bruit amplifié est mesurée au moyen d'un analyseur de spectre pour diverses valeurs du courant photonique I_{ph}, que nous pouvons modifier en atténuant le faisceau lumineux produit par la source de lumière blanche. Les résultats de cette expérience sont décrits sur la figure B.3. L'ajustement des données expérimentales est effectué avec un polynôme du deuxième ordre correspondant à l'équation (B.2) et nous avons représenté en trait pointillé noir, la variance associée à la composante déterministe du bruit ($A+C\times I_{\mathrm{ph}}^2$) en utilisant les résultats de l'ajustement. Nous montrons ainsi sans ambiguïté que la composante principale au bruit est celle due au bruit de grenaille. Dans le régime de fonctionnement le plus défavorable, correspondant à une illumination maximale de la photodiode, la part du bruit déterministe est de l'ordre de 10%.

Nous pouvons conclure de cette étude que la génération aléatoire de pile ou face est bien réalisée à partir du bruit de photon, qui est un phénomène quantique intrinséquement probabiliste dont la valeur à un instant donnée est imprédictible. Pour cette raison, nous qualifions notre générateur aléatoire de quantique.

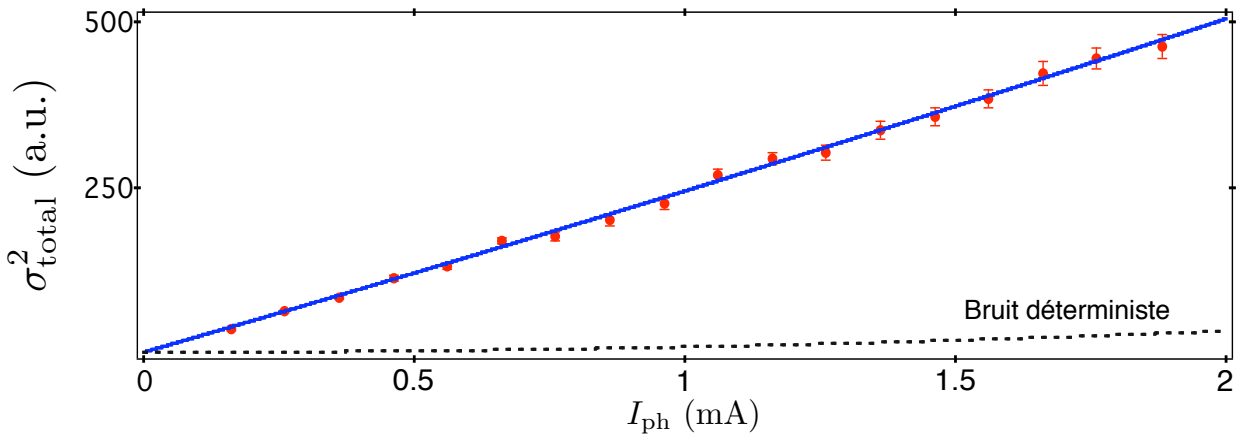


FIG. B.3 – *Caractérisation du bruit utilisé pour la génération aléatoire de pile ou face. La variance du bruit $\sigma_{\mathrm{total}}^2$ est représentée en fonction de l'intensité moyenne I_{ph}, mesurée aux bornes d'une résistance de charge $R_{\mathrm{C}} = 100\Omega$. Les données expérimentales (points en bleus) sont ajustées par l'équation* (B.2). *En rouge est représentée la composante déterministe du bruit, composé du bruit classique de la source et du bruit introduit par les amplificateurs de tension, en utilisant les résultats de l'ajustement. Les mesures, réalisées avec un analyseur de spectre, correspondent à la moyenne de la densité spectrale du bruit amplifié entre 4 MHz et 5 MHz. Cette plage de fréquence est celle du fonctionnement du générateur aléatoire dans l'expérience de choix retardé.*

B.2 Séquence de nombres aléatoires

Nous vérifions maintenant qu'il n'existe pas de corrélations significatives entre différents tirages au sort, effectués en mesurant le signe du bruit de grenaille amplifié après échantillonnage au taux de répétition de 4.2 MHz utilisé pour l'expérience de choix retardé (figure 3.14). Pour ce faire, nous avons réalisé l'autocorrélation $A(\tau)$ d'une séquence de tirages aléatoires :

$$A(\tau) = \sum_{t_k} S(t_k) \times S(t_k + \tau) \tag{B.3}$$

où $S(t_k)$ est le résultat du tirage aléatoire à l'instant t_k de la séquence. Afin de faciliter la procédure de normalisation de cette fonction, les zéros de la séquence aléatoire sont remplacés par la valeur -1. Dans ce cas, la moyenne de la série de tirages aléatoires doit être égale à 0. La fonction d'autocorrélation $A(\tau)$ est alors normalisée par sa valeur $A(0)$ pour $\tau = 0$:

$$A(0) = \sum_{t_k} S(t_k) \times S(t) = N \tag{B.4}$$

où N est le nombre total de tirages au sort ayant été effectués. Le résultat de cette opération pour une séquence de $420\ 000$ tirages, représenté sur la figure B.4, montre qu'il n'existe pas de corrélations entre les différents tirages aux temps longs et que le tirage au sort est convenablement équilibré, c'est à dire qu'autant de 0 et de 1 sont obtenus. La demi-largeur à mi-hauteur de la fonction d'autocorrélation au retard nul, reliée par une relation de transformée de Fourier au spectre de puissance de bruit de photon amplifié, est de l'ordre d'une centaine de nanosecondes, inférieure aux autres temps caractéristiques de l'expérience de choix retardé.

Notons également un léger effet d'anticorrélation de l'ordre de 4% aux temps courts. La discussion donnée au § 3.6.3 montre que ce biais n'altère pas de manière significative les résultats de l'expérience de choix retardé.

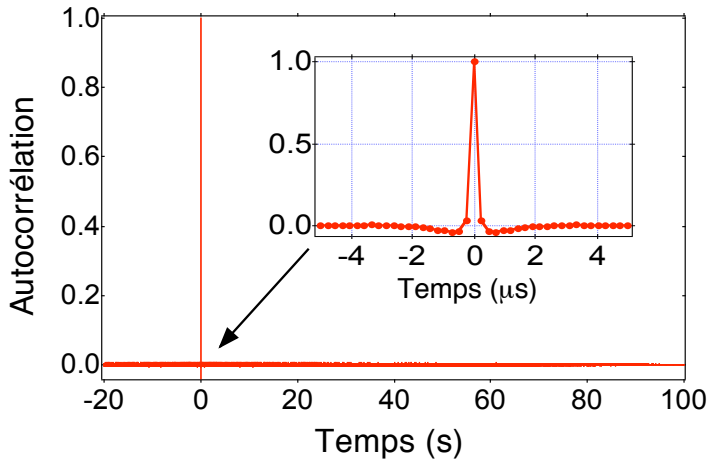


FIG. B.4 – *Autocorrélation d'une séquence de* $420\ 000$ *nombres aléatoires obtenus à la cadence de* 4.2 *MHz. L'insert représente un zoom de la fonction d'autocorrélation autour du retard nul, qui révèle une anticorrélation entre tirages successifs de l'ordre de* 4%.

Annexe C

Calcul de la différence de marche d'un interféromètre de Jamin

Nous donnons dans cette annexe le calcul de la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre de Jamin utilisé pour l'expérience de choix retardé, en fonction de l'angle d'incidence des faisceaux sur les cristaux décaleurs de polarisation.

La figure C.1 donne une description simplifiée de cet interféromètre. Un premier cristal décaleur de polarisation en YVO_4, BS_{in}, sépare spatialement les polarisations orthogonales S et P du faisceau incident. Une lame demi-onde est ensuite utilisée pour retourner les polarisations associées à chacun des deux bras de l'interféromètre d'un angle de $90°$. Un deuxième cristal décaleur de polarisation en YVO_4, BS_{out}, permet enfin de superposer les deux chemins de l'interféromètre. Nous noterons par la suite i l'angle d'incidence sur le cristal BS_{in} et j l'angle d'incidence des faisceaux sur le cristal BS_{out}.

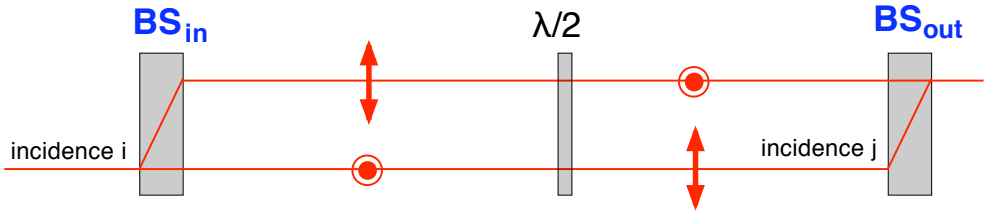


FIG. C.1 – *Interféromètre de Jamin*

Nous évaluons dans un premier temps la différence de chemin optique Δ_1 occasionnée par le positionnement du premier cristal décaleur de polarisation. Pour ce faire, nous considérons toujours les normales aux plans d'onde ordinaire et extraordinaire plutôt que les rayons lumineux lors de la propagation des faisceaux lumineux dans les cristaux en YVO_4. Ceci nous permettra d'appliquer les relations de Snell-Descartes aux interfaces air-YVO_4.

Nous introduisons les notations suivantes, qui sont illustrées sur la figure C.2 :

• n_o et n_e désignent respectivement les indices ordinaire et extraordinaire du cristal [1], tandis que n' correspond à l'indice de la normale au plan d'onde extraordinaire. En notant θ l'angle que

[1] Le YVO_4 est un milieu uniaxe positif avec $n_o = 1.9929$ et $n_e = 2.2154$ à la longueur d'onde $\lambda = 630$ nm.

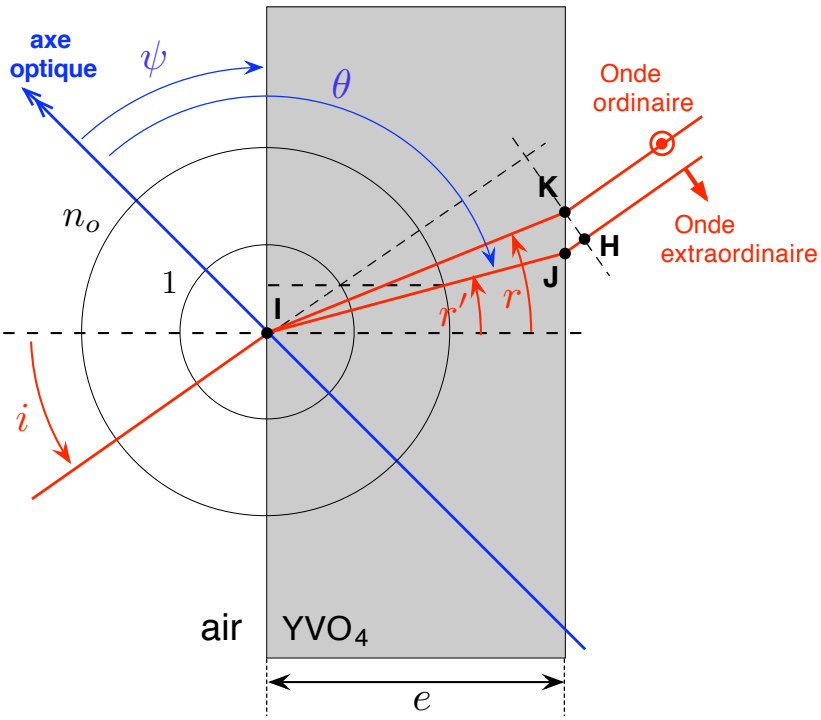


FIG. C.2 – *Notation introduite pour le calcul de la différence de chemin optique antre les deux bras de l'interféromètre de Jamin.*

fait l'axe optique du cristal avec la normale à l'onde extraordinaire, l'indice n' est défini par la relation :

$$\frac{1}{n'^{\,2}} = \frac{\sin^2\theta}{n_e^2} + \frac{\cos^2\theta}{n_o^2} \tag{C.1}$$

Nous noterons par la suite :

$$a = \frac{1}{n_e} \quad \text{et} \quad b = \frac{1}{n_o} \tag{C.2}$$

En utilisant ces notations la relation (C.1) s'écrit :

$$\frac{1}{n'^{\,2}} = a^2 - (a^2 - b^2)\cos^2\theta \tag{C.3}$$

• Nous considérons que le plan d'incidence coïncide avec un plan de section principale du cristal et nous notons ψ l'angle que fait l'axe optique avec les faces du cristal.

• r et r' correspondent respectivement aux angles de réfraction des normales au plan d'onde ordinaire et extraordinaire à l'intérieur du cristal $\mathrm{BS_{in}}$. Les relations de Snell-Descartes appliquées aux normales au plan d'onde ordinaire et extraordinaire s'écrivent :

$$\sin i = n_o \sin r \tag{C.4}$$

$$\sin i = n' \sin r' \tag{C.5}$$

• Nous notons e l'épaisseur de la lame.

La différence de chemin optique Δ_1 introduite par l'introduction du premier cristal décaleur de polarisation est donnée par (figure C.2) :

$$\Delta_1 = n'IK - n_o IJ - JH \tag{C.6}$$

$$= \frac{n'\,e}{\cos r'} - \frac{n\,e}{\cos r} - JK \sin i\ . \tag{C.7}$$

En utilisant les relations (C.4) et (C.5) et en remarquant que $JK = e(\tan r' - \tan r)$, l'expression précédente se met sous la forme :

$$\Delta_1 = e \sin i \left[\text{cotan}\ r' - \text{cotan}\ r\right] \tag{C.8}$$

Il s'agit maintenant d'évaluer $\text{cotan}\ r'$ et $\text{cotan}\ r$. En utilisant les relations (C.5) et (C.1), il vient :

$$\sin^2 r' = \sin^2 i \left[a^2 - (a^2 - b^2)\cos^2\theta\right] \tag{C.9}$$

En tenant compte que $\theta = \frac{\pi}{2} + r' + \psi$, cette expression devient :

$$\sin^2 r' = \sin^2 i \left[a^2 - (a^2 - b^2)(\sin\psi\cos r' + \cos\psi\sin r')^2\right] \tag{C.10}$$

Après quelques manipulations algébriques et en notant $C = a^2\sin^2\psi + b^2\cos^2\psi$, nous obtenons finalement un polynôme du deuxième ordre en $\text{cotan}\ r'$

$$\left[C^2\sin^2 i\right] \times \text{cotan}^{\,2} r' + \left[2\sin\psi\cos\psi(b^2 - a^2)\sin^2 i\right] \times \text{cotan}\ r' \tag{C.11}$$

$$+(a^2\cos^2\psi + b^2\sin^2\psi)\sin^2 i - 1 = 0\ , \tag{C.12}$$

ayant pour solution

$$\text{cotan}\ r' = -\frac{(b^2 - a^2)\sin\psi\cos\psi}{C^2} + \frac{\sqrt{1 - \left[\frac{a^2b^2}{C^2}\right]\sin^2 i}}{C\sin i}\ . \tag{C.13}$$

D'autre part, l'utilisation de la relation de Snell-Descartes (C.4) permet d'exprimer $\text{cotan}\ r$ sous la forme :

$$\text{cotan}\ r = \frac{\sqrt{1 - b^2\sin^2 i}}{b\sin i}. \tag{C.14}$$

A l'aide des expressions (C.13) et (C.14) et en se plaçant dans l'approximation des petits angles au premier ordre en i, l'équation (C.8) devient :

$$\Delta_1 = e\left[(\frac{1}{C} - \frac{1}{b}) + \frac{(a^2 - b^2)\sin\psi\cos\psi}{C^2} \times i\right] \tag{C.15}$$

De façon tout à fait symétrique, la différence de chemin optique Δ_2 occasionnée par l'introduction du deuxième cristal décaleur de polarisation BS_{out} s'écrit :

$$\Delta_2 = e\left[(\frac{1}{C} - \frac{1}{b}) + \frac{(a^2 - b^2)\sin\psi\cos\psi}{C^2} \times j\right] \tag{C.16}$$

où j est l'angle d'incidence des faisceaux sur le deuxième cristal.

Finalement la différence de chemin optique Δ entre les deux chemins de l'interféromètre s'écrit [2] :

$$\Delta = \Delta_1 - \Delta_2 \tag{C.17}$$

$$= e \times \frac{(a^2 - b^2)\sin\psi\cos\psi}{C^2} \times (i - j) \tag{C.18}$$

$$= e \times \frac{\left[(\frac{1}{n_e})^2 - (\frac{1}{n_o})^2\right]\sin\psi\cos\psi}{\left[(\frac{\sin\psi}{n_e})^2 - (\frac{\cos\psi}{n_o})^2\right]} \times (i - j) \tag{C.19}$$

Une application numérique montre que pour faire varier Δ d'une longueur d'onde $\lambda_0 = 670$ nm, correspondant au maximum d'émission des centres colorés NV, il faut réaliser une rotation d'un angle de l'ordre de $0.5'$ d'arc du cristal en YVO_4.

[2] L'introduction de la lame demi-onde utilisée pour compenser les deux bras de l'interféromètre n'introduit pas de différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre.

Bibliographie

[1] A. Einstein. Concerning an heuristic point of view toward the emission and transformation of light. *Ann. d. Phys.*, **17** :132–148, (1905).

[2] A. Einstein. *Oeuvres choisies d'Albert Einstein.* T*ome I :* Q*uantas, mécanique statistique et physique quantique*. Edition Seuil CNRS, 1989.

[3] A. Zeilinger, G. Weihs, T. Jennewein, and M. Aspelmeyer. Happy centenary, photon. *Nature*, **433** :230–238, (2005).

[4] R. P. Feynman, R. B. Leighton, and M. L. Sands. *Lectures on Physics*. Tome III, Addison Wesley, 1965.

[5] G. N. Lewis. The conservation of photons. *Nature*, **118** :874–875, (1926).

[6] G. I. Taylor. Interference fringes with feeble light. *Proc. Cambridge Philos. Soc.*, **15** :114–115, (1909).

[7] D. F. Walls. Evidence for the quantum nature of light. *Nature*, **280** :451–454, (1979).

[8] J. F. Clauser. Experimental distinction between the quantum and classical field-theoretic predictions for the photoelectric effect. *Phys. Rev. D*, **9** :853–860, (1974).

[9] J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. Photon antibunching in fluorescence resonance. *Phys. Rev. Lett*, **39** :691–694, (1977).

[10] P. Grangier, G. Roger, and A. Aspect. Experimental evidence for a photon anticorrelation effect on a beam splitter : a new light on single-photon interferences. *Europhys. Lett.*, **1** :173, (1986).

[11] P. Grangier and I. Abram. Single photons on demand. *Physics World.*, Février 2003.

[12] B. Lounis and M. Orrit. Single-photon sources. *Rep. Prog. Phys.*, **68** :1129–1179, (2005).

[13] A. Beveratos. Réalisation d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés dans le diamant ; application à la cryptographie quantique. *Thèse de doctorat, Université Paris 11*, (2002). Disponible à l'adresse http ://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/04/77/32/PDF/tel-00008487.pdf.

[14] J. A. Wheeler. *Quantum Theory and Measurement*. J. A. Wheeler and W. H. Zurek edition, (Princeton University Press), 1984.

[15] R. Alléaume. Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques, caractérisation et application à la cryptographie quantique. *Thèse de doctorat, Université Paris 6*, (2004). Disponible à l'adresse http ://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/04/79/46/PDF/tel-00008985.pdf.

[16] F. De Martini, G. Di Giuseppe, and M. Marrocco. Single-mode generation of quantum photon states by excited single molecules in a microcavity trap. *Phys. Rev. Lett.*, **76** :900–903, (1996).

[17] S. C. Kitson, P. Jonsson, J. G. Rarity, and P. R. Tapster. Intensity fluctuation spectroscopy of small numbers of dye molecules in a microcavity. *Phys. Rev. A*, **58** :620–627, (1998).

[18] B. Lounis and W. E. Moerner. Single photons on demand from a single molecule at room temperature. *Nature*, **407** :491–493, (2000).

[19] V. Ronchi. *Histoire de la lumière*. A. Colin, 1956.

[20] B. Maitte. *La lumière*. Point Sciences, 1981.

[21] *La lumière dans tous ses états*. Pour la science, octobre-décembre 1986.

[22] P. Thuillier. *D'Archimède à Einstein, les faces cachées de l'invention scientifique*. Fayard, 1988.

[23] C. Fabry. La vie et l'œuvre scientifique de A. Fresnel. *Conférence à la Sorbonne à l'occasion du centenaire du décès d'A. Fresnel*, (1927), Disponible en ligne http ://www.academie-sciences.fr/membres/in_memoriam/Fresnel/Fresnel_pdf/Fresnel_eloge_1927.pdf.

[24] R. Kohlrausch and W.E. Weber. Ueber die elektrizitätsmenge, welche bei galvanischen strömen durch den querschnitt der kette fliesst. *Ann. d. Phys.*, **99** :10, (1856).

[25] H. Fizeau. Sur une expérience relative à la vitesse de propagation de la lumière. *Comptes rendus de l'académie des sciences*, **29** :90–92, (1862), disponible en ligne http ://www.academie-sciences.fr/membres/in_memoriam/Fizeau/Fizeau_pdf/CR1849_p90.pdf.

[26] J. C. Maxwell. On physical lines of force. Part 3. *Phil. Mag.*, **23** :p.22, (1862).

[27] A. A. Michelson. Cité par P. Galison dans L. Graham *et al.* , *Functions and uses of disciplinary history*, **7** :35–51, (1983).

[28] O. Darrigol. Communication personnelle.

[29] Lord Kelvin. Nineteenth-century clouds over the dynamical theory of heat and light. *Appendix B of Baltimore lectures on molecular dynamics and the wave theory of light*, (1904), disponible en ligne à l'adresse http ://www.archive.org/details/baltimorelecture00kelviala.

[30] A. Einstein. Conférence donnée à salzbourg le 21 septembre 1909. *Phys. Zeit.*, **10** :817–825, (1909).

[31] R. A. Millikan. A direct photoelectric determination of Planck constant h. *Phys. Rev. Lett.*, **7** :355–388, (1916).

[32] A. H. Compton. Quantum theory of the scattering of X-rays by light elements. *Phys. Rev.*, **21** :483–502, (1923).

[33] C. Davisson and L. H. Germer. Diffraction of electrons by a crystal of nickel. *Phys. Rev.*, **30** :705–740, (1927).

[34] J. Simmhammer, G. Badurek, H. Rauch, U. Kischko, and A. Zeilinger. Direct observation of fermion spin superposition by neutron interferometry. *Phys. Rev. A*, **27** :2523, (1983).

[35] O. Carnal and J. Mlynek. Young's double-slit experiment with atoms : A simple atom interferometer. *Phys. Rev. Lett.*, **66** :2689, (1991).

[36] D. W. Keith, C. R. Ekstrom, Q. A. Turchette, and D. E. Pritchard. An interferometer for atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **66** :2693–2696, (1991).

[37] M. Arndt, O. Nairz, J. Vos-Andreae, C. Keller, G. van der Zouw, and A. Zeilinger. Wave-particle duality of C^{60} molecules. *Nature*, **401** :680, (1999).

[38] A. Tonomura, J. Endo, T. Matsuda, T. Kawasaki, and H. Ezawa. Demonstration of single-electron buildup of an interference pattern. *Am. J. Phys.*, **57** :117, (1989).

[39] P. A. M. Dirac. *The principles of quantum mechanics*. Oxford University Press, 1958.

[40] P. Grangier. Etude expérimentale de propriétés non-classiques de la lumière : Interférences à un seul photon. *Thèse d'état, Institut d'Optique et Université Paris 11*, (1986). Disponible à l'adresse http ://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/05/11/69/PDF/tel-00009436.pdf.

[41] A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger. Dualité onde-particule pour un photon unique. *J. Optics (Paris)*, **20** :119–129, (1989).

[42] P. Lenard. Production of cathode rays by ultraviolet light. *Ann. d. Phys.*, **2**, (1899).

[43] P. Lenard. The photoelectric effect. *Ann. d. Phys.*, **4** :8, (1902).

[44] P. Lenard. On cathode rays. *Nobel lecture*, (1905), Disponible en ligne http ://nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/1905/lenard-lecture.html.

[45] R. A. Millikan. Albert Einstein on his seventieth birthday. *Rev. Mod. Phys.*, **21** :343–345, (1949).

[46] W. E. Lamb and M. O. Scully. *The photoelectric effect without photons*. dans Polarisation, matière et rayonnement, Presse universitaires de France, 1969.

[47] C. Cohen-Tannoudji. *Emission et détection de rayonnement : approches semi-classiques et approches quantiques*. Leçons du Collège de France, Chaire de physique atomique et moléculaire, (1979-1980), disponible en ligne à l'adresse http ://www.phys.ens.fr/cours/college-de-france/1979-80/1979-80.html.

[48] R. J. Glauber. Coherent and incoherent states of the radiation field. *Phys. Rev.*, **1** :2766, (1963).

[49] R. J Glauber. *Optical Coherence and Photon Statistics, Cours de l'école des Houches*. Gordon and Breach Science Publishers, 1964.

[50] C. C. Gerry and P. L. Knight. *Introductory quantum optics*. Cambridge University Press, 2004.

[51] R.H. Brown and R. Twiss. Correlation between photons in two coherent beams of light. *Nature*, **177** :27–29, (1956).

[52] R. Loudon. *The quantum theory of light*. Oxford University Press, Oxford, 3rd edition, 2000.

[53] H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. Multiatom and transit-time effects on photon-correlation measurements in resonance fluorescence. *Phys. Rev. A*, **18** :201–207, (1978).

[54] M. Dagenais and L. Mandel. Investigation of two-time correlations in photon emissions from a single atom. *Phys. Rev. A*, **18** :2217–2228, (1978).

[55] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden. Quantum cryptography. *Rev. Mod. Phys.*, **74** :145, (2002).

[56] E. Knill, L. Laflamme, and G. J. Milburn. Efficient linear optics quantum computation. *Nature*, **409** :46–48, (2001).

[57] J. L. O'Brien, G. J. Pryde, A. G. White, T. C. Ralph, and D. Branning. Demonstration of an all-optical quantum controlled-NOT gate. *Nature*, **426** :264–267, (2003).

[58] C. K. Hong and L. Mandel. Experimental realization of a localized one-photon state. *Phys. Rev. Lett.*, **56** :58–60, (1986).

[59] F. Treussart, R. Alléaume, V. Le Floc'h, L. T. Xiao, J.-M. Courty, and J.-F. Roch. Direct measurement of the photon statistics of a triggered single photon source. *Phys. Rev. Lett.*, **89** :093601, (2002).

[60] M. Keller, B. Lange, K. Hayasaka, W. Lange, and H. Walther. A calcium ion in a cavity as a controlled single-photon source. *New J. Phys.*, **6** :95, (2004).

[61] C. Maurer, C. Becher, C. Russo, J. Eschner, and R. Blatt. A single-photon source based on a single Ca^+ ion. *New J. Phys.*, **6** :94, (2004).

[62] J. McKeever, A. Boca, A. D. Boozer, R. Miller, J. R. Buck, A. Kuzmich, and H. J. Kimble. Deterministic generation of single photons from one atom trapped in a cavity. *Science*, **303** :1992–1994, (2004).

[63] B. Darquié, M. P. A. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, and P. Grangier. Controlled single-photon emission from a single trapped two-level atom. *Science*, **309** :454–456, (2005).

[64] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *Science*, **290** :2282–2285, (2000).

[65] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto. Triggered single photons from a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, **86** :1502–1504, (2001).

[66] J. Hours, S. Varoutsis, M. Gallart, J. Bloch, I. Robert-Philip, A. Cavanna, I. Abram, F. Laruelle, and J. M. Gérard. Single photon emission from individual gaas quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, **82** :2206, (2003).

[67] D. Englund, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto, and J. Vukovic. Controlling the spontaneous emission rate of single quantum dots in a two-dimensional photonic crystal. *Phys. Rev. Lett.*, **95** :013904, (2005).

[68] S. Laurent, S. Varoutsis, L. Le Gratiet, A. Lemaître, I. Sagnes, F. Raineri, A. Levenson, I. Robert-Philip, and I. Abram. Indistinguishable single photons from a single-quantum dot in a two-dimensional photonic crystal cavity. *Appl. Phys. Lett.*, **87** :163107, (2005).

[69] X. Brokmann, E. Giacobino, M. Dahan, and J. P. Hermier. Highly efficient triggered emission of single photons by colloidal CdSe/ZnS nanocrystals. *Appl. Phys. Lett.*, **85** :712–714, (2004).

[70] X. Brokmann, G. Messin, P. Desbiolles, E. Giacobino, M. Dahan, and J.P. Hermier. Colloidal CdSe/ZnS quantum dots as single photon sources. *New J. Phys.*, **6** :99, (2004).

[71] A. M. Zaitsev. *Optical properties of diamond, a data handbook*. Springer, 2000.

[72] C. Wang, C. Kurtsiefer, H. Weinfurter, and B. Burchard. Single photon emission from siv centres in diamond produced by ion implantation. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **9** :37, (2006).

[73] T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, M. Domhan, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Stable single-photon source in the near infrared. *New J. Phys.*, **6** :98, (2004).

[74] E Wu, V. Jacques, F. Treussart, H. Zeng, P. Grangier, and J.-F. Roch. Narrow band single photon emission in the near infrared for quantum key distribution. *Opt. Exp.*, **14** :1296–1303, (2006).

[75] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, S. Mayer, and H. Weinfurter. A robust all-solid-state source for single photons. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :290–293, (2000).

[76] R. Brouri, A. Beveratos, J.P. Poizat, and P. Grangier. Single photon emission from colored centers in diamond. *Opt. Lett.*, **25** :1294, (2000).

[77] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Single photon quantum cryptography. *Phys. Rev. Lett.*, **89** :187901, (2002).

[78] R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, J.-F. Roch Y. Dumeige, A. Beveratos, R. Brouri-Tualle, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source. *New J. Phys.*, **6** :92, (2004).

[79] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, Oxford, 6th edition, 1980.

[80] N. Bohr. The quantum postulate and the recent development of atomic theory. *Naturwissenschaften*, **16** :245–247, (1928).

[81] N. Bohr. *Atomic theory and the description of nature*. Cambridge University Press, p.10, 1961.

[82] *Les conseils Solvay et les débuts de la physique moderne*. Université Libre de Bruxelles, p.188, 1995.

[83] S. Haroche and J. M. Raimond. *Exploring the quantum. Atom, cavities and photons*. Oxford University Press, 2006.

[84] M. O. Scully, B.-G. Englert, and H. Walther. Quantum optical tests of complementarity. *Nature*, **351** :111–116, (1991).

[85] P. Bertet. Atomes et cavité : complémentarité et fonctions de Wigner. *Thèse de doctorat, Université Paris 6*, (2002). Disponible à l'adresse http ://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/04/52/07/PDF/tel-00002496.pdf.

[86] M. S. Chapman, T. D. Hammond, A. Lenef, J. Schmiedmayer, R. A. Rubenstein, E. Smith, and D. E. Pritchard. Photon scattering from atoms in an atom interferometer : Coherence lost and regained. *Phys. Rev. Lett.*, **75** :3783–3787, (1995).

[87] E. Buks, R. Schuster, M. Heiblum, D. Mahalu, and V. Umansky. Dephasing in electron interference by a which-path detector. *Nature*, **391** :871–874, (1998).

[88] S. Dürr, T. Nonn, and G. Rempe. Origin of quantum-mechanical complementarity probed by a which-way experiment in an atom interferometer. *Nature*, **395** :33–37, (1998).

[89] P. Bertet, S. Osnaghl, A. Rauschenbeutel, G. Nogues, A. Auffeves, M. Brune, J. M. Raymond, and S. Haroche. A complementarity experiment with an interferometer at the quantum classical boundary. *Nature*, **411** :166–170, (2001).

[90] M. O. Scully and K. Drühl. Quantum eraser : a proposed photon correlation experiment concerning observation and delayed-choice in quantum mechanics. *Phys. Rev. A*, **25** :2208–2215, (1982).

[91] Y. Aharonov and M. S. Zubairy. Time and the quantum : Erasing the past and impacting the future. *Science*, **307** :875–879, (2005).

[92] E. Hagley, X. Maître, G. Nogues, C. Wunderlich, M. Brune, J. M. Raimond, and S. Haroche. Generation of Einstein-Podolsky-Rosen pairs of atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **79** :1–5, (1997).

[93] T. Herzog, P. Kwiat, H. Weinfurter, and A. Zeilinger. Complementarity and the quantum eraser. *Phys. Rev. Lett.*, **75** :3034, (1995).

[94] Y.-H. Kim, R. Yu, S. P. Kulik, Y. Shih, and M. O. Scully. Delayed-choice quantum eraser. *Phys. Rev. Lett.*, **84** :1–4, (2000).

[95] A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen. Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete ? *Phys. Rev.*, **47** :777–780, (1935).

[96] P. Storey, S. Tan, M. Collett, and D. F. Walls. Path detection and the uncertainty principle. *Nature*, **367** :626–628, (1994).

[97] B.-G. Englert, M. O. Scully, and H. Walther. Complementarity and uncertainty. *Nature*, **375** :367, (1995).

[98] H. M. Wiseman and F. E. Harrison. Uncertainty over complementarity ? *Nature*, **377** :584, (1995).

[99] Y. Aharonov and D. Bohm. Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory. *Phys. Rev.*, **115** :485–491, (1959).

[100] H. M. Wiseman, F. E. Harrrison, M. J. Collett, S. M. Tan, D. F. Walls, and R. B. Killip. Non local momentum transfer in welcher weg measurements. *Phys. Rev. A*, **56** :55–74, (1997).

[101] A. Luis and L. L. Sanchez-Soto. Complementarity enforced by random classical phase kicks. *Phys. Rev. Lett.*, **81** :4031–4035, (1998).

[102] R. Mir, J. S. Lundeen, M. W. Mitchell, A. M. Steinberg, J. L. Garretson, and H. M. Wiseman. A double-slit which-way experiment on the complementarity-uncertainty debate. *New J. Phys.*, **9** :287, (2007).

[103] B.-G. Englert, M. O. Scully, and H. Walther. On mechanisms that enforce complementarity. *Journal of Modern Optics*, **47** :2213–2220, (2000).

[104] G. Greenstein and A. Zajonc. *The Quantum Challenge*. Jones and Bartlett, Sudbury, MA, 2nd edition, 2006.

[105] G. Jaeger, A. Shimony, and L. Vaidman. Two interferometric complementarities. *Phys. Rev. A*, **51** :54–67, (1995).

[106] B.-G. Englert. Fringe visibility and which-way information : An inequality. *Nature*, **77** :2154–2157, (1996).

[107] W. K. Wootters and W. H. Zurek. Complementarity in the double-slit experiment : Quantum nonseparability and a quantitative statement of Bohr's principle. *Phys. Rev. D*, **19** :473–484, (1979).

[108] S. Dürr and G. Rempe. Can wave-particle duality be based on the uncertainty principle ? *Am. J. Phys.*, **68** :1021–1024, (2000).

[109] S. Dürr, T. Nonn, and G. Rempe. Fringe visibility and which-way information in an atom interferometer. *Phys. Rev. Lett.*, **81** :5706–5709, (1998).

[110] X. Peng, X. Zhu, X. Fang, M. Feng, M. Liu, and K. Gao. An interferometric complementarity experiment in a bulk nuclear magnetic resonance ensemble. *J. Phys. A*, **36** :2555–2563, (2003).

[111] P. Mittelstaedt, A. Prieur, and R. Schieder. Unsharp particle-wave duality in a photon split-beam experiment. *Found. Phys.*, **17** :891–903, (1987).

[112] P. D. Schwindt, P. G. Kwiat, and B.-G. Englert. Quantitative wave-particle duality and non-erasing quantum erasure. *Phys. Rev. A*, **60** :4285–4290, (1999).

[113] C. Santori, D. Fattal, J. Vukovi, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature*, **419** :594–597, (2002).

[114] D. Fattal, K. Inoue, J. Vuckovic, C. Santori, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. Entanglement formation and violation of Bell's inequality with a semiconductor single photon source. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :037903, (2004).

[115] P. Grangier, J. A. Levenson, and J.-P. Poizat. Quantum non-demolition measurements in optics. *Nature*, **396** :537–542, (1998).

[116] G. Nogues, A. Rauschenbeutel, S. Osnaghi, M. Brune, J. M. Raimond, and S. Haroche. Seeing a single photon without destroying it. *Nature*, **400** :239–242, (1999).

[117] S. S. Afshar. Sharp complementary wave and particle behaviours in the same welcher weg experiment. *Proc. SPIE*, **5866** :229–244, (2005).

[118] S. S. Afshar, E. Flores, K. F. McDonald, and E. Knoesel. Paradox in wave-particle duality. *Found. Phys.*, **37** :295–305, (2007).

[119] A. Einstein. *Oeuvres choisies d'Albert Einstein. Tome I : Quantas, mécanique statistique et physique quantique, Chap14 et 15, pp. 216-221*. Edition Seuil CNRS, 1989.

[120] P. A. Schilpp (ed.). *Albert Einstein : Philosopher-Scientist*. Library of Living Philosophers, 1949.

[121] C. F. von Weizsacker. *Z. Phys.*, **70** :114, (1931).

[122] C. F. von Weizsacker. *Z. Phys.*, **118** :489, (1941).

[123] V. Jacques, E Wu, F. Grosshans, F. Treussart, P. Grangier, A. Aspect, and J.-F. Roch. Experimental realization of Wheeler's delayed-choice gedanken experiment. *Science*, **315** :966–968, (2007).

[124] V. Jacques, E Wu, F. Grosshans, F. Treussart, P. Grangier, A. Aspect, and J.-F. Roch. Delayed-choice test of complementarity with single-photons. *à paraître dans Phys. Rev. Lett.,arXiv :quant-ph/0801.0979*, (2007).

[125] T. Hellmut, A. G. Zajonc, and H. Walther. *Proceedings of the symposium on the Foundations of Modern Physics, Joensu, Finland*, édité par P. Lahti and P. Mittelstaedt, (1985).

[126] C. O. Alley, O. G. Jacubowicz, and W. C. Wickes. Result of the delayed-random-choice quantum mechanics experiment with light quanta. *Proceedings of the Second International Symposium on the Foundations of Quantum Mechanics*, H. Narani, Ed. (Physics Society of Japan, Tokyo) :36–47, (1987).

[127] T. Hellmut, H. Walther, A. G. Zajonc, and W. Schleich. Delayed-choice experiment in quantum interference. *Phys. Rev. A*, **72** :2532–2541, (1987).

[128] J. Baldzuhn, E. Mohler, and W. Martienssen. A wave-particle delayed-choice with a single-photon state. *Z. Phys. B - Condensed Matter*, **77** :347–352, (1989).

[129] J. Baldzuhn and W. Martienssen. Are there spontaneous objectifications of the wave-particle properties of a single photon ? *Z. Phys. B - Condensed Matter*, **82** :309–316, (1991).

[130] T. Kawai, T. Ebisawa, S. Tasaki, M. Hino, D. Yamazaki, T. Akiyoshi, Y. Matsumoto, N. Achiwa, and Y. Otake. Realization of a delayed choice experiment using a multilayer cold neutron pulser. *Nucl. Instrum. Methods Phys. A*, **410** :259–263, (1998).

[131] B. J. Lawson Daku, R. Asimov, O. Gorceix, C. Miniatura, J. Robert, and J. Baudon. Delayed choices in atom Stern-Gerlach interferometry. *Phys. Rev. A*, **54** :5042–5047, (1996).

[132] X. Ma. Communication personnelle.

[133] G. Fortunato. L'interféromère de Michelson : quelques aspects théoriques et expérimentaux. *Bulletin de l'Union des Physiciens*, **91** :15–56, (1997).

[134] H.-A. Bachor and T. C. Ralph. *A Guide to Experiments in Quantum Optics*. Wiley-VCH, Weinheim, Germany, 2004.

[135] L. Jacubowiez, J.-F. Roch, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Etude des sources de bruits dans un système de détection optique. *Bulletin de l'Union des Physiciens*, **91** :57–72, (1997).

[136] J.-F. Roch, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Sub-shot-noise manipulation of light using semiconductor emitters and receivers. *Phys. Rev. Lett.*, **71** :2006–2009, (1993).

[137] W. H. Press, T. V. Vetterling, S. A. Teukolsky, and B.P. Flannery. *Numerical Recipies in Fortran. The art of scientific computing*. Cambridge University Press, New-York, 2nd edition, 1992.

[138] V. Jacques, E Wu, F. Grosshans, F. Treussart, P. Grangier, A. Aspect, and J.-F. Roch. Wheeler's delayed-choice thought experiment : Experimental realization and theoretical analysis. *arXiv :quant-ph/0710.2597*, (2007).

[139] D. J. Bohm, C. Dewdney, and B. H. Hiley. A quantum potential approach to the Wheeler delayed-choice experiment. *Nature*, **315** :294–297, (1985).

[140] J. S. Bell. *« De* B*roglie-*B*ohm, delayed-choice double slit experiment, and density matrix »in* S*peakable and unspeakable in quantum mechanics*. Cambridge University Press, 1987.

[141] B. J. Hiley and R. E. Callaghan. Delayed choice experiments and the Bohm approach. *Phys. Scr.*, **74** :336–348, (2006).

[142] T. Norsen. Comment on « Experimental realization of Wheeler's delayed-choice gedanken experiment ». *arXiv :quant-ph/0611034*, (2006).

[143] A. Aspect, J. Dalibard, and G. Roger. Experimental test of Bell's inequalities using time-varying analyzers. *Phys. Rev. Lett.*, **49** :1804, (1982).

[144] N. Bohr. *Albert Einstein : Philospher Scientist, p. 230*. Library of Living Philosophers, Evanston, 2nd edition, 1951.

[145] T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, M. Domhan, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Stable single-photon source in the near infrared. *New J. Phys.*, **6** :98, (2004).

[146] E Wu, V. Jacques, F. Treussart, H. Zeng, P. Grangier, and J.-F. Roch. Single-photon emission in the near infrared from diamond colour centre. *Journal of Luminescence*, **119-120** :19–23, (2006).

[147] E Wu, J. Rabeau, G. Roger, F. Treussart, P. Grangier H. Zeng, S. Prawer, and J.-F. Roch. Room temperature triggered single-photon source in the near infrared. *arXiv : quant-ph/0708.1878*, (2007).

[148] A. S. Barnard. *The diamond formula.* D*iamond synthesis : a gemmological perspective*. Butterworth Heinemann, 2000.

[149] A. Yelisseyev, S. Lawson, I. Sildos, A. Osvet, V. Nadolinny, B. Feigelson, J. M. Baker, M. Newton, and O. Yuryeva. Effect of HPHT annealing on the photoluminescence of synthetic diamonds grown in the Fe-Ni-C system. *Diamond and Relat. Mater.*, **12** :2147–2168, (2003).

[150] V. A. Nadolinny, A. P. Yelisseyev, J. M. Baker, M. E. Newton, D. J. Twitchen, S. C. Lawson, O. P. Yuryeva, and B. N. Feigelson. A study of ^{13}C hyperfine structure in the EPR of nickel-nitrogen-containing centres in diamond and correlation with their optical properties. *J. Phys. : Condens. Matter*, **11** :7357–7376, (1999).

[151] K. Johnston and A. Mainwood. Properties of nickel nitrogen complexes in diamond : stability and electronic structure. *Diamond and Relat. Mater.*, **12** :516–520, (2003).

[152] T. Wilson. *Confocal microscopy*. Academic Press, New-York, 1st edition, 1990.

[153] T. Basché, S. Kummer, and C. Bräuchle. Direct spectroscopic observation of quantum jumps of a single molecule. *Nature*, **373** :132–135, (1995).

[154] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, and L. E. Brus. Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals. *Nature*, **383** :802–804, (1996).

[155] S. Reynaud. La fluorescence de résonance : Etude par la méthode de l'atome habillé. *Ann. Phys. Fr.*, **8** :315, (1983).

[156] F. Treussart, A. Clouqueur, C. Grossman, and J.-F. Roch. Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule embedded in a thin polymer film. *Opt. Lett.*, **26** :1504–1506, (2001).

[157] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Nonclassical radiation from diamond nanocrystals. *Phys. Rev A*, **64** :061802R, (2001).

[158] J. Jasny and J. Sepiol. Single molecules observed by immersion mirror objective. a novel method of finding the orientation of a radiating dipole. *Chem. Phys. Lett.*, **273** :439–443, (1997).

[159] J. Rabeau, Y. Chin, S. Prawer, F. Jelezko, T. Gaebel, and J. Wrachtrup. Fabrication of single nickel-nitrogen defects in diamond by chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett*, **86** :131926, (2005).

[160] L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, and U. P. Wild. Nonclassical photon statistics in single-molecule fluorescence at room temperature. *Phys. Rev. Lett.*, **84** :1148–1151, (2000).

[161] L. Fleury, B. Sick, G. Zumofen, B. Hecht, and U. P. Wild. High photo-stability of single molecules in an organic crystal at room temperature observed by scanning confocal optical microscopy. *Mol. Phys.*, **95** :1333–1338, (1998).

[162] X. S. Xie and J. K. Trautman. Optical studies of single molecules at room temperature. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **49** :441–480, (1998).

[163] P. Tamarat, A. Maali, B. Lounis, and M. Orrit. Ten years of single-molecule spectroscopy. *J. Phys. Chem. A*, **104** :1–16, (2000).

[164] W. E. Moerner and D.P. Fromm. Methods of single-molecule fluorescence spectroscopy and microscopy. *Rev. Sci. Instrum.*, **74** :3597–3619, (2003).

[165] R. M. Dickson, A. B. Cubitt, R. Y. Tsien, and W. E. Moerner. On/off blinking and switching behaviour of single molecules of green fluorescent protein. *Nature*, **388** :355–358, (1997).

[166] T. Funatsu, Y. Harada, M. Tokunaga, K. Saito, and T. Yanagida. Imaging of single fluorescent molecules and individual atp turnovers by single myosin molecules in aqueous solution. *Nature*, **374** :555–559, (1995).

[167] P. H. Lu, L. Xun, and X. S. Xie. Single-molecule enzymatic dynamics. *Science*, **282** :1877–1882, (1998).

[168] X. Zhuang, L. E. Bartley, H. P. Babcock, R. Russell, T. Ha, D. Herschlag, and S. Chu. A single-molecule study of RNA catalysis and folding. *Science*, **288** :2048–2051, (2000).

[169] V. Jacques, J. Murray, F. Marquier, D. Chauvat, F. Grosshans, 1 F. Treussart, and J.-F. Roch. Enhancing single-molecule photostability by optical feedback from quantum-jump detection. *arXiv :quant-ph/0707.3200*, (2007).

[170] B. Valeur. *Molecular fluorescence*. Wiley-VCH, Weinheim, 2nd edition, 2002.

[171] J. R. Lakowicz. *Principles of fluorescence spectroscopy*. Springer-Verlag, New-York, 3rd edition, 2006.

[172] J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, and L. E. Brus. Imaging and time-resolved spectroscopy of single molecules at an interface. *Science*, **272** :255–258, (1996).

[173] T. Basché, W. E. Moerner, M. Orrit, and U. P. Wild. *Single-Molecule Optical Detection, Imaging and Spectroscopy*. VCH, Weinheim, Germany, 1st edition, 1997.

[174] E. Schrödinger. Are there quantum jumps ? *Brit. J Phil. Sci*, **3** :109–123, (1952).

[175] T. Sauter, W. Neuhauser, R. Blatt, and P. E. Toschek. Shelved optical electron amplifier : observation of quantum jumps. *Phys. Rev. Lett.*, **56** :2797–2799, (1986).

[176] J. C. Bergquist, R. G. Hulet, W. M. Itano, and D. J. Wineland. Observation of quantum jumps in a single atom. *Phys. Rev. Lett.*, **57** :1699–1702, (1986).

[177] T. Sauter, W. Neuhauser, R. Blatt, and P. E. Toschek. Observation of quantum jumps. *Phys. Rev. Lett.*, **57** :1696–1698, (1986).

[178] S. Gleyzes, S. Kuhr, C. Guerlin, J. Bernu, S. Deléglise, U. Busk Hoff, M. Brune, J.-M. Raimond, and S. Haroche. Quantum jumps of light recording the birth and death of a photon in a cavity. *Nature*, **446** :297–300, (2007).

[179] C. Guerlin, J. Bernu, S. Deléglise, C. Sayrin, S. Gleyzes, S. Kuhr, M. Brune, J.-M. Raimond, and S. Haroche. Progressive field-state collapse and quantum non-demolition photon counting. *Nature*, **448** :889–893, (2007).

[180] J. A. Veerman, M. F. Garcia-Parajo, L. Kuipers, and N. F. Van Hulst. Time-varying triplet state lifetimes of single molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **83** :2155–2158, (1999).

[181] B. L. Sprague, R. L. Pegoand, D. A. Stavreva, and J. G. McNally. Analysis of binding reactions by fluorescence recovery after photobleaching. *Biophysical Journal*, **86** :3473–3495, (2004).

[182] R. Zondervan, F. Kulzer, M. A. Kol'chenko, and M. Orrit. Photobleaching of rhodamine 6g in poly(vinyl alcohol) at the ensemble and single-molecule level. *J. Phys. Chem. A*, **108** :1657–1665, (2004).

[183] J. Widengren, A. Chmyrov, C. Eggeling, P.-A. Lofdahl, and C. A. M. Seidell. Strategies to improve photostabilities in ultrasensitive fluorescence spectroscopy. *J. Phys. Chem. A*, **111** :429–440, (2007).

[184] W. E. Moerner and M. Orrit. Illuminating single molecules in condensed matter. *Science*, **283** :1669–1676, (1999).

[185] A. Yildiz, J. N. Forkey, S. A. McKinney, T. Ha, Y. E. Goldman, and P. R. Selvin. Myosin v walks hand-over-hand : Single fluorophore imaging with 1.5-nm localization. *Science*, **300** :2061–2065, (2003).

[186] Y. Lill and B. Hecht. Single dye molecules in an oxygen-depleted environment as photostable organic triggered single-photon sources. *Appl. Phys. Lett.*, **84** :1665–1667, (2004).

[187] A. Renn, J. Seelig, and V. Sandoghdar. Oxygen-dependent photochemistry of fluorescent dyes studied at the single molecule level. *Mol. Phys.*, **104** :409–414, (2006).

[188] L. A. Deschenes and D. A. Vanden Bout. Single molecule photobleaching : Increasing photon yield and survival time through suppression of two step photolysis. *Chem. Phys. Lett.*, **375** :387–395, (2002).

[189] C. Eggeling, J. Widengren, R. Rigler, and C. A. M. Seidell. Photobleaching of fluorescent dyes under conditions used for single-molecule detection : Evidence of two-step photolysis. *Anal. Chem.*, **70** :2651–2659, (1998).

[190] A. Margineanu, J. Hofkens, M. Cotlet, S. Habuchi, A. Stefan, J. Qu, C.Kohl, K. Müllen, J. Vercammen, Y. Engelborghs, T. Gensch, and F. C. De Schryver. Photophysics of a water-soluble rylene dye : Comparison with other fluorescent molecules for biological application. *J. Phys. Chem. B*, **108** :12242–12251, (2004).

[191] C. Jung, B. K. Müller, D. C. Lamb, F. Nolde, Klaus Müllen, and C. Braüchle. A new photostable terrylenediimide dye for applications in single molecule studies and membrane potential. *J. Am. Chem. Soc.*, **128** :5283–5291, (2006).

[192] F. P. Schäfer. *Topics in Applied Physics Volume 1*. Springer, Berlin, 1st edition, 1990.

[193] G. Donnert, J. Keller, R. Medda, M. A. Andrei, S. O. Rizzoli, R. Lührmann, R. Jahn, C. Eggeling, and S. W. Hell. Macromolecular-scale resolution in biological fluorescence microscopy. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **103** :11440–11445, (2006).

[194] S. W. Hell. Far field optical nanoscopy. *Science*, **316** :1153–1158, (2007).

[195] A. Verevkin, A. Pearlman, W. Slysz, J. Zhang, M. Currie, A. Korneev, G. Chulkova, O. Okunev, P. Kouminov, K. Smirnov, B. Voronov, G. N. Gol'tsman, and R. Sobolewski. Ultrafast single-photon detectors for near-infrared-wavelength quantum communications. *J. Modern Opt.*, **51** :1447–1458, (2004).

[196] D. Axelrod. Carbocyanine dye orientation in red cell membrane studied by microscopic fluorescence polarization. *Biophys. J.*, **26** :557–574, (1979).

[197] J. P. Hoogenboom, E. Van Dijk, J. Hernando, N. F. Van Hulst, and M. F. Garcia-Parajo. Power-law-distributed dark states are the main pathway for photobleaching of single organic molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **95** :097401, (2005).

[198] P. Didier, L. Guidoni, and F. Bardou. Infinite average lifetime of an unstable bright state in the green fluorescent protein. *Phys. Rev. Lett.*, **95** :090602, (2005).

[199] C. G. Hubner, A. Renn, I. Renge, and U. P. Wild. Direct observation of the triplet lifetime quenching of single dye molecules by molecular oxygen. *J. Chem. Phys.*, **115** :9619–9622, (2001).

[200] T. Christ, F. Kulzer, P. Bordat, and T. Basché. Watching the photo-oxidation of a single aromatic hydrocarbon molecule. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **40** :4192–4195, (2001).

[201] H. Rigneault, J. Capoulade, J. Dintinger, J. Wenger, N. Bonod, E. Popov, T. W. Ebbesen, and P.-F. Lenne. Enhancement of single-molecule fluorescence detection in subwavelength apertures. *Phys. Rev. Lett.*, **95** :117401, (2005).

[202] F. D. Stefani, K. Vasilev, N. Bocchio, N. Stoyanova, and M. Kreiter. Enhancement of single-molecule fluorescence detection in subwavelength apertures. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :023005, (2005).

[203] P. Grangier. Single photons stick together. *Nature*, **419** :577, (2002).

[204] C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel. Measurement of subpiconsecond time intervals between two photons by interference. *Phys. Rev. Lett.*, **59** :2044–2047, (1987).

[205] D. Fattal, E. Diamanti, K. Inoue, and Y. Yamamoto. Quantum teleportation with a quantum dot single photon source. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :037904, (2004).

[206] D. L. Moehring, P. Maunz, S. Olmschenk, K. C. Younge, D. N. Matsukevich, L.-M. Duan, and C. Monroe. Entanglement of single-atom quantum bits at a distance. *Nature*, **449** :68–71, (2007).

[207] S. Varoutsis. Génération de photons uniques indiscernables par une boîte quantique semi-conductrice dans une microcavité optique. *Thèse de doctorat, Université Paris 11*, (2002). Disponible à l'adresse http ://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/05/78/68/PDF/SVaroutsisPhD.pdf.

[208] P. Maunz, D. L. Moehring, S. Olmschenk, K. C. Younge, D. N. Matsukevich, and C. Monroe. Quantum interference of photon pairs from two remote trapped atomic ions. *Nat. Phys.*, **3** :538–541, (2007).

[209] J. Beugnon, M. Jones, J. Dingjan, B. Darquié, G. Messin, A. Browaeys, and P. Grangier. Quantum interference between two single photons emitted by independently trapped atoms. *Nature*, **440** :779, (2006).

[210] A. Kiraz, M. Ehrl, C. Bräuchle, and A. Zumbusch. Ultralong coherence times in the purely electronic zero-phonon line emission of single molecules. *Appl. Phys. Lett.*, **85** :920–922, (2004).

[211] A. Kiraz, M. Ehrl, T. Hellerer, O. E. Müstecaplioglu, C. Bräuchle, and A. Zumbusch. Indistinguishable photons from a single molecule. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :223602, (2005).

[212] A. Batalov, C. Zierl, T. Gaebel, P. Neumann, I.-Y. Chan, G. Balasubramanian, P. R. Hemmer, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Coherence properties of photons emitted by single defect centers in diamond. *arXiv : quant-ph/0710.1442*, (2007).

[213] Ph. Tamarat, T. Gaebel, J. R. Rabeau, M. Khan, A. D. Greentree, H. Wilson, L. C. L. Hollenberg, S. Prawer, P. Hemmer, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Stark shift control of single optical centers in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, **97** :083002, (2006).

[214] S. D. Barrett and P. Kok. Efficient high-fidelity quantum computation using matter qubits and linear optics. *Phys. Rev. A*, **71** :060310R, (2005).

[215] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, and Y. Wrachtrup. Observation of coherent oscillations in a single electron spin. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :076401, (2004).

[216] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, M. Domhan andA. Gruber, and J. Wrachtrup. Observation of coherent oscillation of a single nuclear spin and realization of a two-qubit conditional quantum gate. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :130501, (2004).

[217] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin. Coherent dynamics of coupled electron and nuclear spin qubits in diamond. *Science*, **314** :281–284, (2006).

[218] M. V. Gurudev Dutt, L. Childress, L. Jiang, E. Togan, J. Maze, F. Jelezko, A. S. Zibrov, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin. Quantum register based on individual electronic and nuclear spin qubits in diamond. *Science*, **316** :1312–1316, (2007).

[219] A. Beveratos, S. Kühn, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Room temperature stable single-photon source. *Eur. Phys. J. D*, **18** :1434, (2004).

[220] Y.Mita. Change of absorption spectra in type-ib diamond with heavy neutron irradiation. *Phys. Rev. B*, **53** :11360–11364, (1996).

[221] T. Gaebel, M. Domhan, C. Wittmann, I. Popa, F. Jelezko, J. R. Rabeau, A. D. Greentree, S. Prawer, E. Trajkov, P. R. Hemmer, and Y. Wrachtrup. Photochromism in single nitrogen-vacancy defect in diamond. *Appl. Phys. B Laser and Optics*, **82** :243–246, (2005).

[222] J. Harrison, M. J. Sellars, and N. B. Manson. Optical spin polarisation of the NV centre in diamond. *J. Lumin.*, **107** :245–248, (2004).

[223] Y. Wrachtrup and F. Jelezko. Quantum information processing in diamond. *J. Phys. Condens. Mat.*, **16** :R1089, (2004).

[224] T. Gaebel, M. Domhan, I. Popa, C. Wittmann, P. Neumann, F. Jelezko, J. R. Rabeau, N. Stavrias, A. D. Greentree, S. Prawer, J. Meijer, J. Twamley, P. R. Hemmer, and J. Wrachtrup. Room-temperature coherent coupling of single spins in diamond. *Nat. Phys.*, **2** :408–413, (2006).

[225] J. Martin, R. Wannemacher, J. Teichert, L. Bischoff, and B. Köhler. Generation and detection of fluorescent color centers in diamond with submicron resolution. *Appl. Phys. Lett.*, **75** :3096–3098, (1999).

[226] K.-K. Liu, C.-L. Cheng, C.-C. Chang, and J.-I. Chao. Biocompatible and detectable carboxylated nanodiamond on human cell. *Nanotechnology*, **18** :325102, (2007).

[227] C.-C. Fu, H.-Y. Lee, K. Chen, T.-S. Lim, H.-Y. Wu, P.-K. Lin, P.-K. Wei, P.-H. Tsao, H.-C. Chang, and W. Fann. Characterization and application of single fluorescent nanodiamonds as cellular biomarkers. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **104** :727–732, (2007).

[228] F. Treussart, V. Jacques, E. Wu, T. Gacoin, P. Grangier, and J.-F. Roch. Photoluminescence of single colour defects in 50 nm diamond nanocrystals. *Physica B*, **376-377** :926–929, (2006).

[229] M. Gruen, O. A. Shenderova, and A.Y. Vul. *Synthesis, Properties and Applications of Ultrananocrytalline Diamond*. Springer, 2005.

[230] J. Meijer, B. Burchard, M. Domhan, C. Wittmann, T. Gaebel, I. Popa, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Generation of single color centers by focused nitrogen implantation. *Appl. Phys. Lett.*, **87** :261909, (2005).

[231] J. R. Rabeau, P. Reichart, G. Tamanyan, D. N. Jamieson, S. Prawer, F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, M. Domhan, and J. Wrachtrup. Implantation of labelled single nitrogen vacancy centers in diamond using ^{15}N. *Appl. Phys. Lett*, **88** :023113, (2006).

[232] I. Rangelow, J. Meijer, and T. Schenkel. Brevet allemand. **DE10347969A1**, (2003).

[233] J. Meijer, T. Vogel, B. Burchard, I.W. Rangelow, L. Bischoff, J. Wrachtrup, M. Domhan, F. Jelezko, W. Schnitzler, S. A. Schulz, K. Singer, and F. Schmidt-Kaler. Concept of deterministic single ion doping with sub-nm spatial resolution. *Appl. Phys. A*, **83** :321–329, (2006).

[234] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borczyskowski. Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centres. *Science*, **276** :2012–2014, (1997).

[235] Y. Dumeige, F. Treussart, R. Alléaume, T. Gacoin, J.-F. Roch, and P. Grangier. Photo-induced creation of nitrogen-related color centers in diamond nanocrystals under femtosecond illumination. *Journal of Luminescence*, **109** :61–67, (2000).

[236] A. T. Collins, M. F. Thomaz, and M. I. B. Jorge. Luminescence decay time of the 1.945 eV center in type Ib diamond. *J. Phys. C : Solid State Phys.*, **16** :2177–2181, (1983).

Résumé

Ce mémoire est divisé en deux parties indépendantes.

Dans la première partie, nous étudions la dualité onde-corpuscule pour un photon unique émis par excitation impulsionnelle d'un centre coloré NV individuel dans un nanocristal de diamant. Nous présentons dans un premier temps une expérience d'interférence à un photon réalisée avec un biprisme de Fresnel et par conséquent très proche conceptuellement de l'expérience standard des trous d'Young. Cette expérience permet de discuter de la complémentarité entre interférence et connaissance du chemin suivi par la particule dans l'interféromètre. Pour pénétrer davantage dans les problèmes conceptuels soulevés par la dualité onde-corpuscule, nous décrivons ensuite la réalisation expérimentale de l'expérience de pensée de « choix retardé », qui fût proposée par J. A. WHEELER au début des années soixante-dix.

La deuxième partie du mémoire est dédiée à l'amélioration des performances de sources de photons uniques. Nous décrivons ainsi la mise au point d'une nouvelle source de photons uniques fondée sur l'émission d'un centre coloré individuel à base d'impuretés de nickel dans le diamant, dont les propriétés d'émission sont bien adaptées à la cryptographie quantique en espace libre. Nous avons également mis en œuvre une technique originale qui améliore de façon significative la photostabilité de molécules individuelles à température ambiante.

Mots clés : dualité onde-corpuscule, photon unique, interférence, complémentarité, choix retardé, diamant, centre coloré NV, centre coloré NE8, molécule unique, photoblanchiment.

Abstract

This manuscript is divided in two independant parts.

In the first part, we study the wave-particle duality for a single photon emitted by the triggered photoluminescence of a single NV color center in a diamond nanocrystal. We first present the realization of a single-photon interference experiment using a Fresnel's biprism, in a scheme equivalent to the standard Young's double-slit textbook experiment. We then discuss the complementarity between interference and which-path information in this two-path interferometer. We finally describe the experimental realization of Wheeler's delayed-choice gedanken experiment, which is a fascinating and subtle illustration of wave-particle duality.

The second part of the manuscript is devoted to efficiency improvement of single-photon sources. We first describe the implementation of a new single-photon source based on the photoluminescence of a single nickel-related defect center in diamond. The photophysical properties of such defect make this single-photon source well adapted to open-air quantum cryptography. We finally demonstrate an original method that leads to an improvement of single-molecule photostability at room temperature.

Key words : wave-particle duality, single photon, interference, complementarity, delayed-choice, diamond, NV color center, NE8 color center, single molecule, photobleaching.