HAL
open science

Habillage mécanique d'un nanofil par un champ de force : de la mesure vectorielle ultrasensible aux systèmes quantiques hybrides

Laure Mercier de Lépinay

To cite this version:

Laure Mercier de Lépinay. Habillage mécanique d'un nanofil par un champ de force : de la mesure vectorielle ultrasensible aux systèmes quantiques hybrides. Physique Quantique [quant-ph]. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT : 2017GREAY016 . tel-01652123v2

HAL Id: tel-01652123

https://theses.hal.science/tel-01652123v2

Submitted on 3 Dec 2017

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

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

Communauté UNIVERSITÉ Grenoble Alpes

THÈSE

Pour obtenir le grade de

Docteur de la Communauté Université Grenoble Alpes

Spécialité : **Physique**

Arrêté ministériel du 25 mai 2016

présentée par

Laure Mercier de Lépinay

Thèse encadrée par
Olivier Arcizet et **Benjamin Pigeau**

et dirigée par
Wolfgang Wernsdorfer

préparée au sein de l'**Institut Néel, CNRS**
et de l'**École Doctorale de Physique de Grenoble**

Habillage mécanique d'un nanofil par un champ de force :

de la mesure vectorielle ultrasensible aux systèmes quantiques hybrides

Thèse soutenue publiquement le **30 juin 2017** à Grenoble
devant le jury composé de :

Antoine Heidmann (Rapporteur)
Directeur de recherche, LKB, Paris

Isabelle Robert-Philip (Rapportrice)
Directrice de recherche, L2C, Université de Montpellier

Fabio Pistolesi (Examinateur)
Directeur de recherche, LOMA, Université de Bordeaux

Martino Poggio (Examinateur)
Associate Professor, Universität Basel, Bâle

Serge Reynaud (Président du jury)
Directeur de recherche, LKB, Paris

Remerciements

J'ai réalisé ce travail durant la période 2013-2017 au sein du l'Institut Néel à Grenoble. Je remercie les directeurs successifs du laboratoire pendant cette période, Alain Schuhl, Hervé Courtois et Etienne Bustarret, de m'y avoir accueillie.

Mes remerciements vont ensuite à mes directeurs de thèse, Olivier Arcizet et Benjamin Pigeau, qui m'ont permis non seulement de rejoindre leur jeune équipe pour construire une expérience "à moi" à partir d'une table vide, mais aussi de profiter quotidiennement de leurs compétences aussi larges que profondes (ce qui permet en théorie d'y définir un rotationnel !). Merci Olivier et Benjamin pour la liberté que vous m'avez accordée pour découvrir de nouveaux sujets d'ailleurs pas forcément reliés au mien, essayer (et échouer parfois) des calculs ou programmes bizarroïdes quand il semblait y avoir bien plus sérieux à faire. Le reste du temps, j'ai eu l'impression d'être portée par une puissante vague ! J'ai nagé ma brasse laborieuse, mais cette force motrice que vous m'avez fournie me semble avoir tellement contribué ! Merci pour l'énergie et l'enthousiasme que vous consacrez aux progrès des plus jeunes scientifiques : ces années auprès de vous ont vraiment joint l'agréable à l'utile. Je remercie également à Wolfgang Wernsdorfer pour la confiance qu'il a placée en moi en me prenant officiellement en thèse et pour tout ce qu'il a apporté à l'équipe aux cours de ces années. Et enfin, merci à Benjamin Besga, dont le courage pour s'attaquer à de nouveaux sujets, la compréhension profonde de la physique mais aussi le monumental humanisme capable d'apaiser n'importe quelle atmosphère resteront des modèles pour moi.

Je tiens à remercier Antoine Heidmann et Isabelle Philip d'avoir accepté d'être rapporteurs de mon manuscrit de thèse. Je remercie également Fabio Pistolesi et Martino Poggio d'avoir été examinateurs de la soutenance et Serge Reynaud d'avoir accepté d'être président du jury.

Mes grands frères académiques, Arnaud Gloppe et Sven Rohr, m'ont permis d'intégrer le laboratoire très rapidement. Arnaud, merci de m'avoir ouvert la voie curieusement peu sinueuse du Python, et Sven, que fait-il, dans cette petite salle obscure au fond du bâtiment D ? Il s'entraîne, vé. Merci à tous les deux d'avoir été d'excellents compagnons de route pendant mes premières années. Cornelia a apporté avec elle ses précieuses couches monoatomiques grave fun (pardon) et leur mécanique passionnante, ainsi que son humour, et, bien sûr, son incomparable gentillesse. Merci Francesco et Philip de prendre la relève et de suivre déjà la voie pythonne ! Je remercie également Pierre Verlot, Aurélien Kuhn et Eva Dupont-Ferrier pour leur rigueur scientifique et leur bienveillance dès mon arrivée dans le laboratoire.

La culture des nanofils de SiC, dans tous les sens du terme, provient de l'équipe PNEC de Lyon : Anthony Ayari, Philippe Poncharal, Sorin Perisanu, Pascal Vincent, Steve Purcell, Alessandro Siria et Pierre Verlot. Merci d'avoir suivi nos progrès de près et de nous avoir filé tant d'excellents nanofils, car, contrairement aux apparences, ce ne sont pas de tout petits cadeaux – c'est qu'y sont efficaces.

La plupart des pièces de l'expérience, hors matériel optique, ont été réalisées à l'Institut Néel. Je dois donc un très grand merci à Julien Jarreau pour le magnifique montage en titane (et d'ailleurs merci aussi de m'avoir débloquée dans la Via Ferrata !), Laurent Del Rey – qui

ne vieillira jamais –, Eric Eyraud, entre autres fabrikant de kryostats, Didier Dufeu et Philippe Jacquet. Merci aussi à Richard Haettel pour ses conseils et pour l'utilisation de ses creusets froids. Je remercie aussi Daniel Lepoittevin pour les amplificateurs des photodiodes qui sont un élément crucial de l'expérience, Christophe Hoarau pour tous les petits et grands dispositifs électroniques, et Kevin Chignine pour la réalisation de l'amplificateur réglable. Les guides d'onde du Chapitre 5 ont aussi été développés dans la salle blanche de l'Institut Néel : Gwenaëlle Julié, Sébastien Dufresnes, Bruno Fernandez, Jean-François Motte et Thierry Crozes m'ont formée et conseillée tout au long de cette période. Merci à Simon Le Denmat pour son aide et pour les pointes d'AFM, d'EFM et de MFM. Je remercie également Philippe David et Martien Den Hertog grâce à qui j'ai pu terminer la fabrication des microguides. Un grand merci aussi au riche Benjamin Canals pour la conception de l'algorithme d'intégration en 2D mais aussi pour toutes les discussions scientifiques ou non, toujours fructueuses (mais alors quels fruits !). Merci à Géraldine Dantelle pour les techniques de nettoyage de centres NV, à Nora Dempsey pour ses billes ferromagnétiques, à Joël Chevrier, Jean-Philippe Poizat, Laëtita Marty, Guillaume Bachelier, Aurélien Drezet et Christophe Thirion pour les discussions, les débats, les corrections du manuscrit, mais aussi le soutien en période de creux. Merci à Julien Claudon et Gilles Noguès pour leur aide à la préparation de la soutenance. Cécile Némiche m'a prodigué ses conseils avisés en matière de communication, et Florence Pois, Sabine Gadal, Muriel Boyer, Caroline Bartoli, Nathalie Alfred et Aurélie Laurent se sont occupées avec beaucoup d'efficacité de la gestion des achats, des missions et des contrats.

La fin de la thèse aura aussi marqué pour moi la fin des enseignements au CPP de Grenoble. Je dois beaucoup à Ilir Trimcev, Cilly Briot, Patrick Paris, Isabelle Schanen et Carina Cataldi pour leur accueil et leur aide. Je remercie également les étudiants des trois promotions successives d'avoir été aussi sympas !

Et puis, un très grand merci à tous ceux qui ont participé à l'ambiance incroyable de l'Institut Néel durant ces années, et fait déborder cette ambiance loin dans la ville de Grenoble. Bien sûr, je remercie Olivier (M.) d'avoir été un soutien génial au quotidien. Merci à José-Ioan le hamster d'avoir mascotté le laboratoire (ou du moins le bâtiment K). Merci à Franck Balestro pour son soutien, notamment quelques jours avant la soutenance ! mais aussi pour tous ses conseils précieux. Merci à Antoine Reserbat-Plantey, qui a suivi ma thèse de près mais de loin. Merci Alexis, Karim, Ketty, Yann, Marine, Gogo, Sylvain, Alexandre "God" Artaud, Elie, Valentin, Pauline, Emilie, Beatrix, Quentin, Dipankar, Mathias, Joachim, Adib, Clothilde, Clément F. et Begüm d'avoir été d'indispensables amis pour moi (et pour José-Ioan, de tendres mamans, des papas gâteaux, le fameux oncle un peu spécial voire des ennemis mortels). Mais aussi des profs d'allemand, de patients psychologues, de légendaires pizzaioli, des comploteurs de confiture, de précieux collègues d'enseignement, des membres homologués du Groupe de Lecture de BD et de la Webteam des Non-Permanents, et des fidèles du café du midi et de toutes les sortes de boissons qui constituent la phase liquide de cette thèse. Merci Cyril, Chloé et Rémi de vous être dévoués pour m'apprendre les règles de N jeux de société, de la théorie du coloriage, de la soupe au potiron d'automne, et merci aux autres anciens Lyonnais, Adrien Jeantet, Mathilde Niocel, Corentin Gondrand, Julien Lam, Alizée Morland, Mathieu Prévot, Fabrice Dalier, Arthur Marguerite et Cyril Vaneph, et un grand nombre d'autres, sans qui je n'aurais peut-être pas commencé de thèse.

Et bien sûr, pour le soutien indispensable à distance – parfois à très grande distance ! – je ne remercierai jamais assez mes parents et ma sœur Jeanne.

Introduction

Cette thèse traite principalement de nanomécanique, un domaine de la physique développé pour ses ouvertures sur la mesure locale de tout petits signaux. Un (nano-)fil conducteur relie les différents chapitres qui la compose : c'est l'élément central des systèmes nanomécaniques utilisés. Le travail qui correspond à chacun des chapitres n'a pas été effectué dans l'ordre de ceux-ci au sein du manuscrit. Cette introduction décrit donc en premier lieu la chronologie de la thèse.

Chronologie de la thèse

Le début de ma thèse a été consacré à la finalisation des premiers résultats obtenus lors de mon stage de Master dans le groupe, concernant l'étude des corrélations spatio-temporelles d'intensité d'une source de photons uniques en mouvement (Chapitre 4). Ce travail a permis de développer un ensemble d'outils expérimentaux et d'interfaçage qui ont ensuite été exploités dans différentes expériences. En particulier, une seconde génération de l'interface de contrôle des expériences adaptée aux nouvelles fonctionnalités requises, dans le prolongement du travail d'A. Gloppe, est décrite au Chapitre 2. J'ai également développé en salle blanche à partir de cette époque des guides d'onde suspendus, d'abord, avec les conseils d'A. Kuhn, dans une version monocanal, puis dans une version multicanaux permettant un actionnement électrostatique du système hybride présenté au Chapitre 5 constitué d'un nanofil et du spin d'un centre coloré NV du diamant. Ces outils ont été employés lors de l'observation du triplet de Mollow phononique qui a conclu la thèse de S. Rohr. L'expérience, menée par B. Pigeau, a permis au début de l'année 2015 de démontrer la synchronisation de la précession du qubit de spin sur l'oscillateur mécanique en présence d'un champ micro-onde et a ouvert la voie à l'étude du couplage hybride en sens inverse, c'est-à-dire à la mesure mécanique de l'état du qubit de spin.

Les nanofils présentent une sensibilité en force exceptionnelle, suffisante en principe pour observer cet effet très ténu dans une expérience fonctionnant à température ambiante. La première étape pour atteindre cet objectif était d'apprendre à réaliser des mesures de force. Lors de la thèse d'A. Gloppe, le groupe avait démontré la possibilité d'utiliser un nanofil comme une sonde vectorielle (bidimensionnelle) de la force optique grâce à l'emploi d'une technique pompe-sonde. Comme une telle technique ne s'adapte pas aisément à l'observation de la force dépendant de l'état du spin, nous avons développé un nouveau principe de mesure, permettant de sonder n'importe quel type de champ de force sans y avoir recours. Ce principe, basé sur une technique de lecture optique du mouvement du nanofil en deux dimensions, permet de déterminer les fréquences mais aussi les directions des modes propres de vibration (voir Chapitre 2). À cette occasion, une nouvelle expérience présentant une stabilité mécanique accrue a été construite pendant l'été 2014 à partir d'une table vide.

Il devenait ainsi possible de suivre les changements des propriétés mécaniques essentielles d'un nanofil (orientations propres de vibration et fréquences propres) sous l'action d'un champ de force extérieur. L'établissement des outils mathématiques décrivant complètement la dynamique

du nanofil ainsi habillée par le champ de force et leur mise en œuvre expérimentale ont permis de valider cette nouvelle technique de mesure sur l'exemple d'un champ de force électrostatique produit par une pointe conductrice approchée de l'extrémité vibrante du nanofil.

Les développements théoriques concernant la mesure de champs de force 2D nous ont rapidement révélé l'importance et l'intérêt d'étudier plus en détail les champs de forces non-conservatifs, c'est-à-dire de rotationnel non nul, qui ne dérivent pas d'une énergie potentielle. D'après notre modèle théorique, les modes propres d'un nanofil habillés par un tel champ de force ne seraient plus orthogonaux et présenteraient un fort excès de bruit thermique. Enfin, il convenait de valider la méthode développée au Chapitre 2 pour la composante rotationnelle, la seule qui n'existe pas dans un champ de force électrostatique conservatif, afin de pouvoir prétendre à l'universalité du principe de mesure.

L'existence d'une composante rotationnelle du champ de force sur les bords du *waist* d'un faisceau lumineux focalisé avait été mise en évidence au cours de la thèse d'A. GLOPPE. Un second laser a donc été rajouté au montage du Chapitre 2 afin de mettre en œuvre cette nouvelle étude, en Janvier 2016. Les résulats de cette expérience sont rapportés dans le Chapitre 3. Nous avons ainsi pu observer la brisure de l'orthogonalité des modes propres et l'excès de bruit thermique prédits. Nous nous attendions aussi une déviation à l'égalité du théorème fluctuation-dissipation, également mesurée, la force non-conservative amenant le système nanomécanique dans un état fors d'équilibre. Nous avons alors entrepris une étude théorique des propriétés mécaniques et thermodynamiques de ce système, exposée également dans le Chapitre 3, dont l'une des conclusions est la prédiction d'un phénomène intrigant de compression du bruit thermique. Ce travail s'est poursuivi jusqu'à la fin de la thèse et pose encore des questions non résolues. Finalement, l'expérience d'habillage mécanique du nanofil par un champ de force optique a été reconstruite à la fin de la thèse, vers Mars 2017, avec l'aide de B. PIGEAU, pour confirmer expérimentalement l'effet de compression de bruit. Cette expérience, toujours en cours, est également axée vers la mesure de trajectoires résolues en temps qui permettrait d'étudier d'autres propriétés de ce système hors équilibre.

A partir d'Août 2016, j'ai entamé le développement d'une expérience hybride de nouvelle génération utilisant la disposition expérimentale développée au Chapitre 2 et permettant ainsi d'appliquer le principe des mesures de forces ultrasensibles à un système hybride {nanofil-qubit de spin}. J'ai développé la structure logicielle permettant d'intégrer des séquences de lecture et de manipulation du qubit à l'architecture du programme d'interface pour que celui-ci permette seul le contrôle complet de l'expérience. Les signatures du triplet de Mollow phononique observé en 2015 ont d'abord pu être reproduites, puis je me suis intéressée aux mécanismes d'habillage multi-fréquence du qubit de spin. Les premiers résultats de cette expérience toujours en cours, ainsi que le détail de sa construction, sont exposés au Chapitre 5.

En parallèle de ces projets principaux, le programme d'interfaçage a été amélioré en collaboration avec F. FOGLIANO et B. BESGA qui travaillent sur le projet de nano-optomécanique à très basse température. Enfin, une étude des propriétés colorimétrique des nanofils a été menée, décrite au Chapitre 1, qui permet maintenant de donner très rapidement la géométrie des nanofils à partir de deux clichés optiques sous éclairage blanc polarisé.

Par souci de clarté, le manuscrit ne suit donc pas cette progression, mais se découpe en 5 chapitres dont le contenu est maintenant résumé dans l'ordre.

Structure du manuscrit

Le Chapitre 1 est une introduction à la thèse et au domaine de la nanomécanique, qui présente l'intérêt des nanofils pour la mesure de force en trois parties : on rappelle d'abord quelques étapes historiques du développement de la mesure de force avec des oscillateurs, on présente ensuite les nanofils utilisés pendant la thèse et leurs propriétés optiques, on termine par quelques généralités concernant le comportement mécanique spécifique des nanofils.

Le Chapitre 2 rentre dans le vif du sujet en démontrant la possibilité de réaliser une mesure vectorielle de force basée sur des nanofils. On présente d'abord les aspects théoriques de la mesure de champs de force bidimensionnels, puis la mise en œuvre expérimentale de cette mesure à partir d'une détection optique des vibrations d'un nanofil, et enfin la démonstration de la méthode de mesure sur un champ de force électrostatique. Une quatrième courte partie traite des développements récents ou en cours qui découlent de ce travail.

Le Chapitre 3 étend le principe de la mesure vectorielle à des champs de force non-conservatifs, rotationnels. Après avoir brièvement discuté l'origine des forces optiques non-conservatives dans une première partie, on explique dans une deuxième partie le montage expérimental qui permet d'adapter la mesure vectorielle à un tel champ de force optique. Une courte troisième partie rapporte quelques signatures expérimentales intrigantes mesurées dans ce champ de force non-conservatif. La quatrième partie poursuit cette description phénoménologique en se focalisant sur l'observation expérimentale d'une déviation à la relation fluctuation-dissipation. La discussion physique de cet effet débouche dans la cinquième partie sur une description de l'état stationnaire hors équilibre ainsi implémenté et sur quelques prédictions théoriques qui restent à vérifier expérimentalement, en particulier l'existence d'un phénomène de compression du bruit thermique.

Les Chapitres 4 et 5 sont consacrés à l'étude du système hybride nanofil-centre coloré NV, construit en attachant à l'extrémité oscillante du nanofil un nano-cristal de diamant hébergeant un centre coloré unique. Le Chapitre 4 traite des propriétés de la fluorescence de l'émetteur quantique que constitue le centre NV mis en mouvement par l'oscillateur. Une première partie rappelle quelques résultats de la mesure d'autocorrélation d'intensité pour donner un sens aux régimes observés par la suite. La deuxième partie présente les propriétés d'émission des centres NV ainsi que le principe de mesure d'une autocorrélation temporelle d'intensité. Ce principe a été adapté pour mesurer des corrélations spatio-temporelles : le montage expérimental correspondant est détaillé dans la troisième partie. La quatrième partie présente les premières signatures expérimentales obtenues qui démontrent l'encodage des fluctuations de position de l'oscillateur sur les fonctions de corrélation des flux de photons mesurées en différentes positions. Enfin, la cinquième partie propose une application à la mesure de vibrations à très faibles flux de photons.

Le Chapitre 5 expose les développements expérimentaux concernant le couplage hybride. Ces développements ont d'abord été exploités pour l'observation d'un triplet de Mollow phononique dans une expérience menée par B. Pigeau, puis lors de la construction de l'expérience de deuxième génération dont je me suis chargée. L'objectif de ces expériences est développé dans une première partie. La seconde partie expose le détail de la construction, notamment la fabrication de guides d'ondes dédiés. La troisième partie présente enfin quelques résultats préliminaires de la nouvelle expérience.

Les ouvertures de ces différents chapitres sont rassemblées et résumées dans la conclusion du manuscrit.

Table des matières

Introduction **5**

1 Des nanofils pour la mesure de force **13**
1.1 La mesure de force avec un oscillateur mécanique . . . 13
1.1.1 Mesures de forces historiques par l'équilibre de pendules de torsion . . . 13
1.1.2 Mesures dynamiques . . . 15
1.1.3 Le mouvement Brownien . . . 17
1.1.4 Optomécanique en cavité et nouvelles limitations . . . 20
1.1.5 L'état quantique fondamental mécanique . . . 22
1.1.6 Nanomécanique multimode . . . 24
1.2 Nanofils de SiC suspendus . . . 28
1.2.1 Mesures de forces avec des nanofils . . . 28
1.2.2 Montage d'un nanofil unique . . . 30
1.2.3 Résonances optiques de Mie dans les nanofils . . . 31
1.3 Mécanique d'un nanofil . . . 40
1.3.1 L'équation d'Euler Bernoulli . . . 40
1.3.2 Réponse du nanofil à une excitation - Formalisme de Green . . . 42
1.3.3 Masse effective . . . 45
1.3.4 Dissipation acoustique . . . 45
1.3.5 Polarisations mécaniques . . . 47
1.4 Conclusion . . . 50

2 Mesure vectorielle de champs de force par l'habillage d'oscillateurs 2D **51**
2.1 Habillage mécanique du nanofil par un champ de force bidimensionnel . . . 52
2.1.1 Modification des propriétés mécaniques des nanofils . . . 52
2.1.2 Phénoménologie de l'habillage . . . 55
2.1.3 Des propriétés mécaniques aux gradients du champ force . . . 57
2.1.4 Tomographie angulaire . . . 58
2.2 Mesure optique 2D du mouvement d'un nanofil . . . 59
2.2.1 Principe de mesure et montage optique . . . 59
2.2.2 Calibration de la mesure de déplacement . . . 61
2.2.3 Dispositif expérimental . . . 67
2.2.4 Utilisation des formules d'inversion dans une situation réelle . . . 73
2.3 Mesure ultra-sensible d'un gradient de force électrostatique . . . 74
2.3.1 La force électrostatique . . . 75
2.3.2 Cartes de force électrostatique . . . 79
2.3.3 Phénoménologie de l'habillage des modes propres . . . 83
2.3.4 Intégration des cartes . . . 87
2.3.5 Sensibilité de la mesure . . . 89
2.3.6 Autres composantes de la force . . . 90
2.3.7 Retour sur la nature des gradients de force mesurés . . . 91

2.4 Prolongements . . . 96
2.4.1 Composantes résiduelles non quadratiques en tension . . . 96
2.4.2 Mesures à 2 boucles à verrouillage de phase . . . 97
2.4.3 Principe de la mesure . . . 98
2.5 Conclusion . . . 100

3 Nanofil en champ de force non-conservatif 101
3.1 Forces optiques exercées sur un nanofil dans un faisceau gaussien . . . 102
3.1.1 Non-conservativité des forces optiques . . . 102
3.1.2 Origine de la force optique . . . 104
3.1.3 Bifurcation et instabilité dynamique . . . 106
3.2 Montage expérimental . . . 109
3.2.1 Implémentation de la force optique . . . 109
3.2.2 Découplage des forces optiques . . . 112
3.2.3 Mesure de réponses mécaniques vectorielles . . . 113
3.3 Anomalies du mouvement en champ de force non-conservatif . . . 115
3.3.1 Brisure de l'orthogonalité des modes mécaniques . . . 116
3.3.2 Excès de bruit thermique . . . 121
3.4 Violation de la relation fluctuation-dissipation . . . 122
3.4.1 Observation expérimentale . . . 123
3.4.2 Température effective (impossibilité de définir une) . . . 126
3.4.3 Interprétation géométrique . . . 126
3.4.4 Interprétation thermodynamique . . . 132
3.5 Distribution dans l'espace des phases . . . 136
3.5.1 Méthodes d'évaluation de la densité de probabilité . . . 137
3.5.2 Etude de la densité de probabilité . . . 140
3.5.3 Caractérisation de la compression de bruit d'un oscillateur réaliste . . . 144
3.5.4 Rapport signal sur bruit du système hors équilibre . . . 149
3.6 Conclusion . . . 151

4 Corrélations d'intensité spatio-temporelles d'un émetteur de photons uniques en mouvement 153
4.1 La fonction d'autocorrélation d'intensité $g^{(2)}(\tau)$ . . . 154
4.1.1 L'interféromètre de Hanbury Brown et Twiss . . . 154
4.1.2 Formalisation des effets Hanbury Brown-Twiss . . . 155
4.1.3 Autocorrélation de différentes sources de lumière . . . 157
4.2 Autocorrélation de la fluorescence d'un centre NV^- . . . 160
4.2.1 Un défaut coloré dans le diamant . . . 160
4.2.2 Mesure de fluorescence . . . 163
4.2.3 Mesure de la fonction d'autocorrélation . . . 165
4.3 Montage de mesure de corrélations spatio-temporelles d'intensité . . . 166
4.3.1 Fonctionnalisation d'un nanofil par un centre NV unique . . . 167
4.3.2 Montage optique . . . 167
4.3.3 Champ d'excitation . . . 169
4.3.4 Le montage d'actionnement . . . 170
4.4 Encodage des fluctuations thermiques sur la statistique photonique . . . 174
4.4.1 Développement de la fonction de corrélation . . . 174
4.4.2 Autocorrélation temporelle de l'intensité . . . 177
4.4.3 Corrélation spatio-temporelle de l'intensité . . . 179
4.5 Mesure optique de fluctuations de position à faible nombre de photons . . . 181
4.5.1 Principe et optimisation . . . 181

4.5.2 Mesure de densité spectrale en régime de photons uniques 183
4.6 Conclusion 185

5 Couplage spin-oscillateurs 187
5.1 Systèmes hybrides spin-mécaniques 187
5.1.1 Systèmes hybrides mécaniques existants 187
5.1.2 Système hybride à nanofil de SiC 188
5.1.3 Spin électronique du centre NV 190
5.1.4 Forces dépendantes de l'état de spin 193
5.2 Construction de l'expérience 193
5.2.1 Micro-guides d'onde insérables dans un laser focalisé 193
5.2.2 Mesure optique de l'état de spin (ODMR) 198
5.2.3 Positionnement d'un spin dans un champ magnétique inhomogène . . . 201
5.2.4 Oscillations cohérentes : habillage par un champ micro-onde oscillant . . 208
5.2.5 Protocoles de manipulation du spin 209
5.3 Observations de triplets de Mollow 213
5.3.1 Double habillage d'un qubit de spin 213
5.3.2 Triplet de Mollow phononique 216
5.3.3 Destruction de la cohérence par le bruit sur une bande latérale 220
5.4 Conclusion 223

Conclusion et perspectives 225

A Liste des notations 235

B Colorimétrie 242

C Algorithme d'automatisation du traitement des spectres pour la mesure de cartes de gradients de forces 244

D Une démonstration du théorème fluctuation-dissipation et son extension hors équilibre 245

E Calcul de l'intégrale du travail de la force non-conservative et d'autres intégrales du même type 248

F Solution explicite de l'équation de Fokker-Planck 252

G Algorithme de Itō-Taylor d'ordre fort 1.5 pour les processus stochastiques à dissipation constante 254

Chapitre 1

Des nanofils pour la mesure de force

Sommaire

1.1 La mesure de force avec un oscillateur mécanique 13
1.1.1 Mesures de forces historiques par l'équilibre de pendules de torsion . 13
1.1.2 Mesures dynamiques 15
1.1.3 Le mouvement Brownien 17
1.1.4 Optomécanique en cavité et nouvelles limitations 20
1.1.5 L'état quantique fondamental mécanique 22
1.1.6 Nanomécanique multimode 24
1.2 Nanofils de SiC suspendus 28
1.2.1 Mesures de forces avec des nanofils 28
1.2.2 Montage d'un nanofil unique 30
1.2.3 Résonances optiques de Mie dans les nanofils 31
1.3 Mécanique d'un nanofil 40
1.3.1 L'équation d'Euler Bernoulli 40
1.3.2 Réponse du nanofil à une excitation - Formalisme de Green 42
1.3.3 Masse effective 45
1.3.4 Dissipation acoustique 45
1.3.5 Polarisations mécaniques 47
1.4 Conclusion 50

Les nanofils utilisés au cours de cette thèse sont employés comme oscillateurs mécaniques pour mesurer des forces. Pour démontrer l'intérêt des nanofils dans ce domaine, ce chapitre introductif débute par un bref historique de la mesure de force avec des oscillateurs mécaniques, qui expose les techniques développées et leurs limitations intrinsèques. Une deuxième partie présente les nanofils de SiC utilisés, rappelle quelques résultats qu'ils ont déjà permis d'obtenir et un donne bref aperçu de leurs propriétés optiques, ainsi que d'une méthode colorimétrique de pré-caractérisation développée au cours de la thèse. Enfin la troisième partie décrit les propriétés mécaniques spécifiques des nanofils.

1.1 La mesure de force avec un oscillateur mécanique

1.1.1 Mesures de forces historiques par l'équilibre de pendules de torsion

Les oscillateurs mécaniques convertissent les forces auxquelles ils sont soumis en déplacements facilement observables : c'est cette propriété fondamentale qui est à l'origine leur emploi comme outil de mesure, et en particulier de mesure de force.

A la fin du XVIIIème siècle, C.-A. Coulomb et H. Cavendish utilisent par exemple des pendules de torsion semblables, bien que développés de manière indépendante, pour mesurer respectivement la force électrostatique et la force gravitationnelle. Dans les deux cas, une barre horizontale est suspendue à une fibre formant un oscillateur de torsion de faible raideur. Une force appliquée sur une extrémité de la barre perpendiculairement à son axe se traduit par une déflexion de la position d'équilibre :

$$x_0' = x_0 + \frac{1}{\Omega_{\mathrm{m}}^2 M} F_{\mathrm{ext}} \tag{1.1}$$

où Ω_{m} est la **pulsation de résonance** mécanique, M la masse de l'oscillateur mécanique, F_{ext} la force appliquée et x_0' et x_0 les positions d'équilibre de l'oscillateur avec et sans force. Coulomb prépare ainsi une sphère métallique accrochée à une extrémité de la barre horizontale avec une charge électrique connue (voir Figure 1.1a). Une autre sphère chargée avec la même polarité est approchée de celle-ci, entraînant une déflexion statique du pendule. En répétant l'opération pour diverses charges et séparations entre les sphères, Coulomb établit le modèle de la force électrostatique.

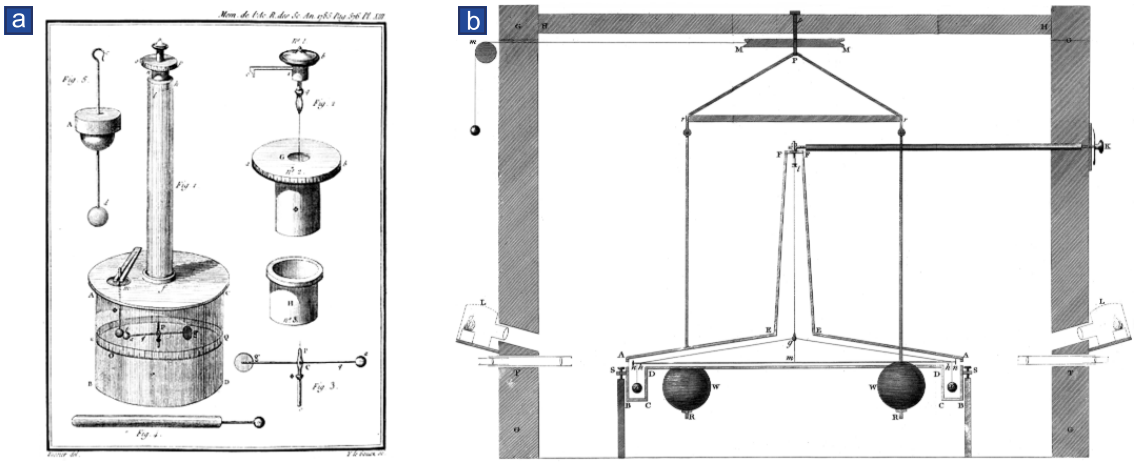


Figure 1.1 – **a.** Balance de Coulomb décrite en 1788 par son inventeur [1], utilisée pour mesurer la force électrostatique. **b.** Schéma de l'expérience de Cavendish tiré de [2] qui lui servit en 1798 à mesurer la force gravitationnelle.

Cavendish [2] mesure l'effet de la force gravitationnelle exercée par deux masses de plomb sur deux masses fixées à chaque extrémité de son pendule (voir Figure 1.1b). La position d'équilibre du pendule est évaluée en moyennant des extrema successifs de l'oscillation de torsion obtenue à l'application de la force, avant d'atteindre l'équilibre. L'évolution temporelle de la déflexion est en effet régie par :

$$\ddot{x}(t) = -\Omega_{\mathrm{m}}^2\big(x(t) - x_0\big) - \Gamma\dot{x}(t) + \frac{1}{M}F_{\mathrm{ext}}(t) \tag{1.2}$$

où Γ est le **taux d'amortissement** du mouvement. La solution de cette équation $x(t)$ en réponse à une brusque application de la force F est une oscillation amortie au cours du temps vers la nouvelle position d'équilibre x_0'. Un petit miroir posé sur le pendule réfléchit la lumière d'une bougie : la déflexion de la lumière est perçue par l'opérateur grâce à un système de télescope. Le motif de l'expérience était la mesure de la densité de la Terre : le résultat de Cavendish équivaut alors à une mesure de la constante gravitationnelle avec une précision impressionnante pour l'époque, correspondant à 1% d'erreur.

Près d'un siècle plus tard, c'est-à-dire à partir de 1885, Eötvös [3] utilise également un pendule de torsion pour confirmer un des axiomes de la relativité générale : l'équivalence de la masse gravitationnelle, coefficient de la force de gravitation terrestre, et de la masse inertielle, coefficient de la force centrifuge due à la rotation de la Terre. Deux masses différentes sont suspendues à un pendule asymétrique (voir Figure 1.2). L'expérience est conçue de sorte que le pendule soit soumis à un moment de torsion dès lors que les forces centrifuge et gravitationnelle ne sont pas proportionnelles, car les forces résultantes appliquées sur chacune des masses ne seraient alors plus colinéaires. Cette proportionnalité est prouvée avec une précision sans cesse améliorée au cours des décennies suivantes, atteignant $1/10^8$ à la publication des expériences en 1922.

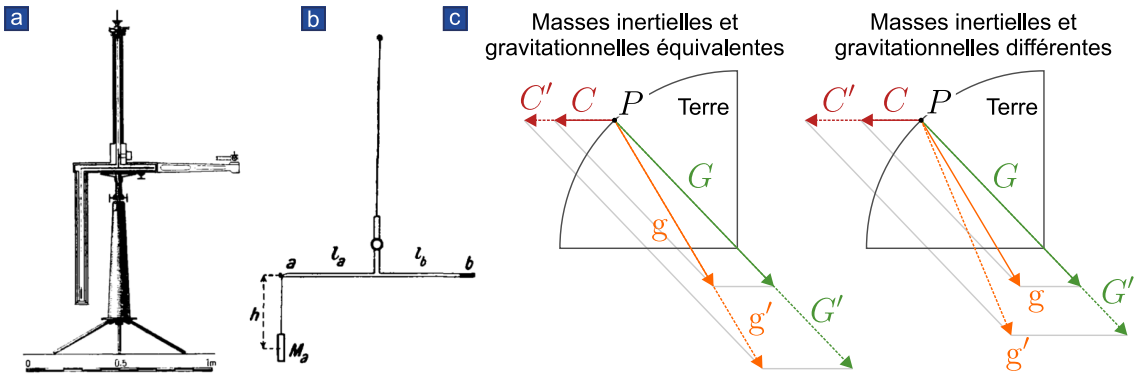


Figure 1.2 – **a.** et **b.** Deux schémas du pendule asymétrique d'Eötvös utilisé à partir de 1885 tirés de [3] pour vérifier l'équivalence des masses gravitationnelle et inertielle. Le pendule est à l'équilibre, chargé des masses M_a en a sur la Figure **b** et M_b non visible, glissée dans le tuyau horizontal en b. Le pendule est inséré dans une enveloppe à trois épaisseurs en matériau non-magnétique, pour limiter les fluctuations de température et l'exposition à la lumière, et sa rotation est détectée grâce à un petit télescope posé sur le bras b. **c.** Principe du pendule (schéma également inspiré de [3]) : les forces de gravitation et centrifuge appliquées sur M_a sont notées G et C, les forces de gravitation et centrifuge appliquées sur M_b sont notées G' et C'. Le pendule est à l'équilibre s'il existe une proportionnalité entre la force de gravitation et la force centrifuge. Dans le cas contraire, les forces résultantes g et g′ appliquées sur les deux masses ne sont pas colinéaires et un moment de torsion s'exerce spontanément sur le pendule.

1.1.2 Mesures dynamiques

Pour réaliser la première mesure quantitative de la pression de radiation, E. F. Nichols et G. F. Hull [4] font en 1901 une utilisation balistique d'un pendule de torsion : un faisceau lumineux éclaire un miroir suspendu pendant 1/4 de la période du pendule (soit 6 s). Le premier extremum de la trajectoire ("*throw*") est alors mesuré plutôt que la position d'équilibre. Cette méthode de mesure rapide est utilisée à l'origine pour réduire l'impact parasite de l'échauffement local du gaz résiduel dans l'enceinte à vide de l'expérience, qui est lent à s'établir. Mais la mesure impulsionnelle enrichit également le schéma de mesure traditionnel : elle ouvre la voie à l'étude des retards, à l'utilisation de schémas de modulation avancés, et préfigure ainsi la mesure dynamique moderne.

C'est une mesure dynamique qui est par exemple utilisée dans le microscope à force atomique (AFM) inventé en 1986 par G. Binnig, C. Quate et C. Gerber [5]. Un levier muni d'une pointe très effilée est approché à quelques dizaines de nanomètres au-dessus d'un échantillon : il est alors soumis à une force dit "atomique" (interactions de Van der Waals et parfois autres interactions électrostatiques). Dans le mode de mesure dynamique, ce n'est pas la déflexion statique du levier qui est mesurée mais la variation de l'amplitude d'oscillation $\delta x[\Omega_{\mathrm{m}}]$ obtenue

lorsque l'on emploie une force d'excitation **résonante** (on la note donc $\delta F[\Omega_\mathrm{m}]$) :

$$\delta x[\Omega_\mathrm{m}] = \frac{1}{M\Gamma\Omega_\mathrm{m}}\delta F[\Omega_\mathrm{m}], \tag{1.3}$$

alors qu'on a pour les mesures statiques la déflexion donnée par l'équation 1.1 :

$$x_0' - x_0 = \frac{1}{M\Omega_\mathrm{m}^2}\delta F[0].$$

Dans une utilisation standard de l'AFM, les variations de la fréquence de résonance dues à l'inhomogénéité du champ de force atomique exploré sont mesurées à partir du signal de réponse $\delta x[\Omega_\mathrm{m}]$: on verra que l'AFM est alors sensible à des gradients de champ de force plutôt qu'à des forces. L'opération à résonance permet de bénéficier d'un gain de susceptibilité d'un facteur de qualité Q :

$$Q \equiv \frac{\Omega_\mathrm{m}}{\Gamma}. \tag{1.4}$$

C'est ainsi que le premier AFM démontre dès 1986 la sensibilité en force de 100 picoNewton (10^{-10} N) avec un oscillateur de facteur de qualité d'environ 100. La force atomique, et donc la topographhie de l'échantillon, est cartographiée en déplaçant celui-ci par rapport à la sonde. Les techniques basées sur ce principe ont ensuite rapidement permis d'atteindre la résolution atomique. Ce sont désormais des outils essentiels d'analyse des surfaces [6, 7] utilisés dans les domaines de la physique des matériaux, des nanosciences et de la biophysique.

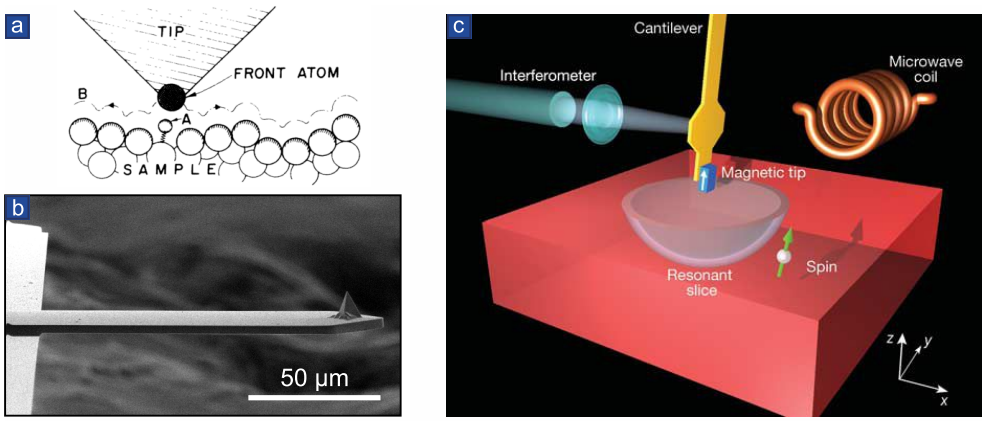


Figure 1.3 – **a.** Schéma historique de fonctionnement d'un AFM tiré de [5]. **b.** Levier AFM commercial actuel en silicium (levier : $125 \times 40 \times 3.6\,\mu$m, hauteur de la pointe : $12\,\mu$m), recouvert d'aluminium sur l'arrière pour réfléchir un faisceau laser servant à détecter le mouvement du levier. **c.** Schéma du dispositif expérimental utilisé dans le groupe de D. Rugar [8] pour mesurer la force due au retournement d'un spin unique dans un gradient de champ magnétique. Le levier est équipé d'une plateforme réfléchissante qui permet la détection optique de son mouvement.

La sensibilité mécanique d'un oscillateur est d'autant plus grande que sa masse est petite. Ainsi, les oscillateurs impliqués dans les mesures de force sont devenus de plus en plus petits et donc légers pour les rendre de plus en plus sensibles aux forces explorées. Avec l'avènement des méthodes de microfabrication, puis de nanofabrication, les techniques de détection se sont adaptées aux déplacements à mesurer devenus infimes. En 2004, D. Rugar et des collaborateurs utilisent un appareil inventé en 1992 par J. Sidles [9], le MRFM (Magnetic Resonance Force Microscope), pour mesurer la force magnétique provoquée par le retournement d'un unique spin électronique [8]. Pour cela, le déplacement d'un levier qui sert de sonde de force (une fois fonctionnalisé par un élément magnétique) est détecté par une technique interférométrique.

Les MEMS et les NEMS (Micro et Nano - ElectroMechanical Systems) [10, 11], voir Figure 1.4a, reposent quant à eux (par définition) sur un couplage électromécanique : ils possèdent l'avantage d'être intégrés ou très facilement intégrables dans un circuit électrique, ce qui permet à la fois leur détection et leur actionnement (capacitifs ou magnétomotifs). Cette relative facilité d'intégration a permis le couplage du NEMS représenté sur la Figure 1.4b à un transistor supraconducteur à électron unique (*superconducting single electron transistor*, SSET) par le groupe de K. Schwab [12]. C'est aussi en utilisant ce type de levier que s'est développée la mesure de masse [13, 14] (voir Figure 1.4c une mesure de dépôt de molécules individuelles) dont la sensibilité record actuelle est attribuée à J. Chaste dans le groupe d'A. Bachtold en 2012 [15], et avoisine la masse d'un proton ($\sim 10^{-27}$ kg, soit l'ordre de grandeur du *yoctogramme*).

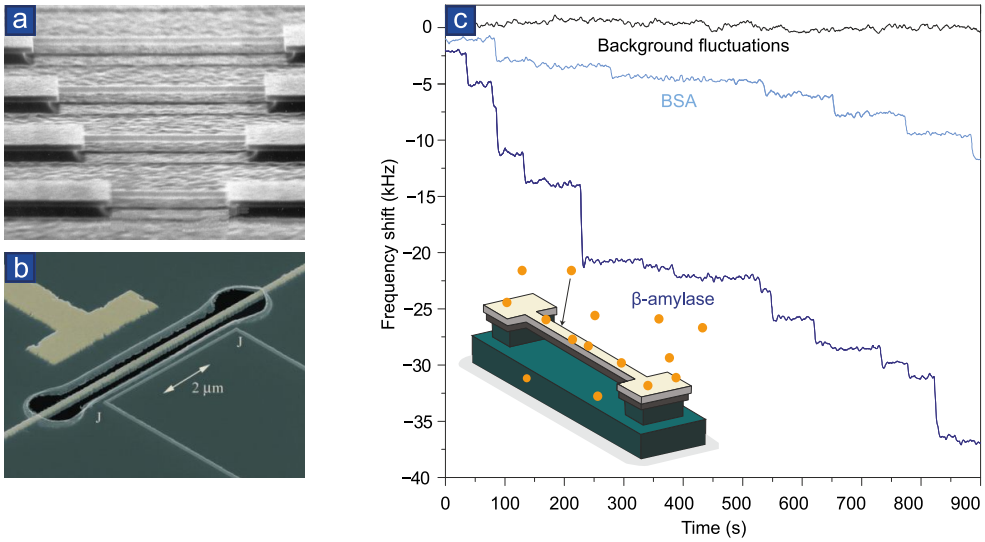


Figure 1.4 – **Trois systèmes nanoélectromécaniques. a.** Famille de nanofils de SiC doublement encastrés [11]. **b.** Nanofil couplé à un SSET dans le groupe de K. Schwab [12] approchant le régime quantique. **c.** Mesure par le groupe de M. Roukes de sauts de la fréquence d'un NEMS à l'adsorption de protéines individuelles d'albumine de sérum bovin (BSA) et de β-amylase. Insert : schéma du NEMS utilisé. Adapté de [14].

Le colossal gain de sensibilité en force réalisé au cours des dernières décennies en réduisant la masse des oscillateurs reflète en réalité la réduction de l'excitation thermique responsable du **mouvement Brownien**, qui détermine cette sensibilité. L'objectif du paragraphe suivant est à la fois d'introduire la modélisation du mouvement Brownien et de montrer qu'il constitue une limite pour la mesure de force.

1.1.3 Le mouvement Brownien

Modèle de Langevin

Les oscillateurs mécaniques ne sont jamais complètement isolés : ils sont soumis aux collisions incessantes d'une multitude de particules ou d'excitations. L'action cumulative de ces perturbateurs est décrite par le couplage de l'oscillateur à un **bain thermique**. De cette interaction résultent deux effets principaux [16].

D'une part, le mouvement de l'oscillateur $x(t)$ est amorti sous l'effet des interactions avec le bain, moyennées sur des échelles de temps relativement lentes. Cet effet est modélisé par une **force de friction visqueuse** :

$$F_{\text{diss}}(t) = -M\Gamma\dot{x}(t). \tag{1.5}$$

où Γ est le taux d'amortissement et M la masse de l'oscillateur.

D'autre part, cet échange rapide de petites quantités de mouvement entre le bain et l'oscillateur est responsable de fluctuations de position qui peuvent être décrites comme la réponse à une force stochastique, la **force de Langevin** $\delta F_{\mathrm{th}}(t)$. La moyenne de cette force est nulle sur des temps longs (devant les temps caractéristiques de la dynamique de l'oscillateur), ou de manière équivalente sous l'hypothèse ergodique, nulle en moyenne statistique :

$$\overline{\delta F_{\mathrm{th}}}(t) = 0 = \langle \delta F_{\mathrm{th}}(t) \rangle. \tag{1.6}$$

Sa fonction d'autocorrélation se relie naturellement au taux d'amortissement Γ, et se réduit dans le cas d'un bain sans mémoire à une distribution de Dirac :

$$C_{F_{\mathrm{th}}}(\tau) \equiv \overline{\delta F_{\mathrm{th}}(t)\delta F_{\mathrm{th}}(t+\tau)} = 2M\Gamma k_B T\delta(\tau) = \langle \delta F_{\mathrm{th}}(t)\delta F_{\mathrm{th}}(t+\tau)\rangle \tag{1.7}$$

En l'absence d'autres forces, l'équation du mouvement de l'oscillateur est :

$$\ddot{x}(t) = -\Omega_{\mathrm{m}}^2\big(x(t) - x_0\big) - \Gamma\dot{x}(t) + \frac{1}{M}\delta F_{\mathrm{th}}(t) \tag{1.8}$$

La **fluctuation de position** de l'oscillateur, définie par $\delta x(t) = x(t) - x_0$ et qui n'a donc pas de composante de fréquence nulle, vérifie l'équation de Langevin :

$$\delta\ddot{x}(t) = -\Omega_{\mathrm{m}}^2\delta x(t) - \Gamma\delta\dot{x}(t) + \frac{1}{M}\delta F_{\mathrm{th}}(t). \tag{1.9}$$

La transformée de Fourier [1] de cette équation permet de définir la **susceptibilité mécanique** $\chi[\Omega]$ de l'oscillateur (voir Figure 1.5) qui vérifie :

$$\delta x[\Omega] = \chi[\Omega]\delta F_{\mathrm{th}}[\Omega], \tag{1.11}$$

soit :

$$\chi[\Omega] = \frac{1}{M(\Omega_{\mathrm{m}}^2 - \Omega^2 - i\Omega\Gamma)}. \tag{1.12}$$

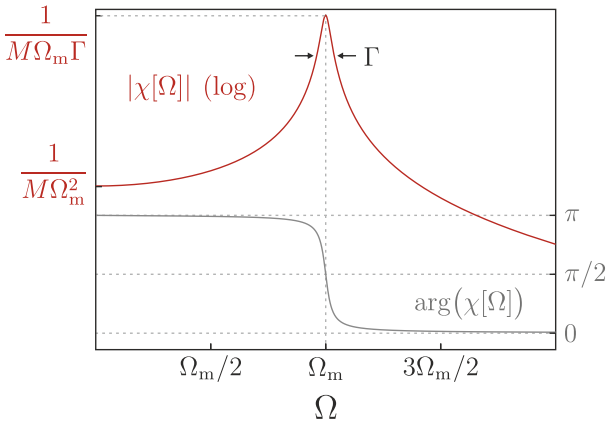


Figure 1.5 – Module (rouge, échelle logarithmique) et argument (gris) de la susceptibilité mécanique d'un oscillateur amorti.

1. On utilise la convention suivante pour les transformées de Fourier :

$$x[\Omega] = \int_{-\infty}^{\infty} dt\, x(t)e^{i\Omega t} \qquad x(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi}\, x[\Omega]e^{-i\Omega t} \tag{1.10}$$

On définit $S_{F_{\rm th}}[\Omega]$ la densité spectrale de la force de Langevin par :

$$2\pi\delta(\Omega+\Omega')S_{F_{\rm th}}[\Omega] = \langle \delta F_{\rm th}[\Omega]\delta F_{\rm th}[\Omega']\rangle, \tag{1.13}$$

D'après le théorème de Wiener-Khintchine valable pour des signaux stationnaires, cette densité spectrale est aussi la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation :

$$S_{F_{\rm th}}[\Omega] = \int_{-\infty}^{\infty} dt\; C_{F_{\rm th}}(\tau)e^{i\Omega\tau}, \tag{1.14}$$

La fonction d'autocorrélation temporelle de la force de Langevin est un Delta de Dirac. Celle-ci est donc un bruit blanc, c'est-à-dire que sa densité spectrale est finalement indépendante de Ω :

$$S_{F_{\rm th}}[\Omega] = 2M\Gamma k_B T. \tag{1.15}$$

Cette dernière équation correspond à la version appliquée à l'oscillateur harmonique amorti du **théorème fluctuation-dissipation** [17] qui traduit directement l'équivalence d'origine des deux facettes du couplage de n'*importe quel* système à un bain thermique, pourvu que ce système réponde linéairement et soit à l'équilibre avec le bain :

$$S_{F_{\rm th}}[\Omega] = -\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\left[\frac{1}{\chi[\Omega]}\right], \quad \text{soit} \quad S_{\delta x}[\Omega] = \frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi[\Omega]. \tag{1.16}$$

Une démonstration de ce théorème est donnée en Annexe D pour les besoins du Chapitre 3. La densité spectrale de position de l'oscillateur seulement soumis à son mouvement Brownien est calculée à partir de l'équation 1.11 (voir Figure 1.6a) :

$$S_{\delta x}[\Omega] = \frac{2\Gamma k_BT}{M\Big((\Omega_{\rm m}^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\Big)}. \tag{1.17}$$

La variance de ces fluctuations donne alors une mesure du rapport T/M :

$$\Delta x_{\rm th}^2 \equiv \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,S_{\delta x}[\Omega] = \frac{k_BT}{M\Omega_{\rm m}^2}. \tag{1.18}$$

Enfin, la fonction d'autocorrélation de la position [18] est la transformée de Fourier inverse du spectre 1.17 (voir Figure 1.6b) :

$$C_x(\tau) \equiv \langle \delta x(t)\delta x(t+\tau)\rangle = \frac{k_BT}{M\Omega_{\rm m}^2}e^{-\frac{\Gamma\tau}{2}}\left(\cos\Omega_{\rm c}\tau + \frac{\Gamma}{2\Omega_{\rm c}}\sin\Omega_{\rm c}\tau\right) \tag{1.19}$$

avec $\Omega_c^2 \equiv \Omega_{\rm m}^2 - \frac{\Gamma^2}{4}$.

Une limitation pour la mesure dynamique de force

On envisage l'excitation d'un oscillateur par une force monochromatique à la pulsation Ω_d. L'oscillateur est alors soumis à la force supplémentaire $\delta F_{\rm ex}[\Omega] = \delta F\,\delta(\Omega-\Omega_d)$ et son déplacement est décrit par :

$$\delta x[\Omega] = \chi[\Omega]\left(\delta F_{\rm th}[\Omega] + \delta F_{\rm ex}[\Omega]\right). \tag{1.20}$$

La mesure de puissance spectrale $P_x[\Omega]$ intègre la densité spectrale de position sur une plage de fréquences centrée sur $\Omega/2\pi$, appelée *Resolution BandWidth* (RBW). Si la fréquence d'excitation $\Omega_d/2\pi$ se retrouve dans la plage spectrale intégrée, cette puissance vaut donc :

$$P_x[\Omega_d] = |\chi[\Omega_d]|^2\Big(S_{F_{\rm th}}[\Omega]\,\mathrm{RBW} + \delta F^2\Big) \tag{1.21}$$

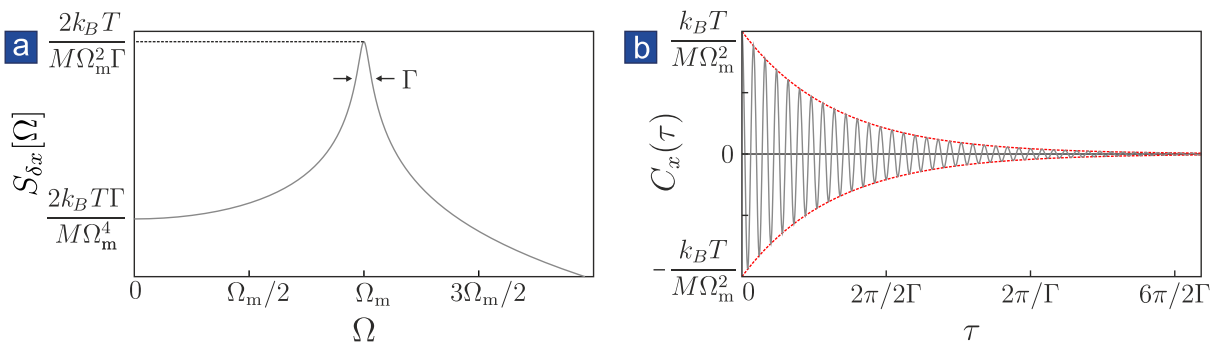


Figure 1.6 – **a.** Spectre des fluctuations de position d'un oscillateur harmonique amorti de facteur de qualité 25. **b.** Autocorrélation de position de cet oscillateur harmonique de facteur de qualité 25.

En prenant comme critère de la possibilité de détection un rapport signal-sur-bruit de 1, la plus petite amplitude de force détectable est alors indépendante de la fréquence d'excitation :

$$\delta F_{\min} = \sqrt{\mathrm{RBW} \times S_{F_{\mathrm{th}}}[\Omega_d]} = \sqrt{\mathrm{RBW} \times 2M\Gamma k_B T}. \tag{1.22}$$

Il s'agit donc d'une limitation fondamentale de la sensibilité de la mesure de force dans ce schéma d'excitation. Il est possible de repousser cette limite en refroidissant l'oscillateur mécanique par un procédé cryogénique, ce qui ne modifie pas la susceptibilité de l'oscillateur. Pour améliorer la sensibilité de la mesure d'une force non-monochromatique, cependant, d'autres méthodes de refroidissement peuvent également être envisagées, dites méthodes actives. Celles-ci réduisent la susceptibilité de l'oscillateur mécanique en même temps que l'amplitude de ses vibrations thermiques, ce pourquoi elles ne peuvent pas être employées pour une mesure de force dans le schéma envisagé dans ce paragraphe. Ces méthodes actives de refroidissement ont été développées dans le contexte de l'**optomécanique en cavité** dont certains résultats sont brièvement présentés dans le paragraphe suivant.

1.1.4 Optomécanique en cavité et nouvelles limitations

Les avancées réalisées dans le domaine des mesures de force ont donc rendu les sondes extrêmement sensibles à leur environnement, et en particulier à la mesure elle-même dont l'action en retour classique (chauffage, actionnement thermique) ou quantique peut contribuer à masquer les signaux à mesurer. L'optomécanique en cavité se propose de tester les limites ultimes de la mesure de position en mesurant le déplacement d'un miroir fermant une cavité optique éclairée par un faisceau laser. Lorsque le laser est à résonance avec la cavité, les fluctuations de position de ce miroir sont encodées sur les **fluctuations de phase** du faisceau sortant de la cavité, où elles apparaissent amplifiées par la **finesse** de la cavité. La finesse augmente également la force de pression de radiation qui constitue l'action en retour de la mesure de position. Le couplage paramétrique entre un oscillateur mécanique et une cavité de grande finesse représente ainsi l'expérience archétypique permettant d'étudier cette action en retour [19].

Le refroidissement actif d'oscillateurs mécaniques

En 1999, P. F. Cohadon, A. Heidmann et M. Pinard [23] démontrent la possibilité de refroidir optiquement le miroir terminal de la cavité par une technique de **friction froide**. Pour cela, une force de friction visqueuse est produite grâce à un laser auxiliaire envoyé sur l'arrière du miroir, dont l'intensité est modulée de façon à reproduire les fluctuations de vitesse de l'oscillateur mesurées en continu par le faisceau de mesure. Cette force additionnelle n'ayant pas de contrepartie en termes de force de Langevin, elle est donc responsable du refroidissement de

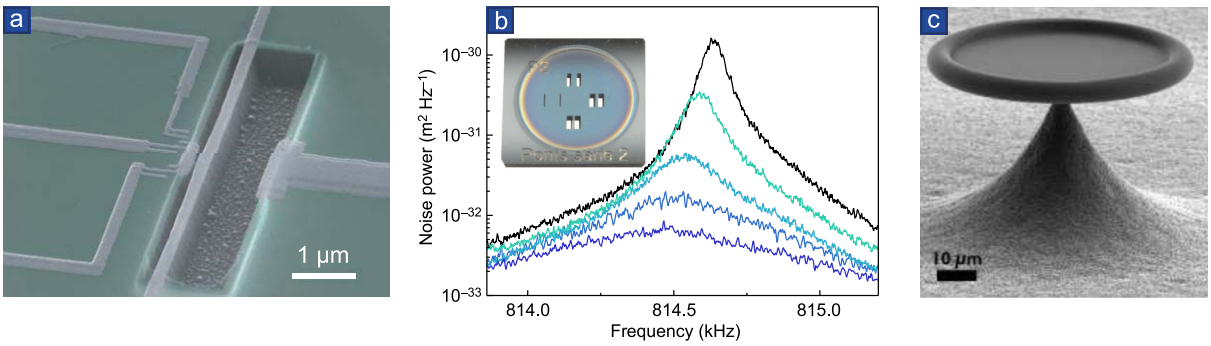


Figure 1.7 – **Refroidissement actif de nano-oscillateurs. a.** Oscillateur refroidi par l'action en retour dynamique d'un couplage paramétrique à une résonance de SSET de 550 mK à 300 mK dans le groupe de K. Schwab [20]. **b.** Réduction de la densité spectrale de mouvement Brownien de l'un des 4 résonateurs optomécaniques représentés en insert, obtenue grâce à la force de pression de radiation dans le groupe d'A. Heidmann [21]. **c.** Micro-tore (c'est-à-dire, cavité optique toroïdale couplée à un mode mécanique radial) développé dans le groupe de T. Kippenberg, refroidi par pompage optique des bandes latérales résolues [22].

l'oscillateur qui peut en principe être poursuivi jusque dans l'état fondamental [24], les fluctuations résiduelles provenant alors pour moitié de la lumière et pour moitié du bain thermique.

En 2004, le groupe de K. Karrai [25] démontre le même type de refroidissement en utilisant cette fois directement le laser de mesure pour appliquer une force de nature **photothermique** sur laquelle sont encodées les fluctuations de vitesse du levier étudié : cette force intrinsèquement retardée fournit la rétroaction nécessaire.

En 2006, les groupes de K. Schwab [20], d'A. Heidmann [21] et de M. Aspelmeyer [26] parviennent à réaliser ce refroidissement en utilisant cette fois l'action en retour dynamique de la mesure lorsque le système est pompé hors de résonance. Les fluctuations de position de l'oscillateur induisent une modulation du champ de sonde (état électrique du SSET ou champ intracavité), qui exerce ainsi ensuite une force d'action en retour (électrostatique ou de pression de radiation) sur l'oscillateur. Le retard nécessaire à l'obtention d'une force visqueuse est assuré par le temps d'établissement du champ lumineux dans la cavité. Ce retard n'est suffisant que grâce aux grandes finesses des cavités utilisées.

Enfin, une autre facette du refroidissement optique est démontrée en 2008 dans le groupe de T. Kippenberg [22] : le refroidissement d'un système optomécanique (micro-tore suspendu, voir Figure 1.7c) dans le régime des bandes latérales résolues (**resolved sideband cooling**), dans lequel, par définition, la fréquence mécanique excède la largeur spectrale de la cavité. Lorsque la cavité est éclairée avec un laser désaccordé vers le rouge précisément de la fréquence de résonance mécanique, chaque cycle d'excitation de la cavité entraîne la destruction d'un phonon thermique : ce mécanisme reproduit le refroidissement Doppler d'atomes ou d'ions piégés. Le régime des bandes latérales résolues est essentiel pour amener la température limite pouvant être atteinte dans ce schéma de refroidissement en-dessous de la température quantique, et atteindre ainsi l'état fondamental de vibration par ce mécanisme [27] (voir paragraphe sur l'état quantique fondamental).

La limite quantique standard

A supposer que le mouvement Brownien de l'oscillateur ne soit plus limitant, la mesure du déplacement du miroir rencontre d'autres limitations fondamentales qui sont exposées maintenant à partir de l'exemple de l'optomécanique en cavité. D'une part, le laser possède in-

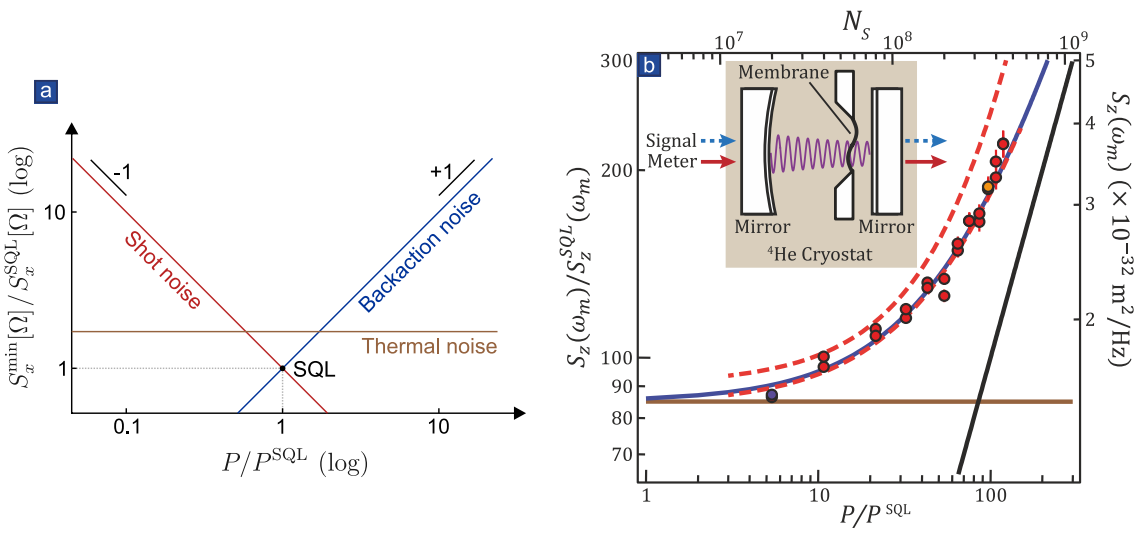


Figure 1.8 – **Limite Quantique Standard (SQL) et bruit de pression de radiation a.** Représentation générique, en échelle logarithmique, pour une fréquence fixée, du *shot noise* et du bruit d'action en retour, ainsi que du bruit thermique dans l'hypothèse où celui-ci serait supérieur à la limite quantique standard (SQL), en fonction de la puissance du laser P. **b.** Observation du bruit de pression de radiation par le groupe de C. Regal [28]. Insert : Système utilisé composé d'une membrane vibrante dans une cavité éclairée par un laser "Signal" puissant appliquant le bruit de pression de radiation et un laser "Meter" servant de sonde.

trinsèquement des fluctuations quantiques de phase, qui peuvent masquer le signal à détecter. Le bruit de position équivalent, appelé aussi **bruit de grenaille** ou **shot noise** décroît lorsque l'intensité du laser augmente. D'autre part, les fluctuations d'intensité du laser entraînent une fluctuation de **la force de pression de radiation** appliquée sur l'oscillateur. Le bruit de déplacement de l'oscillateur qui en résulte, qui croît avec l'intensité du laser (voir Figure 1.8a), constitue une seconde limitation appelée bruit d'action en retour ou **backaction noise**. Le bruit d'action en retour a été observé en 2013 par T. P. Purdy, R. W. Peterson et C. A. Regal [28] (voir Figure 1.8b). Il existe alors une valeur d'intensité laser qui minimise la somme des contributions du bruit de grenaille et du bruit d'action en retour. Cette valeur d'intensité est appelée limite quantique standard (couramment **SQL**, Standard Quantum Limit, voir Figure 1.8a), dont l'existence a été prédite dès 1977 par V. B. Braginskii, A. Manukin et D. H. E. Douglass [29] et qui permet de mesurer un petit déplacement avec la meilleure sensibilité.

1.1.5 L'état quantique fondamental mécanique

L'état quantique fondamental d'un oscillateur mécanique est l'état occupé en moyenne par moins d'un phonon thermique. L'énergie d'un phonon d'un mode résonnant à Ω_m est $\hbar\Omega_\mathrm{m}$. La difficulté pour atteindre l'état quantique fondamental est donc de réduire l'énergie thermique $k_B T$ en dessous de cette énergie, c'est-à-dire d'atteindre des températures inférieures à 300 mK si l'oscillateur résonne à 1 GHz ou 300 μK s'il résonne à 1 MHz. C'est le mode de dilatation d'une membrane piézoélectrique (représentée en Figure 1.9a) résonant à plus de 6 GHz qui a été observé en premier dans son état quantique fondamental par le groupe d'A. N. Cleland [30] en 2010. Cette membrane est couplée à qubit supraconducteur qui permet la lecture et la manipulation de son état quantique de vibration. En 2011, plusieurs groupes ont mis en œuvre des techniques de refroidissement actif leur permettant d'atteindre (ou d'approcher) l'état quantique fondamental : J. Teufel et R. W. Simmonds en optique micro-onde [31] (voir Figure 1.9b), O. Painter [32] (voir Figure 1.9c) et T. Kippenberg [33] (avec le système déjà représenté en Figure 1.7c) en optique visible.

Dans l'état de vide phononique, il reste un bruit de position appelé **fluctuations de point zéro** (ou *zero point fluctuation*) dont l'extension spatiale quadratique moyenne vaut :

$$\delta x_{\mathrm{zpf}} = \sqrt{\frac{\hbar}{2M\Omega_{\mathrm{m}}}}. \tag{1.23}$$

Ces fluctuations de point zéro représentent donc une dernière limitation à la mesure de position. Des méthodes de *squeezing mécanique* peuvent être employées pour réduire les fluctuations quantiques de position [34–36].

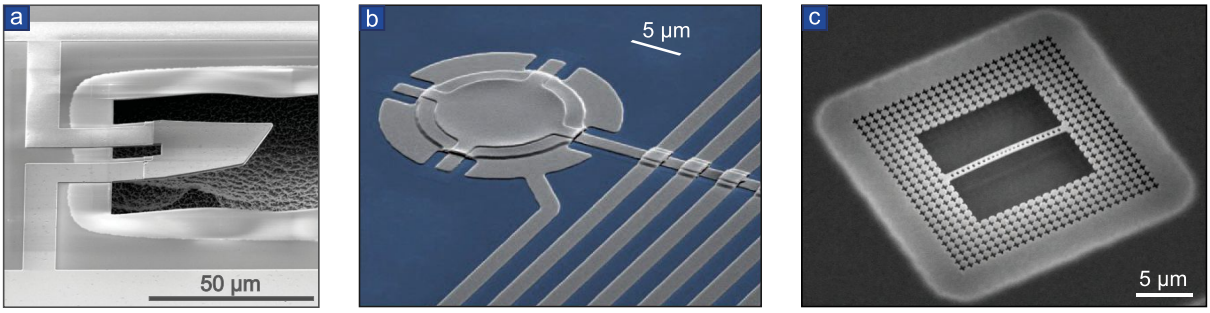


Figure 1.9 – **Quelques systèmes observés dans leur état mécanique fondamental. a.** Membrane piézoélectrique suspendue qui constitue un oscillateur de dilatation, refroidie jusqu'à une occupation moyenne de 0.07 phonons dans le groupe d'A. Cleland en 2010 [30]. **b.** Système optomécanique refroidi dans son état quantique fondamental dans le groupe de R. W. Simmonds en 2011, constitué d'une membrane en forme de tambour couplée capacitivement à un circuit micro-onde. **c.** Nanofil de silicium structuré pour en faire une cavité optique, refroidi dans son état fondamental dans le groupe d'O. Painter en 2011.

Détection d'ondes gravitationnelles

Parce qu'il requiert des outils de mesure d'une sensibilité extraordinaire, le domaine de la mesure des **ondes gravitationnelles** s'est fortement lié au cours de ces trois dernières décennies à celui de l'optomécanique, et réciproquement. Les interféromètres terrestres actuels (LIGO à Hanford et à Livingston aux Etats-Unis, Virgo à Cascina en Italie, GEO600 à Hanovre en Allemagne) sont des interféromètres à deux bras perpendiculaires de 4 km de longueur (3 km pour Virgo, 300 m pour GEO600). Chaque bras est terminé (dans la version LIGO) par un miroir de 40 kg. L'onde gravitationnelle est une oscillation quadrupolaire de la métrique locale, et donc du chemin optique des faisceaux des deux bras. L'un de ces chemins s'allonge alors que l'autre se rétrécit (dans le cas de la polarisation idéale de l'onde), puis vice-versa, le phénomène se répétant à la fréquence de l'onde. Il en résulte une modulation de la différence de chemin optique entre les deux bras. Il a été estimé que les ondes gravitationnelles engendrées par les événements cosmiques les plus intenses seraient responsables d'une amplitude relative de modulation de l'ordre de 10^{-21}, ce qui correspond à un déplacement équivalent des miroirs de 10^{-18} m pour des bras kilométriques. Pour obtenir une mesure de position de cette sensibilité, tous les miroirs de ces interféromètres sont soumis à une stabilisation active mécanique, optique et thermique représentant une véritable prouesse technique.

La première détection d'onde gravitationnelle en septembre 2015 [37] résultant de la collision de deux trous noirs a suivi de près la réouverture des appareils dans leur version améliorée en sensibilité "Advanced LIGO". D'autres événements ont déjà été enregistrés et la réouverture de l'interféromètre Virgo dans une version encore plus sensible laisse espérer de nombreuses autres

détections dans les années à venir.

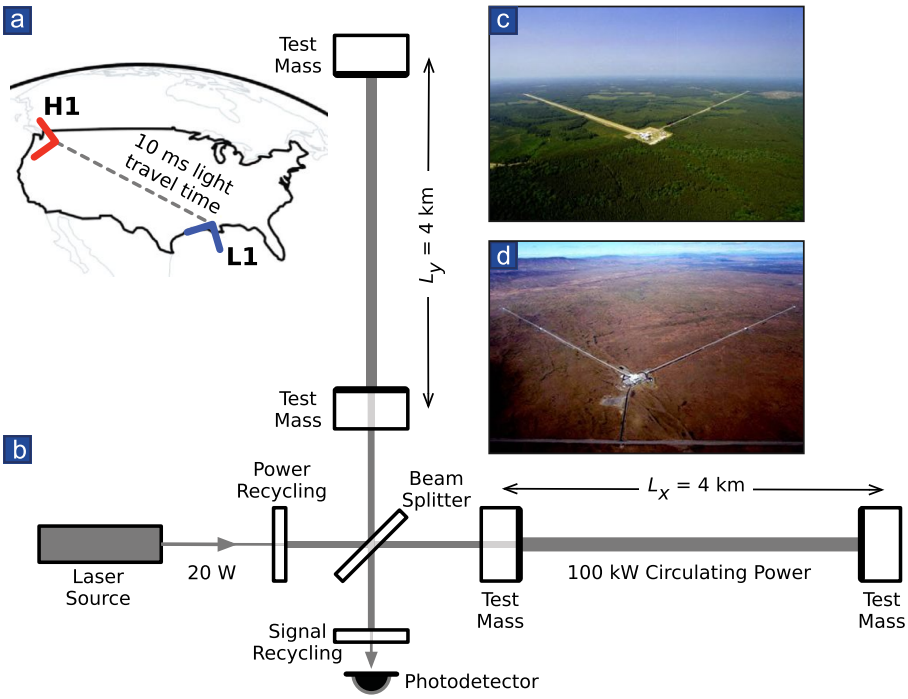


Figure 1.10 – **Système de détection LIGO a.** Position et orientation des deux interféromètres LIGO sur la carte des Etats Unis (adapté de [37]). **b.** Schéma optique d'un interféromètre LIGO (tiré de [37]. **c. et d.** Photographies aériennes des interféromètres de Livingston et Hanson (respectivement tirées de www.ligo.caltech.edu/page/what-is-ligo et www.advancedligo.mit.edu/summary.html).

Dans le souci d'améliorer sans cesse les sensibilités de ces appareils, un effort de recherche parallèle est dirigé vers le dépassement de la SQL. La voie principalement explorée consiste à projeter le bruit d'action en retour de la mesure sur une quadrature non mesurée pour s'en affranchir. La technique consiste à exploiter des états comprimé de la lumière présentant moins de bruit que le vide quantique sur certaines quadratures [38]. Comme il a été mentionné, les limites de la mesure de fluctuations de position à basse et à haute fréquence (ici, la limite se situe autour de 100 Hz) ne sont pas de la même nature : pour que la réduction de bruit soit réellement intéressante, c'est le bruit de phase qui doit être comprimé à basse fréquence et le bruit d'intensité du champ intracavité à haute fréquence. Une technique de "**squeezing** dépendant de la fréquence" a été démontrée et [39] est en cours de développement pour les interféromètres : elle utilise la réponse en phase d'une cavité, qui dépend de la fréquence autour de la résonance, pour faire tourner la quadrature comprimée avec la fréquence.

1.1.6 Nanomécanique multimode

Tous les oscillateurs mécaniques possèdent plusieurs modes propres de vibration, mais la mesure de force est souvent restreinte à un seul mode mécanique ou à une seule direction de vibration. Dans ce dernier paragraphe, on revient sur la mesure de force et on expose les avancées récentes dans le domaine de la mesure multimodale.

Dans un AFM, l'exploration de champs de force qui présentent **des variations spatiales inhomogènes** peut générer des harmoniques du mode exploité pour la mesure qui ont été utilisées en 2004 afin d'améliorer la précision de la reconstruction d'un champ de force [40]. L'utilisation de **plusieurs modes propres** (deux ou trois modes de flexion, un mode de flexion et un mode de torsion, des modes couplés par des non-linéarités intrinsèques) pour augmenter la résolution

des AFM s'est ensuite répandue [41], mais ces utilisations sont restées généralement limitées à des modes non couplés, ou dont le couplage ne dépendait pas du champ de force à mesurer.

Toutefois, comme il sera montré plus tard dans le manuscrit, **les champs de forces inhomogènes engendrent des couplages entre modes mécaniques**, dont l'étude aborde une physique inaccessible aux systèmes monomodes (rotation de la base des modes, explorations de champs de force rotationnels). Le couplage induit par un champ de force statique est facilité si l'oscillateur présente des modes de fréquences proches. C'est notamment le cas des oscillateurs **symétriques** tels que les nanofils dont les fréquences de vibrations transversales dans les deux directions sont presque dégénérées. L'équipe de J. Tamayo a ainsi utilisé la grande facilité de couplage des modes de vibration d'un nanofil de silicium initialement symétrique pour mesurer la **rotation de la base des polarisations mécaniques** sous l'effet de l'ajout graduel d'une masse de carbone d'un côté du fil [42]. Cette masse ajoutée devient progressivement l'origine dominante de la brisure de symétrie et détermine finalement les axes des modes propres de vibration. Les systèmes multimodes non-linéaires peuvent également présenter des couplages inter-modes. Il s'agit d'une classe de systèmes à la fois riche et largement étudiée, non restreinte aux modes de fréquence proche [43–50]. Ces couplages s'étendent également aux modes perpendiculaires entre eux : le couplage non-linéaire des deux polarisations mécaniques *orthogonales* d'un nanofil de GaAs (arséniure de gallium) suspendu a par exemple été démontré en 2016 dans l'équipe de M.Poggio [51].

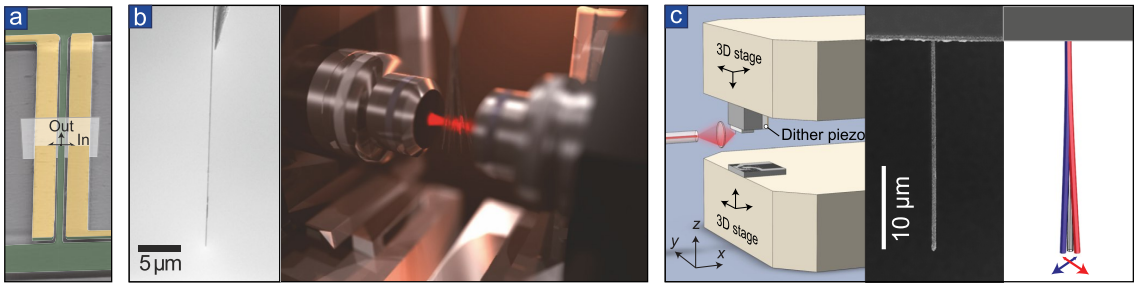


Figure 1.11 – **a.** NEMS diélectrique (en vert), asymétrique mais contraint, développé dans le groupe de E. Weig [52] dont le mouvement dans les deux directions est couplé par le champ de force produit par les électrodes de grille (en jaune). **b.** A gauche : nanofil de SiC utilisé par A. Gloppe dans notre groupe pour mesure des champs de force bidimensionnels [53]. À droite : schéma de principe du montage. **c.** Nanofil de GaAs/AlGaAs utilisé dans le groupe de M. Poggio pour mesurer des champs de force électrostatiques [54].

Le groupe d'E. Weig utilise des oscillateurs électromécaniques de section rectangulaire, non symétriques, mais contraints, de sorte que les modes de vibrations perpendiculaires se retrouvent proches en fréquence (voir Figure 1.11a). Les électrodes de grilles lithographiées de part et d'autre des oscillateurs sont conçues pour générer un champ de force électrostatique inhomogène permettant le couplage fort des deux directions de vibration. Ce couplage fort a été exploité en étudiant le passage adiabatique ou non-adiabatique [55, 56] d'un état de vibration à l'état de vibration perpendiculaire, selon que la tension de grille est modulée lentement ou rapidement. L'hybridation des états de vibration permet en outre d'envisager une analogie entre ce système et un système quantique à deux niveaux [52] dont les équivalents des oscillations cohérentes, des oscillations de Rabi et de l'écho de Hahn ont été mesurés, permettant l'identification d'un temps de relaxation longitudinale T_1, transversale T_2 et inhomogène T_2^* (tous égaux).

L'emploi de nanofils presque symétriques (voir Figure 1.11b) pour la mesure vectorielle de force a été initié au cours de la thèse d'A. Gloppe. Des cartographies de la force optique appliquée par un faisceau laser focalisé sur un nanofil ont été réalisées grâce à un schéma de me-

sure pompe-sonde. Ce travail a permis d'appréhender la richesse de l'habillage mécanique par un champ de force bidimensionnel d'un oscillateur aussi symétrique qu'un nanofil. Ce mécanisme d'habillage, sur lequel le Chapitre 2 reviendra, est au cœur de la nouvelle méthode de mesure des champs de force 2D développée dans ce manuscrit. La mesure vectorielle d'une force électrostatique a également été mise en œuvre dans l'équipe de M. Poggio [54] avec un nanofil composite de GaAs/AlGaAs placé devant une fibre (voir Figure 1.11c).

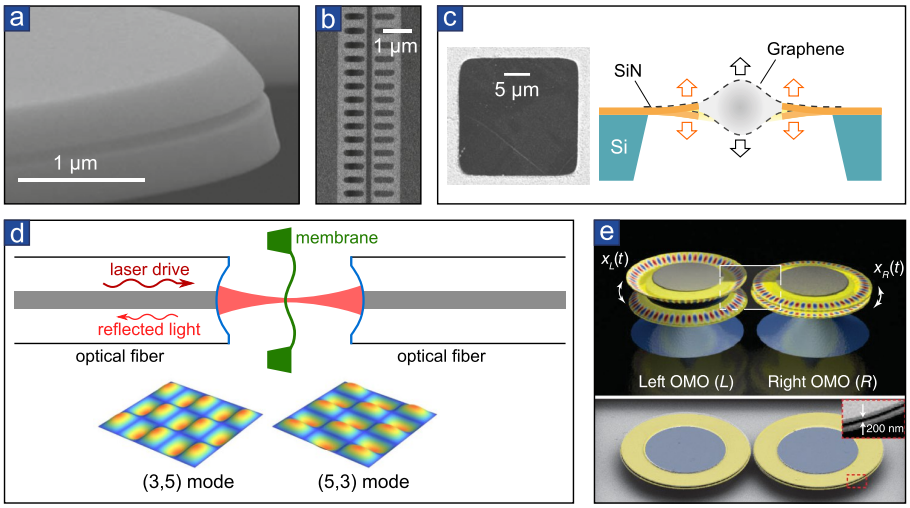


Figure 1.12 – **a.** Double-disques suspendus et **b.** double guide optique nanostructuré suspendu fabriqués dans le groupe d'O. Painter présentant chacun deux modes mécaniques dont le couplage peut être optiquement ajusté [57]. **c.** Système cascadé d'oscillateurs mécaniques formé par une membrane de graphène suspendue sur une membrane de nitrure de silicium. L'hybridation de ces deux résonateurs peut être contrôlée par chauffage optique [58]. **d.** Deux modes d'une membrane en cavité développée dans le groupe de J. Harris, dont le couplage est assisté par la lumière [59]. **e.** Deux cavités optomécaniques utilisées dans le groupe de M. Lipson dont le couplage peut être éteint par chauffage optique de l'une des structures [60].

L'optomécanique multimode ouvre la voie à l'**hybridation de plusieurs modes mécaniques grâce à un champ optique**. Ainsi, le groupe d'O. Painter et de K. Vahala [57] a démontré le couplage optiquement contrôlé, d'une part, de deux modes mécaniques d'un système de deux nano-disques posés l'un sur l'autre (voir Figure 1.12a), d'autre part, des deux modes de déflexion d'une paire de nanofils structurés formant une cavité en "fermeture éclair" (*zipper cavity*, voir Figure 1.12b). C. Schwarz dans notre groupe [58] a également utilisé l'hybridation optiquement contrôlée de modes de vibrations de membranes de masses et de taux de dissipation très différents : une membrane de graphène suspendue sur une membrane de nitrure de silicium SiN percée (voir Figure 1.12c), pour étudier une déviation au développement modal et la dissymétrisation des raies de bruit thermique. Le couplage assisté par la lumière de deux modes mécaniques, de masses cette fois similaires, a également été mis en évidence pour des modes de vibration presque dégénérés (5,3) et (3,5) d'une membrane de nitrure de silicium, dans le groupe de J. Harris [59] (voir Figure 1.12d). Enfin le groupe de M. Lipson étudie dans [60] un système de deux cavités optomécaniques, chacune formée par deux double-disques suspendus, couplées par leur champ (optique) évanescent (voir Figure 1.12e). Dans cette dernière expérience, le couplage est intrinsèque et est ajusté en chauffant optiquement l'une des deux cavités, ce qui désaccorde son mode optique vis-à-vis de celui de l'autre cavité.

L'émergence de l'optomécanique multimode révèle enfin et surtout une physique riche et spécifique. Le groupe d'A. Heidmann observe ainsi en 2007 la **suppression du bruit d'action en retour** de la mesure optique (ce bruit ayant été amplifié dans l'expérience pour démontrer

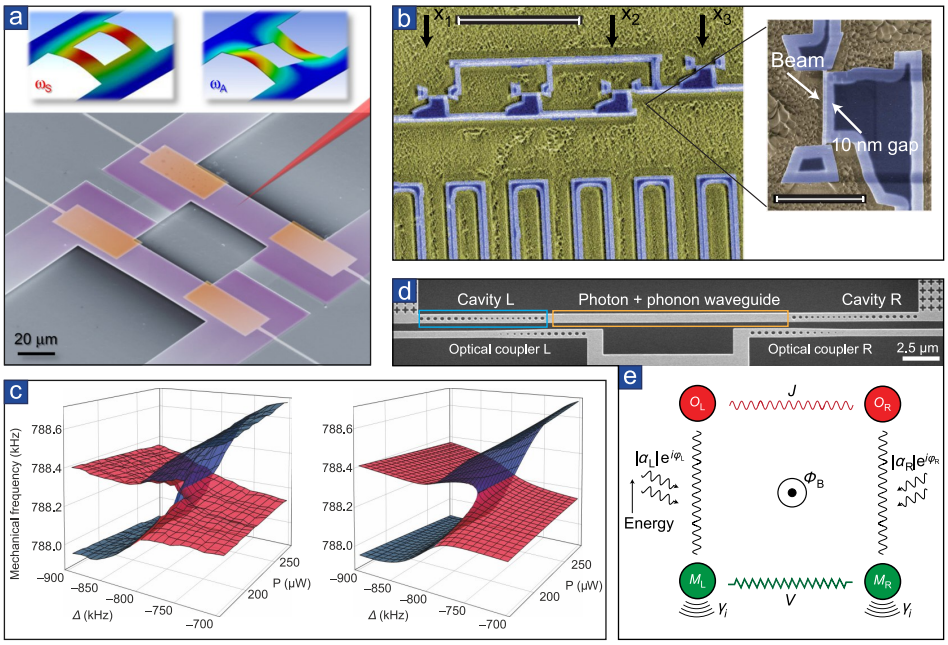


Figure 1.13 – **a.** Deux leviers doublement encastrés utilisés dans le groupe de H. Yamaguchi pour démontrer un effet de *squeezing* à deux modes [61]. **b.** Trois nanofils doublement encastrés dont deux sont en couplage otpomécanique fort refroidis simultanément dans le groupe de M. A. Sillanpää [62]. **c.** Surfaces de Riemann (gauche : mesure, droite : simulation) représentant les fréquences de deux modes couplés d'une membrane en cavité utilisée dans le groupe de J. Harris, présentant un point topologique "exceptionnel" dans l'espace des paramètres (désaccord et puissance d'un laser vis-à-vis d'un mode de cavité) : mesure à gauche et théorie à droite [63]. **d.** Deux cavités optomécaniques couplées par un guide phononique et photonique [64], de sorte à former une "plaquette optomécanique" **e.**, dont la transmission optique peut être rendue unidirectionnelle.

ce principe) à la fréquence de l'antirésonance entre deux modes mécaniques d'une cavité [65].

La possibilité d'**intriquer le bruit de position de deux oscillateurs mécaniques** a été suggérée dans [66]. En suivant cette voie, le groupe de H. Yamaguchi a démontré expérimentalement en 2014 la corrélation des fluctuations thermiques classiques de deux leviers doublement encastrés et fortement couplés par des membranes s'avançant entre les oscillateurs à chaque encastrement [61] (voir Figure 1.13a) par une méthode d'amplification paramétrique. Ce phénomène a aussi été mis en évidence en 2016 dans l'équipe de F. Marin [67], qui a réussi à comprimer le bruit thermique au-delà de la limite rencontrée dans un schéma d'amplification paramétrique (qui ne permet de réduire la variance que d'un facteur 1/2 au mieux). Par ailleurs, le groupe de M. A. Sillanpää a proposé et implémenté en 2012 un **schéma de refroidissement (simultané) à deux modes mécaniques** [62] (voir le système de la Figure 1.13b).

L'émergence possible de **"points exceptionnels"** dans l'espace des paramètres (points de rencontre entre deux surfaces de Riemann définissant les énergies des deux modes dans l'espace des paramètres, voir Figure 1.13c) ouvre la voie aux transferts d'énergie non-réciproques, ainsi que l'a démontré le groupe de J. G. E. Harris [63]. K. Fang et des collaborateurs proposent et implémentent par ailleurs en 2017 un système composé de deux cavités optomécaniques dont la transmission est unidirectionnelle à l'instar d'un circulateur [64] (voir voir Figure 1.13d et e), illustrant la possibilité de fabriquer des **couplages non-réciproques** dans les systèmes optomécaniques multimodes. Le Chapitre 3 de cette thèse traite également d'un couplage non-réciproque dans le cas d'un système plus simple : un nanofil plongé dans un champ de force rotationnel.

1.2 Nanofils de SiC suspendus

Les résonateurs mécaniques utilisés au cours de cette thèse sont en **carbure de silicium** (SiC). Ils sont fabriqués au Laboratoire Multimatériaux et Interfaces de Lyon [68]. Le SiC est un matériau peu dense (masse volumique $\rho = 3210\,\mathrm{kg.m^{-3}}$) et de module d'Young E très élevé ($E > 400\,\mathrm{GPa}$). Les oscillateurs construits à partir de ce matériau sont donc à la fois légers et de grand facteur de qualité, ce qui leur confère une grande sensibilité en force (voir [69] pour une revue portant sur les oscillateurs électromécaniques en SiC). De plus, ce matériau semi-conducteur possède un grand *gap* optique de 385, 405 et 525 nm respectivement pour les formes allotropiques 4H, 6H et 3C qui sont les plus courantes dans les nanofils utilisés. Le SiC présente enfin une conductivité thermique excellente, supérieure à $360\,\mathrm{W.m^{-1}.K^{-1}}$. Ces deux dernières propriétés permettent de soumettre les nanofils à des faisceaux optiques relativement intenses (10 mW à pression ambiante, 500 μW sous vide) dans le visible sans risquer de les endommager.

1.2.1 Mesures de forces avec des nanofils

Ces nanofils ont déjà été utilisés par l'équipe PNEC (Physique des Nanostructures et Emission de Champ) du l'ILM (Institut Lumière Matière) depuis plusieurs années. Leurs propriétés mécaniques ont été étudiées dans cette équipe notamment en exploitant le phénomène d'émission électronique et d'émission de champ [70].

En 2011, l'un de ces nanofils a été utilisé comme élément mécanique d'un **système hybride** spin-oscillateur pour observer la signature d'un couplage paramétrique du spin à la dynamique de l'oscillateur en réalisant la spectroscopie du spin [71]. Pour cela, un nano-cristal de diamant contenant un défaut cristallin unique (un centre coloré NV, voir Chapitre 4) affecté d'un spin 1 a été attaché à l'extrémité du fil. En plongeant le nanofil dans un gradient de champ magnétique pour implémenter le couplage hybride, il a été montré que la dynamique du nanofil se retrouvait imprimée sur l'état quantique du qubit de spin. Le Chapitre 5 reviendra sur ce couplage hybride. Cette expérience a posé les bases de l'étude du couplage hybride dans l'équipe. La ligne directrice des recherches effectuées dans le groupe s'oriente maintenant vers l'observation de la signature inverse : l'action du spin sur les propriétés mécaniques du nanofil.

Cet objectif, visant à reproduire avec un qubit de spin polarisable l'expérience fondatrice développée dans le groupe de D. Rugar [8], requiert d'atteindre des sensibilités en force extrêmes. La force induite par le retournement d'un spin électronique 1 dans un gradient de champ magnétique est $F = g\mu_B||\nabla\mathbf{B}||$, où g est le facteur de Landé ($\simeq 2$) et μ_B le magnéton de Bohr, soit pour un gradient de champ très intense $||\nabla\mathbf{B}|| = 10^6\,\mathrm{T.m^{-1}}$, environ 20 aN seulement. Cette très faible force reste cependant observable, en principe, avec un nanofil, ce qui a motivé le développement des mesures de force ultrasensibles dans l'équipe.

Par la suite, afin d'étudier ce couplage plus en profondeur, un système-test sans élément mécanique a été développé au cours de la thèse de S. Rohr [72,73], sur lequel nous reviendrons également dans le chapitre sur le couplage hybride (Chapitre 5). Le système hybride spin-nanofil de SiC a ensuite été reconstruit dans une version améliorée pour mesurer une signature dynamique emblématique du couplage hybride prédite grâce à ce système-test : l'existence d'un triplet de Mollow phononique [74].

D'autre part, le principe de la mesure optique des vibrations du nanofil a été développé au cours de la thèse d'A. Gloppe. Le fait que le nanofil suspendu puisse vibrer dans les deux directions transverses confère naturellement un caractère vectoriel à la mesure de force. Ce développement a notamment permis la cartographie de la force optique appliquée par un laser

focalisé sur le nanofil [53], représentée en Figure 1.14. Il est important de souligner que cette mesure du champ de force est basée sur une **technique pompe-sonde**, c'est à dire qu'elle requiert la possibilité de moduler l'intensité du champ de force à la fréquence mécanique. Dans le Chapitre 2, on présentera une nouvelle technique de mesure basée sur l'**analyse angulaire et spectrale du mouvement Brownien** du nanofil. Cette technique est donc plus universelle en ceci qu'elle s'applique aux forces difficiles ou impossibles à moduler, comme les forces de proximité (de Van der Waals, de Casimir) ou magnétiques, par exemple.

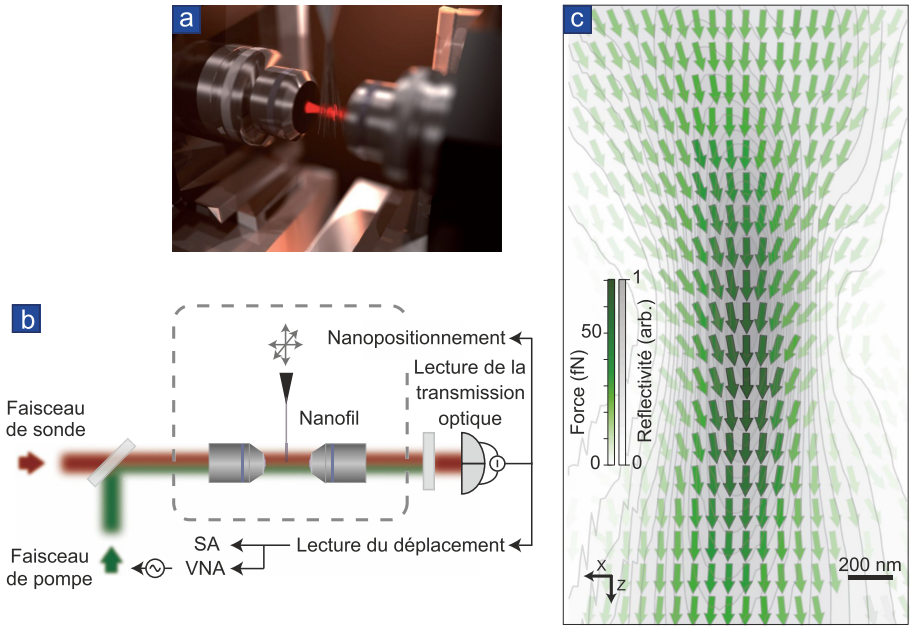


Figure 1.14 – **Mesure de force optique réalisée par A. Gloppe. a. et b.** Schémas du système optique tirés de [75]. **c.** Carte de la force vectorielle appliquée par un laser focalisé sur un nanofil, adaptée de [75], mesurée en déplaçant le nanofil en chaque point du champ optique. Le gradient de couleur des flèches indique l'intensité de la force, le gradient de gris en fond représente l'intensité de la réflexion de la lumière sur le nanofil, et mesure donc une confiance sur la mesure de force.

Il a également été montré au cours de la thèse d'A. Gloppe que le pincement du champ lumineux au niveau du *waist* optique d'un faisceau focalisé est à l'origine de composantes rotationnelles de la force optique. A forte puissance laser, le nanofil subit alors une bifurcation mécanique puis entre en auto-oscillation sous l'effet d'une instabilité dynamique [53]. Ce travail a donc permis d'observer pour la première fois l'impact d'un champ de force extérieur bidimensionnel sur la dynamique d'un nanofil. Dans cette thèse nous avons prolongé cette étude en exploitant de manière quantitative les modifications des propriétés mécaniques du nanofil afin d'en déduire le champ de force externe. En s'appuyant sur les outils développés dans le Chapitre 2 pour la mesure de champ de force, nous reviendrons plus en détail dans le Chapitre 3 sur les propriétés mécaniques et thermodynamiques intrigantes des nanofils dans les champs de force optiques rotationnels.

Enfin, il a été démontré que certaines zones des nanofils absorbent la lumière. Une modulation d'intensité retardée par rapport à l'éclairage a été mesurée [75]. Ce signal retardé est typique des phénomènes impliquant des changements de configuration thermique lents par rapport aux échelles de temps caractéristiques de la mécanique, mais il peut avoir plusieurs origines différentes qu'il est relativement délicat de séparer.

1.2.2 Montage d'un nanofil unique

La synthèse des nanofils est réalisée par une technique proche de la CVD [68] : sous flux d'argon, une source de carbone (polypropylène) et une source de silicium (silice SiO_2 et silicium) sont chauffées jusqu'à 1400° pendant 10h. Sur un support de condensation se forme alors un solide feutré constitué de nanofils de SiC.

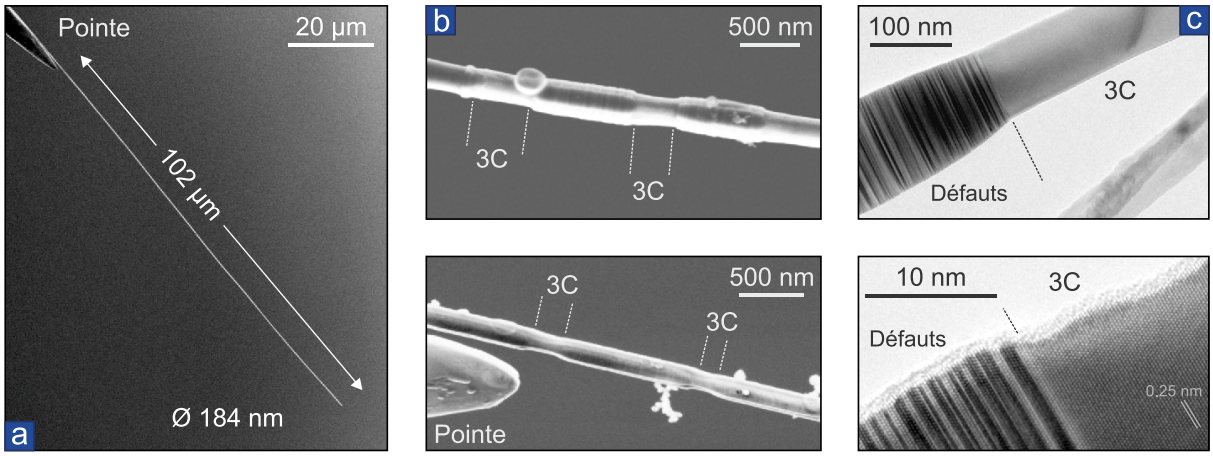


Figure 1.15 – **Images de nanofils sous microscopes électroniques. a.** Image au microscope électronique à balayage (MEB) d'un nanofil de SiC. **b.** Agrandissements de zones inhomogènes de nanofils. **c.** Images au microscope électronique en transmission (MET) tirées de la thèse de M. Bechelany [68] permettant d'associer des polytypes aux différentes zones des nanofils.

L'extrémité d'un nanofil unique est ensuite collée sur une pointe en tungstène fabriquée à l'ILM (Institut Lumière Matière) à Lyon, par l'équipe PNEC (Physique des Nanostructures et Emission de Champ). Pour cela, des fils de tungstène 125 μm de diamètre sont taillés en pointe par une réaction électrochimique dans la soude concentrée [76], en étant maintenus au centre d'une contre-électrode circulaire qui affleure à la surface de la solution de soude. Cette géométrie garantit la symétrie de l'attaque. La forme naturelle du ménisque de la solution autour du fil de tungstène favorise alors une taille effilée plutôt qu'arrondie. Cela permet d'obtenir de très petits rayons de courbure apicaux, pouvant être inférieurs à 100 nm. Il s'agit d'une méthode identique à celle employée dans la préparation de pointes conductrices pour le STM (*Scanning Tunneling Microscope*).

Bien que les diamètres des nanofils employés (50 à 350 nm) soient inférieurs aux longueurs d'onde visibles, ceux-ci sont très bien observables sous microscope optique. Le paragraphe suivant explique comment la couleur observée des nanofils est utilisée empiriquement pour sélectionner un diamètre lors du collage sur une pointe de tungstène. Les nanofils se présentent sous la forme d'une pelote. Une goutte de colle électroconductrice (colle carbone) est déposée sur une pointe de tungstène grâce à des micro-manipulateurs. La pointe est ensuite approchée du nanofil sélectionné dans la pelote-matrice puis retirée avec le fil. Un recuit peut être pratiqué pour durcir la colle, qui constitue le facteur de dissipation dominant sous vide.

Structure polytypique des nanofils : On distingue nettement sur les images électroniques des Figures 1.15b et c une forte structuration des nanofil. Des zones de faible rayon, de section circulaire très régulière alternent avec des zones de rayon plus élevé et irrégulières : les premières ont été associées [77] à des zones de polytype pur 3C (cubique) et les secondes à des zones présentant des défauts d'empilement, qui se traduisent par un mélange de polytypes. Les polytypes les plus favorisés lors de la croissance outre le 3C sont les polytypes hexagonaux 2H,

4H et 6H.

Malgré ces ruptures de polytype, les nanofils conservent un comportement mécanique très proche de celui d'une poutre idéale de module de Young très élevé. Cependant, il a été observé que la réponse optomécanique [2] des nanofils est également inhomogène, ce qui laisse penser qu'en particulier les deux paradigmes polytypiques n'ont pas la même interaction avec la lumière. A certaines longueurs d'ondes, une mesure de réponse optique **retardée** a été mesurée en focalisant un laser accordable sur les zones 3C des nanofils [75], qui suggère une réponse photothermique ou thermoréfractive consécutive à l'absorption partielle de la lumière par le nanofil. Au contraire, des forces optiques **instantanées** ont été observées ailleurs, dans les zones de polytypes mélangés, typiques des réponses des diélectriques transparents.

1.2.3 Résonances optiques de Mie dans les nanofils

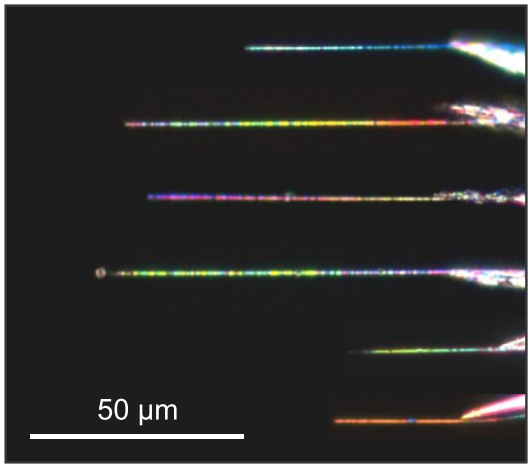


Figure 1.16 – Images de quelques nanofils sous microscope optique en éclairage large blanc (objectif 50x, ouverture numérique NA= 0.6).

Sous l'éclairage blanc d'un microscope, les nanofils présentent des couleurs vives (voir Figure 1.16), qui dépendent de la polarisation de la lumière d'éclairage du microscope. On montre dans la suite que ces couleurs sont liées aux propriétés de diffusion de la lumière de ces nano-objets, qui présentent des résonances de Mie [78], les premiers modes optiques de volume de ces nanostructures.

La diffusion par ces résonances optiques redistribue la puissance lumineuse autour des nanofils, de manière plus complexe que la diffusion sur un simple dipôle, et favorise ainsi leur détection optique. Les longueurs d'onde des résonances dépendent du diamètre des nanofils : un modèle de la diffusion des résonances de Mie nous permet alors de corréler la couleur des nanofils perçue sur la caméra CCD d'un microscope (ou à l'oeil), et leur diamètre. Cette corrélation a ensuite servi au cours de la thèse d'outil de pré-caractérisation pour sélectionner les nanofils en diamètre sous microscope optique, alors que l'imagerie optique ne permet pas en général la résolution du diamètre des nanofils (inférieur à la limite de diffraction). Enfin, ces résonances optiques peuvent affecter fortement le couplage à la lumière [75]. En structurant spectralement la réponse optique des nanofils, elles modifient leur polarisabilité effective par rapport à celle du matériau seul. Des forces optiques de gradient (c'est-à-dire, proportionnelles au gradient d'intensité du champ lumineux) peuvent ainsi apparaître.

2. Il est question ici d'excitation lumineuse à des fréquences visibles inférieures à celle du *gap* du SiC.

La progression suivante pour le calcul des résonances optiques est adaptée de l'ouvrage de référence de C. Bohren et D. Huffman [78]. L'éclairage blanc d'un microscope optique au niveau du plan focal peut être en bonne approximation assimilé à un éclairage en **onde plane** en **incidence normale** sur le fil et on se contentera donc de rappeler les résultats analytiques dans cette situation.

Harmoniques cylindriques vectorielles

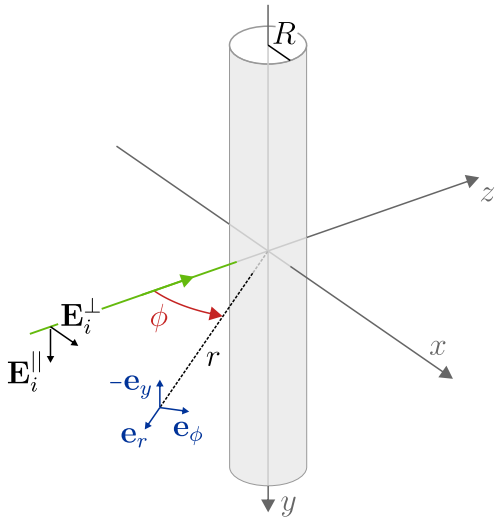


Figure 1.17 – Schéma donnant les notations utilisées dans le calcul des résonances de Mie. La base polaire directe est $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\phi, -\mathbf{e}_y)$.

Un fil est modélisé par un cylindre infini de rayon R d'indice[3] n. Le vecteur d'onde dans le milieu extérieur au fil est noté $k = \frac{2\pi}{\lambda}$. Dans le repère polaire (r, ϕ) centré sur l'axe du fil (voir Figure 1.17), les solutions de l'équation de propagation de Helmholtz :

$$\Delta \mathbf{E}(r,\phi) + k^2 \mathbf{E}(r,\phi) = \mathbf{0}, \tag{1.24}$$

qui respectent l'invariance du module de $\mathbf{E}$ en angle polaire ϕ sont de la forme :

$$\begin{cases} \mathbf{M}_m(r,\phi) & = \left(im \dfrac{Z_m(kr)}{kr} \mathbf{e}_r - Z'_m(kr) \mathbf{e}_\phi \right) e^{im\phi} \\ \mathbf{N}_m(r,\phi) & = Z_m(kr) e^{im\phi}\, \mathbf{e}_y \end{cases} , \quad m \in \mathbb{Z}. \tag{1.25}$$

Ces deux familles de solutions correspondent aux deux polarisations possibles : $\mathbf{M}_m$ pour la **polarisation perpendiculaire au fil** et $\mathbf{N}_m$ pour la **polarisation parallèle au fil**. Z_m est une fonction choisie parmi les 4 suivantes :

- la fonction de Bessel de première espèce d'ordre m : $Z_m^{(1)} = J_m$
- la fonction de Bessel de seconde espèce d'ordre m : $Z_m^{(2)} = Y_m$
- la fonction de Hankel de première espèce d'ordre m : $Z_m^{(3)} = H_m^{(1)} = J_m + iY_m$
- la fonction de Hankel de seconde espèce d'ordre m : $Z_m^{(4)} = H_m^{(2)} = J_m - iY_m$

3. Si le milieu extérieur n'est pas d'indice 1, les résultats donnés ici restent valables en identifiant n au rapport des indices du nanofil et du milieu extérieur.

Expression des champs

Les fonctions de Bessel de seconde espèce Y_m divergent en 0, de sorte que le champ incident, une onde plane, et le champ intérieur au nanofil, défini dans la région de l'espace où $r = 0$, ne sont générés que par $Z_m^{(1)}$ qui donne les harmoniques cylindriques $\mathbf{M}_m^{(1)}$ et $\mathbf{N}_m^{(1)}$. La décomposition du champ incident électrique $\mathbf{E}_i$ et magnétique $\mathbf{H}_i$ sur la base des harmoniques cylindriques sera faite pour les deux polarisation : $\mathbf{E}_i^{||}$ et $\mathbf{H}_i^{||}$ représentent les champs dans le cas où le champ électrique est aligné avec le nanofil (notons que $\mathbf{H}_i^{||}$ est alors *perpendiculaire* au nanofil), et $\mathbf{E}_i^{\perp}$ et $\mathbf{H}_i^{\perp}$ dénotent les champs dans le cas où le champ électrique est polarisé perpendiculairement au fil. On obtient après calcul :

$$\begin{cases} \mathbf{E}_i^{||} = E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} (-i)^m \, \mathbf{N}_m^{(1)} \\ \mathbf{H}_i^{||} = -i\, c\, \varepsilon_0 E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} (-i)^m \, \mathbf{M}_m^{(1)} \end{cases}, \qquad \begin{cases} \mathbf{E}_i^{\perp} = E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} (-i)^{m+1} \, \mathbf{M}_m^{(1)} \\ \mathbf{H}_i^{\perp} = -i\, c\, \varepsilon_0 E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} (-i)^{m+1} \, \mathbf{N}_m^{(1)} \end{cases}. \tag{1.26}$$

Seule $Z_m^{(3)}$ génère une onde propagative divergente : le champ diffusé n'est donc généré que par les harmoniques $\mathbf{M}_m^{(3)}$ et $\mathbf{N}_m^{(3)}$. Finalement, les conditions de continuité des champs sur la surface du nanofil complètent le calcul des champs diffusés $\mathbf{E}_s^{||}$ et $\mathbf{E}_s^{\perp}$:

$$\begin{cases} \mathbf{E}_s^{||} = E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} b_m \, \mathbf{N}_m^{(3)} \\ \mathbf{H}_s^{||} = -i\, c\, \varepsilon_0 E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} b_m \, \mathbf{M}_m^{(3)} \end{cases}, \qquad \begin{cases} \mathbf{E}_s^{\perp} = E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} a_m \, \mathbf{M}_m^{(3)} \\ \mathbf{H}_s^{\perp} = -i\, c\, \varepsilon_0 E_0 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} a_m \, \mathbf{N}_m^{(3)} \end{cases} \tag{1.27}$$

avec :

$$\begin{aligned} b_m = b_{-m} &= -\left((-i)^m \frac{J_m(nkR) J'_m(kR) - n J'_m(nkR) J_m(kR)}{J_m(nkR) H_m^{'(1)}(kR) - n J'_m(nkR) H_m^{(1)}(kR)} \right) \\ a_m = a_{-m} &= -\left((-i)^{m+1} \frac{n J_m(nkR) J'_m(kR) - J'_m(nkR) J_m(kR)}{n J_m(nkR) H_m^{'(1)}(kR) - J'_m(nkR) H_m^{(1)}(kR)} \right) \end{aligned} \tag{1.28}$$

Section efficace intégrée

On peut alors estimer la force de l'interaction entre la lumière et l'objet via les **sections efficaces de diffusion et d'absorption**. On s'intéresse cependant ici principalement à la section efficace de diffusion puisqu'on détecte le champ diffusé. On définit le vecteur de Poynting représentant la puissance portée par le champ incident :

$$\mathbf{R}_s = \frac{1}{2} \operatorname{Re}\{\mathbf{E}_s \times \mathbf{H}_s^*\}. \tag{1.29}$$

Nous reviendrons sur la signification physique de ce vecteur. La puissance totale diffusée par une portion de hauteur h du nanofil est donnée par le flux du vecteur de Poynting à travers une surface entourant le fil, comme un cylindre de rayon $r \gg R$:

$$P_s = h \int_{-\pi}^{\pi} r \, d\phi \, \left(\mathbf{R}_s \cdot \mathbf{e}_r \right) \tag{1.30}$$

$$= \pi r h \, c\, \varepsilon_0 E_0^2 \sum_{m=-\infty}^{\infty} |c_m|^2 \operatorname{Im}\left\{ H_m^{(1)*}(kr) H_m^{(1)'}(kr) \right\} \tag{1.31}$$

où $c_m = b_m$ pour la polarisation parallèle au nanofil et a_m pour la polarisation perpendiculaire. Il se trouve que $\mathrm{Im}\{H_m^{(1)*}(x)H_m^{(1)'}(x)\} = \frac{2}{\pi x}$ de sorte que :

$$P_s^{||} = 2h\,\frac{c\,\varepsilon_0 E_0^2}{k}\sum_{m=-\infty}^{\infty}|b_m|^2, \qquad P_s^{\perp} = 2hk\,c\,\varepsilon_0 E_0^2\sum_{m=-\infty}^{\infty}|a_m|^2 \tag{1.32}$$

La puissance totale incidente sur la portion de nanofil de hauteur h et donc d'aire apparente $2hR$ est :

$$P_i = hR\,c\,\varepsilon_0 E_0^2. \tag{1.33}$$

L'efficacité de diffusion est alors le rapport des puissances diffusée P_s et incidente P_i, ce qui définit les sections efficaces de diffusion $\sigma_s^{||}$ et $\sigma_s^{\perp}$:

$$\frac{P_s^{||}}{P_i} \equiv \frac{\sigma_s^{||}}{A} = \frac{2}{kR}\sum_{m=-\infty}^{\infty}|b_m(kR)|^2, \qquad \frac{P_s^{\perp}}{P_i} \equiv \frac{\sigma_s^{\perp}}{A} = \frac{2}{kR}\sum_{m=-\infty}^{\infty}|a_m(kR)|^2, \tag{1.34}$$

où $A = 2hR$ est l'aire apparente d'une portion de nanofil de hauteur h.

Remarque importante : Notons que le vecteur de Poynting que nous avons défini représente uniquement la puissance portée par le champ diffusé. Or, le découpage du champ en un champ diffusé et un champ incident, s'il est mathématiquement exact, n'a pas de sens physique rigoureux. Ce vecteur de Poynting $\mathbf{R}_s$ ne permet pas, par exemple, d'évaluer la force optique qui s'applique sur le nanofil : le vecteur de Poynting pertinent $\mathbf{R}$ intègre la totalité du champ, c'est-à-dire les champs "incident" et "diffusé", qui interfèrent. Le vecteur $\mathbf{R}_s$ n'a donc aucune pertinence physique en champ proche. C'est aussi ce vecteur $\mathbf{R}$ qui décrit la puissance détectée sans aucune précaution particulière en disposant un détecteur en n'importe quel point de l'espace autour du nanofil, où les champs incident et diffusé sont susceptibles d'interférer. Le vecteur de Poynting $\mathbf{R}_s$ est au contraire pertinent si le champ incident est éliminé en filtrant les petits angles et en s'abstenant de mesurer directement en face de l'incidence. Les sections efficaces définies n'ont donc de sens que dans ce cadre. On se limitera à ces définitions, en remarquant qu'elles décrivent correctement les puissances détectées derrière le nanofil (c'est-à-dire la puissance réfléchie), et en prenant la limite du champ lointain $r \gg R$.

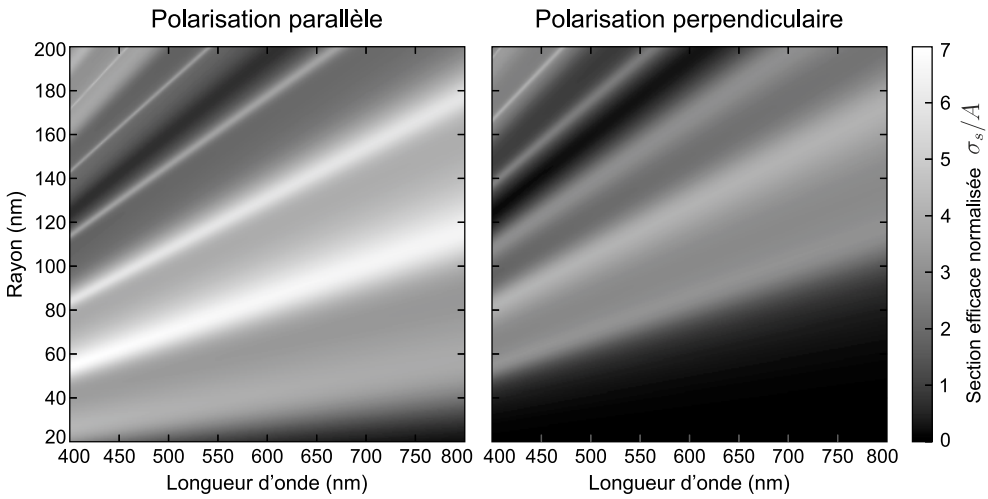


Figure 1.18 – Sections efficaces relatives $\sigma_s^{||}/A$ et $\sigma_s^{\perp}/A$ (avec $A = 2hR$), pour les polarisations parallèle et perpendiculaire au nanofil, en fonction de la longueur d'onde et du rayon. Une section horizontale de ces matrices représentent donc les spectres des résonances de Mie d'un nanofil de rayon donné.

Le rayon apparaît toujours couplé au vecteur d'onde dans les expressions des champs et des sections efficaces définies, de sorte qu'il existe une quasi-homothétie (à peine imparfaite à cause de la dépendance de l'indice optique en longueur d'onde) entre les spectres des résonances pour différents rayons, comme le montre la Figure 1.18 représentant les efficacités de diffusion données par l'équation 1.34.

Une coupe horizontale de la sous-figure de gauche (correspondant à la polarisation parallèle au fil) est représentée sur la Figure 1.19 pour un rayon de 150 nm. Y sont également représentés les différents ordres m contribuant dans les expressions 1.34. Les ordres $m > 4$ ne contribuent pas pour ces plages de longueurs d'onde et de rayons (leur première résonance n'est pas visible). Cette figure permet de constater la variété des propriétés spectrales de diffusion des nanofils. Les résonances d'ordre élevé sont de plus en plus piquées, et apparaissent à longueurs d'ondes plus courtes. Cependant, les termes d'ordres faibles compliquent les spectres en contribuant à nouveau aux longueurs d'onde courtes, voir par exemple l'épaulement dû à la réapparition de l'ordre 1 à la longueur d'onde de la première apparition de l'ordre 4. Ces réapparitions des résonances sont une manifestation du caractère oscillant des fonctions de Bessel J_m dans les coefficients a_m et b_m : après la première contribution résonante à basse longueur d'onde, celle-ci revient plusieurs fois se comparer favorablement au rayon pour produire une nouvelle résonance dans le spectre de l'ordre m. La même phénoménologie est bien sûr retrouvée si à l'inverse la longueur d'onde est fixée et que l'on envisage un balayage du rayon.

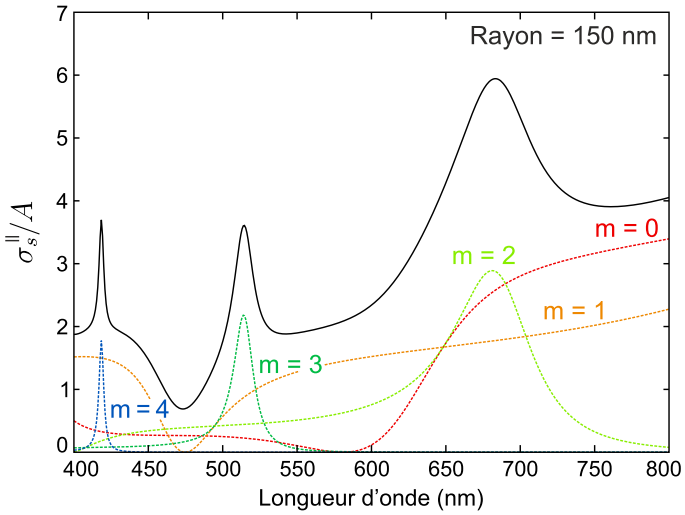


Figure 1.19 – Spectre (calculé) de résonances de Mie de polarisation parallèle à un nanofil de rayon $R = 150$ nm (trait noir). Les différents ordres $m < 4$ qui contribuent à ce spectre dans les équations 1.34 sont représentés en traits pointillés de couleur.

Section efficace angulaire

L'équation 1.34 ne donne que l'intensité totale diffusée par le nanofil, c'est-à-dire qu'elle masque le caractère directionnel très particulier des résonances de Mie. On définit la section efficace angulaire $\frac{d\sigma_s}{d\phi}(\phi)$:

$$\sigma_s = \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\sigma_s}{d\phi}(\phi)\, d\phi, \tag{1.35}$$

soit :

$$\frac{1}{A}\frac{d\sigma_s^{||}}{d\phi}(\phi) \equiv \frac{r}{2R}\sum_{m,\ell} \mathrm{Re}\Big\{ i b_m b_\ell^* H_m^{(1)}(kr) H_\ell^{(1)'*}(kr) e^{i(m-\ell)\phi} \Big\} \tag{1.36}$$

et

$$\frac{1}{A}\frac{d\sigma_s^{\perp}}{d\phi}(\phi) \equiv \frac{r}{2R}\sum_{m,\ell} \mathrm{Re}\Big\{ia_m^* a_\ell H_\ell^{(1)}(kr) H_m^{(1)\prime *}(kr) e^{i(\ell-m)\phi}\Big\}. \tag{1.37}$$

Notons que les trois dernières définitions semblent afficher une dépendance en r, contrairement à la section efficace intégrée. En réalité, cette dépendance est limitée au champ proche ($r \simeq R$) et disparaît asymptotiquement en champ lointain. Comme nous n'étudions que la diffusion en champ lointain, (voir la "remarque importante"), cette dépendance est gommée. Dans la suite, on se contente de calculer les sections efficaces angulaires pour $r = 100\,\mu$m ($\gg R$ typique, max. 400 nm).

Diagrammes de rayonnement partiels

Chaque résonance d'ordre m_0 est caractérisée par un **diagramme de rayonnement partiel** (voir Figure 1.20), c'est-à-dire sur la forme de la section efficace si l'on sélectionne uniquement les ordres m_0 et $-m_0$ (c'est-à-dire $n = \pm m_0, \ell = \pm m_0$ dans l'équation 1.36) :

$$\frac{1}{A}\frac{d\sigma_s^{||}}{d\phi}(\phi)\bigg|_{m_0} = \frac{2}{\pi k R}\,|b_{m_0}|^2\,\Big(1 + (-1)^{m_0}\cos(2m_0\phi)\Big) \tag{1.38}$$

et

$$\frac{1}{A}\frac{d\sigma_s^{\perp}}{d\phi}(\phi)\bigg|_{m_0} = \frac{2}{\pi k R}\,|a_{m_0}|^2\,\Big(1 + (-1)^{m_0}\cos(2m_0\phi)\Big) \tag{1.39}$$

La dépendance en r des équations 1.36 et 1.37 a disparu : elle n'apparaît qu'avec l'interférence entre résonances des différents ordres.

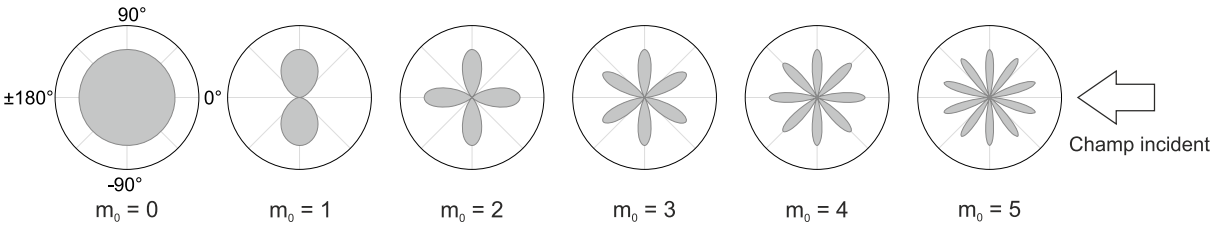


Figure 1.20 – Allure des diagrammes de rayonnement associés aux 6 premiers ordres des résonances de Mie pour la polarisation parallèle.

Diagrammes de rayonnement complets

Les diagrammes de diffusion résultants, calculés à partir des sections efficaces angulaires 1.36 et 1.37 prennent cependant des formes complexes et variées en fonction du rayon et de la longueur d'onde, dont quelques exemples sont représentés sur la Figure 1.21.

Une fois ces diagrammes connus, il est possible de simuler une mesure de spectre réalisée par un montage réel en intégrant les contributions des sections dans les directions mesurées. En première approximation, on donnera un poids de 1 à toutes les directions à l'intérieur d'un angle de collection ϕ_c défini par l'ouverture numérique du montage de collection NA $= \sin(\phi_c/2)$. Dans ce modèle, la puissance collectée en réflexion est ainsi :

$$I_c^{(\mathrm{refl})} = c\,\varepsilon_0 E_0^2 \int_{-\phi_c/2}^{\phi_c/2} d\phi\,\frac{d\sigma_s}{d\phi}(\phi). \tag{1.40}$$

Les spectres effectivement collectés sont représentés sur la Figure 1.22 pour un fil de rayon 150 nm. En particulier, on a représenté les spectres collectés par deux détecteurs fictifs placés

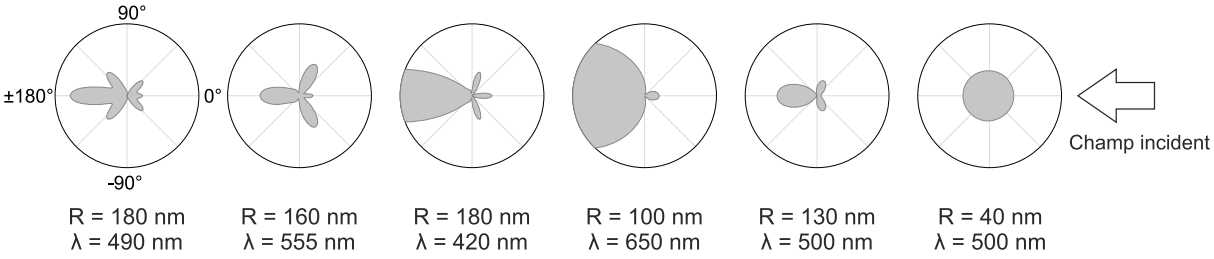


Figure 1.21 – Exemples de diagrammes de diffusion complets pour la polarisation parallèle au fil. Le cercle noir correspond à $\sigma_s^{||}(\phi)/A = 1.75$ (cette normalisation est choisie arbitrairement pour que l'on puisse observer les détails des diagrammes).

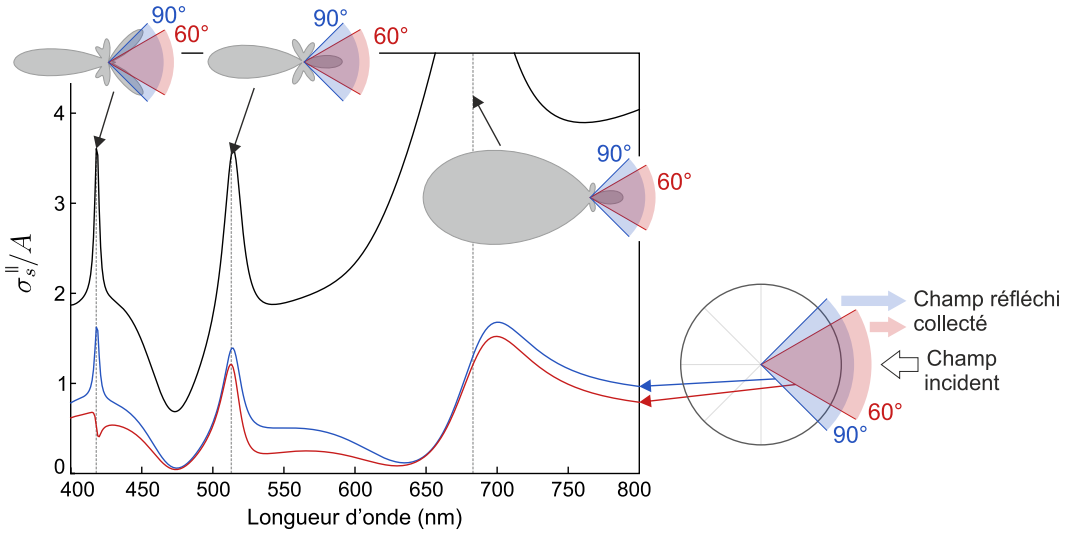


Figure 1.22 – Spectres (calculés) de lumière collectée en réflexion, exprimés comme des sections efficaces relatives pour des ouvertures numériques NA = 0.5 ($\phi_c = 60°$) et 0.71 ($\phi_c = 90°$) et un éclairage polarisé le long du nanofil. On a aussi rappelé en trait plein noir l'efficacité de diffusion totale pour comparaison, ainsi que quelques diagrammes de diffusion attendus aux résonances.

du côté de l'incidence (côté réflexion), d'angle de collection 60° et 90° (c'est-à-dire d'ouvertures numériques 0.5 et 0.71). Etant donné le diagramme de diffusion complexe de la résonance d'ordre 4 (autour 420 nm), cette résonance est très mal détectée par un objectif de basse ouverture numérique placé en réflexion. Le choix du mode de collection a donc un impact significatif sur le spectre de diffusion observé : il convient de le prendre en compte pour décrire correctement les couleurs perçues.

Pré-caractérisation optique des nanofils

Un algorithme de reconstruction des couleurs (plus exactement, des *chromaticités*) à partir des spectres a été développé : il est expliqué en Annexe B de ce manuscrit. Sur la Figure 1.23, on a ainsi simulé les couleurs observées à travers l'objectif de microscope Zeiss 50x, d'ouverture numérique 0.55 qui a servi pour imager les nanofils, pour l'indice de réfraction du SiC 3C $n(\lambda) = 2.5538 + 3.42 \times 10^{-14}\,(\mathrm{m}^2)/\lambda^2$.

Une comparaison des couleurs du nanofil et du nuancier de la Figure 1.23 est réalisée à l'œil, avec l'assistance d'un programme dédié. Celui-ci juxtapose une couleur calculée à partir d'un rayon théorique et une couleur prélevée d'une photographie prise après une minutieuse balance des blancs. Le programme permet de faire varier continûment le rayon théorique et donc, simultanément la couleur calculée correspondante, jusqu'à la teinte jugée la plus ressemblante par

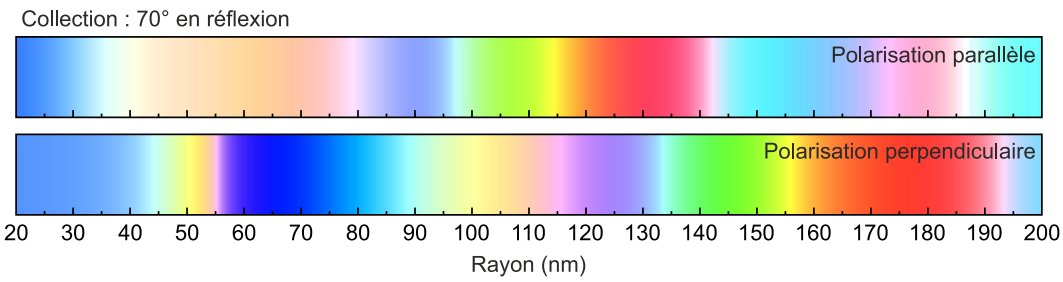


Figure 1.23 – Nuancier de couleurs théoriques apparentes calculées pour la gamme utile de rayons des nanofils et pour l'ouverture numérique de l'objectif de microscope utilisé : 0.55. Les nanofils fins paraissent bleus : la seule résonance de Mie qui contribue (d'ordre $m = 0$) apparaît en effet de ce côté du spectre visible. Lorsque le rayon augmente, cette résonance, qui est la plus large et la plus intense, balaie le spectre, ce qui résulte en un enchaînement vaguement ressemblant à un arc-en-ciel sur la Figure 1.23. Les gros nanofils, enfin, apparaissent rouges et leurs couleurs sont moins franches, de nombreuses résonances contribuant au champ diffusé

l'utilisateur. Les couleurs calculées pour les deux polarisations sont utilisées simultanément pour mieux contraindre le résultat.

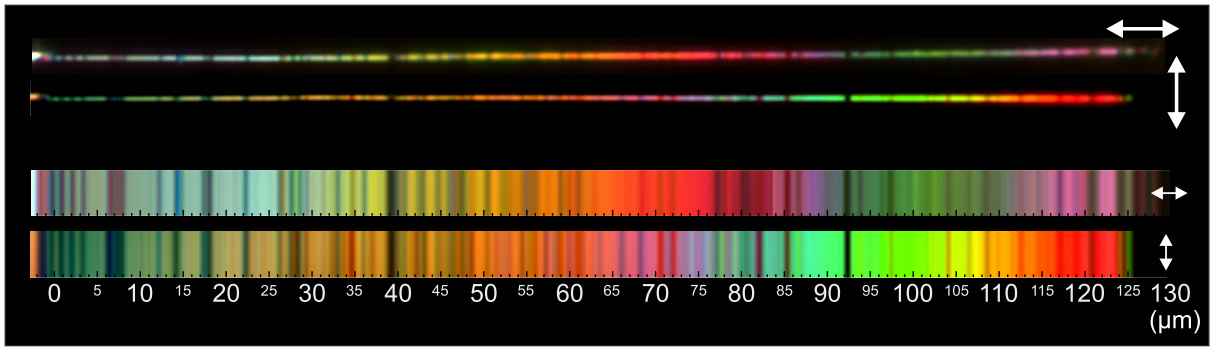


Figure 1.24 – En haut : Images optiques d'un nanofil conique sous lumière blanche polarisée **parallèlement** à l'axe du fil et **perpendiculairement** au fil. En bas : reproduction des couleurs (par dilatations verticales des images de nanofils) graduées en micromètres depuis le point d'attache du fil (à gauche).

Les résultats de cette comparaison pour le fil de la Figure 1.24 sont représentés sur la Figure 1.25, comparés aux rayons analysés à partir d'une image au MEB (plus précisément, du recollement de 28 images MEB utilisées pour obtenir une résolution transversale suffisante). Il s'agit d'un fil relativement épais dans la collection d'échantillons étudiée et qui présente la particularité d'être **conique**.

Etant donné ce bon accord, la déduction du rayon à partir de la photographie optique semble être une méthode satisfaisante de pré-caractérisation. L'écart entre les deux mesures atteint au maximum 15 nm hors impuretés collées sur le nanofil (mais la mesure du rayon au MEB n'est plus très fiable à l'extrémité du nanofil où le faisceau d'électrons de mesure excite la vibration du fil et élargit artificiellement les images).

Caractérisation optique de la structuration des nanofils et des défauts d'empilement

On a également corrélé les interruptions dans les zones colorées, observées au microscope, avec les défauts observés au MEB. Pour cela, on a répertorié sur les images MEB, d'une part, les positions des particules accidentellement collées sur un nanofil, et d'autre part, les positions des zones de plus faible rayon des nanofils dont on a vu qu'elles correspondaient probablement à des

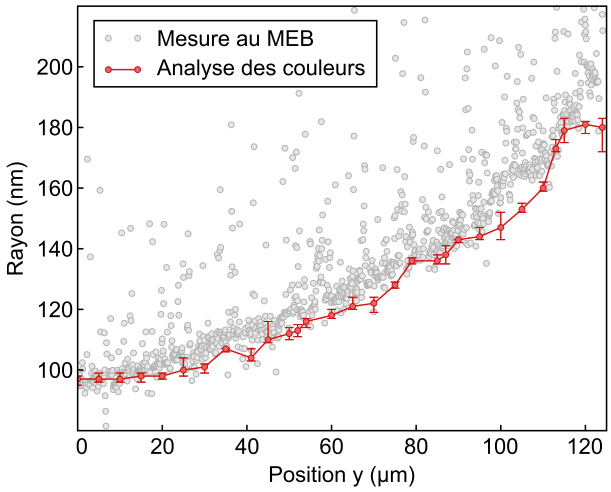


Figure 1.25 – Comparaison des rayons mesurés au MEB et déduits de l'analyse des couleurs pour le nanofil conique de la Figure 1.24. Les barres d'incertitude correspondent à une plage de couleurs encore raisonnablement semblables à l'œil à la couleur observée (il s'agit donc d'un critère relativement subjectif). La mesure MEB a été réalisée après l'analyse des couleurs pour éviter d'influencer l'évaluation subjective de celles-ci.

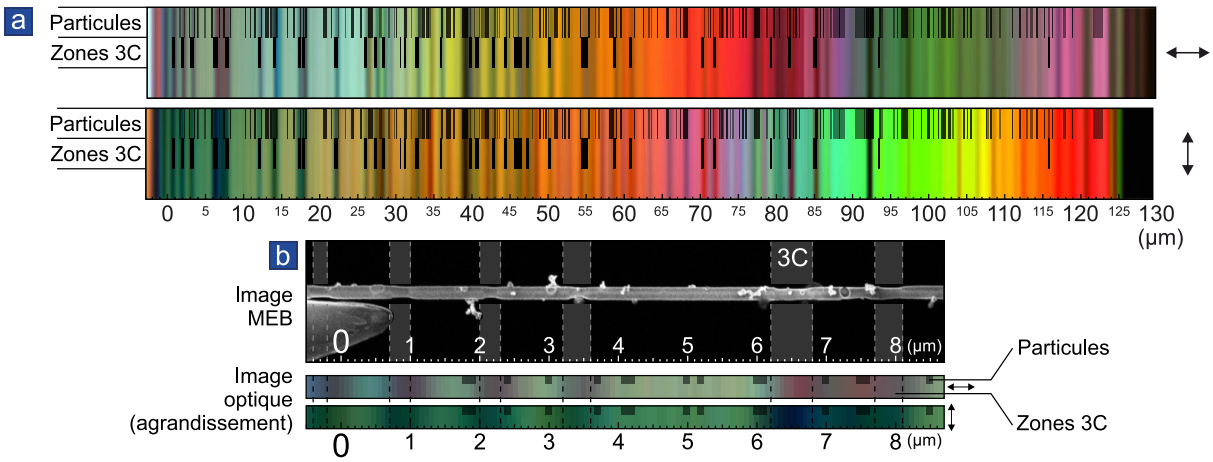


Figure 1.26 – **Corrélation des défauts de couleur observés au microscope optique et des défauts de structures observés au MEB**. **a.** Couleurs du nanofil imagé en Figure 1.24. On a reporté en traits foncés, d'une part, les positions des particules collées sur ce nanofil (présentes en relative grande quantité), d'autre part les zones identifiées comme étant de polytype 3C, les deux informations étant tirées de la mesure au MEB. **b.** En haut : extrait de l'image MEB utilisée et quelques zones 3C, (représentant 2 images MEB sur les 28 recollées pour obtenir une résolution suffisante malgré le rapport d'aspect du nanofil). En bas : agrandissement des images optiques correspondant à cette zone sur lequel on a reporté les positions des zones 3C et des particules collées, mesurées sur les images MEB.

zones d'alternance de phase cristallographique. Ces positions sont reportées sur la photographie optique sur la Figure 1.26b. Il apparaît une relativement bonne corrélation entre les positions des interruptions de couleur et des zones d'alternance de phase. La couleur de ces zones n'a pas pu être corrélée de manière satisfaisante avec le diamètre local (l'approximation du cylindre infini peut commencer à être erronée). Cette corrélation suggère cependant qu'il est possible d'évaluer rapidement la densité de défauts d'un nanofil en imagerie optique.

1.3 Mécanique d'un nanofil

Cette section détaille le comportement mécanique spécifique des nanofils. La déformation tridimensionnelle de l'oscillateur peut être projetée sur une série de modes propres discrets. La réponse de ce système de modes propres peut ensuite être modélisée par celle d'un oscillateur ponctuel soumis à une collection de forces de rappel, au prix de quelques efforts de normalisation de la masse et des forces appliquées sur l'oscillateur. Pour simplifier cette étude, nous la limiterons dans un premier temps à une direction d'oscillation. Les origines de la dissipation de l'énergie mécanique dans les nanofils utilisés seront ensuite rapidement discutées. Enfin, les équations de mouvement de l'oscillateur ponctuel modèle seront généralisées à deux dimensions puisque l'extrémité libre du nanofil oscille sur une surface (presque plane).

1.3.1 L'équation d'Euler Bernoulli

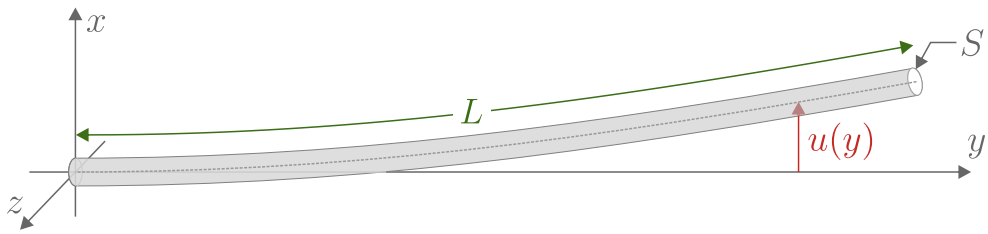


Figure 1.27 – Schéma d'un nanofil en déflexion.

La Figure 1.27 donne les notations utilisées : y est la coordonnée le long de l'axe du fil au repos, x une coordonnée transverse. $u(y,t)$ est le déplacement de la ligne neutre du nanofil (en pointillé sur la Figure). S est la section du fil, E son module d'Young et ρ sa masse volumique. La dynamique de la déformation du nanofil $u(y,t)$ est régie par l'équation d'Euler-Bernoulli :

$$\rho S \frac{\partial^2 u}{\partial t^2}(y,t) + EI \frac{\partial^4 u}{\partial y^4}(y,t) = 0. \tag{1.41}$$

où I est le moment d'inertie quadratique $I = \iint_S dxdz\ x^2$, qui vaut $I = \frac{\pi R^4}{4}$ si le fil est un cylindre plein de rayon R. La transformée de Fourier temporelle de l'équation 1.41 est :

$$\frac{\partial^4 u}{\partial y^4}[y,\Omega] = k^4 u[y,\Omega]. \tag{1.42}$$

On a ici noté $u[y,\Omega]$ la transformée de Fourier temporelle de $u(y,t)$. k est défini par l'équation de dispersion :

$$\Omega = k^2 \sqrt{\frac{EI}{\rho S}} \tag{1.43}$$

La forme générale des solutions de l'équation 1.42 est :

$$u[y,\Omega] = A\cos\big(ky\big) + B\sin\big(ky\big) + C\,\mathrm{ch}\big(ky\big) + D\,\mathrm{sh}\big(ky\big). \tag{1.44}$$

Des 5 paramètres (A,B,C,D,k), seuls 4 sont indépendants, le 5ème pouvant être un paramètre d'amplitude globale extrinsèque au fil. Notons que tous ces paramètres dépendent de Ω. L'encastrement supposé rigide du fil et l'absence de moment de torsion et de force appliqués à l'extrémité du nanofil imposent :

$$u[0,\Omega] = 0, \quad \frac{\partial u}{\partial y}[0,\Omega] = 0, \quad \frac{\partial^2 u}{\partial y^2}[L,\Omega] = 0, \quad \frac{\partial^3 u}{\partial y^3}[L,\Omega] = 0 \tag{1.45}$$

Les solutions sont alors discrètes, indicées par n un entier relatif dans l'ordre croissant des k. On tire des conditions aux limites :

$$\cos(k_n L)\mathrm{ch}(k_n L) = -1, \tag{1.46}$$

$$A_n = -C_n, \quad B_n = -D_n, \quad \frac{A_n}{B_n} = -\frac{\sin k_n L + \mathrm{sh}\, k_n L}{\cos k_n L + \mathrm{ch}\, k_n L}. \tag{1.47}$$

n	$k_n L$	Ω_n/Ω_{n-1}
1	1.87510	-
2	4.69409	6.267
3	7.85476	2.800
4	10.9955	1.960
5	14.1372	1.653

Table 1.1 – Paramètres k des profils des 5 premiers modes propres de flexion.

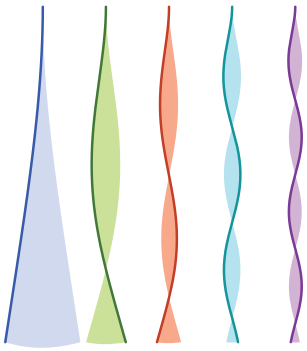


Figure 1.28 – Allure des 5 premiers modes propres $\{u_n(y)\}_{n=1..5}$,

On choisira de normaliser les modes propres $u_n(y)$ adimensionnés pour le produit scalaire suivant :

$$\langle a, b\rangle \equiv \int_0^L \frac{dy}{L}\, a(y)b(y), \tag{1.48}$$

soit $\langle u_n, u_n\rangle = 1$. Les profils de vibration théoriques des 5 premiers modes sont représentés Figure 1.28. Les trois premiers modes d'un nanofil ont été imagés en Figure 1.29 par la mesure de l'écart-type de la position $\sqrt{\Delta x_{\mathrm{th}}^2}$ (obtenu en intégrant le spectre de position selon l'équation 1.18, dans les trois régions spectrales autour de chacun des trois modes).

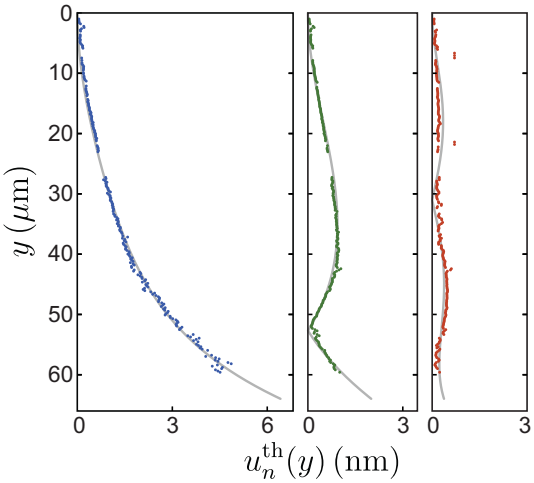


Figure 1.29 – Déplacement quadratique moyen en fonction de l'altitude de mesure y pour les 3 premiers modes à 77 kHz, 221 kHz et 719 kHz. Les écarts théoriques des fréquences ne sont pas retrouvés pour ce fil qui est empesé d'une particule sphérique d'un diamètre d'environ 4 μm à $y \simeq 25\,\mu$m du point de fixation du nanofil, dans la zone sans signal. La présence de cette particule n'affecte cependant pas le profil spatial des premiers modes propres qui sont d'ailleurs en général peu affectés par les aspérités géométriques, d'après des simulations par éléments finis.

1.3.2 Réponse du nanofil à une excitation - Formalisme de Green

Fonction de Green de la déflexion d'un nanofil

On décrit ici la réponse du nanofil à une excitation extérieure localisée, ce qui conduit naturellement à introduire le formalisme des fonctions de Green. Celui-ci sera utile par la suite pour estimer l'influence d'une force extérieure non ponctuelle.
L'équation d'Euler-Bernoulli est réécrite pour intégrer une **répartition linéique de force** extérieure $f(y)$ dépendant de la coordonnée verticale y du point d'application :

$$\partial_y^4 u(y,t) + \frac{\rho S}{EI}\partial_t^2 u(y,t) = \frac{1}{EI} f\left(y,t\right), \tag{1.49}$$

soit par transformée de Fourier :

$$\frac{\partial^4 u}{\partial y^4}[y,\Omega] - k^4 u[y,\Omega] = \frac{f[y,\Omega]}{EI}, \tag{1.50}$$

avec $f[y,\Omega]$ la transformée de Fourier de $f\left(y,t\right)$, et les mêmes conditions aux limites que précédemment. La réponse mécanique du nanofil à une altitude y dépend donc de la force appliquée à *toutes* les altitudes, y compris $y' \neq y$. Le formalisme des **fonctions de Green** est donc bien adapté à cette situation physique. En outre, il permet de tenir compte d'un **profil de mesure** éventuellement non ponctuel : dans le cas de la mesure optique utilisée dans cette thèse, il s'agit par exemple du profil gaussien du faisceau de mesure. On notera $\tilde{h}(y)$ cette fonction de lecture générique sans dimension et dépendante de l'altitude y (en utilisant le signe $\sim$ pour souligner l'absence de dimension), et on se servira plus tard de sa version linéique $\tilde{h}(y)/L$.

La fonction de Green adimensionnée $G[y,y',\Omega]$ du nanofil est la solution de l'équation :

$$\frac{\partial^4 G}{\partial y^4} - k^4 G = \frac{1}{L^3}\delta(y-y'), \tag{1.51}$$

où on a toujours $k^2 = \Omega\sqrt{\frac{\rho S}{EI}}$, avec les mêmes conditions aux limites que précédemment pour $u(y)$. Sader donne l'expression de cette fonction de Green [79] :

$$\begin{aligned}
G[\langle y,y'\rangle,\Omega] = {} & \frac{1}{4(kL)^3(1+\cos kL \operatorname{ch} kL)} \\
& \times \Bigg\{ \Big[\big(\cos kL + \operatorname{ch} kL\big)\big(\operatorname{ch} ky - \cos ky\big) + \big(\sin kL - \operatorname{sh} kL\big)\big(\operatorname{sh} ky - \sin ky\big) \Big] \\
& \qquad \times \Big[\sin k(y'-L) + \operatorname{sh} k(y'-L) \Big] \\
& + \Big[\big(\cos kL + \operatorname{ch} kL\big)\big(\sin ky - \operatorname{sh} ky\big) - \big(\sin kL + \operatorname{sh} kL\big)\big(\cos ky - \operatorname{ch} ky\big) \Big] \\
& \qquad \times \Big[\cos k(y'-L) + \operatorname{ch} k(y'-L) \Big] \Bigg\}.
\end{aligned} \tag{1.52}$$

Pour remplacer une écriture de la fonction de Green par morceaux [79], on a introduit la notation d'ordre $\langle y,y'\rangle$ telle que : $G[\langle y,y'\rangle,\Omega] = G[y,y',\Omega]$ si $y \leq y'$, et $G[\langle y,y'\rangle,\Omega] = G[y',y,\Omega]$ sinon.

Le profil de vibration obtenu sous l'effet d'une répartition linéique de force $f[y',\Omega]$ est alors une convolution de la fonction de Green avec la densité linéique de force :

$$u[y,\Omega] = \frac{L^4}{EI}\int_0^L \frac{dy'}{L}\; G[\langle y,y'\rangle,\Omega]\;\; f[y',\Omega]. \tag{1.53}$$

La première vignette de la Figure 1.30 donne l'allure d'amplitude de la réponse adimensionnée $G[\langle y, y'\rangle, \Omega]$ mesurée à l'extrémité du nanofil lorsque celui-ci est excité par une force ponctuelle et monochromatique. La fréquence d'excitation varie le long de l'axe horizontal (à travers le coefficient k) et balaye les six premiers modes propres du nanofil, tandis que le point d'application de la force est balayé le long de l'axe vertical. Les deux autres vignettes représentent l'amplitude de la réponse mesurée à d'autres altitudes sur le nanofil.

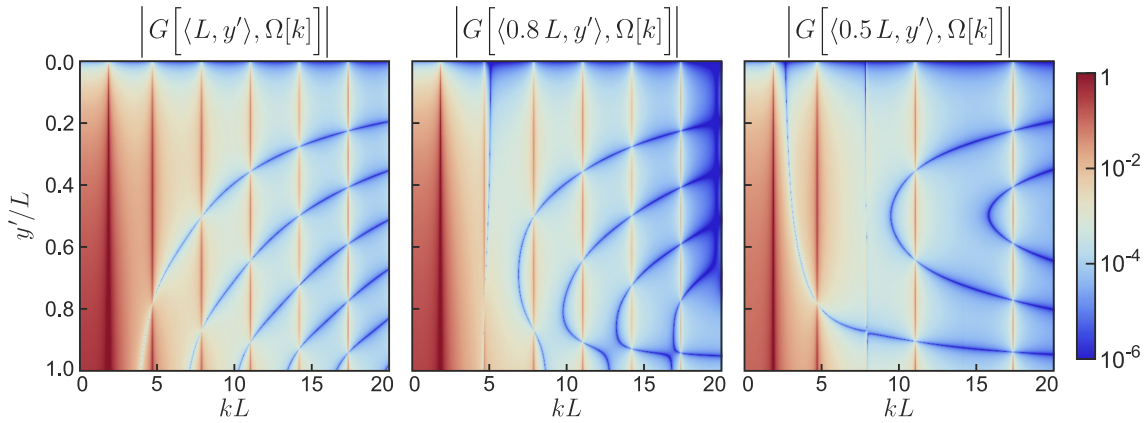


Figure 1.30 – **Valeurs absolues des réponses adimensionnées à diverses altitudes du nanofil** (à l'extrémité libre $y = L$, en $y = 0.8L$ et en $y = 0.5L$ de gauche à droite) à une excitation ponctuelle monochromatique, en fonction de la fréquence d'excitation (variée à travers le coefficient k correspondant) de cette excitation et du point d'application y'. Les **lignes apparentes verticales rouges** correspondent aux **résonances** des 6 premiers modes propres. Les **courbes apparentes bleues** représentent les positions où les contributions des différents modes propres hors résonance **interfèrent destructivement**. Ces positions dépendent fortement de la fréquence d'excitation ainsi que des positions de mesure et d'excitation et coïncident avec les **nœuds de vibration à résonance**. Pour les besoins de la représentation, une très petite constante a été ajoutée dans le dénominateur de l'expression de la fonction de Green pour la régulariser et la représentation de la réponse adimensionnée a été tronquée à 1.

Factorisation de la fonction de Green et décomposition modale

Les coefficients k qui correspondent à des fréquences propres, notés k_n, sont les solutions de l'équation 1.46 : $\cos k_n L \operatorname{ch} k_n L = -1$ données dans la table 1.1, de sorte qu'ils vérifient l'identité trigonométrique :

$$\frac{\cos k_n L + \operatorname{ch} k_n L}{\sin k_n L + \operatorname{sh} k_n L} = \frac{\operatorname{sh} k_n L - \sin k_n L}{\cos k_n L + \operatorname{ch} k_n L}. \tag{1.54}$$

Cette propriété permet de factoriser exactement la fonction de Green évaluée *aux fréquences propres* entre une fonction du point de mesure y et une fonction du point d'application de la force y' :

$$\frac{L^3}{EI} G[\langle y, y'\rangle, \Omega_n] = \chi_n \, v_n(y) \, w_n(y'), \tag{1.55}$$

où il a été fait le choix de dimensionner le membre de gauche comme une susceptibilité mécanique (en m.N^{-1}) pour permettre au coefficient χ_n qui vient d'être introduit d'avoir également la dimension d'une susceptibilité, les fonctions v_n et w_n étant alors définies sans dimension. Cette factorisation donne :

$$\begin{cases} v_n(y) \;\propto -\big(\sin k_n L + \operatorname{sh} k_n L\big)\big(\cos k_n y - \operatorname{ch} k_n y\big) + \big(\cos k_n L + \operatorname{ch} k_n L\big)\big(\sin k_n y - \operatorname{sh} k_n y\big) \\ w_n(y') = v_n(y') \end{cases}$$

où la fonction $w_n(y')$ a été reformulée à force de trigonométrie. Finalement, on trouve que les facteurs de la fonction de Green aux fréquences de résonance coïncident exactement avec le

profil de mode introduit plus tôt dans la résolution de l'équation d'Euler-Bernoulli du paragraphe précédent 1.3.1 :

$$v_n = w_n = u_n. \tag{1.56}$$

Cette factorisation reste approximativement valable sur une plage fréquentielle autour des fréquences propres. Cela est particulièrement vrai pour le premier mode propre, et reste une bonne approximation lorsqu'on mesure les modes d'ordre supérieurs à condition que le profil d'excitation ne soit pas localisé ou significatif près des nœuds de l'un des modes, ou encore proche des zones d'interférence entre modes. En négligeant la réponse hors résonance, la fonction de Green à toutes les fréquences peut alors être approchée par une somme de fonctions dont les dépendances en Ω, y et y' sont factorisées, en faisant porter aux coefficients χ_n la dépendance en Ω :

$$\frac{L^3}{EI} G[\langle y, y'\rangle, \Omega] \simeq \sum_n \chi_n[\Omega] u_n(y) u_n(y'). \tag{1.57}$$

Dans un modèle plus réaliste où l'équation d'Euler-Bernoulli inclut un terme de dissipation, χ_n est approché par une susceptibilité d'oscillateur ponctuel telle que celle décrite dans la partie 1.1.3 :

$$\chi_n = \frac{1}{M_n(\Omega_n^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega)}. \tag{1.58}$$

La masse qui apparaît dans la susceptibilité χ_n est la masse dynamique du mode n [80] :

$$M_n = M\langle u_n, u_n\rangle, \tag{1.59}$$

M étant la masse physique du nanofil. Les deux masses coïncident en l'occurrence car u_n est normalisé à 1. On envisage à présent un nanofil soumis à une densité linéique de force $F_0[\Omega] \times \tilde{f}(y')$ (où $\tilde{f}$ est défini sans dimension et F_0 porte la dimension de la force). Le profil spatial de mesure $h(y)$ pondère les vibrations mesurées le long du nanofil. Les profils de mesure $h(y)$ et de distribution de la force $f(y)$ sont supposés normalisés pour le produit scalaire introduit plus haut :

$$\langle \tilde{f}, \tilde{f}\rangle = \int_0^L \frac{dy}{L}\, \tilde{f}^{\,2}(y) = 1, \quad \langle \tilde{h}, \tilde{h}\rangle = \int_0^L \frac{dy}{L}\, \tilde{h}^2(y) = 1. \tag{1.60}$$

La pondération longitudinale des vibrations par le profil de mesure donne le déplacement équivalent mesuré :

$$\delta x[\Omega] = \int_0^L \frac{dy}{L}\, \tilde{h}(y)\, u[y, \Omega], \tag{1.61}$$

soit, d'après l'équation 1.53 :

$$\begin{aligned} \delta x[\Omega] &= \frac{L^3}{EI} \int_0^L \frac{dy'}{L} \int_0^L \frac{dy}{L}\, G[\langle y, y'\rangle, \Omega]\;\; F_0[\Omega]\;\; \tilde{f}(y')\, \tilde{h}(y) \\ &= \sum_n \langle u_n, \tilde{f}\rangle\, \langle u_n, \tilde{h}\rangle\, \chi_n[\Omega] F_0[\Omega] \end{aligned} \tag{1.62}$$

Cette dernière équation établit le **développement modal**. Celui-ci révèle que la réponse mesurée du nanofil à une force-test peut être décrite comme une somme de contributions de chaque mode propre de vibration. On a introduit manuellement la dissipation dans l'expression de la susceptibilité mécanique : en vertu du théorème fluctuation-dissipation, la dissipation de chaque mode est associée à une force de Langevin $\delta F_{\mathrm{th,n}}$ par mode mécanique. Chaque force de Langevin ainsi introduite est incorrélée à toutes les autres. Ainsi, la dynamique mesurée du nanofil s'écrit [80] :

$$\delta x[\Omega] = \sum_n \langle \tilde{h}, u_n\rangle\, \chi_n[\Omega] \Big(\langle \tilde{f}, u_n\rangle F_0[\Omega] + \delta F_{\mathrm{th},n}[\Omega] \Big). \tag{1.63}$$

Par définition, les forces de Langevin appliquées sur chaque mode vérifient chacune le théorème fluctuation-dissipation :

$$S_{F_{\mathrm{th},n}}[\Omega] = -\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\left[\frac{1}{\chi_n[\Omega]}\right]. \tag{1.64}$$

1.3.3 Masse effective

On suit la progression de [80]. En définissant une collection de susceptibilités effectives $\chi_n^{\mathrm{eff}}[\Omega] = \langle \tilde{h}, u_n\rangle \langle \tilde{f}, u_n\rangle \chi_n[\Omega]$ et de forces de Langevin effectives $\delta F_{\mathrm{th},n}^{\mathrm{eff}}[\Omega] = \delta F_{\mathrm{th},n}[\Omega]\chi_n[\Omega]/\langle \tilde{f}, u_n\rangle$, l'équation 1.63 peut être réécrite :

$$\delta x[\Omega] = \sum_n \chi_n^{\mathrm{eff}}[\Omega]\left(F_0[\Omega] + \delta F_{\mathrm{th},n}^{\mathrm{eff}}[\Omega]\right), \tag{1.65}$$

mais les forces de Langevin effectives $\delta F_{\mathrm{th},n}^{\mathrm{eff}}[\Omega]$ et les susceptibilités effectives $\chi_n^{\mathrm{eff}}[\Omega]$ que nous venons d'introduire artificiellement ne vérifient le théorème fluctuation-dissipation 1.64 que si $\langle \tilde{f}, u_n\rangle = \langle \tilde{h}, u_n\rangle$ pour tout n, c'est-à-dire **si le profil de force $\tilde{f}$ reproduit le profil de mesure $\tilde{h}$**. C'est donc la condition sur une force-test destinée à mesurer la réponse d'un oscillateur mécanique pour que la susceptibilité mesurée corresponde effectivement à celle qui décrit le bruit thermique. En outre, l'**action en retour** de la mesure s'exerce précisément avec le profil de la mesure et ne peut être correctement décrite qu'à partir de mesures de la susceptibilité réalisées dans ce cadre. La **masse effective** du mode n pondère alors à la fois $\chi_n^{\mathrm{eff}}[\Omega]$ et $S_{F_{\mathrm{th},n}^{\mathrm{eff}}}[\Omega]$ et vaut :

$$M_{\mathrm{eff},n} \equiv M\frac{\langle u_n, u_n\rangle}{\langle \tilde{h}, u_n\rangle^2}. \tag{1.66}$$

Dans le cas de nos expériences, les vibrations sont détectées par des techniques optiques qui impliquent des faisceaux d'extension transversale bien inférieure à la longueur du nanofil (et par exemple, à l'écart entre deux nœuds de vibration). L'approximation de la **détection ponctuelle** est alors justifiée. Pour une détection ponctuelle **à l'extrémité** d'un nanofil $h(y) = L\times\delta(y-L)$, la masse effective se réduit à :

$$M_{\mathrm{eff},n} = M\int_0^L \frac{dy}{L}\frac{u_n^2(y)}{u_n^2(L)}. \tag{1.67}$$

Les masses effectives des 5 premiers modes calculées dans cette acception sont rassemblées dans le tableau ci-dessous.

n	1	2	3	4	5
$M_{\mathrm{eff},n}/M$	0.2500	0.2500	0.2433	0.9547	0.9646

1.3.4 Dissipation acoustique

A pression ambiante, le principal mécanisme de dissipation des modes de vibrations des nanofils est l'amortissement acoustique. Lorsque l'oscillateur est plongé dans un gaz raréfié, la fréquence des collisions avec molécules de ce gaz est suffisamment faible pour qu'elles soient envisagées comme des événements individuels plutôt que comme une interaction visqueuse, ce qui correspond au régime de dissipation appelé **régime moléculaire libre** et correspond aux grands nombres de Knudsen ($K_{\mathrm{n}} > 10$) :

$$\mathrm{K_n} = \frac{\lambda}{d}, \tag{1.68}$$

où d est la taille caractéristique du système, ici le diamètre du nanofil et λ le libre parcours moyen des molécules :

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}n\sigma} = \frac{k_BT}{\sqrt{2}\sigma P} \tag{1.69}$$

avec n la densité du gaz, T sa température et P sa pression, et σ la section efficace des molécules de gaz (on peut prendre $7.8 \times 10^{-20}\,\mathrm{m}^2$ pour le diazote). Dans le cadre de cette thèse, les nanofils ont été utilisés à température ambiante et sous vide ($P = 10^{-5}$ à 10^{-2} mbar) : le libre parcours moyen est très grand devant le diamètre du nanofil et le nombre de Knudsen est alors supérieur à 10^{10} : le système est donc dans le régime moléculaire libre. On peut alors traiter la dissipation dans un cadre balistique, en effectuant un bilan d'impulsion sur le nanofil.

La méthode suivante a été utilisée pour évaluer la dissipation acoustique de nanotubes de carbone par Martin et des collaborateurs [81] ou de leviers AFM dans l'équipe d'E. Weig notamment par Bullard [82]. Le coefficient de traînée d'un cylindre dans un écoulement moléculaire libre a été calculé, par exemple, dans le cadre de l'étude de la dynamique des avions et satellites en haute atmosphère et dans l'espace [83, 84]. Dans le régime de **réflexion diffuse** où les molécules de gaz se thermalisent avec le fil au moment du choc, ce coefficient de traînée s'exprime en fonction des vitesses d'écoulement $\dot{u}$ et de réémission v [4] des molécules :

$$C_D = \frac{v}{\dot{u}}\left(\frac{\pi^{3/2}}{4} + \frac{3\sqrt{\pi}}{2}\right) + o\left(\frac{\dot{u}}{v}\right) = A \times \frac{v}{\dot{u}} + o\left(\frac{\dot{u}}{v}\right) \tag{1.70}$$

où on n'a gardé que le premier ordre en $\dot{u}/v$, la vitesse relative de l'oscillateur $\dot{u}$ étant bien inférieure à la vitesse quadratique moyenne ($\sqrt{3/2}v$) des molécules de gaz. Le coefficient numérique A vaut $A \simeq 4.051$. La force de traînée par unité de section effective est :

$$f_D = -\frac{1}{2} C_D\, \rho_f\, \dot{u}^2 \simeq -\frac{\rho_f}{2} A\, \dot{u} v \tag{1.71}$$

avec ρ_f la densité du fluide. La section apparente d'une portion de fil de hauteur dy est $d \times dy$, la puissance totale dissipée est donc :

$$-\int_0^L \dot{u}(y) f_D(y) d\, dy = A\, \frac{d\, \rho_f}{4} v \int_0^L \dot{u}^2(y)\, dy. \tag{1.72}$$

La puissance dissipée vaut par ailleurs dans le formalisme de l'oscillateur ponctuel :

$$\frac{M_{\mathrm{eff}} \Gamma \delta \dot{x}^2}{2} = \frac{1}{2} \Gamma \frac{\rho \pi d^2}{4} \int_0^L \dot{u}^2(y)\, dy. \tag{1.73}$$

d'où

$$\Gamma = A\, \frac{2v}{\pi d} \frac{\rho_f}{\rho} \simeq 2\pi\, \frac{P}{\rho d} \sqrt{\frac{m_g}{k_B T}} \times 0.580 \tag{1.74}$$

où P dénote la pression et m_g la masse d'une molécule de gaz. Finalement $\Gamma = \gamma P$ avec $\gamma/2\pi = 1.5$ à 8 Hz/Pa pour $d \in [80\,\mathrm{nm}, 400\,\mathrm{nm}]$, $m_g \simeq 4.8 \cdot 10^{-26}$ kg et $\rho_{\mathrm{SiC}} = 3210\,\mathrm{kg.m}^{-3}$.

La Figure 1.31 présente la mesure des taux de dissipation des polarisations mécaniques du premier mode propre $n = 1$ d'un nanofil fin ($d = 150\,\mathrm{nm}$). Le modèle prédit la susceptibilité à la dissipation acoustique $\gamma_{\mathrm{th}}/2\pi = 4.1$ Hz/Pa. Les taux mesurés en régime acoustique correspondent à $\gamma_1/2\pi = 7.1$ Hz/Pa et $\gamma_2/2\pi = 4.2$ Hz/Pa, ce qui correspond aux ordres de grandeur théoriques.

En outre, la dissipation acoustique cesse d'être le mécanisme de dissipation dominant à pression inférieure à 10^{-1} mbar et les facteurs de qualité saturent à $Q_{1,\mathrm{int}} = 620$ et $Q_{2,\mathrm{int}} = 521$ pour le fil utilisé dans la Figure 1.31 (il s'agit d'un fil de taux de dissipation inhabituellement

4. v est plus précisément la vitesse de réémission *la plus probable* v des molécules de gaz : $v = \sqrt{\frac{2k_B T}{m_g}}$ (m_g étant la masse d'une molécule de gaz).

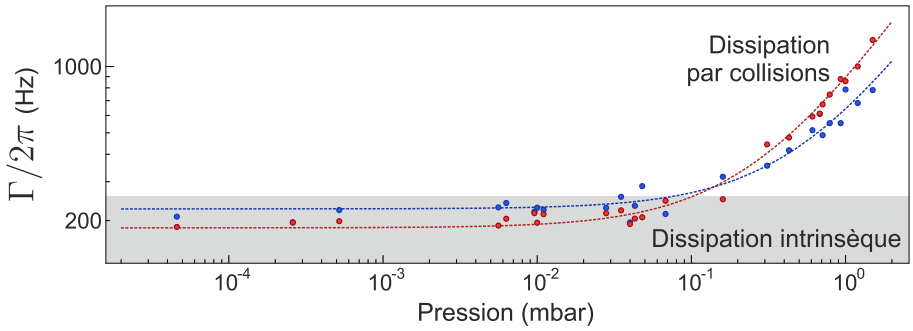


Figure 1.31 – Dépendance des taux de dissipation Γ de chacune des polarisations mécaniques (voir section 1.3.5) en fonction de la pression. On trouve $\gamma_1/2\pi = 7.1\,\mathrm{Hz/Pa}$ pour le mode basse fréquence ($\Omega_1/2\pi = 118.3\,\mathrm{kHz}$) en rouge, et $\gamma_1/2\pi = 4.2\,\mathrm{Hz/Pa}$ pour le mode haute fréquence ($\Omega_2/2\pi = 119.9\,\mathrm{kHz}$), ce qui semble mieux correspondre au diamètre de 150 nm pour lequel $\gamma_{\mathrm{th}} = 4.1\,\mathrm{Hz/Pa}$. La dissipation intrinsèque domine pour des pressions inférieures à 10^{-2} mbar et les valeurs de saturation sont $\Gamma_{1\mathrm{int}}/2\pi = 230\,\mathrm{Hz}$ et $\Gamma_{2\mathrm{int}}/2\pi = 190\,\mathrm{Hz}$ soit $Q_{1\mathrm{int}} = 620$ et $Q_{2\mathrm{int}} = 521$.

différents). La dissipation résiduelle est limitée par l'attache du nanofil : le recuit de la colle liant les nanofils à leur support permet d'augmenter les facteurs de qualité jusqu'à atteindre plusieurs milliers. Un recuit de quelques minutes à 500°C permet ainsi d'augmenter le facteur de qualité de sa valeur initiale entre 10 et 100 à une valeur comprise entre 1000 et 30000 à température ambiante. Ce recuit est maintenant effectué au laboratoire dans un four à induction développé par R. Haettel, fonctionnant sous vide secondaire.

1.3.5 Polarisations mécaniques

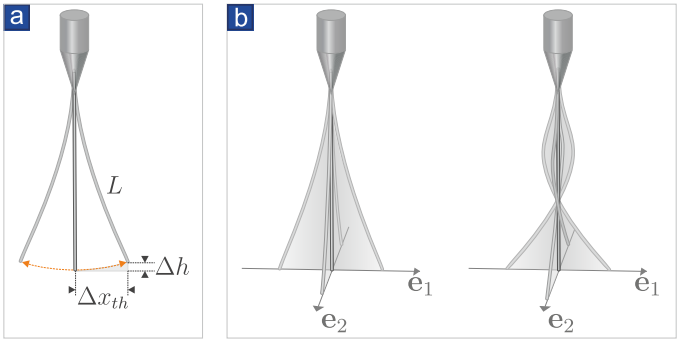


Figure 1.32 – **a.** Représentation schématique d'un nanofil en oscillation (exagérée). **b.** Représentations schématiques des polarisations mécaniques des deux premiers modes propres de déflexion.

Le déplacement vertical Δh de l'extrémité du nanofil sous l'effet de sa déflexion latérale vaut $\Delta h = \Delta x_{\mathrm{th}}^2/2L$. Pour le nanofil typique dont on a mesuré les modes Figure 1.29 le déplacement vertical associé (voir Figure 1.32) est de 0.3 pm, il est donc un million de fois plus petit que la taille du *waist* optique d'environ 370 nm sur laquelle la mesure de mouvement est moyennée. Le fil en mouvement Brownien est donc bien décrit par un oscillateur ponctuel à deux dimensions astreint à évoluer dans un plan. Notons également que les modes de compression longitudinale ou de respiration radiale ont des fréquences bien plus élevées (typiquement quelques dizaines de MHz et de GHz respectivement pour une vitesse du son $8430\,\mathrm{m.s^{-1}}$), de sorte qu'on ne les observe pas dans ces expériences.

Il existe deux **polarisations mécaniques propres** du mouvement de déflexion. Sous l'effet de brisures de symétrie (asymétrie du point d'encastrement ou asymétrie locale de la section du fil, défauts, etc.), la dégénérescence en fréquence de ces deux polarisations est levée typiquement de 0.1% à 2% selon les échantillons. Ces polarisations mécaniques propres sont systématiquement

perpendiculaires entre elles. Il s'agit d'une propriété découlant des symétries de la situation physique. Cette origine profonde rend cette propriété très robuste, elle a d'ailleurs été vérifiée pour tous les nanofils étudiés au cours de cette thèse. Comme on le verra au Chapitre 3, cette orthogonalité peut être brisée dans un champ de force rotationnel (qui affaiblit la symétrie). Dans la suite on supposera toujours que les polarisations propres (non perturbées) sont perpendiculaires entre elles.

Susceptibilité bidimensionnelle

On mesurera généralement (sauf mention contraire) les fluctuations de position des deux polarisations du **mode fondamental** $n = 1$. Dans la suite, l'indice n qui indiquait jusqu'alors l'ordre du mode est remplacé par les indices 1 et 2 qui dénotent les deux *polarisations* du premier mode, et ce sont également ces deux polarisations qui seront généralement appelées "modes" par extension. Par convention l'indice 1 est affecté au mode de plus basse fréquence, dont la susceptibilité statique est légèrement plus importante. Les directions des modes propres sont données par les vecteurs unitaires $\mathbf{e}_1$ et $\mathbf{e}_2$.

En supposant identiques les masses effectives des deux polarisations, l'équation de la dynamique du nanofil $\delta\mathbf{r}(t) \equiv \begin{pmatrix} \delta r_1(t) \\ \delta r_2(t) \end{pmatrix}$ s'écrit dans la base $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$:

$$\delta\ddot{\mathbf{r}}(t) = -\begin{pmatrix} \Omega_1^2 & 0 \\ 0 & \Omega_2^2 \end{pmatrix} \delta\mathbf{r}(t) - \begin{pmatrix} \Gamma_1 & 0 \\ 0 & \Gamma_2 \end{pmatrix} \delta\dot{\mathbf{r}}(t) + \frac{1}{M_{\text{eff}}} \begin{pmatrix} \delta F_{\text{th},1}(t) \\ \delta F_{\text{th},2}(t) \end{pmatrix} + \frac{1}{M_{\text{eff}}} \mathbf{F}_{\text{ext}}(t), \tag{1.75}$$

où on a introduit les pulsations propres Ω_1 et Ω_2, les taux d'amortissement Γ_1 et Γ_2 des polarisations, et le vecteur force de Langevin $\delta\mathbf{F}_{\text{th}}(t) = \begin{pmatrix} \delta F_{\text{th},1}(t) \\ \delta F_{\text{th},2}(t) \end{pmatrix}$. La susceptibilité mécanique matricielle :

$$\boldsymbol{\chi}[\Omega]^{-1} = M_{\text{eff}} \begin{pmatrix} \Omega_1^2 - \Omega^2 - i\Gamma_1\Omega & 0 \\ 0 & \Omega_2^2 - \Omega^2 - i\Gamma_2\Omega \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{11}[\Omega] & \chi_{12}[\Omega] \\ \chi_{21}[\Omega] & \chi_{22}[\Omega] \end{pmatrix}^{-1} \tag{1.76}$$

est définie pour vérifier :

$$\delta\mathbf{r}[\Omega] = \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \left(\delta\mathbf{F}_{\text{th}}[\Omega] + \frac{1}{M_{\text{eff}}} \mathbf{F}_{\text{ext}}[\Omega] \right). \tag{1.77}$$

Bruit thermique d'un nanofil

Mesure projective

Dans ce manuscrit, il est question d'une **mesure optique projective des vibrations** de nanofils. Le chapitre suivant expliquera en détail le principe et la mise en œuvre de cette mesure optique. Pour l'instant, qu'il suffise de dire que le nanofil est éclairé par un laser et que les vibrations modulent les directions de diffusion du champ optique détecté sur une photodiode. Il existe une direction de vibration du nanofil qui maximise le signal de la photodiode : elle définit le **vecteur de mesure**. La mesure projective donne accès à **la projection des vibrations sur ce vecteur**. Un vecteur de mesure unitaire générique $\mathbf{e}_\beta$ sera introduit pour écrire la théorie de la mesure projective. Dans le chapitre suivant, **deux** vecteurs de mesure seront utilisés, $\mathbf{e}_\ominus$ et $\mathbf{e}_\oplus$, correspondant aux deux voies de mesure employées pour réaliser une mesure bidimensionnelle du mouvement Brownien.

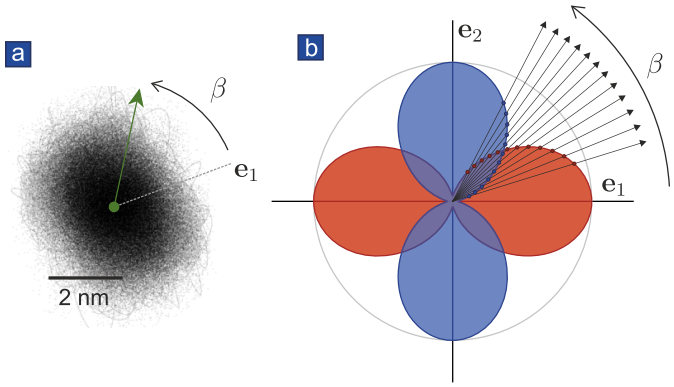


Figure 1.33 – **a.** Mouvement Brownien mesuré en 2 dimensions selon la méthode détaillée dans le chapitre suivant. **b.** Efficacité théorique de mesure des spectres des polarisations mécaniques 1 (contour de la zone bleue) et 2 (contour de la zone rouge) en "double œuf".

Ainsi que l'explique l'encadré sur la mesure projective, une méthode de détection optique donne une mesure de la projection des vibrations bidimensionnelles de l'extrémité du nanofil sur un **vecteur de mesure**. On envisage un vecteur de mesure générique noté $\mathbf{e}_\beta$, paramétré par l'angle β qu'il fait avec le mode indicé 1. Le déplacement projeté dans cette direction est :

$$\delta r_\beta(t) \equiv \mathbf{e}_\beta \cdot \delta\mathbf{r}(t), \tag{1.78}$$

soit :

$$\delta r_\beta[\Omega] = \cos\beta \left(\chi_{11}[\Omega]\delta F_{\mathrm{th},1}[\Omega] + \chi_{12}[\Omega]\delta F_{\mathrm{th},2}[\Omega]\right) + \sin\beta \left(\chi_{21}[\Omega]\delta F_{\mathrm{th},1}[\Omega] + \chi_{22}[\Omega]\delta F_{\mathrm{th},2}[\Omega]\right), \tag{1.79}$$

d'où l'expression de la densité spectrale de la projection :

$$\begin{aligned} S_{\delta r_\beta}[\Omega] = \quad & \cos^2\beta \left(|\chi_{11}|^2 S_{F_{\mathrm{th},1}} + |\chi_{12}|^2 S_{F_{\mathrm{th},2}}\right) + \sin^2\beta \left(|\chi_{21}|^2 S_{F_{\mathrm{th},1}} + |\chi_{22}|^2 S_{F_{\mathrm{th},2}}\right) \\ & + 2\cos\beta\sin\beta\,\mathrm{Re}\left(\chi_{11}\chi_{21}^\star S_{F_{\mathrm{th},1}} + \chi_{12}\chi_{22}^\star S_{F_{\mathrm{th},2}}\right), \end{aligned} \tag{1.80}$$

où les dépendances en Ω ont été omises temporairement. En l'absence de couplage entre les modes, cette expression se réduit à :

$$S_{\delta r_\beta}[\Omega] = \cos^2\beta |\chi_{11}|^2\, S_{F_{\mathrm{th},1}} + \sin^2\beta |\chi_{22}|^2\, S_{F_{\mathrm{th},2}}. \tag{1.81}$$

Le spectre mesuré est donc une somme incohérente et pondérée des spectres de fluctuations de position des deux polarisations mécaniques :

$$S_{\delta r_\beta}[\Omega] = \cos^2\beta\, S_{\delta r_1}[\Omega] + \sin^2\beta\, S_{\delta r_2}[\Omega], \tag{1.82}$$

avec

$$S_{\delta r_{1,2}}[\Omega] = \frac{2\Gamma k_B T/M_{\mathrm{eff}}}{(\Omega_{1,2}^2 - \Omega^2)^2 + \Gamma^2\Omega^2}. \tag{1.83}$$

On notera qu'on aurait pu tenir compte de la projection de chaque mode sur le vecteur de mesure dans une masse effective pour chaque mode, qui dépendrait du vecteur de mesure. Cependant, on a développé (voir Chapitre 2) une mesure bidimensionnelle des vibrations du nanofil à partir des mesures projectives sur *deux* vecteurs de mesure différents. Il est alors plus pratique, pour raisonner sur le déplacement bidimensionnel du nanofil, de ne conserver qu'une seule masse effective qui n'intègre donc que les effets longitudinaux (et non l'efficacité des mesures projectives).

La Figure 1.34 présente la mesure calibrée d'une mesure projective de la densité spectrale de bruit thermique. Ce spectre ne représente que la plage de fréquences autour du premier mode

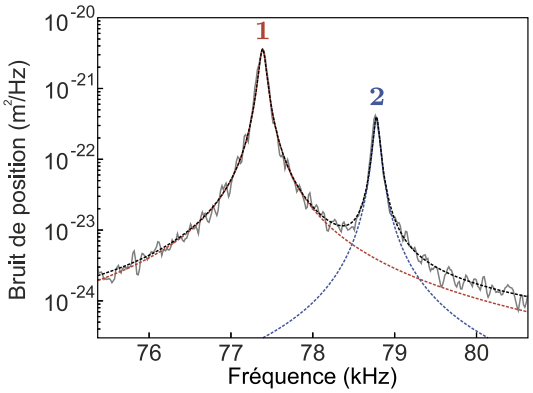


Figure 1.34 – Spectre $S_{\delta r_\beta}$ du mouvement Brownien projeté sur un vecteur de mesure $\mathbf{e}_\beta$ centré sur les deux polarisations du premier mode de déflexion. L'ajustement en trait pointillé noir est une somme incohérente de deux Lorentziennes mécaniques représentées en traits pointillés rouge et bleu.

longitudinal, qui est dédoublé en deux pics de fréquences légèrement différentes correspondant aux deux polarisations. Leur résolution est possible dès lors que la largeur spectrale $\Gamma/2\pi$ des pics est supérieure à l'écart en fréquence $(\Omega_2 - \Omega_1)/2\pi$, ce qui est vrai pour des résonateurs de bon facteur de qualité dès que ceux-ci se retrouvent en vide primaire.

Les facteurs de projection $\cos^2\beta$ et $\sin^2\beta$ sont responsables de la différence d'amplitude observée. L'efficacité de mesure des spectres de chaque mode dans la direction β suit donc une courbe paramétrée par l'angle β dite en "double œuf" (*Double egg*) que nous appellerons dans la suite du manuscrit "tomographies angulaires" (voir Figure 1.33b). L'efficacité de mesure d'un mode propre est maximale lorsque le vecteur de mesure lui est colinéaire.

1.4 Conclusion

Très légers, très rigides, les nanofils de SiC sont très bien adaptés à la mesure de force. Une interaction forte avec la lumière favorise la détection optique de leurs vibrations. Ces dernières, dans le cas d'un nanofil suspendu, explorent un espace à deux dimensions, contrairement aux leviers unidimensionnels traditionnellement utilisés pour mesurer des forces. Ils présentent donc deux polarisations mécaniques par mode d'oscillation longitudinal, et sont suffisamment symétriques pour que celles-ci, presque dégénérées, puissent être facilement couplées par un champ de force extérieur, ouvrant ainsi la voie aux techniques de mesure multimodale.

Chapitre 2

Mesure vectorielle de champs de force par l'habillage d'oscillateurs 2D

Sommaire

2.1 Habillage mécanique du nanofil par un champ de force bidimensionnel . . . 52
2.1.1 Modification des propriétés mécaniques des nanofils . . . 52
2.1.2 Phénoménologie de l'habillage . . . 55
2.1.3 Des propriétés mécaniques aux gradients du champ force . . . 57
2.1.4 Tomographie angulaire . . . 58
2.2 Mesure optique 2D du mouvement d'un nanofil . . . 59
2.2.1 Principe de mesure et montage optique . . . 59
2.2.2 Calibration de la mesure de déplacement . . . 61
2.2.3 Dispositif expérimental . . . 67
2.2.4 Utilisation des formules d'inversion dans une situation réelle . . . 73
2.3 Mesure ultra-sensible d'un gradient de force électrostatique . . . 74
2.3.1 La force électrostatique . . . 75
2.3.2 Cartes de force électrostatique . . . 79
2.3.3 Phénoménologie de l'habillage des modes propres . . . 83
2.3.4 Intégration des cartes . . . 87
2.3.5 Sensibilité de la mesure . . . 89
2.3.6 Autres composantes de la force . . . 90
2.3.7 Retour sur la nature des gradients de force mesurés . . . 91
2.4 Prolongements . . . 96
2.4.1 Composantes résiduelles non quadratiques en tension . . . 96
2.4.2 Mesures à 2 boucles à verrouillage de phase . . . 97
2.4.3 Principe de la mesure . . . 98
2.5 Conclusion . . . 100

Il a été établi dans le chapitre précédent que l'extrémité d'un nanofil de SiC suspendu par l'une de ses extrémités ausculte continuellement quelques nanomètres carrés d'un plan sous l'effet de son seul mouvement Brownien. On va démontrer dans ce chapitre que ce mouvement thermique aléatoire des nanofils peut être mis à profit pour sonder les variations spatiales de très faibles forces s'exerçant sur l'oscillateur.

Le mode "non contact" d'utilisation d'un AFM permet de mesurer le gradient de la force de proximité exercée par l'échantillon le long de la direction d'oscillation (verticale) du levier, à partir des décalages induits de sa fréquence de vibration. La mesure décrite dans ce chapitre est

construite sur le même principe, mais l'exploitation des deux fréquences et des deux orientations des polarisations mécaniques des nanofils permet de calculer les quatre composantes de gradient du champ de force bidimensionnel.

En particulier, les modes propres sont si près de la dégénérescence que les directions propres de l'oscillation sont modifiées par les composantes cisaillantes du champ de force. Cette signature s'ajoute à celle plus classique de la modification de fréquence attribuée aux gradients uniaxiaux, dont l'effet équivaut à l'ajout d'une raideur supplémentaire. La modélisation de l'habillage du mouvement bidimensionnel par un champ de force également bidimensionnel, qui sera développée dans la première partie du chapitre, relie les fréquences et les orientations des modes propres habillés de manière univoque à la structure locale de ce champ de force. La méthode de mesure permet ainsi d'évaluer toutes les composantes du champ de force, y compris les composantes cisaillantes inaccessibles aux sondes de forces unidimensionnelles.

L'une des conclusions subsidiaires de ce développement théorique est la nécessité de mesurer le mouvement du nanofil en deux dimensions pour pouvoir prétendre à l'universalité de la mesure du champ de force. La deuxième partie du chapitre présentera donc la mise en œuvre expérimentale d'une mesure optique du mouvement Brownien en deux dimensions.

Le principe de cette mesure bidimensionnelle a été testé sur le champ de force électrostatique appliqué sur le nanofil par une contre-électrode portée à un potentiel électrique différent, ce qui est expliqué en troisième partie de ce chapitre. L'automatisation de la mesure a permis de cartographier la force électrostatique, révélant au passage plusieurs signatures spécifiques de l'habillage bidimensionnel du nanofil par le champ de force, telle que la rotation des modes propres ou leur alignement sur les directions propres du champ de force.

Enfin, la quatrième partie de ce chapitre discute des développements expérimentaux qui découlent de cette mesure vectorielle de force. Une mesure des réponses mécaniques grâce à deux boucles à verrouillage de phase accélère la procédure de cartographie. La mesure d'autres forces que la force électrostatique peut alors être envisagée dans cette configuration qui s'affranchit d'une partie des dérives lentes du système.

2.1 Habillage mécanique du nanofil par un champ de force bidimensionnel

2.1.1 Modification des propriétés mécaniques des nanofils

L'oscillateur ponctuel 2D précédemment décrit est immergé dans un champ de force statique $\mathbf{F}_{\text{ext}}(\mathbf{r})$, dont on souhaite déterminer les variations spatiales. On suppose ici que les temps d'établissement des forces en jeu sont très courts par rapport aux temps caractéristiques mécaniques. C'est le cas par exemple pour les forces optiques de type pression de radiation (hors effets photothermiques, photothermoélastiques et autres forces indirectement appliquées à cause du chauffage éventuel), mais aussi pour la force électrostatique, lorsque la fréquence mécanique reste inférieure à la fréquence de coupure du circuit équivalent [76]. Dans cette situation, la force appliquée sur le nanofil s'adapte instantanément à ses changements de position et ne dépend que de la position de l'oscillateur.

Le champ de force supplémentaire se rajoute alors dans l'équation matricielle de la dynamique

1.75 (toujours écrite dans la base $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$) :

$$\ddot{\mathbf{r}}(t) = -\begin{pmatrix} \Omega_1^2 & 0 \\ 0 & \Omega_2^2 \end{pmatrix} (\mathbf{r}(t) - \mathbf{r}_0) - \begin{pmatrix} \Gamma_1 & 0 \\ 0 & \Gamma_2 \end{pmatrix} \dot{\mathbf{r}}(t) + \frac{\delta \mathbf{F}_{\text{th}}(t)}{M_{\text{eff}}} + \frac{\mathbf{F}_{\text{ext}}(\mathbf{r}(t))}{M_{\text{eff}}} \tag{2.1}$$

La version statique de cette équation donne l'équation que vérifie la position d'équilibre $\mathbf{r}_0'$ en présence de la force extérieure :

$$\mathbf{r}_0' = \mathbf{r}_0 + \begin{pmatrix} \frac{1}{\Omega_1^2} & 0 \\ 0 & \frac{1}{\Omega_2^2} \end{pmatrix} \cdot \frac{\mathbf{F}_{\text{ext}}(\mathbf{r}_0')}{M_{\text{eff}}} \tag{2.2}$$

Cette équation autocohérente possède une solution unique si les gradients de $\mathbf{F}_{\text{ext}}$ sont faibles devant les raideurs de l'oscillateur. La multistabilité peut apparaître dans le cas contraire. Ce phénomène, responsable du **saut au contact** en AFM traditionnel, représente une forte limitation à l'établissement des courbes d'approche-retrait qui permettent de caractériser les forces. On notera qu'il est possible de s'affranchir de ce saut au contact grâce au principe du *Force Feedback Micrsocope* (FFM) [85]. Dans les expériences rapportées dans ce chapitre, on a évité ce régime multistable et la position d'équilibre n'est que légèrement décalée ($\leq 20\,\text{nm}$).

Le champ de force est développé à l'ordre 1 en fluctuations autour de la position d'équilibre $\mathbf{r}_0'$: $\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}_0' + \delta\mathbf{r}(t)$, ce qui est possible tant que l'extension de la trajectoire Brownienne est petite devant les distances caractéristiques de variation du champ de force :

$$\mathbf{F}_{\text{ext}}\big(\mathbf{r}_0' + \delta\mathbf{r}(t)\big) \simeq \mathbf{F}_{\text{ext}}(\mathbf{r}_0') + (\delta\mathbf{r}(t) \cdot \boldsymbol{\nabla})\, \mathbf{F}_{\text{ext}}(\mathbf{r}_0') + ... \tag{2.3}$$

L'équation de la dynamique devient :

$$\delta\ddot{\mathbf{r}}(t) = -\begin{pmatrix} \Omega_1^2 & 0 \\ 0 & \Omega_2^2 \end{pmatrix} \delta\mathbf{r}(t) - \begin{pmatrix} \Gamma_1 & 0 \\ 0 & \Gamma_2 \end{pmatrix} \delta\dot{\mathbf{r}}(t) + \frac{\delta\mathbf{F}_{\text{th}}(t)}{M_{\text{eff}}} + \frac{1}{M_{\text{eff}}}(\delta\mathbf{r}(t) \cdot \boldsymbol{\nabla})\mathbf{F}_{\text{ext}}(\mathbf{r}_0'). \tag{2.4}$$

On définit les gradients normalisés du champ de force :

$$g_{ij} \equiv \frac{1}{M_{\text{eff}}} \partial_i F_{\text{ext},j}(\mathbf{r}_0'), \tag{2.5}$$

où i, j indicent une base orthonormale du plan exploré. Dans l'équation du mouvement précédente apparaissent ainsi les termes g_{11}, g_{12}, g_{21} et g_{22} les gradients du champ de force le long des directions des polarisations mécaniques propres :

$$\delta\ddot{\mathbf{r}}(t) = -\begin{pmatrix} \Omega_1^2 & 0 \\ 0 & \Omega_2^2 \end{pmatrix} \delta\mathbf{r}(t) - \begin{pmatrix} \Gamma_1 & 0 \\ 0 & \Gamma_2 \end{pmatrix} \delta\dot{\mathbf{r}}(t) + \frac{\delta\mathbf{F}_{\text{th}}(t)}{M_{\text{eff}}} + \begin{pmatrix} g_{11} & g_{21} \\ g_{12} & g_{22} \end{pmatrix} \delta\mathbf{r}(t), \tag{2.6}$$

ce qui conduit à la définition d'une **susceptibilité habillée matricielle**, à partir de :

$$\delta\mathbf{r}[\Omega] \equiv \boldsymbol{\chi}[\Omega]\delta\mathbf{F}_{\text{th}}[\Omega]. \tag{2.7}$$

L'inverse de cette susceptibilité matricielle s'écrit alors :

$$\boldsymbol{\chi}^{-1}[\Omega] = M_{\text{eff}} \begin{pmatrix} \Omega_1^2 - \Omega^2 - i\Gamma_1\Omega - g_{11} & -g_{21} \\ -g_{12} & \Omega_2^2 - \Omega^2 - i\Gamma_2\Omega - g_{22} \end{pmatrix}, \tag{2.8}$$

c'est-à-dire :

$$\boldsymbol{\chi}[\Omega] = \frac{1}{\Xi[\Omega]} \begin{pmatrix} \Omega_2^2 - \Omega^2 - i\Gamma_2\Omega - g_{22} & g_{21} \\ g_{12} & \Omega_1^2 - \Omega^2 - i\Gamma_1\Omega - g_{11} \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \chi_{11}[\Omega] & \chi_{12}[\Omega] \\ \chi_{21}[\Omega] & \chi_{22}[\Omega] \end{pmatrix} \tag{2.9}$$

où :

$$\frac{\Xi[\Omega]}{M_{\text{eff}}} \equiv \frac{\det \boldsymbol{\chi}^{-1}[\Omega]}{M_{\text{eff}}} = \Big(\Omega_1^2 - \Omega^2 - i\Gamma_1\Omega - g_{11}\Big)\Big(\Omega_2^2 - \Omega^2 - i\Gamma_2\Omega - g_{22}\Big) - g_{12}g_{21} \tag{2.10}$$

On considérera à partir de maintenant que les taux de dissipation des deux modes sont égaux : $\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma$. Pour les nanofils utilisés, on mesure des taux de dissipation ne différant généralement pas l'un de l'autre de plus de 10% de leur valeur. Cela permet de simplifier les expressions à venir. Notons également que le formalisme développé jusqu'à présent peut être adapté aux champs de force non-instantanés que nous avions mentionné en introduction de ce paragraphe en autorisant les gradients g_{ij} à posséder une partie imaginaire.

Susceptibilités propres - La diagonalisation de la matrice susceptibilité définit des susceptibilités propres $\chi_\pm[\Omega]$ de la forme de susceptibilités d'oscillateurs mécaniques amortis 1D, soit, dans la base des modes propres $\mathbf{e}_\pm$ qui sera donnée quelques lignes plus loin, la matrice susceptibilité :

$$\boxed{\boldsymbol{\chi}_{\text{diag}}[\Omega] = \begin{pmatrix} \chi_-[\Omega] & 0 \\ 0 & \chi_+[\Omega] \end{pmatrix}, \qquad \chi_\pm[\Omega] \equiv \frac{1}{M_{\text{eff}}\left(\Omega_\pm^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega\right)}.} \tag{2.11}$$

On remarque que la grandeur $\Xi[\Omega]$ introduite à l'équation 2.10 s'écrit :

$$\Xi[\Omega] = \chi_+^{-1}[\Omega]\,\chi_-^{-1}[\Omega]/M_{\text{eff}} = M_{\text{eff}}\Big(\Omega_-^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega\Big)\Big(\Omega_+^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega\Big). \tag{2.12}$$

Fréquences propres - Les fréquences propres des modes habillés sont les parties réelles des valeurs propres de la matrice susceptibilité habillée :

$$\boxed{\Omega_\pm^2 \equiv \frac{\Omega_{1\|}^2 + \Omega_{2\|}^2}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{\Big(\Omega_{2\|}^2 - \Omega_{1\|}^2\Big)^2 + 4g_{12}g_{21}}} \tag{2.13}$$

avec les définitions suivantes qui seront continuellement utilisées dans le manuscrit :

$$\Omega_{1\|}^2 \equiv \Omega_1^2 - g_{11}, \qquad \Omega_{2\|}^2 \equiv \Omega_2^2 - g_{22}. \tag{2.14}$$

Remarquons les identités fort utiles pour certains calculs :

$$\Big(\Omega_+^2 - \Omega_{1\|}^2\Big) = \Big(\Omega_{2\|}^2 - \Omega_-^2\Big) \quad \text{et} \quad \Big(\Omega_{1\|}^2 + \Omega_{2\|}^2\Big) = \Big(\Omega_+^2 + \Omega_-^2\Big). \tag{2.15}$$

Vecteurs propres - Les vecteurs propres de la matrice susceptibilité donnent les orientations des nouveaux modes propres. Notons qu'ils ne dépendent pas de la fréquence (ce qui serait le cas pour des champs de force retardés ou des taux de dissipation Γ_1 et Γ_2 différents). Exprimés dans la base des modes non couplés $\mathbf{e}_{1,2}$, ils valent :

$$\boxed{\begin{aligned} \mathbf{e}_- &\equiv \frac{1}{\sqrt{g_{12}^2 + \Big(\Omega_{2\|}^2 - \Omega_-^2\Big)^2}} \begin{pmatrix} \Omega_{2\|}^2 - \Omega_-^2 \\ g_{12} \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \cos\theta_- \\ \sin\theta_- \end{pmatrix} \\ \mathbf{e}_+ &\equiv \frac{1}{\sqrt{g_{21}^2 + \Big(\Omega_+^2 - \Omega_{1\|}^2\Big)^2}} \begin{pmatrix} -g_{21} \\ \Omega_+^2 - \Omega_{1\|}^2 \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \cos\theta_+ \\ \sin\theta_+ \end{pmatrix} \end{aligned}} \tag{2.16}$$

On a introduit les angles θ_- et θ_+ que font les modes propres perturbés (+) et (-) avec la direction du mode non perturbé de basse fréquence (1) : hors champ de force ces angles valent respectivement 0° et 90°. L'expression des vecteurs propres permet de vérifier que cette orthogonalité se conserve, tant que $g_{12} = g_{21}$, c'est-à-dire en champ de force conservatif. Le prochain paragraphe reviendra sur ce point plus en détail.

2.1.2 Phénoménologie de l'habillage

On a donné les expressions des éléments propres de la matrice susceptibilité habillée, c'est-à-dire les fréquences de résonance des modes mécaniques habillés ainsi que les vecteurs propres de la matrice susceptibilité. On étudie maintenant la phénoménologie associée à cet habillage.

La matrice des gradients de force peut être décomposée sur la base des matrices 2×2 réelles :

$$\mathrm{Id} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \sigma_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad \sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_3 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix}, \tag{2.17}$$

définissant ainsi 4 composantes fondamentales des gradients de force :

Composante	**Expression**	**Matrice gradient de force**
Divergence	$g_{11} + g_{22}$	$\frac{g_{11} + g_{22}}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$
Composante **hyperbolique** ("de Poisson")	$g_{22} - g_{11}$	$\frac{g_{11} - g_{22}}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$
Cisaillement	$g_{12} + g_{21}$	$\frac{g_{12} + g_{21}}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$
Rotationnel	$g_{12} - g_{21}$	$\frac{g_{12} - g_{21}}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix}$

Remarquons que la divergence et le rotationnel sont **invariants** par rotation et donc par rotation de la base d'expression des g_{ij}, tandis que les composantes hyperboliques et de cisaillement **se mélangent** par rotation de la base.

Ces 4 composantes modifient différemment les propriétés mécaniques du nanofil. On donne maintenant 4 signatures phénoménologiques associées, au premier ordre en g_{ij}, à chacune de ces 4 composantes.

1 - Déplacement en bloc des fréquences

La moyenne géométrique des fréquences n'est modifiée que par la trace du tenseur gradient de force, soit la **divergence de la force** :

$$\Omega_+^2 + \Omega_-^2 = \left(\Omega_1^2 + \Omega_2^2\right) - \left(g_{11} + g_{22}\right) = \left(\Omega_1^2 + \Omega_2^2\right) - \frac{1}{M_{\mathrm{eff}}} \mathrm{div}(\mathbf{F}_{\mathrm{ext}}). \tag{2.18}$$

La divergence du champ de force peut donc être expérimentalement déterminée à partir de la mesure des seules fréquences propres de vibration : cette détermination est donc très robuste.

2 - Séparation (*splitting*) des fréquences propres

L'écart géométrique des fréquences vaut :

$$\left(\Omega_+^2 - \Omega_-^2\right)^2 = \left(\Omega_2^2 - \Omega_1^2 - \left(g_{22} - g_{11}\right)\right)^2 + 4g_{12}g_{21}. \tag{2.19}$$

Ainsi au premier ordre en $g_{ij}/\Omega_{1,2}^2$:

$$\left(\Omega_+^2 - \Omega_-^2\right) \simeq \left(\Omega_2^2 - \Omega_1^2\right) - (g_{22} - g_{11}). \tag{2.20}$$

Dans une représentation simplifiée (valable pour des gradients de force faibles devant les raideurs intrinsèques du nanofil), la séparation des fréquences est donc contrôlée par la **composante "hyperbolique" ou "Poisson" du champ de force**.

3 - Rotation des modes propres

Les modes (-) et (+) sont tournés des angles $\theta_\pm$ par rapport au mode non couplé (1), ces angles étant définis par :

$$\tan\theta_- = \frac{g_{12}}{\Omega_{2\|}^2 - \Omega_-^2}, \quad \tan\theta_+ = \frac{\Omega_{2\|}^2 - \Omega_-^2}{-g_{21}}, \tag{2.21}$$

avec la convention $\theta_- \to \theta_1 = 0$ et $\theta_+ \to \theta_2 = \frac{\pi}{2}$ quand $g_{ij} \to 0$. Lorsque $g_{12} = g_{21}$ (en champ irrotationnel), il s'agit d'une rotation en bloc des modes (puisque le produit des tangentes est égal à -1, les modes propres préservent leur othogonalité), d'un angle proportionnel à la composante de cisaillement $g_{12} + g_{21}$. Au premier ordre en $g_{ij}/\Omega_{1,2}$:

$$\theta_- \simeq \frac{g_{12}}{\Omega_2^2 - \Omega_1^2}, \quad \theta_+ \simeq \frac{\pi}{2} + \frac{g_{21}}{\Omega_2^2 - \Omega_1^2}. \tag{2.22}$$

4 - Cisaillement des modes propres

En champ de force rotationnel $g_{12} \neq g_{21}$ car $\mathrm{rot}\left(\mathbf{F}\right) \propto g_{12} - g_{21}$. Le tenseur gradient de force n'étant plus symétrique, les polarisations mécaniques propres ne sont plus orthogonales :

$$\mathbf{e}_- \cdot \mathbf{e}_+ = \frac{(g_{12} - g_{21})\left(\Omega_{2||}^2 - \Omega_-^2\right)}{\sqrt{\left(g_{12}^2 + \left(\Omega_{2||}^2 - \Omega_-^2\right)^2\right)\left(g_{21}^2 + \left(\Omega_{2||}^2 - \Omega_-^2\right)^2\right)}} \propto g_{12} - g_{21}. \tag{2.23}$$

Au premier ordre en $g_{ij}/\Omega_{1,2}$:

$$\mathbf{e}_- \cdot \mathbf{e}_+ \simeq \frac{g_{12} - g_{21}}{\Omega_2^2 - \Omega_1^2}. \tag{2.24}$$

En mesurant l'orientation des modes propres habillés, on peut donc identifier les composantes cisaillantes du champ de force. D'après les équations 2.22 et 2.24, la sensibilité aux gradients de force non-uniaxiaux g_{12} et g_{21} est d'autant meilleure que l'écart naturel des fréquences est petit. La Figure 2.1 résume les 4 signatures qui viennent d'être identifiées dans une décomposition simplifiée valable au premier ordre en $g_{ij}/\Omega_{1,2}^2$.

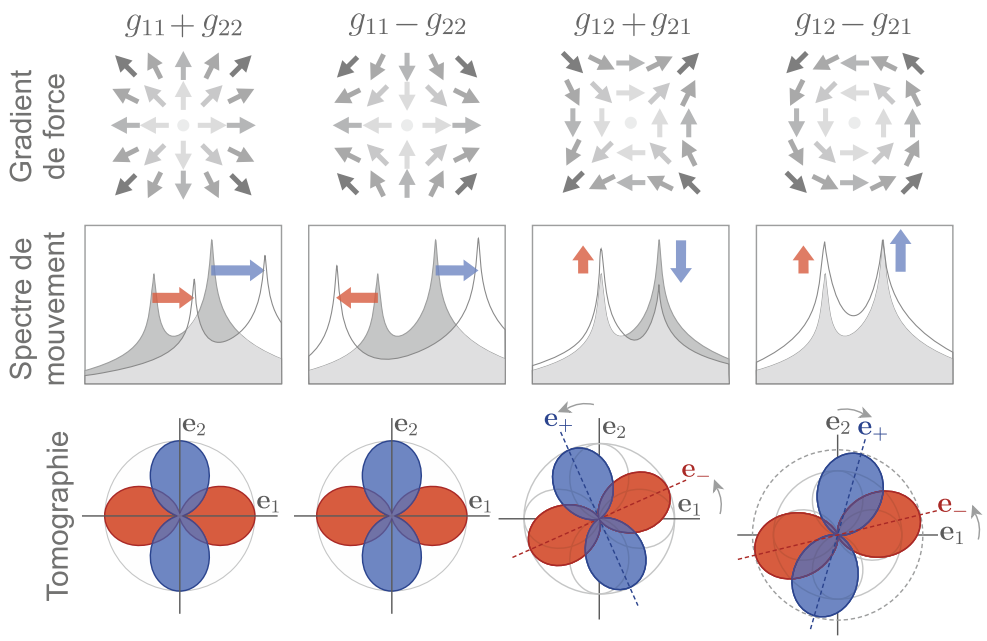


Figure 2.1 – Phenoménologie simplifiée de l'habillage du nanofil par les 4 éléments de base décrivant les champs de force 2D : influence sur les densités spectrales de bruit mesurées et sur les tomographies angulaires (qui seront introduites dans la suite 2.1.4) indiquant les directions des modes propres.

2.1.3 Des propriétés mécaniques aux gradients du champ force

Ce paragraphe montre comment, à partir de la connaissance orientations $\theta_\pm$ et des fréquences $\Omega_\pm$ des modes habillés (équations 2.13 et 2.21) :

$$\Omega_\pm^2 \equiv \frac{\Omega_{1\|}^2+\Omega_{2\|}^2}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(\Omega_{2\|}^2-\Omega_{1\|}^2\right)^2+4g_{12}g_{21}}$$

$$\tan\theta_- = \frac{g_{12}}{\Omega_{2\|}^2-\Omega_-^2}, \quad \tan\theta_+ = \frac{\Omega_{2\|}^2-\Omega_-^2}{-g_{21}},$$

il est possible de déterminer complètement les gradients locaux du champ de force que subit le nanofil.

On définit les quantités mesurées suivantes :

$$\mu \equiv \tan\theta_- / \tan\theta_+ \qquad \text{et} \qquad \Delta\Omega_{||}^2 \equiv \Omega_{2||}^2 - \Omega_{1||}^2 \tag{2.25}$$

On montre que $\Delta\Omega_{||}^2$ vérifie l'équation :

$$(\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2 = \Delta\Omega_{||}^4 + \mu\left(\Delta\Omega_{||}^2+\Omega_+^2-\Omega_-^2\right)^2, \tag{2.26}$$

qui admet deux solutions :

$$\Delta\Omega_{||}^2 = (\Omega_+^2-\Omega_-^2)\frac{\pm 1-\mu}{1+\mu} \tag{2.27}$$

La solution impliquant le signe "-" est rejetée car elle impose $g_{12}\,g_{21}=0$ donc sur-contraint la réalité physique. De la somme géométrique 2.18 et de la différence géométrique 2.27 des fréquences habillées, on tire g_{11} et g_{22} :

$$g_{11} = \Omega_1^2 - \frac{\Omega_-^2+\mu\,\Omega_+^2}{1+\mu} \tag{2.28}$$

$$g_{22} = \Omega_2^2 - \frac{\Omega_-^2+\mu\,\Omega_+^2}{1+\mu} \tag{2.29}$$

Les deux autres gradients de force sont déduits des expressions des orientations des modes $\theta_\pm$ et de celle de $\Delta\Omega^2_{||}$ 2.27 :

$$g_{12} = \frac{\tan\theta_- \tan\theta_+}{\tan\theta_- + \tan\theta_+}\left(\Omega^2_+ - \Omega^2_-\right) \tag{2.30}$$

$$g_{21} = \frac{1}{\tan\theta_- + \tan\theta_+}\left(\Omega^2_+ - \Omega^2_-\right) \tag{2.31}$$

Ces formules permettent ainsi de déterminer les 4 composantes des gradients du champ de force extérieur à partir des orientations et des fréquences des modes propres habillés.

2.1.4 Tomographie angulaire

Résultats génériques

Les paragraphes précédents ont établi l'importance de la détermination de la direction des modes propres de vibration du nanofil. Il est en principe possible de projeter le mouvement Brownien de celui-ci dans une direction de mesure arbitraire. En réalisant cette projection dans toutes les directions, il est ainsi possible d'effectuer une tomographie angulaire des fluctuations de position.

On paramètre une direction arbitraire de mesure $\mathbf{e}_\beta$ à partir de l'angle β qu'elle fait avec la direction $\mathbf{e}_1$. L'équation 1.80 a déjà établi que :

$$S_{\delta r_\beta}[\Omega] = \cos^2\beta\, S_{\delta r_1}[\Omega] + \sin^2\beta\, S_{\delta r_2}[\Omega].$$

soit, lorsque tous les couplages sont conservés :

$$S_{\delta r_\beta}[\Omega] = S_{F_{\rm th}}\Big[\ \cos^2\beta\left(|\chi_{11}|^2 + |\chi_{12}|^2\right) + \sin^2\beta\left(|\chi_{21}|^2 + |\chi_{22}|^2\right) + 2\cos\beta\sin\beta\,\mathrm{Re}\left(\chi_{11}\chi^\star_{21} + \chi_{12}\chi^\star_{22}\right)\Big],$$

c'est-à-dire :

$$\boxed{S_{\delta r_\beta}[\Omega] = \frac{S_{F_{\rm th}}}{|\Xi[\Omega]|^2}\left\{\begin{array}{l}\cos^2\beta\left((\Omega^2_2 - \Omega^2 - g_{22})^2 + \Omega^2\Gamma^2 + g^2_{21}\right)\\ +\sin^2\beta\left((\Omega^2_1 - \Omega^2 - g_{11})^2 + \Omega^2\Gamma^2 + g^2_{12}\right)\\ +\sin 2\beta\ \left(g_{12}(\Omega^2_2 - \Omega^2 - g_{22}) + g_{21}(\Omega^2_1 - \Omega^2 - g_{11})\right)\end{array}\right\}.} \tag{2.32}$$

Coïncidence de l'angle tomographique optimal et de l'orientation des modes propres

On peut montrer que les extrema de la densité spectrale 2.32 de la position projetée sur l'angle de lecture β sont obtenus lorsque cet angle atteint les valeurs $\beta_{\rm opt}[\Omega]$ définies par :

$$\tan 2\beta_{\rm opt}[\Omega] = 2\frac{g_{12}(\Omega^2_{2||} - \Omega^2) + g_{21}(\Omega^2_{1||} - \Omega^2)}{(\Omega^2_{2||} - \Omega^2)^2 - (\Omega^2_{1||} - \Omega^2)^2 + g^2_{21} - g^2_{12}} \tag{2.33}$$

On note que cet angle de projection, qui optimise le signal tomographique, ne dépend pas du taux de dissipation commun Γ. De plus, à cause de la π-périodicité de la fonction tangente les extrema de la mesure sont toujours perpendiculaires les uns aux autres, alternant entre maximum et minimum, et ceci pour chaque fréquence d'analyse. Le signal tomographique optimisé est :

$$S_{\delta r_{\beta\rm opt}}[\Omega] = \frac{S_{F_{\rm th}}}{2|\Xi[\Omega]|^2}\left\{\begin{array}{l}(\Omega^2_{1||} - \Omega^2)^2 + (\Omega^2_{2||} - \Omega^2)^2 + g^2_{12} + g^2_{21} + 2\Gamma^2\Omega^2\\ \pm\sqrt{\left((\Omega^2_{1||} + \Omega^2_{2||} - 2\Omega^2)^2 + (g_{12} - g_{21})^2\right)\left((\Omega^2_{1||} - \Omega^2_{2||})^2 + (g_{12} + g_{21})^2\right)}\end{array}\right\}. \tag{2.34}$$

En balayant l'angle β de mesure à fréquence d'analyse fixe, on obtient une courbe composée de deux lobes (voir Figure 2.2), qui correspond - hors champ de force rotationnel - à la courbe en "double œuf" évoquée à la fin du Chapitre 1 (section 1.3.5).

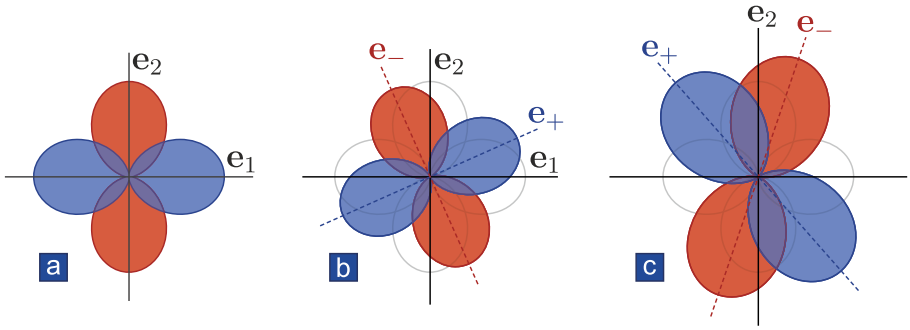


Figure 2.2 – Tomographies angulaires $S_{\delta r_\beta}[\Omega_\pm]$ aux fréquences de résonances pour des oscillateurs soumis à différents champs de force **a.** sans composantes transverses g_{12}, g_{21}, **b.** conservatif $g_{12} = g_{21} \neq 0$, **c.** non conservatif. Les lignes en pointillés représentent les orientations de $\mathbf{e}_\pm$. On voit que ces lignes suivent exactement les lobes tomographiques, illustrant la démonstration de cette section que $\beta_{\text{opt}}[\Omega_\pm] = \theta_\pm$.

On se concentre maintenant sur le mode $\mathbf{e}_-$. Les conclusions du calcul qui suit peuvent être étendues au mode $\mathbf{e}_+$ par symétrie. On introduit $\Delta_1 = \Omega_{1\|}^2 - \Omega_-^2$ et $\Delta_2 = \Omega_{2\|}^2 - \Omega_-^2$. On a $\Delta_1\Delta_2 = g_{12}g_{21}$. D'une part, on tire de l'équation 2.21, après calculs :

$$\tan 2\theta_- = \frac{2g_{12}\Delta_2}{\Delta_2^2 - g_{12}^2} \tag{2.35}$$

D'autre part, en évaluant l'équation 2.33 en $\Omega = \Omega_-$:

$$\tan 2\beta_{\text{opt}}[\Omega_-] = 2\frac{g_{12}\Delta_2 + g_{21}\Delta_1}{\Delta_2^2 - \Delta_1^2 + g_{21}^2 - g_{12}^2}, \tag{2.36}$$

on a donc finalement :

$$\tan 2\beta_{\text{opt}}[\Omega_-] = \frac{2g_{12}\Delta_2\left(g_{12}^2 + \Delta_1^2\right)}{\Delta_1^2\Delta_2^2 + g_{12}^2(\Delta_2^2 - \Delta_1^2) - g_{12}^4} = \frac{2g_{12}\Delta_2}{\Delta_2^2 - g_{12}^2} = \tan 2\theta_-, \tag{2.37}$$

ce qui termine la démonstration : la tomographie angulaire à résonance du bruit thermique du nanofil présente un maximum exactement dans la direction du mode propre, ce qui est illustré par les simulations de la Figure 2.2. Cette relation est générale et s'étend en particulier au cas des champs de force non-conservatifs (rotationnels), même si l'orthogonalité des modes propres est alors brisée.

2.2 Mesure optique 2D du mouvement d'un nanofil

2.2.1 Principe de mesure et montage optique

Il a été montré dans le Chapitre 1 que les nanofils de SiC interagissaient fortement avec la lumière et qu'il était ainsi possible d'en faire une détection optique, malgré leur faible diamètre. La détection optique du mouvement en 2 dimensions dont le principe est maintenant exposé s'appuie sur des **mesures projectives dans 2 directions non colinéaires** connues. Ces deux directions de mesures non colinéaires sont obtenues grâce à l'utilisation d'une photodiode à deux quadrants (Quadrant PhotoDiode, QPD).

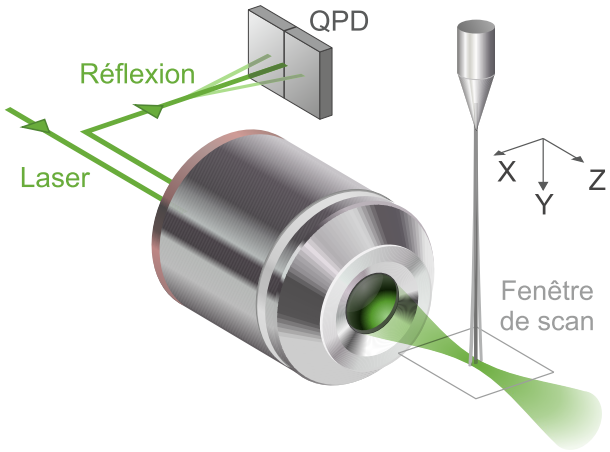


Figure 2.3 – Principe du montage de mesure des vibrations d'un nanofil.

Un laser de mesure est focalisé par un **objectif de microscope**. Le nanofil suspendu verticalement, son extrémité libre vers le bas, peut être déplacé en trois dimensions derrière cet objectif : dans la position de mesure, son extrémité libre se trouve au niveau du *waist* du faisceau (voir Figure 2.3). La lumière rétrodiffusée sur le nanofil est collectée par le même objectif. Cette lumière réfléchie est séparée de la lumière incidente par des techniques optiques détaillées plus tard, et arrive sur la photodiode à quadrants.

Le déplacement du nanofil dans le champ optique modifie la répartition spatiale de la lumière réfléchie, de sorte que les fluctuations de positions sont encodées dans les fluctuations de cette répartition. Les deux quadrants de la photodiode étant spatialement séparés, ils permettent ainsi d'imager le nanofil et d'enregistrer ses fluctuations de position.

On mesure la **somme et la différence des photocourants** fournis par les deux quadrants, qui sont converties en tension - notées respectivement $V_\oplus$ et $V_\ominus$ - par un amplificateur dont le détail est donné dans le prochain paragraphe. La voie différence est sensible à la différence des intensités réfléchies vers la droite et vers la gauche par le nanofil : pour cette raison, elle mesure essentiellement les déplacements du nanofil selon l'axe horizontal perpendiculaire à l'axe optique que nous notons X. La voie somme, quant à elle, reflète l'efficacité globale de diffusion et de collection, à l'instar d'une photodiode à un seul quadrant. On verra qu'il est possible de s'en servir pour mesurer les déplacements du nanofil le long de l'axe optique noté Z. Notons qu'il est également possible d'utiliser la lumière transmise au lieu de la lumière réfléchie pour arriver au même résultat, avec un rapport signal à bruit souvent meilleur ($> 10\,\mathrm{dB}$), cette configuration étant cependant un peu plus délicate d'utilisation (car plus sensible aux dérives thermiques).

Le détail du montage optique de mesure est donné en Figure 2.4. Le faisceau fourni par un laser vert LaserQuantum "Gem" de longueur d'onde 532 nm est élargi par un **télescope** composé de deux lentilles pour que son diamètre corresponde à la pupille d'entrée de l'objectif de microscope (Zeiss Epiplan Neofluar EC LD 100x, ouverture numérique NA = 0.75, qui fonctionne sous vide). La grande distance de travail de cet objectif (4 mm) permet de conserver un grand espacement entre le nanofil et le premier élément optique, ce qui rend la manipulation de l'expérience relativement confortable en diminuant le risque de collision avec le nanofil lors de l'alignement. Une **lame demi-onde** permet d'ajuster la polarisation du faisceau de mesure. Un cube non polarisant réfléchissant 90% de la lumière permet de séparer la lumière incidente de la lumière réfléchie. Seuls 10% de la lumière fournie par le laser sont ainsi utilisés pour l'éclairement du nanofil (mais ce faible pourcentage n'est pas limitant étant donnée la grande puissance maximale du laser, 100 mW), tandis que 90% de la lumière réfléchie sur le nanofil arrivent à terme sur

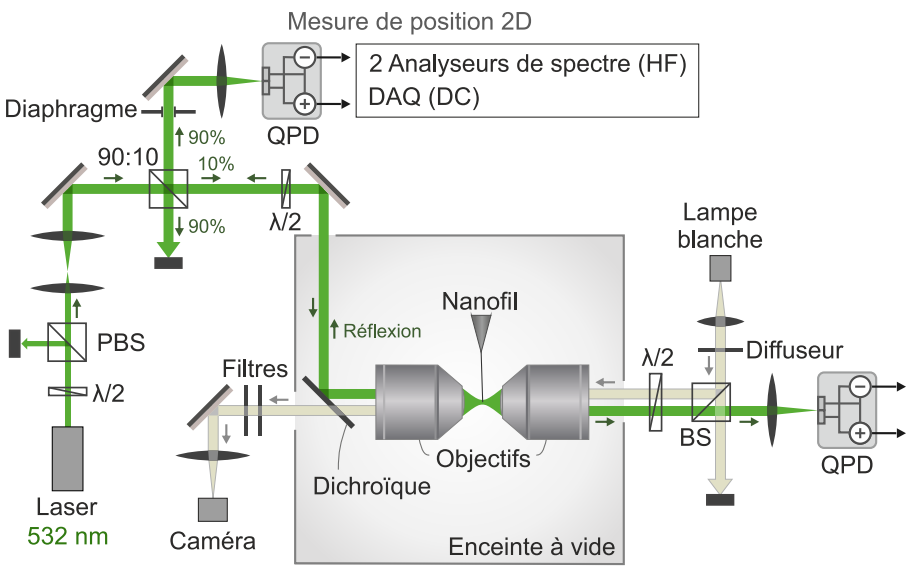


Figure 2.4 – Détail du montage optique de mesure vectorielle de déplacement.

la photodiode à quadrants qui réalise la mesure vectorielle. Cette méthode permet de travailler avec n'importe quelle polarisation.

Une photodiode à deux quadrants est également placée en transmission mais non utilisée pour la mesure de force. Le second objectif symétrique au premier vis-à-vis du nanofil est donc principalement utilisé pour injecter une **lumière blanche** par l'arrière du montage et imager ainsi directement le nanofil (et l'échantillon générant le champ de force le cas échéant, voir Figure 2.19) sur une **caméra** de grande sensibilité (Watec 910HX/RC). La lumière du laser est retirée de cette image par le filtrage spectral successif d'un **miroir dichroïque** passe-haut placé juste avant l'objectif d'injection et de **deux filtres** (réjecteur et passe-haut). Ceux-ci peuvent également être escamotés pour, à l'inverse, imager le faisceau réfléchi directement sur la caméra. Ce dispositif d'imagerie en lumière blanche est éteint lors de la mesure du mouvement sur la QPD (même s'il a été trouvé qu'il ne la perturbait pas notablement).

Le paragraphe suivant explique l'utilisation des QPD pour la mesure bidimensionnelle en même temps que la calibration de cette mesure.

2.2.2 Calibration de la mesure de déplacement

La mesure de déplacement (dans une direction) avait été développée dans l'équipe lors de la thèse d'A. Gloppe [75]. En collaboration avec D. Lepoittevin du pôle électronique, une nouvelle génération d'amplificateurs de photodiodes à deux quadrants à été developpée. Ceux-ci permettent la mesure simultanée de la somme et de la différence des photocourants, en séparant les composantes HF et DC de chaque voie. Le gain des montages a été fortement accru depuis la précédente génération ($\times 1000$) afin de pouvoir travailler avec des puissances optiques injectées de l'ordre de quelques microwatts.

Les spectres de tension mesurés par les voies HF différence et somme $S_{V_{\mathrm{HF}}}[\Omega]$ sont calibrés en spectres de position $S_{\delta r_\beta}$ à partir de la connaissance de deux quantités :

1. le facteur de conversion local tension-position $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}$, établi pour chaque mesure effectuée, en déplaçant physiquement le nanofil dans le champ optique autour du point de mesure, et en enregistrant les variations de tension sur une voie de mesure DC. Il s'agit d'une quantité vectorielle : son orientation donne la direction du vecteur de mesure.

2. le facteur de proportionnalité entre la tension de cette voie DC et la tension de la voie HF qui mesure les fluctuations de position. Ce dernier facteur intrinsèque à la photodiode et dépendant de la fréquence est mesuré une seule fois pour chaque photodiode.

Le paragraphe qui suit expose donc la méthode de mesure systématique du premier facteur $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}$, puis détaille la calibration des gains HF et DC de la photodiode. On a de plus vérifié au cours de cette calibration l'équilibrage des montages d'amplification des voies somme et différence.

Bruit électronique

Avant toute chose, on soustrait le bruit électronique ("dark noise") de la mesure des spectres de tension sur les voies HF $S_{V_{\mathrm{HF}}}[\Omega]$. Ce bruit est enregistré en masquant le faisceau incident sur la photodiode. Le plancher de bruit électronique mesuré est approché par une expression analytique (polynôme d'ordre 2) et c'est cette tendance qui est soustraite du spectre mesuré.

Calibration DC

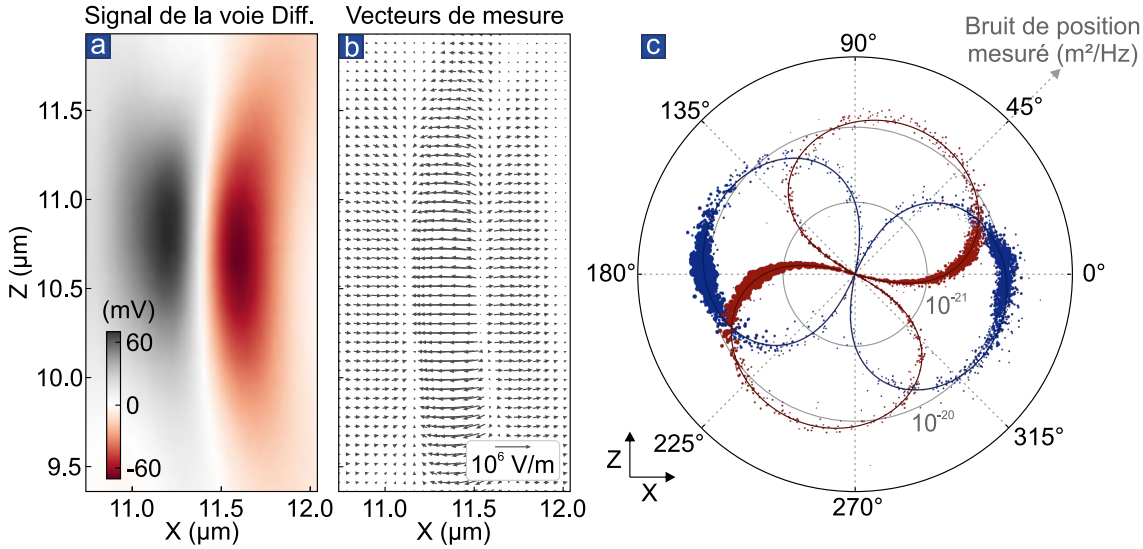


Figure 2.5 – **a.** Carte de la tension $V^{\ominus}$ lors du balayage d'un nanofil en chaque point d'une grille bidimensionnelle horizontale dans le faisceau laser. **b.** Gradients locaux mesurés de $V^{\ominus}$ en chaque point (on a décimé la grille pour ne pas représenter trop de vecteurs). **c.** Tomographie à résonance des deux modes du mouvement Brownien d'un nanofil (basse fréquence en rouge, haute fréquence en bleu) obtenue à partir de la mesure dans toutes les directions disponibles. La taille des points est indexée sur la norme des gradients de mesure. L'ajustement de chacune des paires de lobes par des fonctions de β l'angle tomographique $\cos^2(\beta - \theta_1)$, $\sin^2(\beta - \theta_1)$ sont représentés par des lignes rouge foncé et bleu foncé.

Comme on l'a évoqué, la conversion d'une tension DC en information de position nécessite la connaissance, non seulement d'un facteur de conversion, mais également de la direction mesurée. Ces deux informations sont contenues dans la norme et la direction du gradient de local de la tension $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}$. Pour illustration, lors du déplacement du nanofil sur une grille de points horizontale dans le faisceau optique (soit un plan X,Z), on a mesuré ce gradient vectoriel en tous les points (voir Figure 2.5b) : il correspond à la dérivée en chaque point de la carte de $V^{\ominus}$ représentée en Figure 2.5a. En chaque point, on a également réalisé une mesure projective du mouvement Brownien du nanofil : les orientations du vecteur $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}^{\ominus}$ naturellement disponibles dans un faisceau gaussien sont suffisamment variées pour réaliser une tomographie du mouvement Brownien (Figure 2.5c). On remarque cependant que les gradients selon l'axe Z sont

beaucoup moins représentés que les gradients selon l'axe X. De plus, cette méthode d'identification des directions propres nécessite le déplacement du nanofil en plusieurs points du champ optique, ce qui dégrade la stabilité et la reproductibilité des expériences. La méthode que l'on décrit maintenant s'affranchit de ces deux inconvénients.

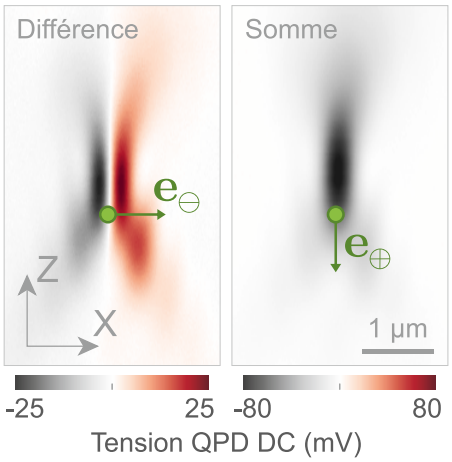


Figure 2.6 – Cartes des tensions $V^\ominus$ et $V^\oplus$ lors du balayage d'un nanofil en chaque point d'une grille bidimensionnelle horizontale X,Z dans le faisceau laser. Un point idéal de mesure est représenté en vert, ainsi que les orientations (idéales) des vecteurs de mesure en ces points.

Les gradients locaux des voies différence et somme seront notés $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}^\ominus$ et $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}^\oplus$, ils définissent les orientations de mesures respectives $\mathbf{e}_\ominus$, $\mathbf{e}_\oplus$. La Figure 2.6 présente les cartes de la tension $V_{\mathrm{DC}}^\ominus$, $V_{\mathrm{DC}}^\oplus$ mesurées à partir de la réflexion de la lumière sur le nanofil lorsque celui-ci balaye une surface dans la même configuration que sur la Figure 2.5. La mesure est d'autant plus efficace que le gradient local de tension est élevé. Une fois un point de mesure choisi à partir de ce critère, la mesure locale des gradients $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}^\ominus$ et $\boldsymbol{\nabla} V_{\mathrm{DC}}^\oplus$ est réalisée en déplaçant le nanofil dans les deux directions orthogonales X, Z autour du point de mesure par petits pas (typiquement 20 nm) selon le schéma présenté en Figure 2.7, tout en enregistrant les tensions $V_{\mathrm{DC}}^\oplus, V_{\mathrm{DC}}^\ominus$ en chaque position. Les nappes $V_{\mathrm{DC}}^\ominus(\mathrm{X},\mathrm{Z})$, $V_{\mathrm{DC}}^\oplus(\mathrm{X},\mathrm{Z})$ ainsi construites sont approchées par des polynômes d'ordre 3 de X et Z, ce qui permet d'estimer avec précision les dérivées partielles locales $\partial_{\mathrm{X}} V_{\mathrm{DC}}$ et $\partial_{\mathrm{Z}} V_{\mathrm{DC}}$ pour chaque voie de mesure.

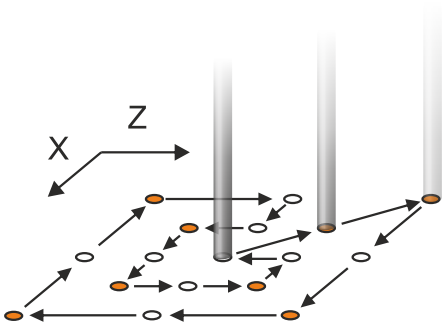


Figure 2.7 – Méthode d'estimation du vecteur de mesure : le nanofil est déplacé autour de la position de mesure par petits pas selon X, Z et deux directions tournées de 45° par rapport à X et Z. Le chemin parcouru est de la forme ci-dessus pour ne pas perdre de temps avec des pas inutiles.

Pour améliorer la précision de cette mesure, on calcule également les gradients $\partial_{\mathrm{X}'} V_{\mathrm{DC}}$ et $\partial_{\mathrm{Z}'} V_{\mathrm{DC}}$ dans les directions (X', Z') tournées à 45° de (X, Z), à partir desquels on calcule une

seconde estimation de $\partial_X V_{DC}$ et $\partial_Z V_{DC}$, et les deux jeux de données sont moyennés. En reproduisant plusieurs fois (15 fois) ces séquences, on améliore l'estimation des vecteurs de mesure $\boldsymbol{\nabla} V_{DC}^{\ominus}$ et $\boldsymbol{\nabla} V_{DC}^{\oplus}$ [75]. On estime en outre l'erreur statistique sur cette calibration et la linéarité de la mesure à partir des dérivées d'ordre supérieur des nappes de tension. Pour une transimpédance de 2×10^5 V/A, on obtient typiquement $||\boldsymbol{\nabla} V_{DC}^{\ominus,\oplus}|| \sim 3 \cdot 10^5$ V/m en réflexion avec 60 μW de puissance optique injectée.

Points de mesure idéaux

Pour mesurer le mouvement en deux dimensions, on souhaite disposer de deux vecteurs non colinéaires et idéalement perpendiculaires. Il existe sur l'axe optique, juste en amont ou en aval du *waist* optique, des points où **les vecteurs de mesure de la voie différence et somme sont perpendiculaires** (voir Figure 2.6) : $\boldsymbol{\nabla} V_{DC}^{\ominus}$ est aligné avec l'axe transverse X et $\boldsymbol{\nabla} V_{DC}^{\oplus}$ est aligné avec l'axe optique Z. Ainsi, en ces points de mesure idéaux, la voie différence mesure essentiellement [1] les déplacements le long de l'axe X et la voie somme les déplacements le long de l'axe Z.

Ces points de mesure servent également à réaliser un **asservissement bidimensionnel** de la position du nanofil dans le faisceau de mesure pour contrer les dérives spatiales (dérives thermiques lentes et changement de position d'équilibre à l'application d'un champ de force extérieur), en utilisant le signal de la voie DC différence pour compenser les dérives en X et le signal de la voie DC somme pour compenser les dérives en Z. Pour cela, la pente position/tension de chaque voie est automatiquement calibrée au lancement de l'asservissement grâce à 5 itérations d'aller-retours dans chaque direction. L'asservissement s'efforce de maintenir la tension de chaque voie mesurée périodiquement (toutes les 100 ms typiquement) à sa valeur initiale en compensant les dérives dans chaque direction, avec un gain typique de 90%. Chaque direction subit successivement 6 itérations.

Cet asservissement est géré par le programme général d'interface dont le détail rapidement présenté dans un paragraphe ultérieur et travaille généralement en arrière-plan des expériences réalisées au cours de cette thèse. Les options supplémentaires du programme d'asservissement développé incluent la possibilité de définir une distance maximale au point de départ pour éviter d'éventuelles dérives abusives, un seuil minimal de compensation de la position pour éviter les petits déplacement incessants et un seuil maximal pour éviter les grands déplacements accidentels.

Amplification des photodiodes

Les photodiodes utilisées sont des photodiodes Hamamatsu à deux quadrants A et B. Les quadrants sont séparés d'une zone insensible de 20 μm de large, et présentent une efficacité quantique de 85% dans le rouge. L'étage d'amplification a été réalisé à l'Institut Néel par D. Lepoittevin. Un schéma de principe est présenté Figure 2.8. Les voies de sortie Somme donnent les signaux (-A-B) DC et HF les voies Différence les signaux (A-B) DC et HF.

Les voies HF et DC étant amplifiées séparément, on doit envisager la possibilité que les gains des sommateurs et soustracteurs puissent être déséquilibrés, et qu'ils puissent l'être de manière différente entre les voies HF et les voies DC. Pour des modulations de puissance lumineuse $P^A[\Omega]$ sur le quadrant A et $P^B[\Omega]$ sur le quadrant B, les voies somme et différence $\oplus$ et $\ominus$, HF et DC

1. En pratique, le nanofil est placé en l'un de ces points mais la véritable orientation calibrée des vecteurs de mesure est (bien sûr) utilisée pour traiter les données.

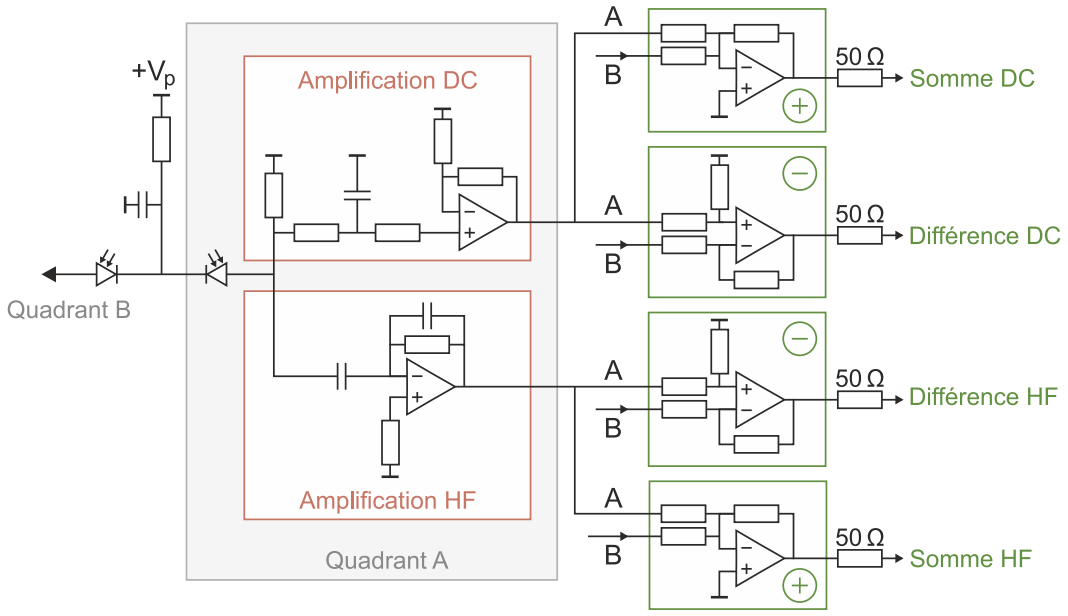


Figure 2.8 – Montage d'amplification des photodiodes à quadrants.

mesurent :

$$\begin{pmatrix} V_{\mathrm{DC}}^{\ominus} \\ V_{\mathrm{DC}}^{\oplus} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} H^{\mathrm{A}\ominus} & -H^{\mathrm{B}\ominus} \\ -H^{\mathrm{A}\oplus} & -H^{\mathrm{B}\oplus} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} P^{\mathrm{A}} \\ P^{\mathrm{B}} \end{pmatrix}, \qquad \begin{pmatrix} V_{\mathrm{HF}}^{\ominus} \\ V_{\mathrm{HF}}^{\oplus} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} G^{\mathrm{A}\ominus} & -G^{\mathrm{B}\ominus} \\ -G^{\mathrm{A}\oplus} & -G^{\mathrm{B}\oplus} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} P^{\mathrm{A}} \\ P^{\mathrm{B}} \end{pmatrix}. \tag{2.38}$$

où $H^{\mathrm{A,B}\ominus,\oplus}[\Omega]$ (resp. $G^{\mathrm{A,B}\ominus,\oplus}[\Omega]$) sont les fonctions de transfert des voies DC (resp. HF), et où on a omis les dépendances en fréquence de tous les termes. $P^{\mathrm{A,B}}[\Omega]$ peut également représenter toute grandeur proportionnelle à la modulation de puissance lumineuse, tel que le déplacement de l'oscillateur, les fonctions de transferts étant alors redéfinies pour absorber les facteurs de conversion.

Dans le cas idéal, $H^{\mathrm{A}\ominus}[\Omega] = H^{\mathrm{B}\ominus}[\Omega]$ (et de même pour les voies $\oplus$ DC, $\ominus$ HF, et $\oplus$ HF). La conversion HF/DC peut s'écrire en inversant la première équation et en injectant les expressions obtenues de P_A et P_B dans la seconde :

$$\begin{pmatrix} V_{\mathrm{HF}}^{\ominus} \\ V_{\mathrm{HF}}^{\oplus} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \dfrac{G^{\mathrm{A}\ominus}H^{\mathrm{B}\oplus} + G^{\mathrm{B}\ominus}H^{\mathrm{A}\oplus}}{H^{\mathrm{A}\ominus}H^{\mathrm{B}\oplus} + H^{\mathrm{B}\ominus}H^{\mathrm{A}\oplus}} & \dfrac{-G^{\mathrm{A}\ominus}H^{\mathrm{B}\ominus} + G^{\mathrm{B}\ominus}H^{\mathrm{A}\ominus}}{H^{\mathrm{A}\ominus}H^{\mathrm{B}\oplus} + H^{\mathrm{B}\ominus}H^{\mathrm{A}\oplus}} \\ \dfrac{-G^{\mathrm{A}\oplus}H^{\mathrm{B}\oplus} + G^{\mathrm{B}\oplus}H^{\mathrm{A}\oplus}}{H^{\mathrm{A}\ominus}H^{\mathrm{B}\oplus} + H^{\mathrm{B}\ominus}H^{\mathrm{A}\oplus}} & \dfrac{G^{\mathrm{A}\oplus}H^{\mathrm{B}\ominus} + G^{\mathrm{B}\oplus}H^{\mathrm{A}\ominus}}{H^{\mathrm{A}\ominus}H^{\mathrm{B}\oplus} + H^{\mathrm{B}\ominus}H^{\mathrm{A}\oplus}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_{\mathrm{DC}}^{\ominus} \\ V_{\mathrm{DC}}^{\oplus} \end{pmatrix} \tag{2.39}$$

$$\tag{2.40}$$

$$\equiv \begin{pmatrix} \alpha_{--} & \alpha_{+-} \\ \alpha_{-+} & \alpha_{++} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_{\mathrm{DC}}^{\ominus} \\ V_{\mathrm{DC}}^{\oplus} \end{pmatrix} \tag{2.41}$$

Les coefficients α_{--} et α_{++} sont les rapports des gains HF et DC (dépendants de la fréquence), tandis que α_{+-} et α_{-+} sont des facteurs de contamination des voies HF dus au déséquilibre éventuel des sommateurs et soustracteurs du montage. La calibration pertinente correspond à l'évaluation dans la précédente équation de toutes les quantités liées aux voies DC en $\Omega = 0$ (car on ne réalise que des mesures statiques sur ces voies), toutes les quantités liées aux voies HF restant évaluées en une pulsation arbitraire (pour caractériser les gains HF dépendant de la fréquence).

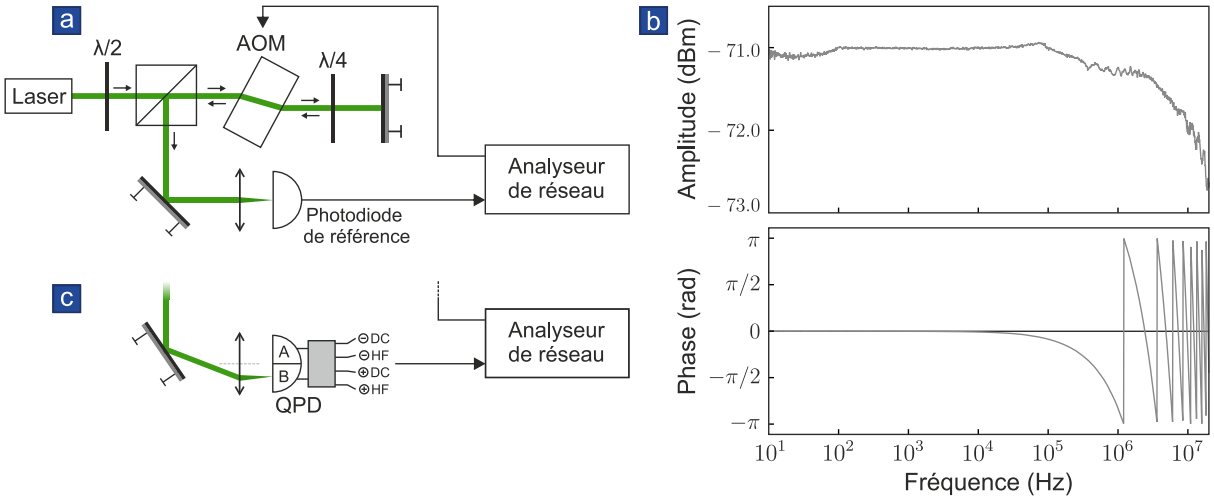


Figure 2.9 – **a.** Montage de calibration préliminaire de l'AOM montrant **b** une réponse d'amplitude presque constante. **c.** Modification du montage pour la calibration de la QPD.

La réponse spectrale de chaque voie est mesurée en envoyant un signal d'amplitude de modulation constante sur toute la plage spectrale étudiée. Ce signal est un faisceau laser modulé par un modulateur acousto-optique monté en double-passage (Acousto-Optic Modulator, AOM, AA Electronics), lui-même commandé par un analyseur de réseau. La réponse de l'AOM à son excitation a d'abord été mesurée (voir Figure 2.9) au moyen d'une photodiode de référence de réponse spectrale extrêmement plate en fréquence [2], de manière à redresser la calibration de la QPD si l'amplitude de modulation utilisée pour celle-ci n'est pas parfaitement plate.

Le faisceau modulé est ensuite envoyé successivement sur les quadrants A et B de la photodiode, tandis que chaque voie $\ominus$ DC, $\oplus$ DC, $\ominus$ HF, $\oplus$ HF de sortie de la photodiode est branchée en entrée de l'analyseur de réseau successivement pour mesurer séparément chacune des 8 fonctions de transfert de l'équation 2.38 qui sont représentées en Figure 2.10 [3].

Les amplitudes des coefficients $\alpha_{\pm\pm}$ déduits sont représentés en Figure 2.11. La contamination mesurée des voies $\ominus$ et $\oplus$ DC est inférieure à 2%, les sommateurs et soustracteurs DC sont donc symétriques. La calibration ultérieure des signaux pourra donc être réalisée de manière satisfaisante avec les coefficients de la configuration idéale, sans contamination :

$$\alpha_{++}[\Omega] = \left|\frac{G^{\oplus}[\Omega]}{H^{\oplus}[0]}\right|, \qquad \alpha_{--}[\Omega] = \left|\frac{G^{\ominus}[\Omega]}{H^{\ominus}[0]}\right|. \tag{2.42}$$

Comme on peut le constater en étudiant la Figure 2.10, les phases mesurées sur chaque quadrant coïncident sur toute la bande passante de chacune des voies (on a soustrait ou ajouté 180° aux signaux affectés d'un signe − pour comparaison avec l'autre quadrant), de sorte qu'il est également valable de mesurer la phase globale de chaque voie, qui est la phase commune aux deux quadrants.

2. Cette mesure de réponse de l'AOM s'est finalement révélée un excellent moyen de réaliser un réglage fin du montage en double-passage, car cette réponse présente des anti-résonances à des fréquences fortement dépendantes de l'orientation du miroir de fond qui constitue le dernier et principal réglage fin du montage (dues à l'interférence destructive des deux passages). L'AOM est bien réglé lorsque ces anti-résonances sont repoussées à haute fréquence : l'amplitude de réponse représentée sur la Figure 2.9 est presque plate et seul le commencement d'une anti-résonance est visible qui n'a même pas encore atteint sa coupure à 10 MHz.

3. Les fonctions de transfert reproduites en Figure 2.10 sont en réalité les gains et déphasages en *puissance*, c'est-à-dire les modules et arguments des fonctions $H^2[\Omega]$ et $G^2[\Omega]$. Dans cette mesure, le signal d'excitation $P[\Omega]$ est la tension de sortie de l'analyseur de spectre.

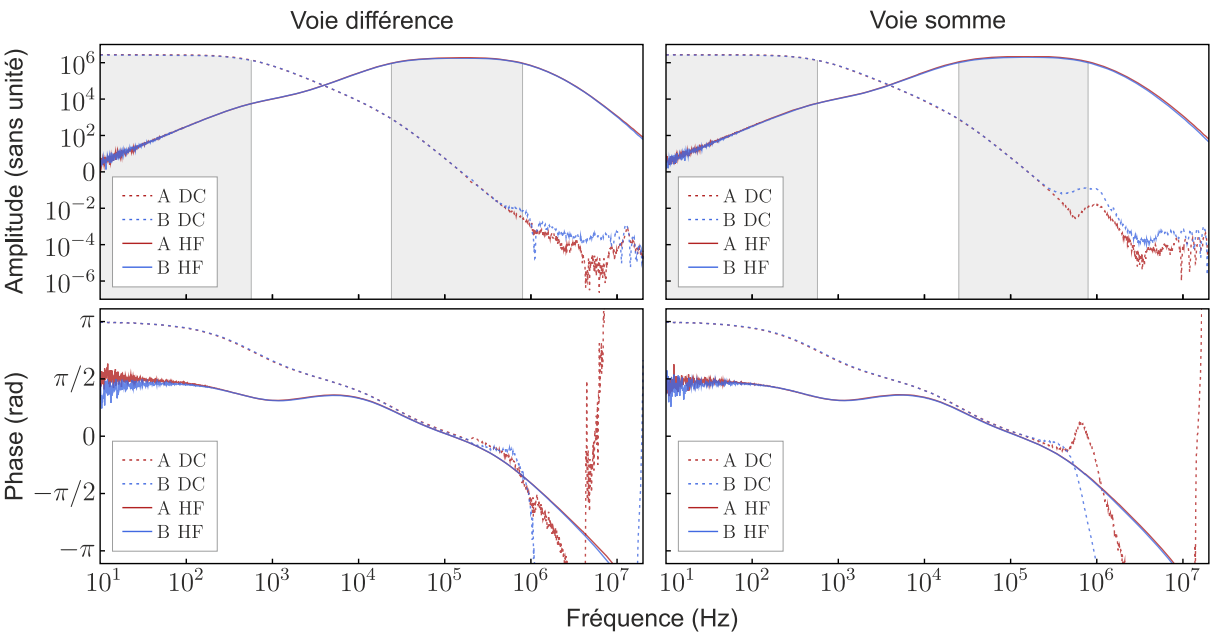


Figure 2.10 – Calibration des gains en puissance $\left(H^{\mathrm{A,B}\oplus,\ominus}[\Omega]\right)^2$ des voies DC et $\left(G^{\mathrm{A,B}\oplus,\ominus}[\Omega]\right)^2$ des voies HF. Les bandes passantes à $-3\,\mathrm{dB}$ HF et DC sont grisées. Les amplitudes de réponse comparent la puissance de commande de l'AOM à la puissance mesurée en sortie des QPD et sont donc sans dimension.

Formule de calibration finale

Les spectres sont finalement calibrés et dimensionnés en m^2/Hz avec la formule :

$$S_{\delta r_\ominus}[\Omega] = \frac{S_{\mathrm{V}^\ominus_{\mathrm{HF}}}[\Omega] - S_{\mathrm{dark}^\ominus_{\mathrm{HF}}}[\Omega]}{||\boldsymbol{\nabla} V^\ominus_{\mathrm{DC}}||^2} \left(\frac{H^\ominus[0]}{G^\ominus[\Omega]}\right)^2, \tag{2.43}$$

et une formule similaire pour $S_{\delta r_\oplus}[\Omega]$. Suite à cette étape fondamentale de calibration, on obtient des spectres calibrés comme ceux de la Figure 2.12. Puisque les voies de mesure différence et somme mesurent des directions presque orthogonales, les amplitudes relatives des pics de chacune des polarisations sont inversées sur les deux voies. L'ajustement de spectres mesurés en absence de champ de force extérieur permet de vérifier la perpendicularité des modes non couplés avec une incertitude typiquement inférieure à quelques %.

2.2.3 Dispositif expérimental

Le montage qui est maintenant décrit a été conçu pour qu'un échantillon (par exemple, une pointe métallique) puisse être déplacé par rapport au nanofil de manière complètement indépendante du positionnement du nanofil dans le laser de mesure. Ce découplage des degrés de libertés est s'appuie sur deux ensembles d'éléments piézoélectriques permettant chacun un déplacement en 3 dimensions. Le plus petit permet le balayage de l'échantillon à proximité du nanofil afin de réaliser des cartes de force. L'ensemble constitué par le nanofil, son support et le premier étage piézoélectrique supportant l'échantillon est tout entier monté sur un second ensemble de piézoélectriques qui commande la position de ce système vis-à-vis du laser fixe dans le référentiel du laboratoire. Enfin, ce second étage piézoélectrique est lui-même monté sur un dispositif de régulation de température. L'ensemble est installé sur des translations motorisées pour le pré-positionnement grossier du nanofil dans le *waist* du laser de mesure. Ce montage est inséré dans une enceinte à vide pour réduire l'amortissement acoustique du nanofil.

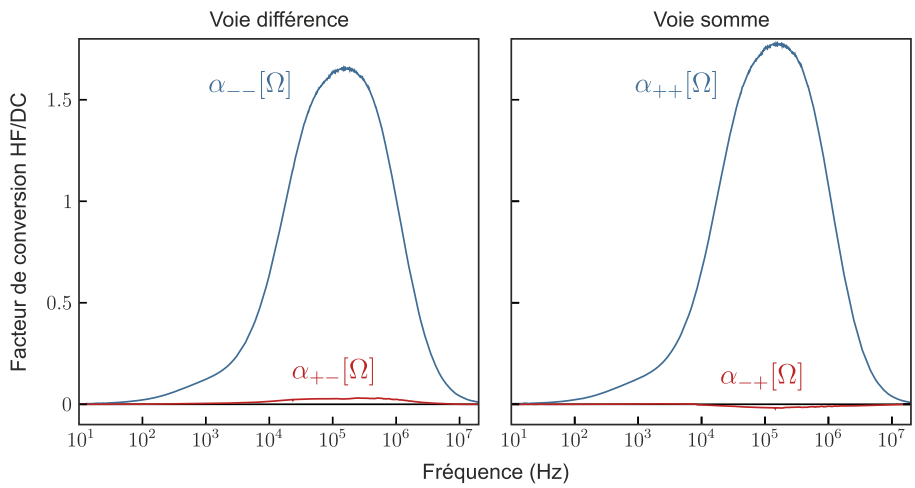


Figure 2.11 – Mesure de facteurs $\alpha\pm\pm$.

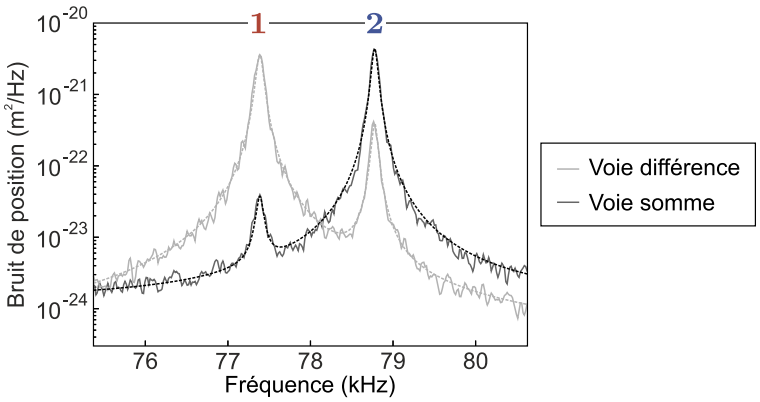


Figure 2.12 – Spectres calibrés mesurés avec les voies somme $\oplus$ et différence $\ominus$ de la QPD.

Construction de l'expérience stabilisée en température

Les plans du montage (voir Figure 2.13) ont été conçu dans l'équipe avec l'aide de L. Del Rey du pôle "Instrumentation Expérimentale", qui a également supervisé la réalisation de l'enceinte à vide. La réalisation mécanique de la partie centrale du montage (en titane) a été effectuée par J. Jarreau, tandis que P. Jacquet du SERAS s'est chargé du support de l'expérience et de la découpe au fil du support inférieur.

La petite **tour piézoélectrique** (scanners Attocube ANS100, de course $40 \times 40 \times 24\,\mu$m et steppers ANP101, de course $5 \times 5 \times 5$ mm) qui supporte l'échantillon est représentée en gris-bleu sur la Figure 2.13 (et indiquée par les légendes "Steppers XYZ" et "Scanners XYZ portant l'échantillon"). Elle est insérée dans une **cuve carrée en titane** percée pour permettre le passage des câbles de connexion des éléments piézoélectriques et pour alléger l'ensemble. Cette cuve s'insère dans la lumière de la grosse **platine piézoélectrique** (PI P-733, de course $30 \times 30 \times 10\,\mu$m, en noir sur la Figure, légendée "Scanner XYZ") qui contrôle le déplacement de l'ensemble de l'expérience vis-à-vis du laser. Un **kiosque en titane** ("Support en titane"), solidaire d'un petit **support conique** dans lequel le nanofil est monté, est également vissé sur la boîte contenant la tour piézoélectrique. Ce kiosque est largement percé pour permettre l'approche d'**objectifs de microscope** (en rouge foncé sur la Figure) dont les supports ne sont pas représentés. Enfin, la grosse platine piézoélectrique est vissée sur un **berceau** en acier inoxydable et cuivre (en rose clair et gris clair).

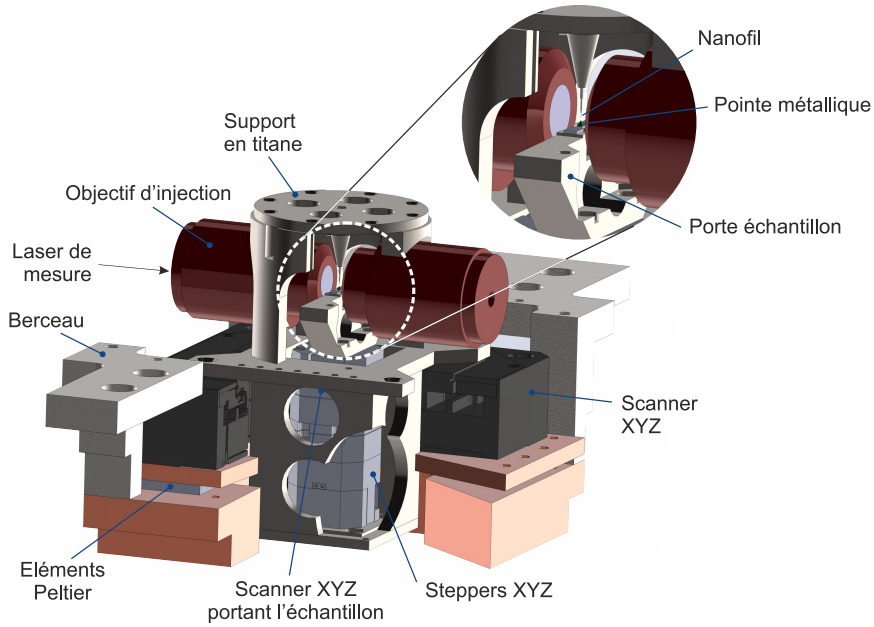


Figure 2.13 – Schéma du montage.

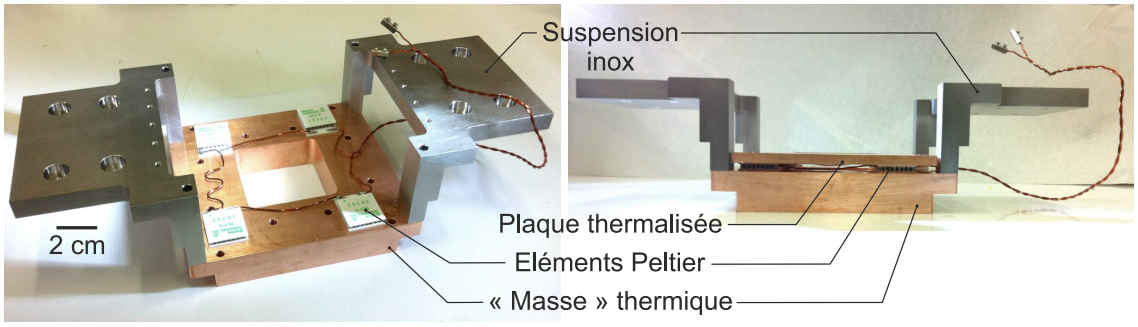


Figure 2.14 – Berceau en cuivre et acier inoxydable et éléments Peltier assurant la stabilisation thermique du montage.

Ce **berceau** (voir Figure 2.14) permet de suspendre l'ensemble des éléments décrits (hormis les objectifs) sur deux translations de pré-positionnement, d'où sa géométrie. Le fond est constitué d'une **plaque de cuivre massive** faisant office de masse thermique sur laquelle sont disposés **4 éléments Peltier** montés en série pour l'asservissement thermique de l'expérience. Une **seconde plaque de cuivre**, plus fine, est déposée sur la face supérieure des éléments Peltier : elle conduit et répartit la chaleur. Il n'y a aucun contact entre les deux parties de cuivre ou entre la plaque supérieure et la suspension en acier. De plus, les câbles rigides d'alimentation des Peltier sont tordus de sorte à ne pas contacter la plaque supérieure. Enfin les deux parties de cuivre sont fortement solidarisées, de manière à serrer les éléments Peltier, par des vis en nylon (qui ne conduisent pas la chaleur) vissées par le bas (pour que la gravité contribue favorablement au serrage). La connexion thermique entre les éléments Peltier et chaque face de cuivre est favorisée par l'utilisation d'une graisse adaptée au vide.

Pour plus de clarté, l'assemblage des pièces de la Figure 2.13 est imagé étape par étape sur la Figure 2.15 :

1. Les deux **translations motorisées 3 axes** sont disposées l'une en face de l'autre dans l'**enceinte à vide**.
2. Le berceau de la Figure 2.14 portant les modules Peltier est suspendu sur les deux trans-

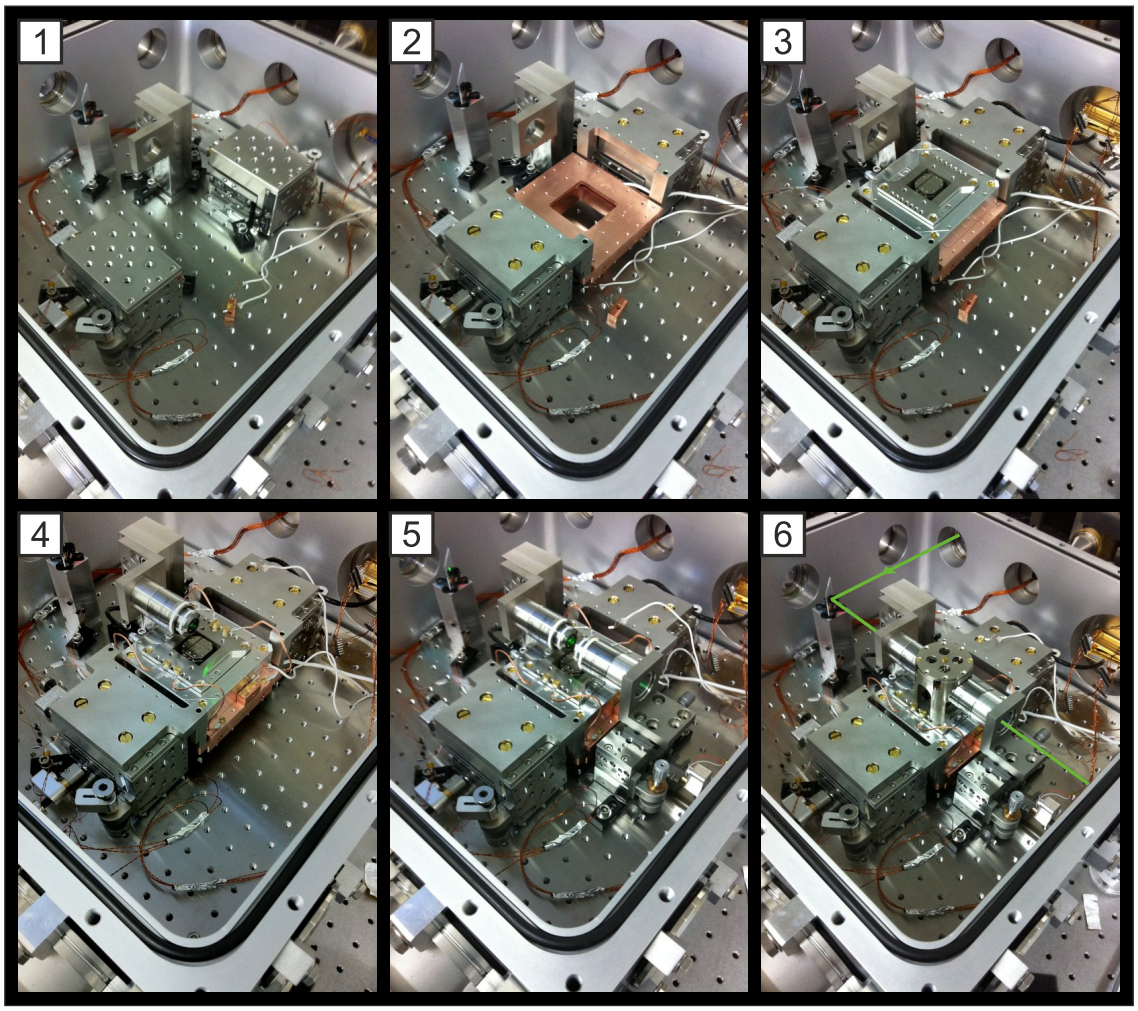


Figure 2.15 – Construction étape par étape du montage expérimental.

lations.

3. La **platine piézoélectrique PI** est fixée sur le fond en cuivre du berceau et la **partie inférieure du support en titane** en forme de cuve carrée est insérée dans la lumière centrale. La tour d'éléments **piézoélectriques Attocubes** est vissée au fond de cette cuve, elle affleure sur la photographie au niveau de la platine PI.

4. L'**objectif d'injection** est monté sur son support fixe. Des **tresses en cuivre** forment un court-circuit thermique de la platine PI pour une meilleure thermalisation. Enfin un **thermomètre** est inséré dans un élément en cuivre lui-même solidarisé de la plaque de cuivre (devant la platine PI sur la photographie).

5. L'**objectif "de collection"** est rajouté sur une **translation 3 axes** motorisée.

6. La **partie supérieure du porte-nanofil** en titane (à laquelle est suspendu le nanofil) est solidarisée de la partie inférieure. Le chemin du laser d'éclairement est rajouté en vert sur la photographie.

Le porte échantillon n'a pas été monté sur la tour Attocube lors de la séquence de montage imagée : il est normalement installé avant l'ajout du kiosque. Il peut être distingué sur la Figure 2.16 à travers la fenêtre de l'objectif de collection, lui-même absent sur cette photographie.

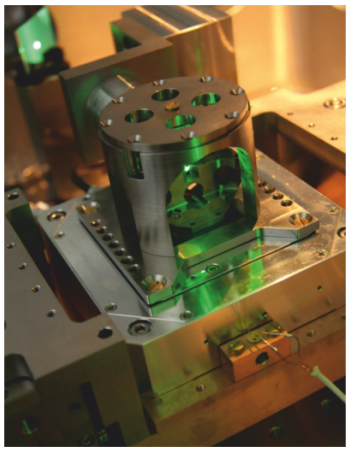


Figure 2.16 – Kiosque porte-nanofil monté sur la platine piézoélectrique PI.

Interface

Deux cartes d'acquisition (DAQ) National Instruments PCIe-6323 fournissent les tensions de commande nécessaires au déplacement des éléments piézoélectriques (une carte par ensemble d'éléments PI et Attocube) et mesurent les tensions de sortie des photodiodes et d'autres appareils (comme un signal de contrôle délivré par le module d'asservissement de la température et les signaux digitaux de fluorescence dont il sera question dans le Chapitre 4). En outre, elles sont utilisées pour synchroniser des opérations telles que le déplacement d'un élément piézoélectrique et la mesure d'un signal, afin d'établir des cartes des signaux mesurés.

Une suite d'interfaçage a été écrite en Python pour toutes les expériences présentées dans ce manuscrit. Sur le modèle du programme développé précédemment par A. Gloppe, l'interface graphique est réalisée en utilisant la librairie PyQt4 (Qt pour Python).

Instruments : Chaque instrument utilisé dans l'expérience (analyseurs de spectre, de réseau, générateurs de tension, cartes DAQ) a été doté d'un pilote en Python sous forme d'une classe, et associé (ou non) à une interface graphique.

Scripts : Chaque programme de manipulation (par exemple, le *scan* point par point en 2D d'une platine piézoélectrique et l'enregistrement simultané de signaux via une carte d'acquisition, ou encore l'acquisition en temps réel d'une information, telle que la pression d'une jauge, ou l'obtention de cartes de spectres, etc.) est écrit sous la forme d'une classe Python héritant de la classe Qt "QThread".

Intérêt des QThread : L'intérêt de cette méthode est que toutes les actions effectuées lors de l'exécution de la fonction principale de ces "QThread" (lecture de signaux, commande de tension, intensité, température...) sont non-bloquantes pour l'interface graphique. Tous les contrôles et l'affichage restent donc accessibles pendant l'exécution d'un script. Une file d'attente spécifique est créée pour les actions du QThread, séparée de celle des actions de l'interface graphique, de sorte qu'il n'y a pas de conflit de priorité. Du point de vue de l'utilisateur, il en résulte des actions simultanées de l'interface graphique et du programme, ce qui permet de contrôler les résultats d'une expérience en temps réel ou de l'interrompre à tout moment.

Interfaces de scripts : Les programmes les plus courants sont eux aussi dotés d'interfaces graphiques (tel que le programme de *scan*, pour renseigner facilement des positions de début et

de fin du *scan*).

Programme matrice : Enfin, un programme "matrice" (dont l'interface est reproduite Figure 2.17) répertoriant les instruments et les scripts à disposition permet de générer des programmes d'interface avec un choix arbitraire d'éléments à charger parmi ces instruments et scripts. Chaque programme "enfant" n'est que l'association d'un fichier de configuration listant les éléments à charger et d'une copie d'un code "coquille" capable de charger et d'organiser ces éléments (et notamment de charger automatiquement leurs interfaces graphiques).

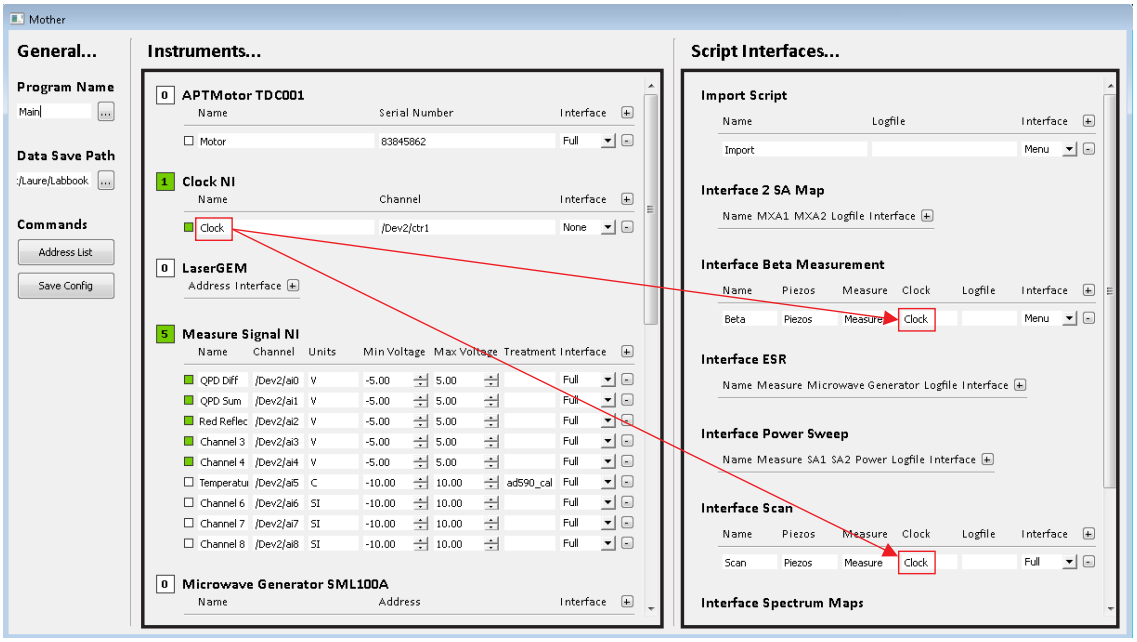


Figure 2.17 – Interface du programme de configuration (programme matrice). Le nom des "instruments" est utilisé comme argument de différents scripts (ici l'instrument dont le nom est entouré en rouge représente simplement l'une des voies de la carte d'acquisition National Instrument qui sert d'horloge, pour laquelle un pilote a été écrit comme s'il s'agissait d'un instrument à part entière).

Utilisation : Un programme d'interface a été généré pour chaque ensemble de translations piézoélectriques (c'est-à-dire, un pour le positionnement du nanofil vis-à-vis du laser de mesure et un pour le balayage de l'échantillon vis-à-vis du nanofil), un autre pour la manipulation de la pompe à vide, un autre pour celle du laser, et enfin un certain nombre d'interfaces allégées construites ou supprimées selon les besoins.

Nanofils utilisés

Dans ce chapitre, nous avons utilisé successivement 2 nanofils : l'un plus long résonant autour de 40 kHz et l'autre autour de 78 kHz. Leurs caractéristiques mécaniques sont résumées dans le tableau suivant. Les premières cartes et l'optimisation de l'expérience ont été réalisées avec le nanofil résonant à 40 kHz, mais il ne subsiste dans la thèse de ces études préliminaires que la Figure 2.20. Les autres figures sont le résultat d'observations utilisant le second nanofil résonant à 78 kHz environ.

Caractéristique		Nanofil 1	Nanofil 2
Fréquence propre basse	$\Omega_1/2\pi$	39.0 kHz	77.4 kHz
Fréquence propre haute	$\Omega_2/2\pi$	40.0 kHz	77.8 kHz
Orientation du mode 1/axe x	θ_0	$-80°$	$-62°$
Longueur	L	90 μm	64 μm
Diamètre	$2R$	200 nm	200 nm
Masse effective	M_{eff}	$0.8 \cdot 10^{-15}$ kg	$0.6 \cdot 10^{-15}$ kg
Facteur de qualité (à 10^{-3} mbar)	Q	680	600

2.2.4 Utilisation des formules d'inversion dans une situation réelle

Dans cette section, on explique la mise en œuvre du calcul des orientations des modes pour chaque paire de spectres de bruit thermique acquis. On rappelle que les quantités relatives aux voies de mesure Somme et Différence de la QPD sont notées $(\oplus, \ominus)$ et les quantités relatives à chaque polarisation mécanique sont notées $(+, -)$. On définit les angles suivants entre les modes et les vecteurs de mesure :

$$\begin{cases} \cos\theta_-^\ominus &= (\mathbf{e}_\ominus \cdot \mathbf{e}_-) \\ \sin\theta_+^\ominus &= -(\mathbf{e}_\ominus \cdot \mathbf{e}_+) \\ \cos\theta_-^\oplus &= (\mathbf{e}_\oplus \cdot \mathbf{e}_-) \\ \sin\theta_+^\oplus &= -(\mathbf{e}_\oplus \cdot \mathbf{e}_+) \end{cases} \tag{2.44}$$

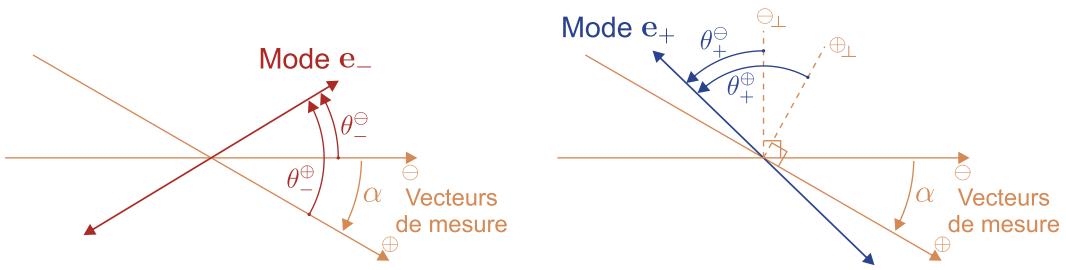


Figure 2.18 – Représentation des angles définis dans l'équation 2.44.

Seuls trois de ces quatre angles sont indépendants puisque $\theta_-^\ominus - \theta_-^\oplus = \theta_+^\ominus - \theta_+^\oplus$. On remplace donc les deux dernières définitions par celle d'un seul angle α entre les vecteurs de mesure :

$$\cos(\theta_-^\ominus - \alpha) = (\mathbf{e}_\oplus \cdot \mathbf{e}_-) \tag{2.45}$$

$$\sin(\theta_+^\ominus - \alpha) = -(\mathbf{e}_\oplus \cdot \mathbf{e}_+) \tag{2.46}$$

Le développement modal[4] donne les spectres mesurés sur chacune des voies :

$$S_{\delta r_\ominus}[\Omega] = \cos^2\theta_-^\ominus\, S_{\delta r_-}[\Omega] + \sin^2\theta_+^\ominus\, S_{\delta r_+}[\Omega] \tag{2.47}$$

$$S_{\delta r_\oplus}[\Omega] = \cos^2(\theta_-^\ominus - \alpha)\, S_{\delta r_-}[\Omega] + \sin^2(\theta_2^\ominus - \alpha)\, S_{\delta r_+}[\Omega] \tag{2.48}$$

où $S_{\delta r_\pm}[\Omega] = \dfrac{2\Gamma k_B T}{M_{\text{eff}}} \dfrac{1}{(\Omega_\pm^2 - \Omega^2)^2 + \Gamma^2\Omega^2}$. Ainsi les amplitudes effectives des pics mesurés sont :

4. Le développement modal dans la base couplée représente une approximation dans le cas d'un champ de force non-conservatif qui consiste à négliger les corrélations croisées entre modes qui apparaissent dans le spectre. On verra dans le chapitre suivant qu'il s'agit d'une approximation fiable pour la mesure des orientations tant que les fréquences restent résolues.

$$\begin{aligned} S_{\delta r_\ominus}[\Omega_-] &\simeq \frac{2\Gamma k_B T}{M_{\text{eff}}}\cos^2\theta_-^\ominus, & S_{\delta r_\ominus}[\Omega_+] &\simeq \frac{2\Gamma k_B T}{M_{\text{eff}}}\sin^2\theta_+^\ominus, \\ S_{\delta r_\oplus}[\Omega_-] &\simeq \frac{2\Gamma k_B T}{M_{\text{eff}}}\cos^2(\theta_-^\ominus-\alpha), & S_{\delta r_\oplus}[\Omega_+] &\simeq \frac{2\Gamma k_B T}{M_{\text{eff}}}\sin^2(\theta_+^\ominus-\alpha). \end{aligned} \tag{2.49}$$

L'approximation consiste ici à négliger la contribution du mode + au spectre à la pulsation Ω_- (c'est-à-dire à négliger la largeur spectrale devant le *splitting*). On a alors :

$$\sqrt{\frac{S_{\delta r_\oplus}[\Omega_-]}{S_{\delta r_\ominus}[\Omega_-]}} = \left|\cos\alpha + \tan\theta_-^\ominus \sin\alpha\right|, \qquad \sqrt{\frac{S_{\delta r_\oplus}[\Omega_+]}{S_{\delta r_\ominus}[\Omega_+]}} = \left|\cos\alpha - \frac{\sin\alpha}{\tan\theta_+^\ominus}\right|, \tag{2.50}$$

soit :

$$\tan\theta_-^\ominus = \pm\frac{1}{\sin\alpha}\sqrt{\frac{A_-^\oplus}{A_-^\ominus}} - \frac{1}{\tan\alpha}, \qquad \frac{1}{\tan\theta_+^\ominus} = \mp\frac{1}{\sin\alpha}\sqrt{\frac{A_+^\oplus}{A_+^\ominus}} + \frac{1}{\tan\alpha}. \tag{2.51}$$

Cette méthode ne requiert pas des modes qu'ils soient orthogonaux entre eux. Pour les champs de force conservatifs, les densités spectrales s'écrivent toujours comme une somme de Lorentziennes mécaniques. On peut donc séparer par un ajustement avec cette fonction les contributions de chaque mode à chaque fréquence, c'est-à-dire qu'on peut calculer directement le second membre des formules 2.49. Les formules que nous venons de donner sont alors exactes au lieu d'être approchées. Dans des champs de forces non-conservatifs, nous verrons que la méthode de pointage des amplitudes sur le spectre reste néanmoins très robuste jusqu'à la coalescence des fréquences. Il est en outre possible de déterminer grâce à la mesure bidimensionnelle, en même temps que les orientations des modes, les **amplitudes de bruit à résonance**, dont nous verrons au Chapitre 3 qu'elles sont augmentées en champ de force non-conservatif.

Il reste une ambiguïté de signe dans l'orientation des modes reliée au caractère quadratique des mesures de densité spectrale. Le signe relatif des projections, qui a une importance physique pour la détermination des orientations, échappe en effet à la méthode de mesure. Le principe de tomographie angulaire s'affranchit totalement de cette indétermination, mais requiert un traitement du signal plus lourd que le simple enregistrement de deux spectres projetés. L'ambiguïté peut alors être levée dans la configuration de mesure à condition de suivre continûment l'évolution des orientations des modes à partir de la situation non couplée, entièrement connue grâce à une tomographie.

Notons que les orientations restent sur la même branche de solutions associée à l'un ou l'autre des signes relatifs et n'en changent que lorsque l'un des modes traverse un vecteur de mesure sous l'effet d'une rotation de la base des modes propres. Cela peut requérir, selon les orientations initiales des vecteurs de mesure et des modes, de forts gradients de force. Il est donc également possible, en orientant volontairement la base des modes à 45° d'une base de mesure (relativement) orthogonale (en faisant tourner le nanofil sur lui-même par sa vis de support par exemple), de s'affranchir des sauts de branche de solution tant que les gradients de force mesurés restent petits. Enfin, remarquons que la simple utilisation d'un troisième vecteur de mesure lèverait entièrement cette ambiguïté.

2.3 Mesure ultra-sensible d'un gradient de force électrostatique

Dans cette section, on valide le principe de mesure présenté dans la section précédente dans le cas d'un champ de force électrostatique. Celui-ci est appliqué sur le nanofil en approchant une pointe métallique au voisinage de son extrémité (voir une photographie à la caméra de la configuration sur la Figure 2.19).

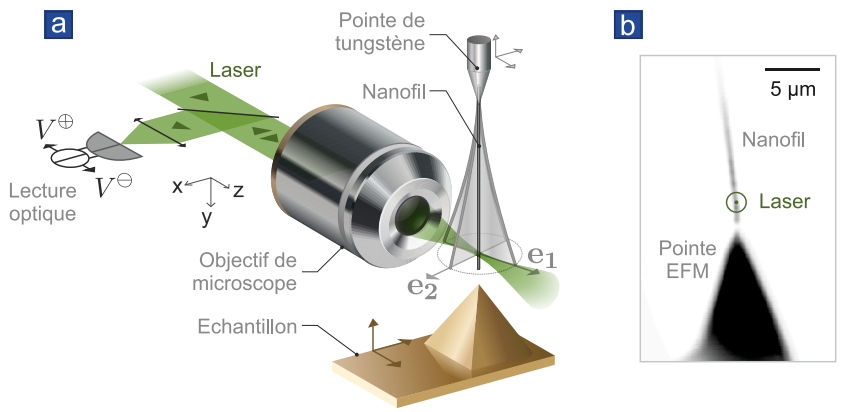


Figure 2.19 – **a.** Principe du montage de mesure d'une force électrostatique appliquée par une pointe EFM ("Echantillon"). **b.** Photographie à la caméra du nanofil et de la pointe électrostatique éclairés en lumière blanche.

2.3.1 La force électrostatique

Signature expérimentale

La contre-électrode est donc placée à environ 500 nm sous le nanofil grâce à la tour piézoélectrique sur laquelle elle est fixée.

La différence de potentiel entre la pointe et le support du nanofil est ensuite balayée de -3 V à 3 V. Les spectres mesurés sur chacune des deux voies de mesure sont représentés sur la Figure 2.20a. La modification des amplitudes relatives des spectres est reliée à la rotation de la base modes. Les orientations et les fréquences déduites de cette mesure sont représentées en Figure 2.20b. Une rotation de la base des modes de plus de 60° est enregistrée, mais l'orthogonalité est conservée à 5° près, ce qui représente l'incertitude de mesure des angles pour cette expérience. Cela confirme la nature conservative du champ de force auquel le nanofil est soumis.

En réalité, la séparation pointe-fil a été choisie ici pour produire un fort gradient croisé $\partial_1 F_2, \partial_2 F_1$ et ainsi confirmer de manière significative la conservativité du champ de force $\partial_1 F_2 - \partial_2 F_1 = 0$. Sur la Figure 2.20b, on a retiré 90° à l'une de deux orientations absolues des modes propres pour souligner la rotation en bloc, respectant leur orthogonalité, caractéristique des champs de force conservatifs.

L'évolution de la fréquence avec la différence de potentiel n'est pas quadratique comme dans un système 1D à faible différence de potentiel. On va maintenant proposer un modèle de la force électrostatique pour comprendre cette dépendance non triviale.

Nature de la force

Selon la nature le niveau de dopage du matériau le constituant, le comportement électrique d'un nanofil se rapproche de celui d'un diélectrique presque transparent au champ électrique ou au contraire de celui d'un métal qui impose des conditions aux limites plus fortes. Dans le cas d'un nanofil diélectrique, le paysage de champ électrostatique est principalement déterminé par la pointe métallique et le support également métallique du nanofil, le nanofil étant alors peu perturbant pour ce paysage. Si le nanofil adopte un comportement métallique, il guide le potentiel de son support jusqu'à son extrémité libre. Les variations du potentiel et les forces électrostatiques sont alors complètement localisées à l'extrémité du nanofil. Ces deux comportements limites sont décrits par l'expression très générale de la force électrostatique comme une

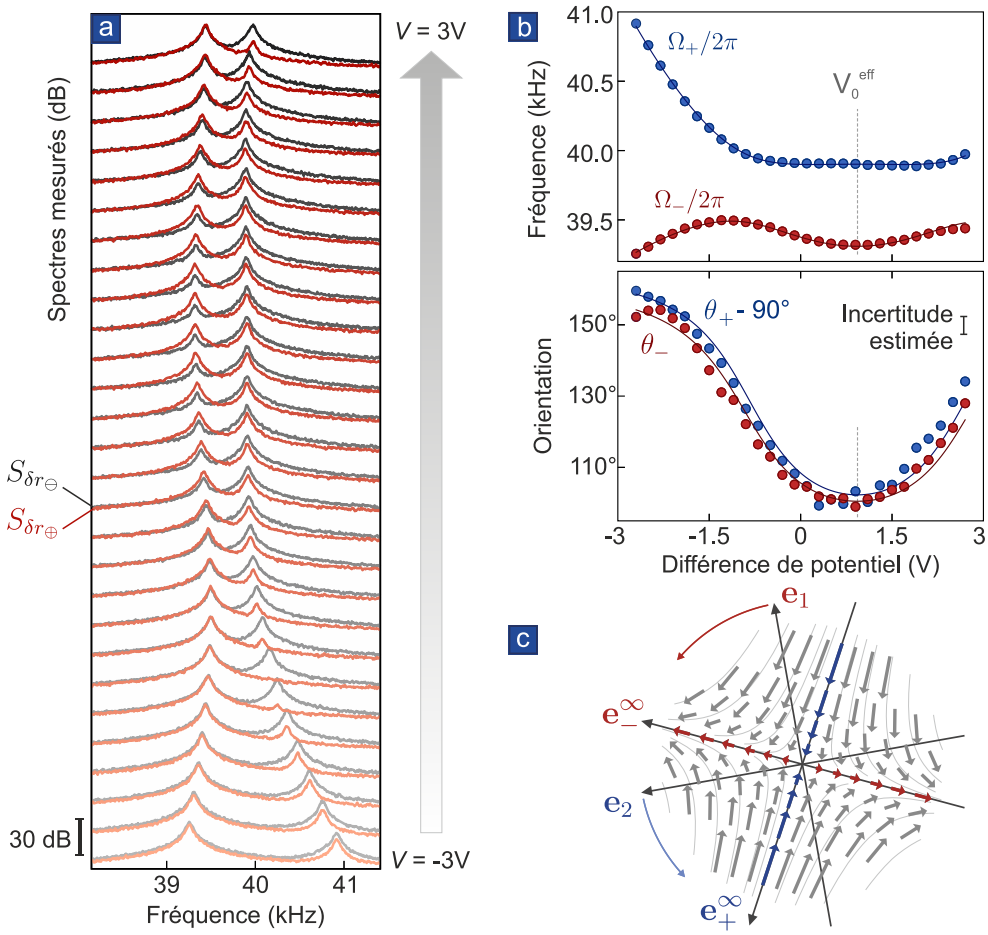


Figure 2.20 – **a.** Spectres enregistrés sur les deux voies de mesure lors du balayage du potentiel électrostatique. **b.** Fréquences et orientations déduites. Elles sont ajustées simultanément par le modèle décrit dans le paragraphe suivant. **c.** Allure qualitative du champ de force (premier ordre de la linéarisation uniquement) déduite des fréquences et orientations selon la méthode exposée précédemment. On a représenté les orientations des modes non couplés ($\mathbf{e}_{1,2}$), les orientations finales à saturation de la rotation ($\mathbf{e}_\pm^\infty$) et, en flèches rouges et bleues, les directions propres du champ de force.

dérivée spatiale de l'énergie stockée [5] :

$$\mathbf{F}_{\mathrm{el}}(\mathbf{r}) = -\nabla \int_V d^3\mathbf{r}\ \left(\mathbf{E}(\mathbf{r}) \cdot \overline{\overline{\alpha}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})\right) \tag{2.52}$$

où $\overline{\overline{\alpha}}$ représente le tenseur de polarisabilité locale du fil diélectrique supposé être symétrique. Le champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ est proportionnel à la différence de potentiel appliquée entre électrodes. Finalement, dans cette thèse, la complexité de la dernière expression sera toute entière incluse dans un coefficient électromécanique dépendant de la position $\kappa(\mathbf{r})$ dont on s'efforcera de mesurer les gradients (qui seront notés $\alpha(\mathbf{r})$ dans la suite), pour ne laisser qu'une dépendance quadratique en la différence de potentiel :

$$\mathbf{F}_{\mathrm{el}}(\mathbf{r}) = -\kappa(\mathbf{r})V^2. \tag{2.53}$$

En pratique, des résistances de l'ordre de 1 à 10 GΩ ont été mesurées pour ces nanofils [76] mais un comportement métallique, en particulier pour les nanofils de SiC courts, a également déjà été observé en émission de champ [86]. La modélisation de la réponse électrostatique du nanofil reste donc un sujet complexe, ce qui renforce l'intérêt d'une mesure expérimentale.

5. Notons que ce gradient correspond à une dérivée vis-à-vis des coordonnées du nanofil : on qualifiera de tels gradients de *lagrangiens* dans la suite.

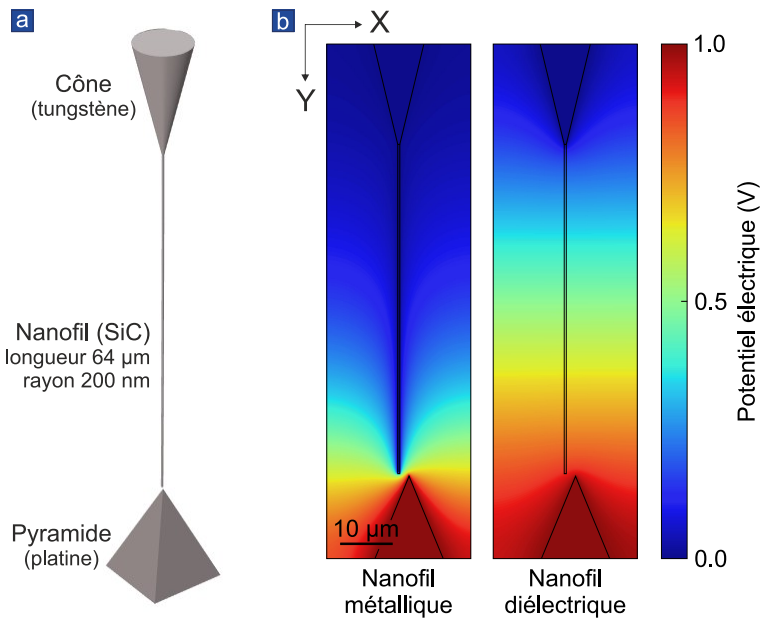


Figure 2.21 – **a.** Modèle utilisé sous COMSOL pour simuler l'expérience. **b.** Paysages de potentiel électrostatiques pour un nanofil non déformable diélectrique et métallique pour une différence de potentiel d'1 V.

Le modèle de la Figure 2.21a a été développé pour simuler les résultats de la mesure de force avec le logiciel COMSOL par la méthode des éléments finis. Des coupes transversales de paysages de potentiel électrostatique obtenus sont représentés sur la Figure 2.21b dans le cas d'un nanofil diélectrique (possédant la permittivité diélectrique du SiC), et dans le cas d'un matériau métallique (le tungstène a été choisi pour la démonstration), la pointe étant légèrement décalée sur le côté pour constater l'influence du nanofil sur ces paysages. Le nanofil diélectrique influence peu la structure du potentiel qui ne dépend que des positions relatives de la pointe et du support du nanofil, tandis que c'est la séparation nanofil-pointe qui détermine la distribution de potentiel dans le cas du nanofil métallique. Dans cette simulation, le nanofil n'est pas autorisé à se déformer. Dans un programme de simulation plus abouti, on lui confère un comportement mécanique élastique. La connaissance du champ électrostatique permet de calculer la répartition verticale de la force s'exerçant sur le nanofil en intégrant le tenseur énergie-impulsion à sa surface.

Zéro électrostatique

La différence de potentiel appliquée n'est pas exactement celle qui apparaît dans l'expression des forces électrostatiques. La différence des énergies de Fermi des matériaux constituant le nanofil et la pointe métallique (notées $\varepsilon_{F,1}$ et $\varepsilon_{F,2}$ sur la Figure 2.22) est à l'origine d'une différence des travaux d'extraction des électrons (W_1 et W_2) de chaque objet. Pour des objets de taille nanométrique, ces travaux dépendent fortement de la géométrie et de la configuration cristallographique, si bien qu'on ne retrouve généralement pas les valeurs des travaux de sortie des matériaux massifs.

Il résulte de la différence des travaux de sortie une tension appelée **zéro électrostatique** (V_0) qui persiste lorsque l'on porte les matériaux au même potentiel. Il existe donc une force électrostatique résiduelle dans le cas où les matériaux sont court-circuités. Le zéro électrostatique est pris en compte en décalant de V_0 la tension qui intervient dans la force : le modèle utilisé des gradients de force électrostatique devient alors : $g_{ij}(\mathbf{r}, V) = \alpha_{ij}(\mathbf{r})\,(V - V_0)^2$.

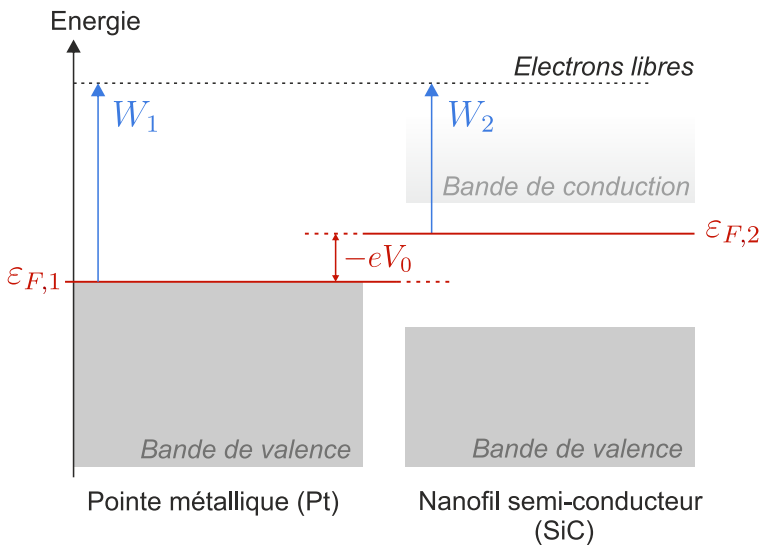


Figure 2.22 – Schéma simplifié des bandes d'énergie.

Modèle de champ de force

Les nanofils présentent également des domaines, et peuvent de plus faire apparaître des états de charge de surface complexe [87]. Il existe donc éventuellement des **charges piégées** dans les nanofils responsables d'une force supplémentaire de Coulomb sur le nanofil qui est linéaire en potentiel électrostatique (et non quadratique). Enfin, il peut exister des forces d'une autre origine qu'électrostatique, indépendantes de la différence de potentiel. Finalement, les gradients du champ de force peuvent s'écrire :

$$g_{ij}(\mathbf{r}, V) = \alpha_{ij}(\mathbf{r})\,(V - V_0)^2 + \beta_{ij}(\mathbf{r})\,(V - V_0) + g^0_{ij}(\mathbf{r}). \tag{2.54}$$

Cette expression possède 4 paramètres libres (α_{ij}, β_{ij}, g^0_{ij} et V_0), or les expériences ne donnent accès qu'à la dépendance quadratique des gradients g_{ij} en V, soit une fonction de V à 3 paramètres. Dans la suite, on utilisera donc l'expression suivante à 3 paramètres pour ajuster les gradients :

$$\boxed{g_{ij}(\mathbf{r}, V) = \alpha_{ij}(\mathbf{r})\left(V - V^{\text{eff}}_{0,ij}(\mathbf{r})\right)^2 + g^{0,\text{eff}}_{ij}(\mathbf{r})} \tag{2.55}$$

avec :

$$\begin{cases} V^{\text{eff}}_{0,ij}(\mathbf{r}) &= V_0 - \dfrac{\beta_{ij}(\mathbf{r})}{2\alpha_{ij}(\mathbf{r})} \\ g^{0,\text{eff}}_{ij}(\mathbf{r}) &= g^0_{ij}(\mathbf{r}) - \dfrac{\beta^2_{ij}(\mathbf{r})}{4\alpha_{ij}(\mathbf{r})} \end{cases} \tag{2.56}$$

On note que la mesure du coefficient quadratique α_{ij} est toujours possible sans ambiguïté en présence de charges piégées. En pratique, on n'a jamais eu besoin dans les premières expériences décrites dans cette partie de définir des zéros électrostatiques $V^{\text{eff}}_{0,ij}$ pour composante (i, j). Cela traduit probablement la similarité des structures des gradients locaux de la force de Coulomb et de la force dipolaire à ces distances élevées pointe-nanofil ($\simeq 500\,\text{nm}$) : le coefficient $\beta_{ij}(\mathbf{r})/2\alpha_{ij}(\mathbf{r})$ est alors relativement indépendant des directions i et j. Ainsi, le modèle utilisé dans cette section ne fait intervenir qu'un $V^{\text{eff}}_0(\mathbf{r})$. La mesure ultérieure de force à séparation pointe-nanofil autour de 100 nm, exposée rapidement dans la dernière section de ce chapitre, a cependant fait apparaître une différence entre les zéros électrostatiques effectifs de chaque composante des gradients du champ de force.

On n'a pas pris en compte dans ce modèle simplifié les effets de "**patch**" électrostatiques. Les surfaces présentent en effet des domaines de potentiel variés, non nécessairement limités aux inhomogénéités structurelles, qui doivent en particulier être pris en compte dans les systèmes de mesure de force de Casimir et ont donc été décrits dans ce cadre. Des modèles [88] décrivant avec un très bon accord l'écart entre la valeur théorique de la force de Casimir et la force mesurée dans [89] et dans [90] proposent une distribution homogène de la taille de ces "patch" entre 2 nm et 2 μm environ. Plusieurs d'entre contribuent ainsi à la mesure de gradient de force électrostatique. Ils peuvent donner une dépendance spatiale supplémentaire, non seulement au zéro électrostatique local, brouillant ainsi les mesures de forces de Casimir qui nécessitent justement la détermination précise de ce paramètre, mais également à la capacité effective, donc au coefficient α_{ij} dans notre cas. Toutefois, l'écart-type des potentiels locaux étant donné par les modèles [88] à moins de 10 mV, on envisagera ces effets comme une correction sur les premières mesures de force présentées.

Ajustement des mesures de force électrostatique

On utilise donc l'expression 2.55 ainsi que les résultats de la section précédente (fréquences propres données par l'équation 2.13, orientations propres données par l'équation 2.16) pour ajuster les fréquences et orientations des modes propres déduites sur la Figure 2.20a (en traits pleins bleu et rouge foncé).

L'ajustement reproduit correctement la variation non triviale des fréquences en fonction de la tension. On a reconstruit la structure locale du champ de force, c'est-à-dire $\mathbf{r}\cdot\boldsymbol{\nabla}F_{\text{ext}}$, à partir des gradients mesurés (voir Figure 2.20). Le nanofil présente de plus une très grande sensibilité aux gradients de force : une variation d'environ 30 d'attoNewtons sur 5 nanomètres a par exemple été mesurée pour 1 V de potentiel appliqué.

2.3.2 Cartes de force électrostatique

On expose maintenant la méthode et les résultats de la **cartographie** du champ de force électrostatique. La mesure locale présentée ci-dessus est pour cela reproduite pour différentes séparations nanofil-échantillon.

Protocole de mesure

La position de la pointe est balayée dans un plan horizontal (X,Z) à quelques centaines de nanomètres en dessous de l'extrémité libre du nanofil. Pour chaque position de l'échantillon, des spectres de mouvement Brownien sont acquis pour 6 points de tension statique de -2 V à $+2$ V. Les deux vecteurs de mesure $(\mathbf{e}_\ominus, \mathbf{e}_\oplus)$ sont mesurés toutes les 3 minutes pour tenir compte des dérives lentes du montage et de l'éventuelle perturbation de la réflexion du laser de mesure par l'échantillon. En effet, la réflexion parasite sur l'échantillon peut modifier les conditions de mesure, c'est-à-dire les orientations des vecteurs de mesure et l'efficacité de mesure. Dans le cas de la pointe électrostatique, l'échantillon pénètre très peu dans le laser sonde et cet effet est négligeable, mais cela n'est plus le cas pour un échantillon étendu. La Figure 2.23 présente l'évolution des vecteurs de mesure en norme et orientation au cours d'une carte typique mesurée avec une puissance optique d'environ 20 μW.

La position du fil est asservie en 2 dimensions pour que son extrémité soit contrainte à rester au point de mesure idéal dans le faisceau laser, c'est-à-dire : qu'elle soit toujours centrée transversalement à l'axe optique (le long de l'axe X) et décentrée le long de l'axe optique (Z), là où les vecteurs de mesure sont orthogonaux (voir Section 2.2.2). Pour cela, chaque direction est asservie sur la voie de la QPD qui la mesure le mieux : X sur le signal "Différence" $V_\ominus$ et Z sur le

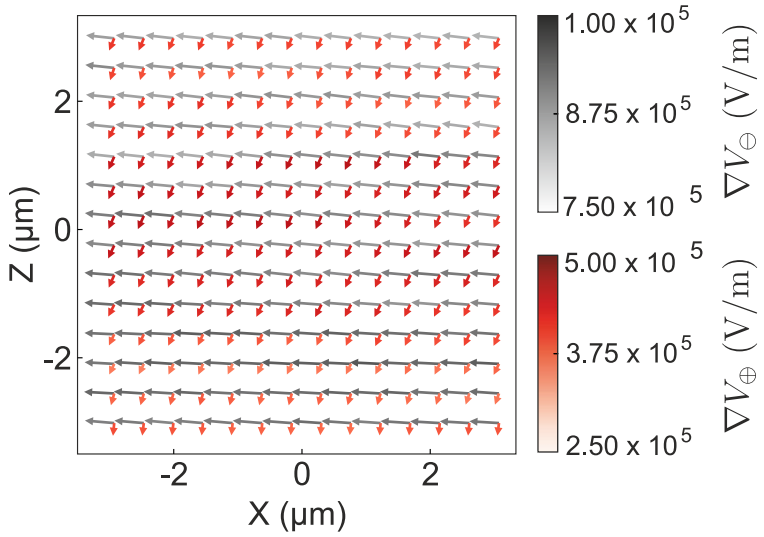


Figure 2.23 – Carte des vecteurs de mesure (très décimée pour clarifier la représentation) utilisés pour l'analyse de la carte de la Figure 2.24. La mesure a commencé dans le coin inférieur gauche et a suivi des lignes de gauche à droite, de bas en haut.

signal "Somme" $V_\oplus$, comme cela a déjà été décrit dans la partie détaillant le montage. On note que c'est la platine externe qui assure le contrôle de la position du nanofil par rapport au laser et déplace donc en bloc le nanofil et l'échantillon. Le nanofil subit donc les déplacements statiques induits par le champ de force qui peuvent atteindre jusqu'à quelques dizaines de nanomètres (voire une centaine pour des nanofils très longs, $> 100\,\mu$m). Cette approche permet ainsi de mesurer la déformation statique en enregistrant les signaux de correction de l'asservissement.

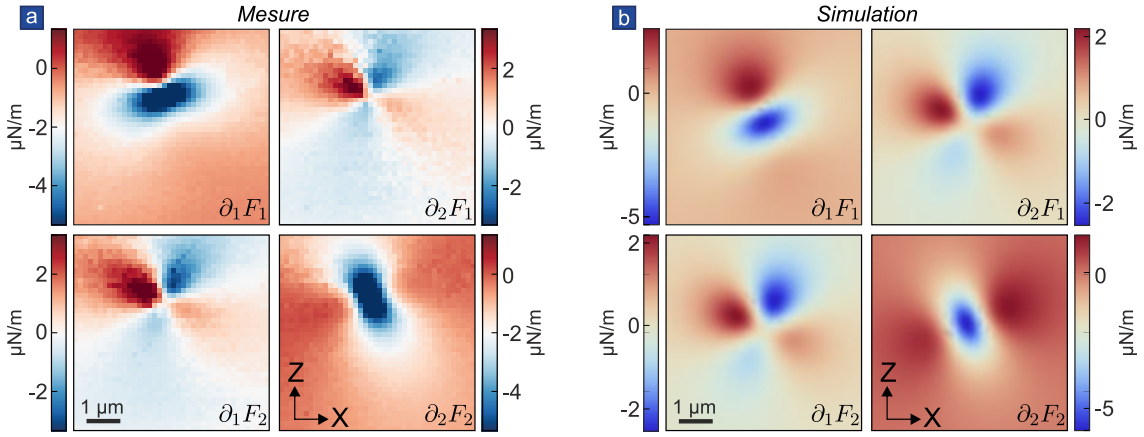


Figure 2.24 – **a.** Cartes des 4 gradients de force électrostatique pour V=−2 V. **b.** Simulation du résultat des gradients dans la base des modes propres non couplés (1, 2) dans le cas simplifié d'une force radiale. L'amplitude de la force a été choisie de manière arbitraire pour s'approcher des résultats expérimentaux. On a également pris en compte une inclinaison du plan imagé par rapport au plan horizontal afin de reproduire les légères asymétries observées sur la carte expérimentale.

Sur la Figure 2.24a, on a représenté le résultat d'une cartographie horizontale (X, Z) de 40×40 points correspondant à $6\times6\,\mu$m. En chaque point, la tension est lentement augmentée de -2 V à 2 V, en 20 étapes de 500 ms au cours desquelles sont mesurés les déflexions statiques. En 6 de ces étapes, on mesure également un spectre avec une RBW de 15 Hz (pour des fréquences autour de 76 kHz et un taux de dissipation de $\Gamma/2\pi \simeq 75$ Hz), en moyennant pendant 5 s environ. La tension est ensuite ramenée en 20 étapes de 500 ms à -2 V en mesurant toujours les déflexions statiques.

Les spectres mesurés en chaque point sont ajustés et le champ de force est automatiquement extrait en suivant l'algorithme schématique donné en Annexe C. Quelques points sont manquants, en particulier sur les cartes obtenues pour de fortes tensions, en raison de la configuration particulière des modes vis-à-vis des vecteurs de mesure, ainsi qu'il est expliqué dans l'Annexe C. Ils sont alors extrapolés à partir des résultats obtenus à une autre tension. Notons que cette procédure d'analyse serait grandement simplifiée et accélérée si on s'autorisait supposer le champ de force conservatif, c'est-à-dire l'hypothèse de modes toujours perpendiculaires entre eux. Cependant, on souhaite précisément construire une méthode de mesure universelle également valable en champ non-conservatif et qui ne présuppose donc pas l'orthogonalité des modes propres.

Le résultat de cette cartographie des gradients de force est donné sous la forme de 4 cartes correspondant aux 4 composantes des gradients de force mesurés présentées en Figure 2.24a pour une différence de potentiel de $-2\,\mathrm{V}$ correspondant à $V - V_0^{\mathrm{eff}} = 2.94\,\mathrm{V}$. Ces cartes sont à comparer à la modélisation simple mais analytique présentée en regard en Figure 2.24b, où l'on a envisagé une force radiale $F(\mathbf{r}) = -\frac{A(V)\mathbf{r}}{r^3}$, où $\mathbf{r}$ est la séparation entre la pointe et l'extrémité du nanofil. Les gradients sont alors :

$$\begin{cases} \partial_x F_x = A(V)\dfrac{3x^2 - r^2}{r^5}, \\ \partial_z F_z = A(V)\dfrac{3z^2 - r^2}{r^5}, \\ \partial_x F_z = A(V)\dfrac{3xz}{r^5} = \partial_x F_z. \end{cases} \tag{2.57}$$

Sur la Figure 2.24b, le plan horizontal d'évolution de la pointe a été tourné de $-15°$ autour de l'axe X et de $5°$ autour de l'axe Z pour tenir compte de l'inclinaison du plan balayé par les éléments piézoélectriques en pratique.

A partir des gradients de force dans la base des modes non-couplés $(1, 2)$, il est possible de calculer les gradients dans la base (x, z) attachée aux axes des éléments piézo-électriques de positionnement de la pointe électrostatique, c'est-à dire attachée aux axes des cartes. Les gradients normalisés par la masse effective g_{xx} (g_{xz}, g_{zx} et g_{zz}) vérifient :

$$\begin{cases} g_{xx} &= \cos^2\theta_0\, g_{11} + \sin^2\theta_0\, g_{22} - \cos\theta_0 \sin\theta_0\, (g_{12} + g_{21}) \\ g_{zz} &= \sin^2\theta_0\, g_{11} + \cos^2\theta_0\, g_{22} + \cos\theta_0 \sin\theta_0\, (g_{12} + g_{21}) \\ g_{xz} &= \cos^2\theta_0\, g_{12} - \sin^2\theta_0\, g_{21} - \cos\theta_0 \sin\theta_0\, (g_{22} - g_{11}) \\ g_{zx} &= \cos^2\theta_0\, g_{21} - \sin^2\theta_0\, g_{12} - \cos\theta_0 \sin\theta_0\, (g_{22} - g_{11}) \end{cases} \tag{2.58}$$

où θ_0 est l'angle orienté entre l'axe x et le mode non couplé 1 (ou l'axe z et le mode non-couplé 2). Les gradients de force non normalisés par la masse effective $\partial_{x,z} F_{z,x}$ et $\partial_{1,2} F_{1,2}$ vérifient les mêmes équations de changement de base (voir Figure 2.25). On constate que ces relations préservent la divergence ($g_{xx} + g_{zz} = g_{11} + g_{22}$) et le rotationnel ($g_{xz} - g_{zx} = g_{12} - g_{21}$) du champ de force.

Des cartes des gradients de force ont également été réalisées dans le plan vertical (voir schéma en Figure 2.26a) (Figure 2.26b). A partir de cet ensemble de cartes, on a calculé la divergence transversale $\partial_1 F_2 + \partial_2 F_2$ présentée en Figure 2.26c. Une coupe selon un axe vertical de la *composante quadratique en tension* $M_{\mathrm{eff}}\alpha_{ij}(\mathbf{r})\left(V - V_0^{\mathrm{eff}}\right)$ de cette divergence est bien reproduite par le modèle analytique 2.57 (voir l'ajustement de la Figure 2.26d), qui prédit une dépendance

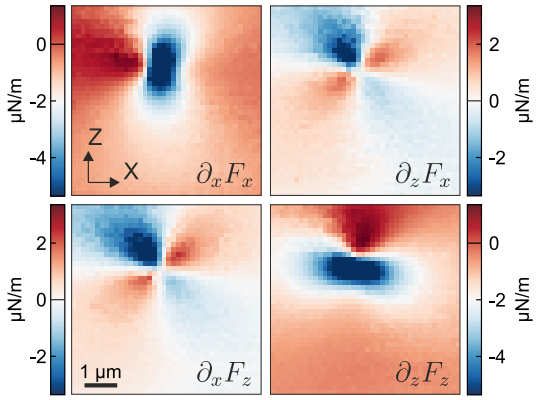


Figure 2.25 – Gradients du champ de force dans la base (x,z) obtenus par les formules de rectification 2.58.

en $-2A(V)/y^3$ de la divergence dans le plan horizontal mesurée verticalement au dessus de la pointe. Cette divergence est par ailleurs négative (voir Figures 2.26d et 2.26e) : c'est une caractéristique des forces attractives.

On a également représenté sur les Figures 2.26d et 2.26e la composante résiduelle de la divergence $M_{\text{eff}} g_{ij}^{0,\text{eff}}(\mathbf{r})$, qui n'est pas capturée par la partie quadratique en tension de l'ajustement. Cette divergence résiduelle est de signe opposé à la divergence quadratique en tension et caractérise donc un champ de force répulsif, dont nous discuterons à la fin du chapitre.

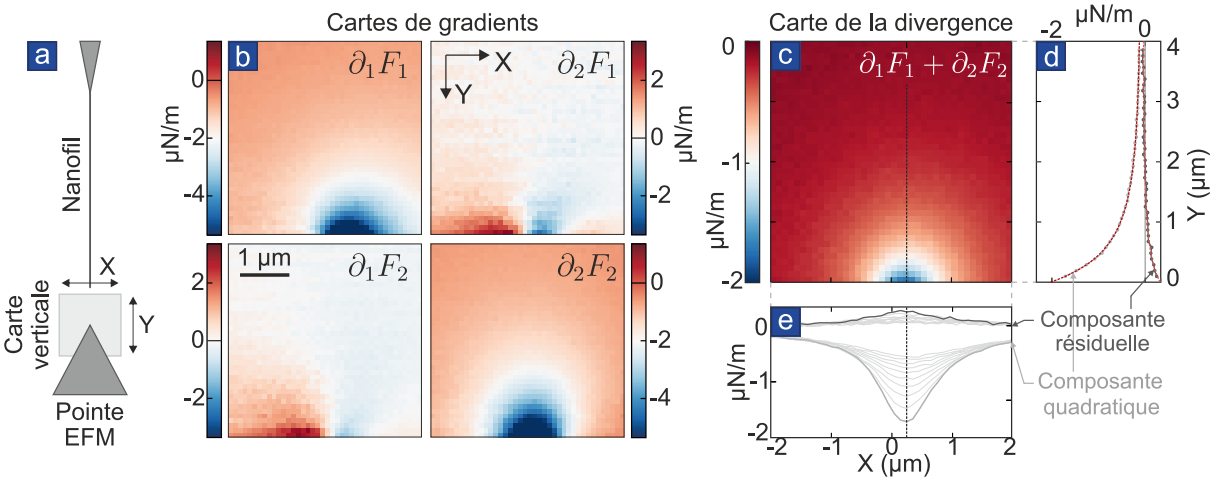


Figure 2.26 – **Cartes des champs de force mesurés dans le plan vertical**. **a.** Schéma de l'expérience. **b.** Cartes des gradients $\partial_i F_j$ mesurés pour une différence de potentiel de -2 V. La première ligne de la carte reproduit quantitativement une coupe des cartes 2.24 le long de l'axe X, pour une coordonnée Z proche du centre de la force. **c.** Divergence quadratique en tension calculée à partir de ces cartes (et des 5 autres ensembles de cartes obtenus pour d'autres valeurs de tension), reproduite ici pour une tension de 1 V. **d. et e.** Coupe verticale (selon un axe indiqué en pointillés sur la figure c) et coupes horizontales (correspondant aux premières lignes de la sous-figure b) de la divergence. On a séparé les composantes quadratique en tension et résiduelle. Sur la figure d est superposé un ajustement en $-1/y^3$ de la composante quadratique (conformément au modèle analytique de la force centrale).

Ces cartes constituent un outil important de détermination des champs électrostatiques dans des géométries arbitraires, notamment pointues ou de très grand rapport d'aspect, dans la mesure où ce genre de problème peut devenir très difficile à simuler. Enfin, ces cartes caractérisent le champ de force électrostatique généré par une pointe habituellement utilisée en EFM et

présentent donc un intérêt pour cette application.

2.3.3 Phénoménologie de l'habillage des modes propres

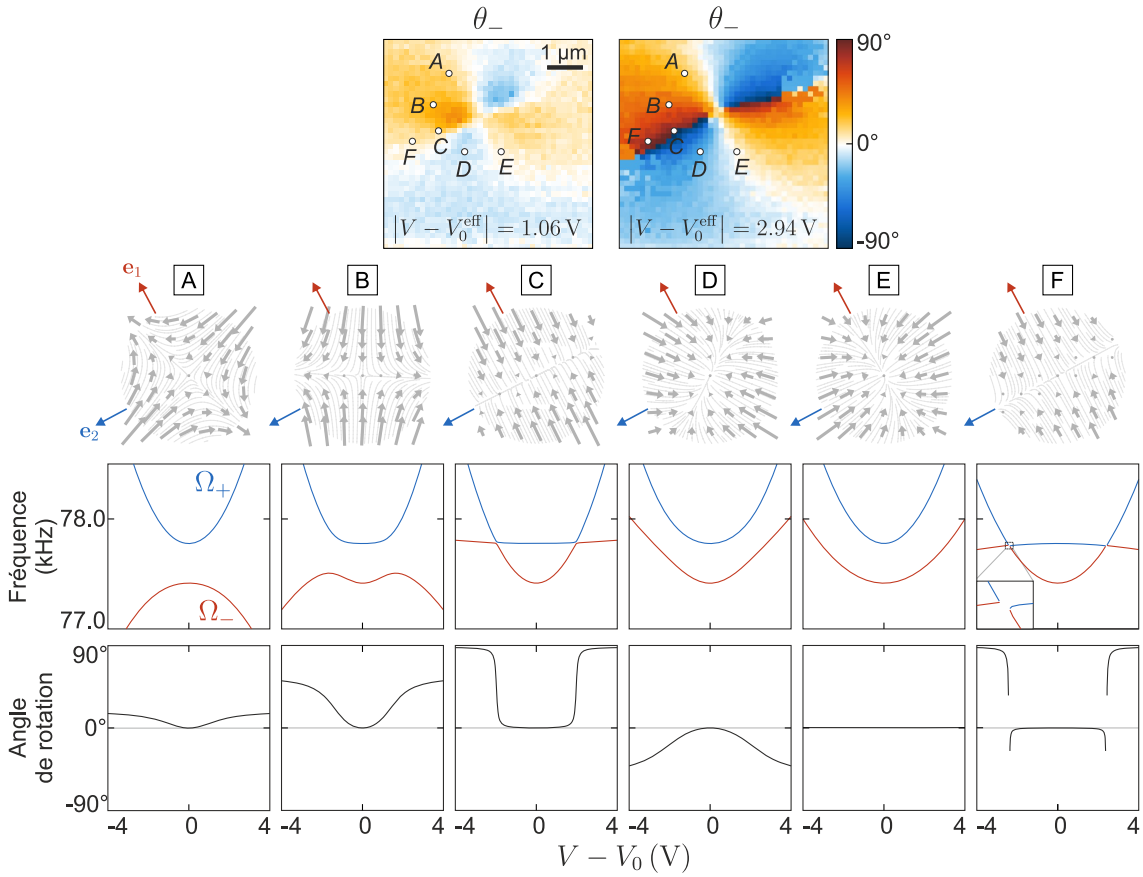


Figure 2.27 – En haut : Définition des 6 points A à F utilisés sur les cartes de l'orientation θ_- du mode $-$ (le mode $+$ présente une cartographie similaire translatée de 90°) à faible (à droite) et fort (à droite) potentiel. En bas : Reconstructions de l'évolution avec la différence de potentiel appliquée des gradients de force (première range), des fréquences (deuxième rangée) et des angles de rotation des modes propres. Ces graphes ont été calculés à partir d'extrapolations de l'ajustement des g_{ij} mesurés à 6 points de tension entre -2 V et $+2$ V par la fonction $g_{ij} = g_{ij}^0 + \alpha_{ij}(V - V_0)^2$.

On revient maintenant sur les signatures de l'habillage mécanique de l'oscillateur bidimensionnel par un champ de force. Ce paragraphe est constitué d'un ensemble de remarques s'appliquant aux résultats présentés dans les Figures 2.20, 2.24 et 2.26. On a distingué 6 positions de la pointe EFM (notées A à F sur la carte 2.27) correspondant à diverses configurations de champ de force (conservatif). Les comportements mécaniques différents de l'oscillateur en ces 6 positions illustrent la variété des signatures de l'habillage mécanique bidimensionnel.

Orthogonalité des modes en champ de force irrotationel

Comme prévu pour un champ de force irrotationnel, les modes propres sont tournés "en bloc". L'orthogonalité des modes n'est pas brisée (voir Figure 2.20b). C'est pourquoi un seul angle de rotation est représenté sur la Figure 2.27. Il s'agit d'une conséquence de la conservativité du champ de force qui peut également être vérifiée sur toute l'étendue de la carte 2.24 où les composantes cisaillantes g_{12} et g_{21} coïncident aux imprécisions expérimentales près.

Tirage de fréquence positif ou négatif

A partir d'une tension nulle, les décalages en fréquence sont directement contrôlés par les composantes longitudinales du gradient de force g_{ii}. Par exemple, pour le point A, le gradient de force g_{11} est positif, ce qui se traduit par un tirage du mode basse fréquence vers les basses fréquences, tandis que g_{22} est négatif, ce qui se traduit par un tirage vers les hautes fréquences du mode haute fréquence. g_{11} et g_{22} sont de même signe négatif en D, de sorte que les deux modes sont tirés vers les hautes fréquences.

Limite de rotation à fort champ de force

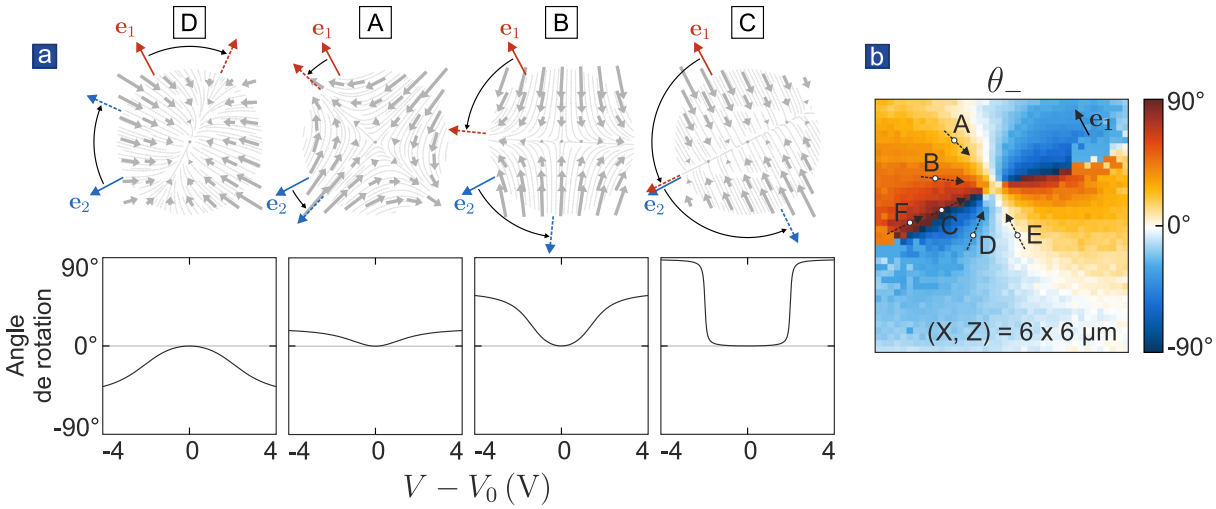


Figure 2.28 – **a. Evolution des orientations propres dans diverses configurations de forces aux points D, A, B, C**. Les directions de saturation des rotations extrapolées sont indiquées avec des flèches en pointillés : elles coïncident avec les directions propres des champs de force. **b.** Carte de l'angle de rotation du mode − à forte différence de potentiel. Les orientations de ce mode à saturation pour chacun des points A à F sont représentées par des flèches en pointillé qui pointent toutes à peu près le centre de la force presque radiale engendrée par la pointe électrostatique.

Contrairement aux fréquences propres qui peuvent être arbitrairement élevées, la rotation des modes propres sature à fort gradient. Dans la limite de très grands gradients de champ de force, la matrice susceptibilité perd toute information liée aux modes propres initiaux et présente finalement les mêmes valeurs et vecteurs propres que la matrice $\boldsymbol{g}$ des gradients du champs de force. Ainsi, le **mode basse fréquence** $\mathbf{e}_-$ s'aligne avec la direction propre associée à la **valeur propre inférieure** du champ de gradient de force, et le **mode haute fréquence** s'aligne dans la direction de la **valeur propre supérieure**. Ceci est illustré dans 4 configurations de champ de force sur la Figure 2.28. Dans le cas d'une force centrale, les modes s'alignent alors avec le centre de la force : la configuration vibrationnelle du nanofil fait donc office de boussole pointant le centre de la force.

Double courbure des fréquences

On analyse ici la configuration du point B représentée sur la Figure 2.29, qui est très proche de celle présentée au début de la section en Figure 2.20.

A gradient de force faible, le mode basse fréquence $\mathbf{e}_{1/-}$ (rouge) est tiré vers les hautes fréquences, comme le montre l'évolution à $V \simeq 0\,\mathrm{V}$ de la Figure 2.29b, car le gradient g_{--} (qui coïncide avec g_{11} pour le mode non habillé) est négatif : en effet, sur la Figure 2.29a, on constate que, dans la direction $\mathbf{e}_{1/-}$, la projection de la force sur $\mathbf{e}_{1/-}$ pointe vers le centre. Lorsque cette

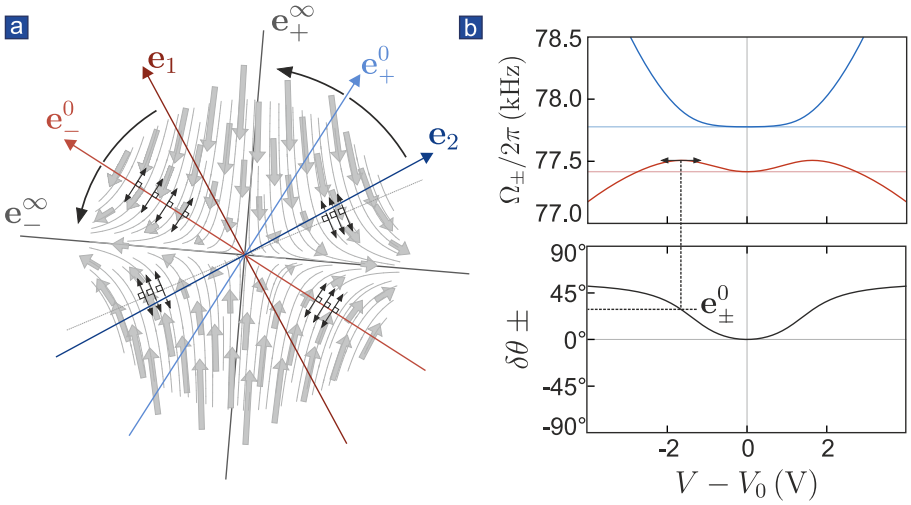


Figure 2.29 – **Détail de l'évolution des fréquences et orientations propres au Point B. a.** Reconstruction du champ de force mesuré au point B. Les flèches rouge foncé et bleu foncé indiquent les directions des modes non couplés. Les directions en noir représentent les orientations propres du champ de force, c'est-à-dire, les orientations selon lesquelles les polarisations mécaniques viennent s'aligner à force élevée. Les flèches rouge clair et bleu clair indiquent les orientations $e_\pm^0$ dans la situation intermédiaire particulière où la fréquence $\Omega_-/2\pi$ présente un maximum, calculées grâce à partir de l'extrapolation de la sous-figure B. Ce dessin permet de constater que cette situation coïncide exactement avec $g_{--} = 0$, les lignes de champ interceptant e_-^0 lui étant perpendiculaires. **b.** Fréquences et orientations au point B en fonction de la tension de biais, obtenus à partir des extrapolations des g_{ij} mesurés à 6 tensions différentes, re-convertis en angles et fréquence pour l'étude de la phénoménologie. Ω_- présente un maximum lorsque les orientations des modes sont tournées de 29° par rapport aux orientations non couplées.

polarisation tourne pour s'aligner avec $\mathbf{e}_-^\infty$, elle traverse la direction $\mathbf{e}_-^0$, indiquée en rouge clair sur la Figure 2.29a, où $g_{--} = 0$ (c'est-à-dire que le gradient de force est perpendiculaire à la direction $\mathbf{e}_-^0$). Dans cette situation, la fréquence $\Omega_-/2\pi$ est insensible à l'amplitude du champ de force et présente une tangente horizontale en fonction de la tension (voir 2.29b). Une fois ce cap dépassé, la polarisation continue de tourner, soumise cette fois à $g_{--} > 0$, ce qui se traduit par un tirage vers les basses fréquences. Le mode haute fréquence ne subit pas la même évolution car il ne traverse pas lors de sa rotation de direction où g_{++} change de signe.

On comprend que la phénoménologie observée dans un champ de force donné dépend fortement de l'orientation de la base des modes propres non couplés. Cette analyse souligne la possibilité de comprendre l'habillage mécanique par un champ de force conservatif comme un habillage *progressif* : chaque supplément de champ de force vient habiller un oscillateur (déjà habillé) de modes orthogonaux et de fréquences bien déterminées.

Anti-croisement et croisement

Les cartes des orientations des modes des Figures 2.30a mesurées à faible (droite) et à forte (gauche) différence de potentiel, donc à faible et fort champ de force, présentent une différence qualitative. Les deux cartes présentent la même zone de rotation nulle : l'axe blanc où est situé le point E. Cependant, la direction perpendiculaire, entourée sur la Figure 2.30a et le long de laquelle sont situés les points C et F, est une région de **forte rotation** en champ de force élevé, et une région de **rotation nulle** en champ de force faible.

Autrement dit, lors d'un déplacement selon l'axe Z dans le champ de force, qui fait passer le nanofil par cet axe, les évolutions des orientations propres, représentées sur la Figure 2.30, sont qualitativement très différentes selon que le champ de force est fort ou faible. Dans le cas d'un

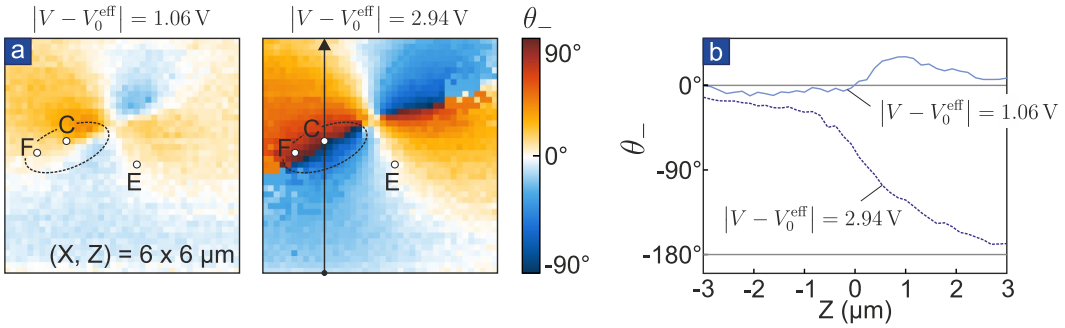


Figure 2.30 – **a.** Carte de l'orientation du mode (-) à faible champ de force à droite et à fort champ de force à gauche. **b.** Coupes de ces cartes le long de la flèche verticale dessinée sur la carte à fort champ de force. Il s'agit donc l'évolution de l'orientation du mode basse fréquence lors du trajet le long de l'axe Z de bas en haut de la carte pour des différences de potentiel faible (trait plein bleu clair) et forte (trait pointillé bleu foncé), c'est-à-dire inférieure et supérieure à celles des anti-croisements de la carte. L'évolution de l'orientation en champ fort a été dépliée sur cette figure pour ne pas afficher de saut de 180° car ce saut a pour unique origine la convention de restriction des angles à $[-90°, 90°]$ (c'est-à-dire qu'on a enlevé 180° à chaque point si cela diminuait la différence absolue avec le précédent point), les orientations propres du mouvement Brownien n'étant définies qu'à 180° près.

champ suffisamment fort, le système de modes propres effectue une rotation complète (de 180°) et *monotone* ; alors qu'il amorce une rotation, *y renonce*, puis entame une rotation *dans l'autre sens*, si le champ de force est faible.

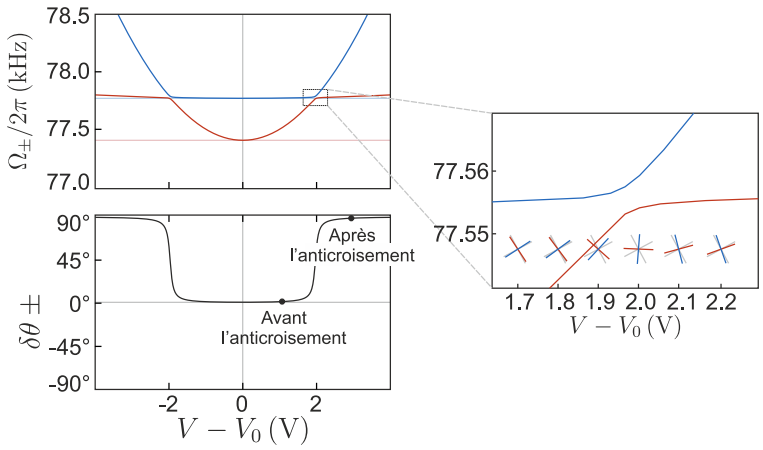


Figure 2.31 – **Détail de l'évolution des fréquences et orientations propres au Point C.**

Au point C situé très près de cet axe, la rotation des modes sature à 90°, lorsque les directions des modes sont inversées par rapport à la situation initiale. La saturation a lieu très rapidement, à une tension d'environ 2 V. Les cartes 2.27a et 2.27b sont prises respectivement à tension inférieure et supérieure à cette tension de transition qui délimite la différence qualitative de comportement.

Autour de cette transition, les fréquences au point C affichent un anti-croisement tel que celui utilisé par le groupe d'E. Weig [52, 55, 56] pour étudier un analogue mécanique à l'effet Landau-Zener et Landau-Zener-Stückelberg et un modèle classique d'oscillations cohérentes dans des systèmes à deux niveaux.

Au point F situé précisément sur l'axe pathologique, on observe un croisement de fréquence (voir Figure 2.32). Un fort grossissement sur ce croisement montre qu'il s'agit d'une coalescence

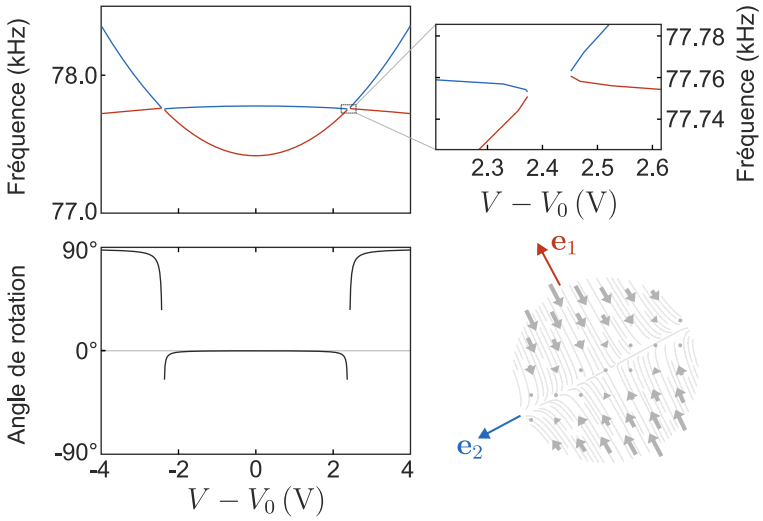


Figure 2.32 – **Détail de l'évolution des fréquences et orientations propres au Point F.**

très ponctuelle des fréquences propres, qui se distinguent aussitôt à nouveau à tension plus élevée. On verra dans le Chapitre 3 que cette coalescence est une des signatures d'un champ de force rotationnel : l'observation furtive de ce profil dans la situation présente où le champ est conservatif n'est ici liée qu'à l'imprécision de la mesure des composantes cisaillantes, aggravée par l'extrapolation à partir des données en 6 points seulement pour représenter les angles et les fréquences en fonction de la tension. Toutefois, cette observation suggère la possibilité d'améliorer fortement la sensibilité aux composantes cisaillantes de n'importe quel champ de force en créant les conditions d'un tel croisement de fréquences. La procédure consisterait à ajouter un champ de force auxiliaire radial bien caractérisé, comme celui engendré par la pointe électrostatique, au champ de force rotationnel à mesurer. Ce système compenserait ainsi l'asymétrie intrinsèque de l'oscillateur en le ramenant à dégénérescence.

2.3.4 Intégration des cartes

Nos mesures donnent accès à une cartographie spatiale des 4 composantes des gradients du champ de force 2D subi par le nanofil. On montre dans ce paragraphe comment remonter au champ de force lui même en procédant à une intégration spatiale de ces cartes. Précisons que la méthode suivante s'appuie sur l'hypothèse que les gradients mesurés sont les gradients de la force vis-à-vis des coordonnées du laboratoire, et non vis-à-vis de la position du nanofil, ce qui suppose que leur nature lagrangienne n'est pas importante (voir dans la suite le paragraphe 2.3.7) .

L'intégration, simple à réaliser en dimension 1, s'avère plus ardue en dimension 2 : la méthode maintenant décrite a été développée grâce à de fructueuses discussions avec B. Canals. Le changement de base décrit plus haut par les équations 2.58 fournit les gradients $\partial_x F_x$,$\partial_z F_x$, $\partial_x F_z$, $\partial_z F_z$, sur une carte, par exemple, de 40×40 points comme celle donnée en Figure 2.25. Pour calculer la composante F_x du champ de force, on utilise alors l'expression :

$$F_x(i,j) = F_x(i_0,j_0) + \int_{\mathcal{C}^{i,j}_{i_0,j_0}} \partial_x F_x dx + \partial_z F_x dz \tag{2.59}$$

où $\mathcal{C}^{i,j}_{i_0,j_0}$ est un chemin d'intégration sur la grille de mesure connectant le point (i_0, j_0) au point (i, j), et $F_x(i_0, j_0)$ est une constante d'intégration. La composante F_z s'exprime de manière similaire.

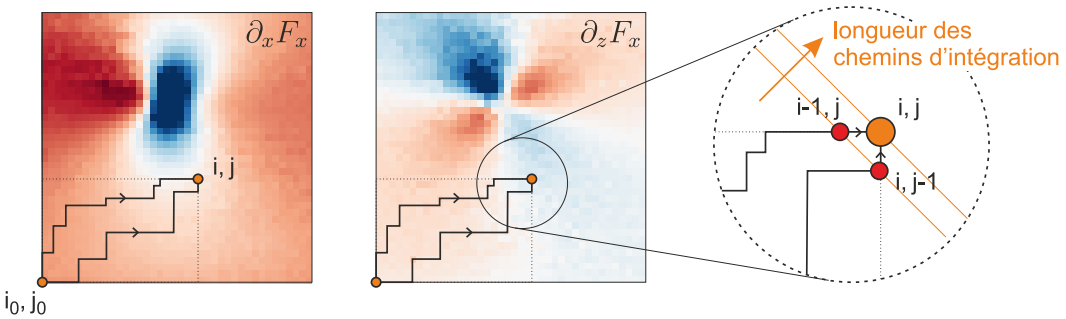


Figure 2.33 – Illustration de la méthode d'intégration propagative.

A la grande différence d'une intégration 1D, il existe un grand nombre de chemins connectant chaque point à chaque autre sur la grille (voir Figure 2.33). La qualité de l'intégration peut donc en principe être améliorée en moyennant sur plusieurs chemins d'intégration. Cela permet entre autres d'atténuer l'impact du bruit sur la mesure intégrée. Cependant, l'intégration sur de longs chemins *accumule* ces erreurs : les chemins courts sont alors préférés aux chemins longs.

En pratique, il est raisonnable de moyenner sur *tous les chemins les plus courts* (qui ne contiennent pas de pas dans la mauvaise direction) connectant deux points (i_0, j_0) et (i, j). Les chemins les plus courts consistent en $|i - i_0| + |j - j_0|$ pas au total : $|i - i_0|$ pas le long de x et $|j - j_0|$ pas le long de z. Le nombre total de tels chemin est évalué en choisissant les $|i - i_0|$ positions des pas horizontaux parmi les $|i - i_0| + |j - j_0|$ possibilités, il vaut :

$$\binom{|i - i_0| + |j - j_0|}{|i - i_0|}$$

où $\binom{n}{p}$ dénote la combinaison p parmi n. Cependant, pour une grille de 40×40 points, le nombre de chemins directs joignant les points opposés (1,1) et (40,40) avoisine 2×10^{22}. Il est alors numériquement plus adéquat d'adopter une méthode itérative, qui propage l'intégration en la calculant d'abord sur tous les chemins d'une certaine longueur avant de calculer l'intégration sur les chemins plus longs d'un pas. La Figure 2.33 illustre cette procédure itérative, qui utilise la règle de propagation pour la quantité intermédiaire :

$$\tilde{F}_x(i,j) = \tilde{F}_x(i-1,j) + \binom{i - 1 - i_0 + j - j_0}{i - 1 - i_0} \partial_x F_x \, dx + \tilde{F}_x(i,j-1) + \binom{i - i_0 + j - 1 - j_0}{i - i_0} \partial_z F_x \, dz \quad (2.60)$$

pour les points non pathologiques, c'est-à-dire, qui ne se situent pas aux bords des cartes où un seul type de chemin doit être pris en compte, et pour un point de départ situé en bas à gauche de la carte, de sorte que l'itération progresse dans les directions $+x$ et $+z$. Après avoir propagé cette règle, il faut normaliser $\tilde{F}_x(i,j)$ par le nombre de chemins directs arrivant au point (i,j) :

$$F_x(i,j) = \frac{\tilde{F}_x(i,j)}{\binom{i - i_0 + j - j_0}{i - i_0}} \quad (2.61)$$

En pratique, cette procédure a été appliquée 4 fois en prenant pour points de départ chacun des 4 coins de la carte en y supposant les forces nulles ce qui reporte à plus tard le choix de la constante d'intégration, et les 4 résultats obtenus ont été moyennés à poids égaux.

Enfin, deux constantes d'intégration sont laissées libres (le vecteur de référence de force). En principe, le champ de force devrait tendre vers zéro à distance infinie, cependant la sensibilité du nanofil est suffisamment élevée pour mesurer des forces non nulles aux plus grandes distances explorées. La constante de force a plutôt été choisie de manière à annuler le champ 2D de force mesuré exactement au-dessus de la pointe électrostatique où le vecteur force électrostatique est vertical, parallèle à l'axe du nanofil et donc n'a pas de composantes mesurables dans le plan.

Les Figures 2.34a et b reproduisent les cartes des composantes F_x et F_z obtenues, la Figure 2.34c reconstruit le champ vectoriel associé superposé à une image MEB de la pointe EFM.

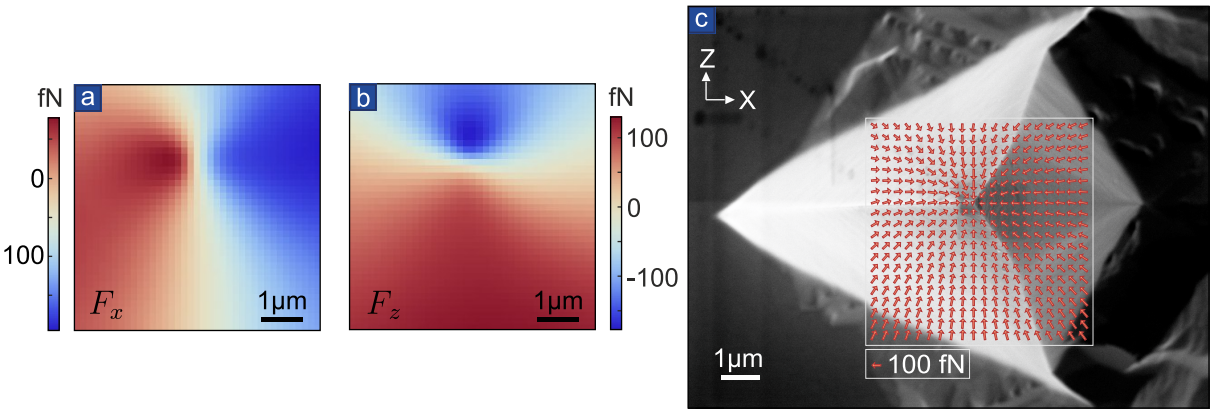


Figure 2.34 – **Résultat de l'intégration des cartes de gradient par la méthode exposée. a.** F_x, **b.** F_z et **c.** Superposition de la somme sur l'image MEB de la pointe vue de dessus.

2.3.5 Sensibilité de la mesure

La mesure dynamique qui nous occupe est particulière en ceci qu'elle se passe d'une excitation intentionnelle des modes de vibration de l'oscillateur. L'excitation est naturellement fournie par la force de Langevin. Puisque le mouvement Brownien est le signal de mesure, il ne constitue pas la limite de sensibilité comme dans la majorité des appareils de mesure de force.

Evaluation de la sensibilité

Le décalage d'une pulsation propre Ω_1 sous l'effet d'un gradient de force axial g_{11} est, au premier ordre en g_{11} :

$$\Omega_- - \Omega_1 \simeq \frac{g_{11}}{2\Omega_1^2} = \frac{\partial_1 F_1}{2M_{\text{eff}}\Omega_1^2}. \tag{2.62}$$

Le gradient axial requis pour **décaler la pulsation propre d'une largeur de raie mécanique** Γ est donc :

$$(\partial_1 F_1) \simeq 2M_{\text{eff}}\Gamma\Omega_1 \tag{2.63}$$

soit $|\partial_1 F_1| \simeq 2.8 \times 10^{-7}\,\text{N/m}$ pour un oscillateur de facteur de qualité 1000, de fréquence 77 kHz et de masse effective 6×10^{-16} kg. De même, la rotation d'un mode propre sous l'effet d'un gradient de force transverse g_{12} vaut (avec $g_{11} = g_{22} = g_{21} = 0$, l'expression restant valable au premier ordre en ces composantes) :

$$\tan\theta_- = \frac{g_{12}}{\Omega_2^2 - \Omega_1^2} = \frac{\partial_1 F_2}{M_{\text{eff}}(\Omega_2^2 - \Omega_1^2)}. \tag{2.64}$$

Une rotation de ce mode de 45° requiert le gradient de force transverse :

$$(\partial_1 F_2) \simeq M_{\text{eff}}(\Omega_2^2 - \Omega_1^2) \tag{2.65}$$

soit $|\partial_1 F_2| \simeq 1.4 \times 10^{-6}\,\text{N/m}$. Ces estimations basées sur des paradigmes de l'habillage sont évidemment des bornes supérieures très pessimistes de l'incertitude en gradient de force. En pratique, on peut très raisonnablement, via une mesure de spectre, pointer la fréquence d'une résonance avec une précision d'1% de la largeur spectrale (en quelques dizaines de secondes d'acquisition dans notre cas) ce qui permet d'espérer mesurer assez facilement des gradients de l'ordre de $1\,\text{nN.m}^{-1}$. Enfin la géométrie du nanofil peut être adaptée aux mesures à effectuer. La fréquence de vibration évolue en $1/L^2$ et la masse effective est proportionnelle à L. A facteur de qualité constant, on gagne donc en sensibilité en travaillant avec des fils plus longs. Cependant, la fréquence propre de vibration est alors plus faible, donc les temps de mesure plus longs et la sensibilité aux bruits techniques, plus importants à basse fréquence, est également plus élevée.

2.3.6 Autres composantes de la force

Force longitudinale

Ce paragraphe évalue l'impact d'autres composantes de la force électrostatique et le compare à l'amplitude des signatures mesurées. Le fil pourrait notamment être soumis à un effort de traction longitudinale F_y, ce qui aurait pour effet de décaler en bloc (le carré de) ses fréquences propres. Cet effet est modélisé par un terme supplémentaire dans l'équation d'Euler-Bernoulli [91] :

$$\rho S \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + EI \frac{\partial^4 u}{\partial y^4} + F_y \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} = 0, \tag{2.66}$$

ce qui donne les fréquences propres :

$$\Omega'_n = \sqrt{\frac{EI}{\rho S} k_n^4 + \frac{F_y}{\rho S} k_n^2}. \tag{2.67}$$

L'application d'un gradient de force transverse possède un impact noté $(\Delta\Omega_n^2)_x \equiv \Omega_n'^2 - \Omega_n^2$ sur le carré de la fréquence propre (voir section 2.1.1) qui vaut au premier ordre :

$$\Omega_n'^2 \simeq \Omega_n^2 - \frac{1}{M_{\text{eff}}} \frac{\partial F_x}{\partial x} \quad \rightarrow \quad (\Delta\Omega_n^2)_x \equiv \frac{1}{M_{\text{eff}}} \frac{\partial F_x}{\partial x}, \tag{2.68}$$

tandis que l'application d'une force longitudinale a l'impact $(\Delta\Omega_n^2)_y$:

$$\Omega_n'^2 \simeq \Omega_n^2 + \frac{LF_y}{M} k_n^2 \quad \rightarrow \quad (\Delta\Omega_n^2)_y \equiv \frac{LF_y}{M} k_n^2. \tag{2.69}$$

Dans le cas d'une force radiale $\mathbf{F}(\mathbf{r}) = F(r)\mathbf{e_r}$ qui vérifie :

$$\left.\frac{\partial F_x}{\partial x}\right|_{x=0} = \left.\frac{F_y}{y}\right|_{x=0}, \quad \text{et} \quad \left.\frac{\partial^2 F_x}{\partial x^2}\right|_{x=0} = 0, \tag{2.70}$$

le rapport des signatures des deux composantes de la force est :

$$\frac{(\Delta\Omega_n^2)_y}{(\Delta\Omega_n^2)_x} \simeq \frac{(k_n L)^2}{M_{\text{eff}}/M} \frac{y}{L}. \tag{2.71}$$

Finalement, à un facteur numérique $\dfrac{(k_n L)^2}{M_{\text{eff}}/M}$ près, cette comparaison est le rapport de la distance y nanofil-pointe électrostatique (typiquement 200 nm) et de la longueur du nanofil (typiquement $L \simeq 50\,\mu\text{m}$). Le facteur numérique est de l'ordre 1 pour les premiers modes et augmente avec l'ordre n :

n	1	2	3	4	5
$\frac{(k_n L)^2}{M_{\text{eff}}/M}$	0.879	5.51	15.0	116	193

A une distance pointe-nanofil de 500 nm, le premier mode du nanofil est donc environ 100 fois plus sensible aux gradients de force qu'à la force de traction et ce rapport augmente lorsque le nanofil est rapproché de l'échantillon : la contribution de cette force est donc négligeable dans les mesures effectuées avec le premier mode.

Torsion physique

Puisqu'on observe une rotation de la base des modes, il est également légitime de se demander si la **torsion physique** du nanofil induite par les gradients de force peut contribuer à cette rotation. On envisage un champ de force purement cisaillant appliqué sur la surface du nanofil, et décrit par une densité surfacique $\mathbf{f}(x,z) = \partial_x F_z \, z\mathbf{e}_x/S$. L'angle de torsion θ_t de l'extrémité du nanofil s'exprime en fonction du moment $M_t = -\frac{R^2}{4}\partial_z F_x$ de la force également appliquée à son extrémité de la manière suivante :

$$\theta_t = L\frac{M_t}{GI_G} \tag{2.72}$$

où G est le module de cisaillement, qui est relié au module d'Young E et au coefficient de Poisson ν par $G = \frac{E}{2(1+\nu)}$, et I_G est le moment quadratique de torsion $I_G = \frac{\pi R^4}{2}$. Ainsi $|\theta_t| = L\dfrac{\partial_z F_x}{2\pi R^2 G}$.

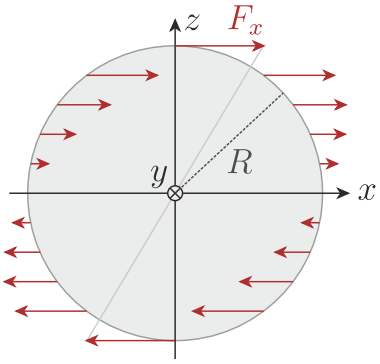


Figure 2.35 – Section droite du nanofil et gradient de force $\partial_x F_z$.

Pour $G \simeq 180\,\text{GPa}$, un angle de rotation de seulement 1° requiert l'application d'un champ de cisaillement $\partial_z F_x \simeq 220\,\text{N.m}^{-1}$ à l'extrémité d'un nanofil de 200 nm de diamètre et de 50 μm de longueur : soient 7 ordres de grandeurs au-dessus du gradient le plus intense mesuré avec des forces électrostatiques. La torsion physique du nanofil n'est donc pas responsable de l'entraînement de la base des modes propres : il faut bien comprendre la rotation de la base des modes comme un changement des directions principales de vibration.

2.3.7 Retour sur la nature des gradients de force mesurés

Dans ce paragraphe, on précise deux points concernant la nature des gradients mesurés expérimentalement : nous préciserons d'abord la signification de la dérivée spatiale de la force qui nous occupe, puis nous aborderons le sujet des forces distribuées sur l'étendue (en l'occurrence, sur la hauteur) des oscillateurs mécaniques. Ces deux aspects concernent très généralement la mesure de force avec des oscillateurs, quelle que soit leur dimension.

Gradients fonctionnels lagrangiens

Le champ de force appliqué sur le nanofil possède une répartition $f(u, y)$ sur la longueur de celui-ci, dépendant de la position latérale u. Formellement, $f(u, y)$ est une **fonctionnelle** du profil de déflexion u, ce qui signifie que la densité de force appliquée à une altitude y dépend a priori du profil de déflexion **complet** u.

On note $u(y, t)$ un déplacement infinitésimal du profil de déflexion à partir d'une déflexion statique $u^0(y)$. La déformation totale est ainsi :

$$u_{\text{tot}}(y, t) = u^0(y) + u(y, t). \tag{2.73}$$

L'équation d'Euler-Bernoulli adaptée pour inclure cette répartition de gradient s'écrit :

$$\frac{\rho S}{EI}\frac{\partial^2 u}{\partial t^2}(y, t) + \frac{\partial^4 u_{\text{tot}}}{\partial y^4}(y, t) = \frac{1}{EI} f(u_{\text{tot}}(y), y), \tag{2.74}$$

qui fournit aux ordres 0 et 1 en $u(y, t)$ une équation statique et une équation dynamique :

$$\begin{cases} \partial_y^4 u^0(y) = \dfrac{1}{EI} f(u^0, y) \\ \\ \partial_y^4 u + \dfrac{\rho S}{EI}\partial_t^2 u = \dfrac{u}{EI}\dfrac{\delta f}{\delta u}\left(u^0, y\right) \end{cases} \tag{2.75}$$

Le gradient de force pertinent $\frac{\delta f}{\delta u}$ est donc un gradient vis-à-vis des coordonnées du nanofil, que nous appellerons donc gradient **lagrangien**. Remarquons que c'est aussi une dérivée **fonctionnelle**. On va uniquement s'intéresser à la mécanique sur des intervalles spectraux autour des fréquences de résonances, sur lesquelles le profil de vibration est presque uniforme à sa norme près, on oubliera l'aspect fonctionnel de cette dérivée dans la suite. Il persiste dans le second terme de l'équation dynamique une dérivée du champ de force vis-à-vis d'un paramètre d'amplitude de vibration, par exemple, l'amplitude de déflexion à l'extrémité du nanofil.

La différence entre le gradient lagrangien du champ de force et un gradient par rapport aux coordonnées du laboratoire tient ici au fait que le champ de force dépend a priori de la position vis-à-vis de la pointe et de la déformation du fil. Dans le cas de la force électrostatique, la déformation du fil a pour conséquence le déplacement de toutes les frontières entre milieux matériels, ce qui entraîne une modification du paysage électrostatique responsable de la force subie par le nanofil. Cela est particulièrement important pour les nanofils métalliques qui imposent des conditions aux limites fortes. Le gradient lagrangien de force doit alors être envisagé comme le taux d'accroissement de la force lors d'une déformation infinitésimale du nanofil, en tenant compte de la modification du paysage électrostatique dû à cette déformation. Les gradients du champ de force obtenus par nos mesures sont donc complètement dépendants du type de sonde employé. Ces idées ne sont bien sûr pas restreintes à notre cas, mais sont générales pour toutes les autres sondes de force.

Il est beaucoup plus compliqué de simuler numériquement la réponse à des gradients de force lagrangiens que celle à des gradients de forces "eulériens", vis-à-vis des coordonnées du laboratoire. En effet, la cartographie des gradients eulériens est obtenue en ne calculant qu'une fois la configuration électrostatique et en dérivant le paysage de force résultant, tandis que la cartographie des gradients lagrangiens nécessite le calcul de la configuration électrostatique correspondant à chaque profil de déformation et à chaque position du nanofil vis-à-vis de la pointe, afin d'estimer les taux d'accroissement de la force entre chacune d'entre elles.

Cependant, si on peut supposer que l'impact de la sonde sur le champ de force est négligeable, alors le gradient lagrangien coïncide avec le gradient vis-à-vis des coordonnées du laboratoire. Pour intégrer spatialement le champ de force dans la section 2.3.4 et pour interpréter la dépendance en potentiel, on a supposé que c'est le cas de notre nanofil diélectrique positionné entre deux électrodes métalliques (le support du nanofil et la pointe EFM) qui déterminent alors l'allure du champ de force.

Habillage par des gradients de force distribués

Le formalisme de Green introduit dans la section 1.3.2 est maintenant adapté pour écrire la signature d'un gradient transversal de force distribué sur la longueur du nanofil. Un formalisme unidimensionnel est utilisé pour simplifier les calculs qui suivent dont l'intérêt est conceptuel, c'est-à-dire qu'on envisage les déformations, les forces et leur gradient dans une seule direction transversale au nanofil x perpendiculaire à l'axe du nanofil y. On notera donc la répartition longitudinale du gradient transversal $\nabla_x f(y)$.

La fonction de Green correspondant à l'équation dynamique 2.75 incluant la perturbation $\nabla_x f(y)$ est :

$$\frac{\partial^4 G}{\partial y^4} - k^4 G - \frac{\nabla_x f(y)}{EI} G = \frac{1}{L^3}\delta(y - y'). \tag{2.76}$$

Le profil perturbé des modes est obtenu formellement en réalisant un développement de Dyson qui consiste à calculer des termes successifs de la fonction de Green $G = G^{(0)} + G^{(1)} + ...$ par une méthode itérative. Ce développement est valable pour $\frac{L^4 \nabla_x f(y)}{EI} \ll 1$ (gradients petits devant la raideur, pour tout point y). Ainsi, la fonction de Green à l'ordre 0 $G^{(0)}$, qui vérifie l'équation de Green non-perturbée, apparaît comme un terme de forçage dans l'équation vérifiée par la correction au premier ordre $G^{(1)}$:

$$\begin{cases} \dfrac{\partial^4 G^{(0)}}{\partial y^4} - k^4 G^{(0)} = \dfrac{1}{L^3}\delta(y - y') \\[2ex] \dfrac{\partial^4 G^{(1)}}{\partial y^4} - k^4 G^{(1)} = \dfrac{\nabla_x f(y)}{EI} G^{(0)} \end{cases}, \tag{2.77}$$

La dernière équation a toujours pour noyau la fonction $G^{(0)}$, elle est alors formellement intégrée en :

$$G^{(1)}[\langle y, y'\rangle, \Omega] = L^3 \int_0^L dy'' \quad G^{(0)}[\langle y, y''\rangle, \Omega] \quad \frac{\nabla_x f(y'')}{EI} \quad G^{(0)}[\langle y'', y'\rangle, \Omega], \tag{2.78}$$

En utilisant le développement 1.57 de la fonction de Green $G^{(0)}$, on obtient :

$$\frac{EI}{L^3} G^{(1)}[\langle y, y'\rangle, \Omega] \simeq L \sum_n \chi_n^2[\Omega] \langle u_n^2, \nabla_x f\rangle u_n(y') u_n(y) \tag{2.79}$$

où l'on a négligé les termes en $\chi_n[\Omega]\chi_m[\Omega]$ pour $m \neq n$ car on ne s'intéresse ici qu'à la réponse proche des fréquences propres (on a d'ailleurs déjà fait cette approximation pour aboutir à la factorisation de $G^{(0)}$ dans le Chapitre 1). Finalement, dans cette approximation, $G^{(1)}$ a la même structure que la solution non perturbée $G^{(0)}$, et ainsi **le profil de vibration n'est pas modifié par l'application du gradient de force** distribué $\nabla_x f$. La susceptibilité $\chi_n[\Omega]$ devient : $\chi_n[\Omega] \to \chi_n[\Omega]\left(1 + \chi_n[\Omega] L \langle u_n^2, \nabla_x f\rangle\right)$. On peut alors effectuer la même progression que celle décrite au Chapitre 1 pour tenir compte d'un profil de mesure adimensionné et normalisé $\tilde{h}(y)$ dans la susceptibilité effective, ce qui donne :

$$\chi_n^{\text{eff}}[\Omega] = \chi_n^{\text{eff}}[\Omega]\left(1 + \chi_n[\Omega] L \langle u_n^2, \nabla_x f\rangle\right). \tag{2.80}$$

Au premier ordre en $\frac{L^4 \nabla_x f}{EI}$, et près des résonances :

$$\begin{cases} \mathrm{Re}\Big[(\chi_n^{\mathrm{eff}})^{-1}[\Omega]\Big] & \simeq & M_{\mathrm{eff},n}\left(\Omega_n^2 - \Omega^2 - \dfrac{L\langle u_n^2, \nabla_x f\rangle}{M_{\mathrm{eff},n}}\right) \\ \mathrm{Im}\Big[(\chi_n^{\mathrm{eff}})^{-1}[\Omega]\Big] & \simeq & -M_{\mathrm{eff},n}\,\Gamma\Omega \end{cases} . \tag{2.81}$$

L'habillage mécanique du nanofil par un gradient de force distribué sur sa hauteur cause donc le décalage de fréquence :

$$\Omega_n'^{\,2} = \Omega_n^2 - \frac{L\langle u_n^2, \nabla_x f\rangle}{M_{\mathrm{eff},n}}. \tag{2.82}$$

Ainsi, en étendant ce raisonnement à deux dimensions, on voit que les gradients de force effectifs mesurés correspondent en réalité à :

$$\boxed{g_{ij}^{(n)} \equiv \frac{L\langle u_n^2, \partial_i f_j\rangle}{M} = \frac{1}{M}\int_0^L dy\; u_n^2(y)\;\partial_i f_j(y).} \tag{2.83}$$

On note que cette formule ne dépend pas du signe du profil normalisé u_n, ce qui n'est pas étonnant car le décalage des fréquences ne doit pas dépendre du sens (arbitraire) de la déformation. Remarquons aussi que ce n'est pas la masse effective qui intervient dans ce gradient effectif, mais bien la masse, car la dynamique de l'oscillateur ne dépend pas des conditions d'observation.

Sur la Figure 2.36, on a mesuré la modification des fréquences des deux premières familles de polarisations mécaniques sous l'effet de la même force électrostatique à diverses différences de potentiel appliquées. Les valeurs présentées correspondent à une moyenne géométrique des pulsations des deux polarisations de chaque famille $\Delta\overline{\Omega_n^2} \equiv \dfrac{\Omega_{+,n}^2 + \Omega_{-,n}^2}{2} - \dfrac{\Omega_{1,n}^2 + \Omega_{2,n}^2}{2}$, $n = 1, 2$, de sorte que ces quantités ne sont sensibles qu'à la divergence du champ de force effectif, parmi les quatre composantes de celui-ci. Plus précisément, ces quantités ne dépendent ni des fréquences propres non couplées de la famille de polarisations, ni de l'espacement entre ces fréquences. On constate que les deux mesures présentent le même profil quadratique en tension, mais que celles réalisées sur la première famille donnent lieu à des décalages des fréquences un peu plus importants (+20%). Il est amusant d'étendre cette conclusion aux rotations des modes : en effet sous l'effet d'un champ de force présentant une distribution longitudinale équivalente, les polarisations mécaniques propres de la deuxième famille seraient donc moins tournées que les polarisations de la première famille.

L'équation 2.83 prédit le rapport suivant entre les deux mesures :

$$\frac{\Delta\overline{\Omega_2^2}}{\Delta\overline{\Omega_1^2}} = \frac{\langle u_2^2, \mathrm{div}(f)\rangle}{\langle u_1^2, \mathrm{div}(f)\rangle}, \tag{2.84}$$

où $\mathrm{div}(f)$ représente la divergence dans le plan transversal du profil spatial longitudinal de la force électrostatique. Une hypothèse raisonnable de modèle pour la force électrostatique [92] donne la répartition de divergence de force suivante compatible avec notre modèle analytique de force radiale 2.57 :

$$\mathrm{div} f(y) \propto \frac{-(V - V_0)^2}{(L - y + y_0)^3}. \tag{2.85}$$

où y_0 représente l'altitude effective de la contre-électrode (c'est-à-dire, l'altitude de l'électrode effective envisagée par notre modèle analytique comme une sphère) par rapport à l'extrémité du fil. Le rapport estimé à partir des ajustements quadratiques de la Figure 2.36 est de $\frac{\Delta\overline{\Omega_2^2}}{\Delta\overline{\Omega_1^2}} \simeq 0.7824$.

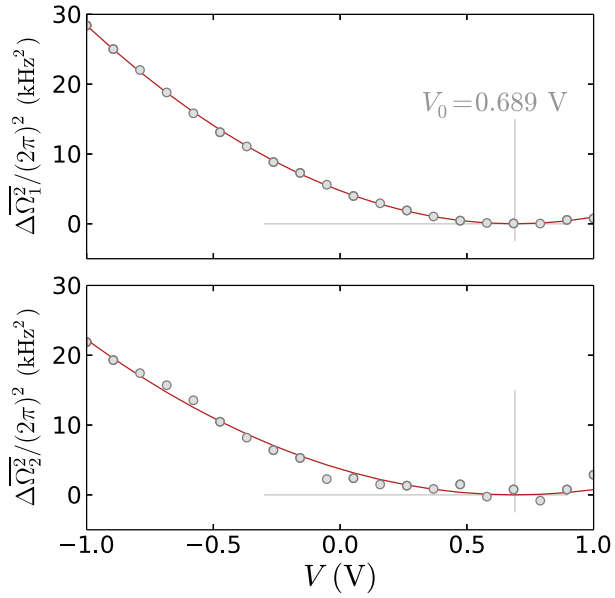


Figure 2.36 – Décalages en fréquence $\frac{\Omega_{+,n}^2+\Omega_{-,n}^2}{2} - \frac{\Omega_{1,n}^2+\Omega_{2,n}^2}{2}$, pour les familles $n = 1$ (haut) et $n = 2$ (bas), en fonction de la tension appliquée V, ajustés avec des paraboles.

En insérant l'expression 2.85 dans l'expression 2.84, ainsi que les profils spatiaux des deux premiers modes longitudinaux donnés au Chapitre 1 (section 1.3.1), on peut déduire numériquement la position effective de la pointe correspondant à ce rapport mesuré : elle est estimée à $y_0 \simeq 3.9\,\mu$m. Une modélisation par éléments finis (COMSOL) montre qu'une pyramide métallique de géométrie comparable à la contre-électrode engendre des champs approximativement équivalents à ceux engendrés par une sphère métallique au même potentiel dont le centre se situe $2.4\,\mu$m en dessous de la pointe de la pyramide (voir Figure 2.37). Cette modélisation très approximative situerait donc la pointe électrostatique $3.9\,\mu\text{m} - 2.4\,\mu\text{m} = 1.5\,\mu$m sous l'extrémité du nanofil, ce qui est cohérent avec les mesures obtenues à partir de l'image en ombroscopie du système sur la caméra.

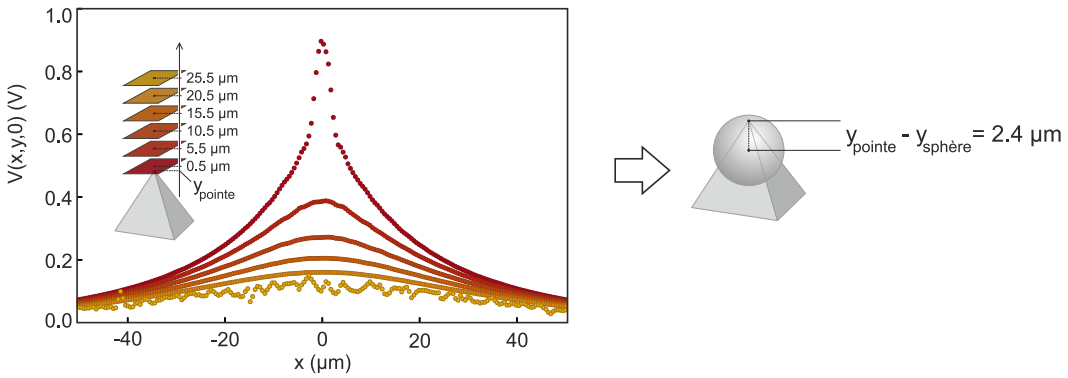


Figure 2.37 – Coupes selon x du potentiel électrostatique simulé au dessus d'une pyramide portée à un potentiel de 1 V à diverses distances de la pointe. En approchant les potentiels mesurés à diverses altitudes par ceux produits par une sphère électrostatique (modèle analytique), on obtient une position de la sphère équivalente reproduisant au mieux les gradients électrostatiques générés par la pyramide. Le modèle de la sphère effective ne parvient évidemment pas à reproduire l'aspect aigu du potentiel à courte distance de la pointe : il s'agit d'une forte approximation.

2.4 Prolongements

2.4.1 Composantes résiduelles non quadratiques en tension

On s'intéresse maintenant aux forces qui persistent une fois que l'on a annulé ou soustrait les contributions électrostatiques quadratiques. La Figure 2.38 présente la série de cartes mesurées pour 6 points de tension dont l'ajustement de chaque point avec le modèle 2.55 a permis d'extrapoler tous les comportements phénoménologiques de la dernière section.

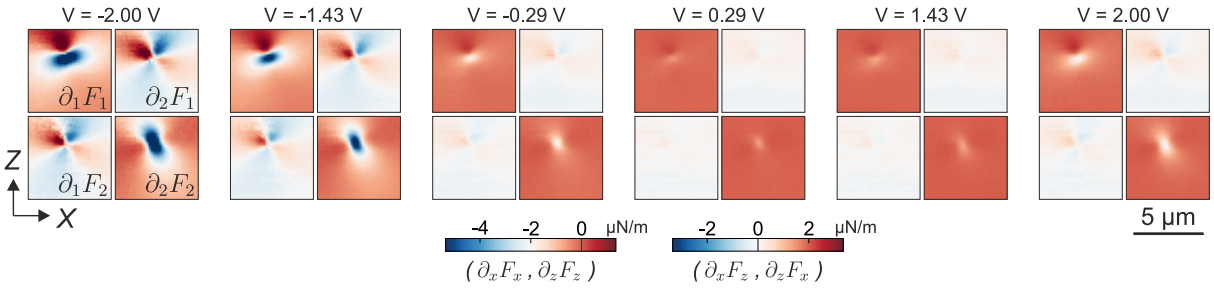


Figure 2.38 – Cartes de gradients de forces analogues à celles données en Figure 2.24 à tous les points de tension utilisés.

La composante quadratique de ces cartes, attribuable de manière certaine à la force électrostatique, domine largement les gradients résiduels $g_{ij}^{0,\mathrm{eff}}$. Ces derniers sont représentés sur la Figure 2.39 (on a représenté les combinaisons des termes de gradient : divergence, champ hyperbolique, champ cisaillant, rotationnel), avec une échelle de couleur dilatée d'un facteur 10. On s'intéresse en particulier à la divergence, dont la mesure présente la meilleure sensibilité car elle ne s'appuie que sur la détermination des fréquences de vibration.

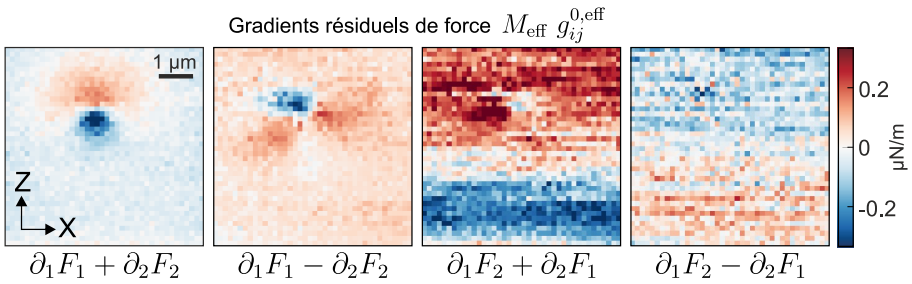


Figure 2.39 – Carte des gradients de force résiduels $g_{ij}^{0,\mathrm{eff}}$ correspondant à la Figure 2.24.

D'autre part, on a extrait le zéro électrostatique effectif $V_0^{\mathrm{eff}}(\mathbf{r})$ en chaque point, représenté sur la Figure 2.40. D'après notre modèle de force initial 2.54, les éventuelles charges piégées ajoutent une contribution linéaire au champ de force de la forme $\beta_{ij}(V - V_0)$. Effets de *patchs* électrostatiques mis à part (qui entraînent une variation quadratique moyenne typique des zéros électrostatiques de l'ordre de 10 mV pour des surfaces d'or), la variation de V_0 n'est due qu'aux forces linéaires en tension, dans la proportion $-\beta_{ij}/2\alpha_{ij}$. Or, une variation de plus de 500 mV est mesurée pour une valeur moyenne de 940 mV du zéro électrostatique. De plus, la structure au centre de la carte de zéro électrostatique se retrouve sur celle de la divergence de force effective résiduelle, qui subit d'après notre modèle l'impact $-\beta_{ij}^2/4\alpha_{ij}$ de la part des forces linéaires, ce qui laisserait penser qu'elle provient principalement de la même origine.

Finalement, à cause de la présence probable de ces charges piégées, il est à ce stade difficile de se prononcer sur l'existence d'un terme de force résiduel non électrostatique dans nos

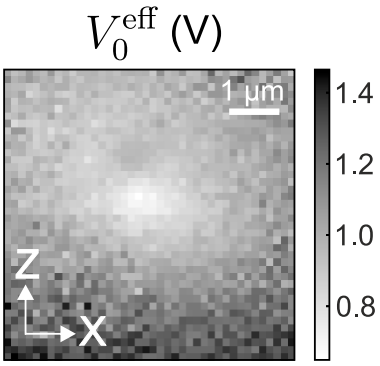


Figure 2.40 – Carte du zéro électrostatique effectif $V_0^{\text{eff}}(\mathbf{r})$.

mesures de force. Cependant, le système de mesure que nous utilisons fonctionne en principe dans le régime où des forces de proximité comme la force de Casimir peuvent se faire ressentir. Différents travaux théoriques récents suggèrent même l'existence de phénomènes de répulsions de Casimir lorsqu'on s'éloigne de géométries traditionnelles (plan-plan ou plan-sphère) : les structures conductrices pointues font partie des objets susceptibles d'engendrer ce type de force [93] sur des objets polarisables placés à proximité. Or, la majeure partie de la divergence résiduelle de la carte 2.39, ainsi que la divergence résiduelle représentée à côté des cartes de forces verticales sur les Figures 2.26d et c, sont négatives, ce qui est caractéristique des forces répulsives. On peut estimer un ordre de grandeur des forces latérales s'exerçant sur le nanofil en utilisant le modèle de la référence [94] (bien qu'il ne prédise pas de répulsion) : une sphère de silice de 100 nm (représentant l'extrémité du nanofil) positionnée 100 nm au dessus d'un réseau subit une force latérale typique de 2×10^{-15} N sur une distance de 200 nm environ. Ceci correspond à un gradient de force de 100 nN/m, qui est raisonnablement observable avec nos nanofils et en accord avec des simulations effectuées dans le groupe Fluctuations Quantiques et Relativité du laboratoire Kastler Brossel.

L'ordre de grandeur de ces gradients de force est donc extrêmement faible, ce qui a empêché pour l'instant leur observation avec des sondes traditionnelles. Leur mesure semble toutefois à la portée de nos nanofils, mais nécessite un important travail expérimental vers la maîtrise de leur comportement électrostatique.

2.4.2 Mesures à 2 boucles à verrouillage de phase

Le choix de mesurer le mouvement Brownien du nanofil implique l'acquisition de spectres complets en chaque point de mesure. Cette procédure est longue : le temps de moyennage pour acquérir une statistique spectrale exploitable est typiquement de 5 s par point d'une carte et point de tension. L'analyse du champ de force repose également sur une procédure d'ajustement des spectres délicate. La réalisation d'un capteur de force universel, intégré et rapide à partir de cette preuve de principe nécessite donc quelques améliorations.

L'idée maîtresse de l'amélioration suivante, qui est celle des AFM actuels, est d'utiliser pour mesurer les paramètres mécaniques, à la place du mouvement Brownien, des trajectoires spatiales contrôlées du nanofil en excitant ce dernier avec une force résonante. Une **double boucle à verrouillage de phase** (*Phase Locked Loop*, PLL) est employée de manière à suivre en temps réel les fréquences de résonance des deux polarisations propres du nanofil. Une série **de quatre démodulateurs asservis en fréquence sur la PLL** acquièrent simultanément les amplitudes des vibrations monochromatiques des deux modes toujours mesurées sur chaque voie de la QPD.

2.4.3 Principe de la mesure

Le faisceau de lecture est cette fois un faisceau rouge (633 nm). Pour exciter les trajectoires du nanofil, on superpose à ce laser de lecture laser un second laser d'excitation, vert, dont l'intensité peut être modulée grâce à un modulateur acousto-optique (voir Figure 2.41). L'excitation optique ainsi produite a été préférée à une excitation piézoélectrique car elle présente une fonction de transfert très plate en fréquence, assurant la conservation de l'amplitude et de l'orientation de la force d'excitation lorsque les fréquences du nanofil sont modifiées sous l'influence du champ de force statique mesuré.

Les trajectoires cohérentes ainsi engendrées correspondent à la réponse du nanofil à deux forces résonantes (voir figure 2.42 a). Le nanofil décrit alors des ellipses dans l'espace dont les grands axes sont alignés avec les modes propres de vibration (on reviendra en détail dans le chapitre suivant sur ce sujet). L'amplitude et la phase relative à l'excitation optique des projections du mouvement sur les deux vecteurs de mesure de la QPD Différence et Somme sont analysées en temps réel par les deux démodulateurs d'entrée de la PLL (Zurich Instruments HF2LI, dual PLL). Chaque module de PLL est alors verrouillé sur la phase à résonance d'un mode mécanique, c'est-à-dire, astreint à ajuster la fréquence d'excitation de sorte à maintenir cette phase de réponse. Le signal d'excitation modulé à cette fréquence est en retour transmis au laser d'excitation via le modulateur acousto-optique pour fermer la boucle. Le signal d'excitation total est alors la somme des excitations commandée par chaque voie d'asservissement.

Grâce à leur ajustement rapide par les deux modules de PLL, les fréquences des forces optiques suivent en temps réel les décalages des fréquences propres, fournissant ainsi les deux premières informations nécessaires à la mesure du champ de force étudié. L'instrument utilisé possède de plus **quatre voies de démodulation** dont les fréquences sont synchronisées sur celles des deux PLL. Les signaux de sortie de la QPD sont alors dupliqués pour être également envoyés sur ces voies, qui mesurent après démodulation les amplitudes des projections des trajectoires sur chaque vecteur de mesure, fournissant ainsi les quatre informations nécessaires à la mesure univoque de l'orientation des modes propres de vibrations.

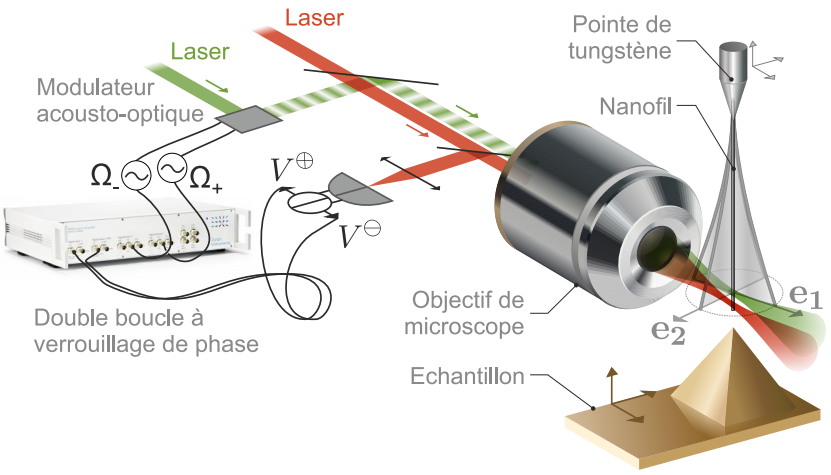


Figure 2.41 – Schéma de principe de la mesure de champ de force utilisant des trajectoires contrôlées du nanofil. Une force optique (laser vert) est utilisée pour exciter le nanofil aux fréquences propres du fil, excitation maintenue à résonance grâce à l'utilisation d'une double boucle à verrouillage de phase.

Pour chaque fréquence propre ($\Omega_\pm/2\pi$), les démodulateurs mesurent un couple de composantes complexes ($\delta r_\ominus[\Omega_\pm]$, $\delta r_\oplus[\Omega_\pm]$) qu'il faut redresser dans la base ($\mathbf{e}_x$, $\mathbf{e}_z$) pour calculer ($\delta r_x[\Omega_\pm]$, $\delta r_z[\Omega_\pm]$). On peut déduire de ces quantités l'orientation de chaque mode propre dans la base ($\mathbf{e}_x$, $\mathbf{e}_z$). Les composantes $g_{ij}(\mathbf{r})$ sont ensuite calculées selon la méthode exposée plus tôt

dans ce chapitre (voir section 2.1.3).

Avantages de la méthode

Cette méthode de mesure présente deux avantages majeurs. Premièrement l'utilisation de la double PLL permet de mesurer les fréquences et les orientations propres très rapidement. Dans les conditions idéales, la vitesse de balayage lors de la cartographie d'un champ de force est seulement limitée par le facteur de qualité du nanofil utilisé. Pour un fil typique ($\Omega_{1,2} \simeq 50\,\text{kHz}$, $Q = 1000$) le temps de mesure par point est réduit à 20 ms (au lieu de 5 s). Deuxièmement, l'évaluation des composantes $g_{ij}(\mathbf{r})$ du champ de force à partir des paramètres mesurés par la PLL est univoque et directe car elle ne repose pas sur l'ajustement de spectres mais directement sur les amplitudes d'oscillations induites. La rapidité cette évaluation est même compatible avec l'affichage du champ de force à un flux vidéo.

Les erreurs liées à cette mesure proviennent essentiellement des imperfections du verrouillage des deux PLL. Le réglage des paramètres des boucles à verrouillage de phases repose en effet sur un compromis entre la précision de ce verrouillage en fréquence et l'agilité de la boucle en réponse aux décalages des fréquences. La mesure de la différences entre les phases de référence des PLL et celles mesurées du couple ($\delta r_{\ominus}[\Omega_{1,2}]$, $\delta r_{\oplus}[\Omega_{1,2}]$) permet de quantifier ces erreurs et le cas échéant de les corriger.

Résultats préliminaires

Cette nouvelle technique de mesure a été testée sur le champ de force électrostatique présenté précédemment dans ce chapitre. De la même manière, une pointe électrostatique a été déplacée selon un plan (XZ) à une distance de 600 nm sous le nanofil. En chaque point, les paramètres de la PLL sont mesurés avec un taux d'échantillonnage rapide et moyennés, permettant de reconstruire les gradients du champ de force selon la méthode exposée.

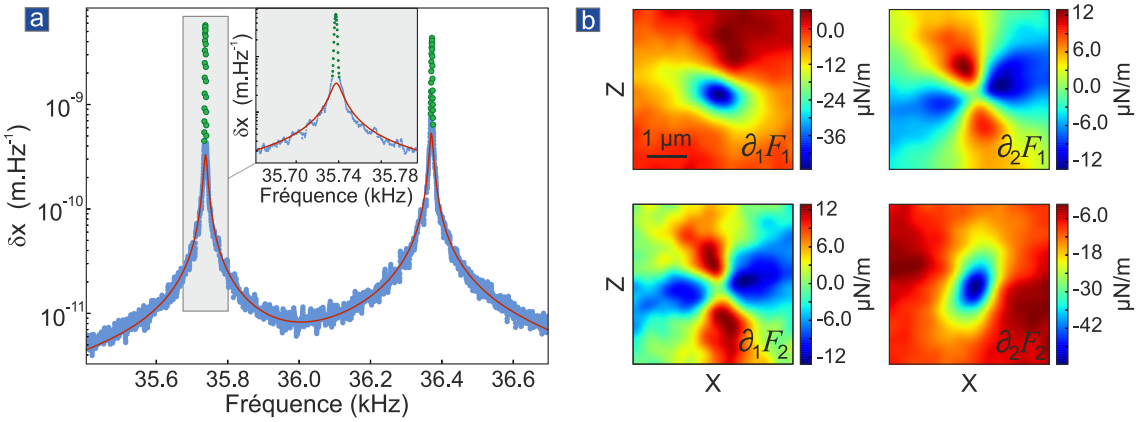


Figure 2.42 – **a.** Spectre du signal de la voie somme de la QPD lors de l'utilisation de la double PLL. Deux pics monochromatiques (colorés en vert), correspondant à la réponse à la force optique, se superposent aux résonances au bruit Brownien de position du nanofil (ajusté en rouge). **b.** Gradients d'un champ de force électrostatique appliqué sur un nanofil d'argent par la même pointe EFM que précédemment, mesurés à l'aide de la double PLL et représentés dans la base des modes propres.

Les quatre gradients mesurés dans la base des modes propres sont présentés sur la figure 2.42b. Les gradients présentés ici correspondent à la partie quadratique (purement électrostatique) du champ de force, extraite en ajustant les gradients par une fonction parabolique en tension, ainsi qu'il a été précédemment expliqué. La topographie du champ de force mesuré est identique à celle mesurée à partir des trajectoires Browniennes. L'amplitude du champ de force est cependant légèrement supérieure à celle mesurée sur la Figure 2.24 car c'est un nanofil d'argent,

qui possède un comportement électrostatique différent des nanofils de SiC, qui a été utilisé pour réaliser cette mesure.

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, on a présenté le formalisme de l'habillage du nanofil par un champ de force externe et le principe de mesure de ses gradients. La variation des fréquences et des orientations propres de vibration sont déduites de la lecture des vibrations du nanofil en deux dimensions. Cette technique de lecture, également présentée dans ce chapitre, est donc essentielle pour la détermination complète de la structure du champ de force. Le champ de force électrostatique appliqué par une pointe EFM portée à un potentiel différent de celui du support du nanofil a ensuite été cartographié, ce dont on a profité pour illustrer les différents aspects de l'habillage mécanique par un champ de force conservatif.

Ces résultats ouvrent de nouvelles perspectives pour l'étude de champs de force bidimensionnels, avec des applications aux nanosciences, à la caractérisation des surfaces, mais aussi pour la physique fondamentale, ainsi que nous l'avons rapidement évoqué dans la dernière section.

Le cadre théorique présenté au début du chapitre, ainsi que la technique de mesure, ne font pas d'hypothèse sur la structure vectorielle des champs mesurés, mais le champ de force électrostatique qui a servi d'exemple est conservatif et ne contient pas de composante rotationnelle. C'est donc le sujet du Chapitre 3, qui complète la démonstration du principe de la mesure en immergeant le nanofil dans un champ dont on a déjà vérifié qu'il est de rotationnel non-nul : le champ de force établi par un laser focalisé sur le nanofil.

Chapitre 3

Nanofil en champ de force non-conservatif

Sommaire

3.1 Forces optiques exercées sur un nanofil dans un faisceau gaussien **102**
3.1.1 Non-conservativité des forces optiques 102
3.1.2 Origine de la force optique 104
3.1.3 Bifurcation et instabilité dynamique 106
3.2 Montage expérimental **109**
3.2.1 Implémentation de la force optique 109
3.2.2 Découplage des forces optiques 112
3.2.3 Mesure de réponses mécaniques vectorielles 113
3.3 Anomalies du mouvement en champ de force non-conservatif . . . **115**
3.3.1 Brisure de l'orthogonalité des modes mécaniques 116
3.3.2 Excès de bruit thermique 121
3.4 Violation de la relation fluctuation-dissipation **122**
3.4.1 Observation expérimentale 123
3.4.2 Température effective (impossibilité de définir une) 126
3.4.3 Interprétation géométrique 126
3.4.4 Interprétation thermodynamique 132
3.5 Distribution dans l'espace des phases **136**
3.5.1 Méthodes d'évaluation de la densité de probabilité 137
3.5.2 Etude de la densité de probabilité 140
3.5.3 Caractérisation de la compression de bruit d'un oscillateur réaliste . 144
3.5.4 Rapport signal sur bruit du système hors équilibre 149
3.6 Conclusion **151**

Dans ce chapitre, on étudie la situation dans laquelle le nanofil est habillé par un champ de force non-conservatif, c'est-à-dire, en l'occurrence, un champ de force statique rotationnel. Dans le chapitre précédent, on a montré que l'habillage par un champ de force conservatif donnait lieu à une phénoménologie riche et originale, mais il ne s'agissait que du début de l'histoire du couplage à un champ de force statique inhomogène. En effet, il sera montré dans le chapitre présent que, dans un champ de force rotationnel, les modes propres cessent d'être perpendiculaires, et que cette brisure de l'orthogonalité de la base des modes propres s'accompagne d'une violation du développement modal, d'une forte déformation des spectres de bruit de position par rapport à leur profil Lorentzien habituel, et enfin d'un large excès de bruit thermique.

Ces anomalies nous ont poussé à tester la validité de la relation de fluctuation-dissipation, en mettant au point un protocole de mesure adapté au caractère bidimensionnel du système.

Une déviation à la relation fluctuation-dissipation de plus de 10 dB a été observée. Nous proposons dans ce chapitre une interprétation de cette déviation selon deux axes de réflexion. Premièrement, nous avons montré que la déviation se relie directement aux termes de susceptibilité transverse de l'oscillateur, associés à la réponse mécanique dans une direction perpendiculaire à la direction d'excitation. Une nouvelle relation fluctuation-dissipation valable pour les systèmes mécaniques multidimensionnels hors équilibre a été établie en prenant en compte l'existence de cette susceptibilité transverse. Cette nouvelle relation fluctuation-dissipation donne une méthode expérimentale permettant de vérifier si un système nanomécanique est susceptible d'entrer dans un régime non-conservatif. Le deuxième axe de réflexion, thermodynamique celui-là, relie de manière plus traditionnelle la déviation de l'égalité fluctuation-dissipation au travail dissipé dans le bain (souvent compté comme une chaleur par les thermodynamiciens) par la force non-conservative, selon le théorème de Harada et Sasa, et au taux de production d'entropie du système. On montrera notamment que ce travail dissipé est connecté à un déséquilibre de la statistique des trajectoires tournant dans un sens et dans l'autre sous l'effet du champ de force rotationnel.

On a alors étudié théoriquement l'influence du champ de force rotationnel sur la statistique des positions du nanofil et sur celle de ses trajectoires. Ce travail a permis de mettre en évidence un phénomène de compression de bruit thermique dans certaines directions de l'espace dû à l'action du champ de force non-conservatif. Le chapitre se conclut donc sur une discussion ouverte de ce phénomène.

3.1 Forces optiques exercées sur un nanofil dans un faisceau gaussien

3.1.1 Non-conservativité des forces optiques

L'interaction de la lumière avec la matière polarisable est généralement modélisée par deux forces : la force de gradient, **conservative**, proportionnelle au gradient local d'intensité du champ électrique, et la force **non-conservative**, directement proportionnelle à l'intensité du champ électrique, aussi appelée pression de radiation. En 1986, A. Ashkin, J. Dziedzic, J. Bjorkholm et S. Chu [95] mettent au point le premier piège entièrement optique de particules diélectriques. Celui-ci repose sur la prépondérance de la force de gradient sur la force dissipative, qui est obtenue, entre autres, en focalisant fortement le faisceau piégeant pour en maximiser les gradients d'intensité. La force optique totale s'exerçant sur une particule piégée ou non reste cependant non-conservative [96], en particulier en dehors de l'axe optique.

Le mouvement de particules dans des pièges de faible raideur - qui autorisent les particules piégées à explorer des zones situées en dehors de l'axe optique, où nous verrons que la non-conservativité se fait particulièrement ressentir - a suscité un certain intérêt à la fin des années 2000, motivé par les développements de la physique statistique hors équilibre basée sur l'analyse de trajectoires stochastiques. L'existence d'un **courant de probabilité stationnaire** tourbillonnaire de particules piégées dans l'eau a été démontrée expérimentalement dans l'équipe de D. Grier [97] à partir de l'analyse du moment cinétique des particules. Ce courant n'existant que sous l'effet de l'excitation thermique des particules, le phénomène a pris le nom de **vortex Brownien**. Il a été montré par le même groupe, en analysant des trajectoires spatiales de particules piégées, que la vorticité des trajectoires pouvait prendre l'un ou l'autre signe, ou les deux (voir Figure 3.1a et b) selon la taille de la particule piégée et la raideur du piège (et la position à gauche ou à droite du *waist*). Une signature qui découle immédiatement de l'existence d'un tel courant est l'apparition d'une **corrélation croisée** entre deux composantes orthogonales de la position : celle-ci a été utilisée pour évaluer l'amplitude de cette force non conservative par

Pesce et des collaborateurs [98] (voir Figure 3.1c).

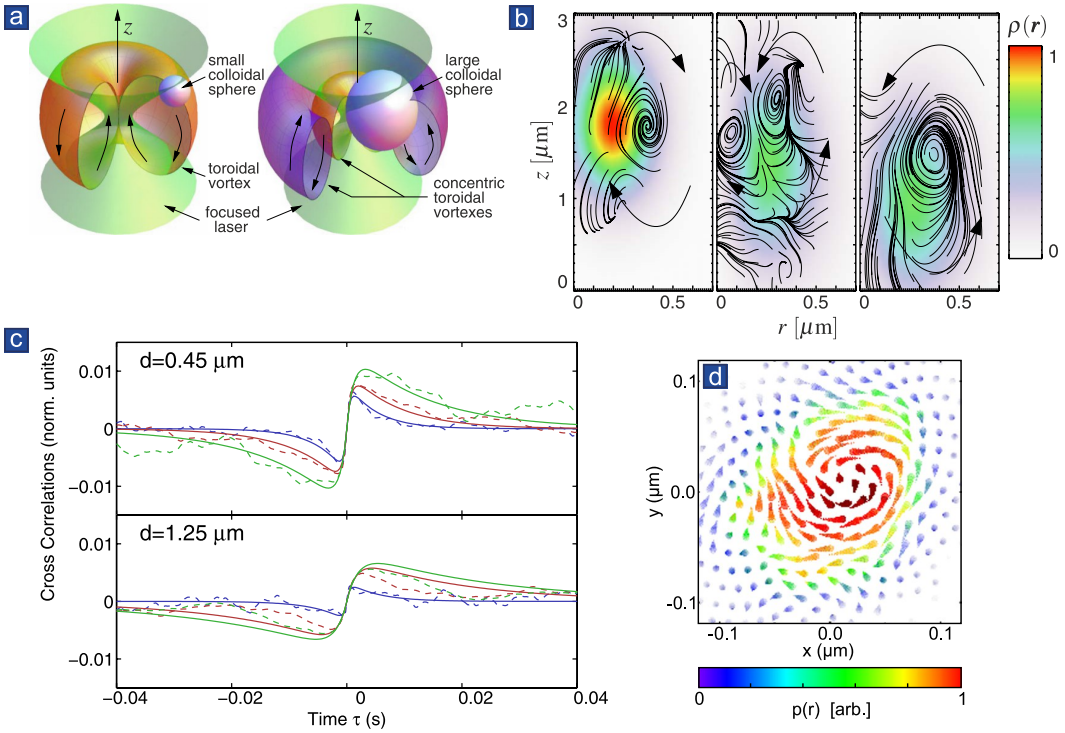


Figure 3.1 – **a.** Schéma tiré de [99] représentant les trajectoires toroïdales attendues dans un faisceau laser fortement focalisé d'une microsphère plus petite que la longueur d'onde (à gauche) ou plus grande (à droite). **b.** Lignes de champ de la circulation mesurée dans [99] de sphères de silice piégées dans l'eau avec des raideurs transversales décroissantes de gauche à droite. Plus le piège se détend, moins la particule est localisée et plus la vorticité de la trajectoire est importante. **c.** Corrélations croisées mesurées dans [98] des composantes longitudinales z et transversales r des positions de sphères de polystyrène de deux diamètres d différents, piégées dans l'eau avec des puissances optiques $P_{\text{bleu}} > P_{\text{rouge}} > P_{\text{vert}}$. Ces corrélations croisées seraient nulles en l'absence de forces non-conservatives. **d.** Flux de probabilité de présence moyenné mesuré dans [100] de sphères de polystyrène d'1 μm de diamètre dans l'eau, dans le plan transverse d'un piège optique à polarisation circulaire droite. L'observation de ce flux confirme l'existence de forces non-conservatives dans ce piège dues à la polarisation circulaire.

Le champ de force non-conservatif a été directement mesuré par la méthode dite de la **dérive thermique** en 2009 par P. Wu et des collaborateurs [101]. Cette méthode, basée sur la coïncidence de la force de traînée moyenne locale et de la force de piégeage, a notamment permis d'estimer le travail dissipé par la force non-conservative, dont l'observation d'une signature expérimentale a également été rapportée en 2011 [102]. Toutes ces recherches sur les forces optiques non-conservatives dans les pièges leur accordent une influence accentuée pour des particules légères et des pièges de faible raideur, car les particules sont alors autorisées à sonder des zones éloignées des centres des faisceaux où les composantes rotationnelles sont importantes.

Il a également été montré que d'autres forces optiques non-conservatives s'appliquaient sur les particules piégées dans un champ lumineux portant un **moment cinétique angulaire**. De telles forces ont été prédites pour des faisceaux lasers fortement focalisés, qui présentent une inhomogénéité de polarisation dans la zone de focalisation [103], et dans les pièges optiques constitués de champs de polarisation circulaire ou elliptique [104, 105]. Un courant tourbillonnaire mesuré dans le plan transverse d'un piège à polarisation circulaire a par exemple été observé en 2012 dans le groupe de D. Grier [100] (voir Figure 3.1), ainsi que le moment parallèle à l'axe optique de cette force sur un ensemble de sphères maintenu par capillarité.

La cartographie complète du champ de force optique 3.4a exercée par un laser fortement focalisé sur un nanofil dans le vide, réalisée par A. Gloppe [53] en 2014, a étendu ces observations à un oscillateur, d'une part, **sous-amorti** et insensible à l'advection puisque l'étude était cette fois réalisée sous vide, et d'autre part, dont la **raideur n'était pas due au champ de force optique**, de sorte que la mesure de force a pu être réalisée arbitrairement loin du point de focalisation. Cette cartographie a notamment permis l'identification directe d'une composante rotationnelle de la force optique totale sur les bords du *waist* du faisceau optique.

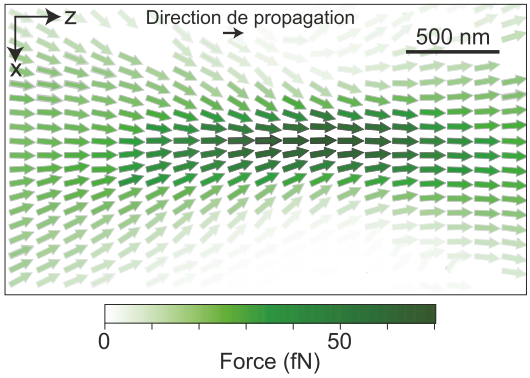


Figure 3.2 – Cartographie de la force optiqueappliquée par un laser vert (longueur d'onde 532 nm, puissance optique environ 80 μW) focalisé sur un nanofil, adaptée de [75], mesurée directement grâce à une expérience pompe-sonde en analysant la projection de l'excitation sur les deux modes propres d'un fil peu sujet à la rotation en raison de sa fréquence relativement élevée (264 kHz).

Il apparaît alors pertinent d'amener la sonde de force bidimensionnelle dont le principe a été exposé dans le chapitre précédent dans ces zones de champ de force rotationnel. C'est l'expérience que relate ce chapitre. La théorie développée dans le Chapitre 2 et les observations précédemment rapportées dans [53] prédisent en effet une évolution du mouvement d'un oscillateur bidimensionnel très particulière lorsqu'il est plongé dans un champ de force rotationnel : la non-conservativité de celui-ci préfigure un comportement thermodynamique intéressant. Cette expérience permet d'étendre la validation de la sonde de force aux champs rotationnels, tandis que l'étude du chapitre précédent se limitait à un champ de force électrostatique conservatif. Enfin, elle complète la compréhension du mouvement d'objets dans des champs optiques fortement inhomogènes comme ceux utilisés dans les expériences d'optomécanique en cavité. Ce domaine de la physique s'est souvent limité jusqu'à présent au mouvement unidimensionnel d'oscillateurs, mais l'émergence récente de l'optomécanique multimode [59, 63] évoquée en introduction laisse entrevoir la richesse potentielle de la combinaison des systèmes optomécaniques ultra-sensibles et des phénomènes non-conservatifs, et proposera peut-être bientôt de nouvelles plateformes expérimentales au domaine naissant de la thermodynamique quantique.

3.1.2 Origine de la force optique

La mesure directe des forces optiques est d'autant plus utile que leur modélisation peut s'avèrer très difficile. Si la force s'applique sur une particule d'une taille bien inférieure au *waist* et à la longueur d'onde d'un faisceau focalisé, il est possible d'approcher la force par celle qui s'appliquerait sur le dipôle électrique équivalent : c'est l'approximation de Rayleigh. Cette approximation est rapidement erronée lorsque la taille de la particule devient comparable à la longueur d'onde avec laquelle elle interagit [106]. La théorie de Mie déjà évoquée doit alors être utilisée pour trouver l'allure des champs. La situation devient encore plus compliquée quand lorsque le champ s'éloigne de l'approximation paraxiale, comme c'est par exemple le cas si des objectifs de grande ouverture numérique sont utilisés pour le focaliser : des composantes

de polarisation longitudinale apparaissent alors [103]. La force optique totale appliquée sur un objet de taille finie est formalisée par l'intégrale du tenseur de Maxwell, [78] sur la surface $\mathcal{S}$ de l'objet :

$$\mathbf{F}_{\text{opt}} = -\oint_{\mathcal{S}} \mathbf{T} \cdot \mathbf{n}\, dS \tag{3.1}$$

où $\mathbf{n}$ est un vecteur sortant normal à la surface. Ce tenseur $\mathbf{T}$ s'écrit dans la base (x, y, z) à partir des composantes du champ électromagnétique $(E_x,\, E_y,\, E_z)$ et $(B_x,\, B_y,\, B_z)$:

$$T_{ij} = \varepsilon_0 \left(E_i E_j + c^2 B_i B_j - \frac{1}{2} \left(E_i^2 + c^2 B_i^2 \right) \delta_{ij} \right). \tag{3.2}$$

Il est donc nécessaire de connaître toutes les composantes du champ électromagnétique sur la surface du nanofil pour calculer les forces optiques qui s'exercent dessus, et ce pour diverses positions du nanofil dans le faisceau si on souhaite simuler la carte du champ de force.

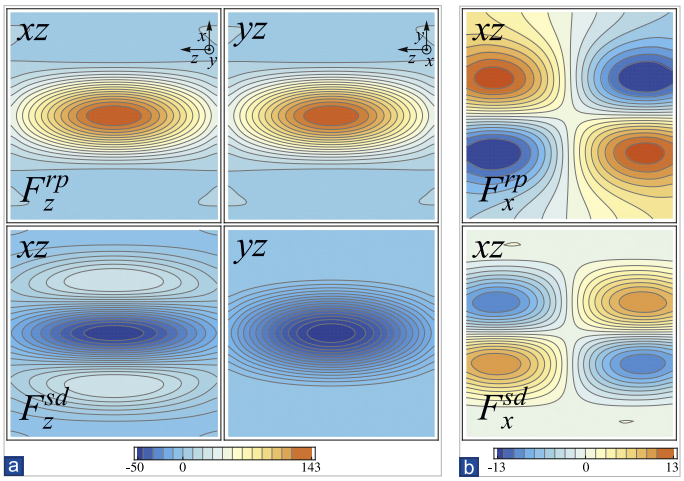


Figure 3.3 – **Représentation adaptée de [103] des forces optiques théoriques calculées appliquées par un laser fortement focalisé** (NA = 0.94, $\lambda = 500\,\text{nm}$), de polarisation rectiligne selon x, sur une particule de Rayleigh. Coupes dans des plans parallèles à l'axe optique z sur $1.6\lambda \times 1.6\lambda$. En haut : force de pression de radiation (F^{rp}), en bas : force due à la rotation de la polarisation (F^{sd}, "spin density"). **a.** Composantes des forces parallèles à l'axe optique. **b.** Composantes perpendiculaires à l'axe optique de signe différent de part et d'autre de celui-ci. $\mathbf{F}^{rp}$ et $\mathbf{F}^{sd}$ présentent alors chacune un caractère rotationnel.

Ce calcul est non analytique et numériquement lourd à réaliser. Ainsi, l'approximation dipolaire est parfois utilisée pour établir des intuitions du comportement général d'un objet en champ de force optique. Les simulations des cartes de force optique calculées pour des particules de Rayleigh par Iglesias et Sáenz [103] (voir Figure 3.3) en dehors de l'approximation paraxiale montrent par exemple l'allure rotationnelle du champ de force, non seulement de pression de radiation, mais aussi de densité de spin (c'est-à-dire, due à l'inhomogénéité de polarisation d'un faisceau focalisé). Un modèle simplifié est également fréquemment utilisé pour décrire les forces en jeu dans des expériences de pinces optiques : une force dirigée le long de l'axe optique modélisant la pression de radiation, proportionnelle à l'intensité locale, est ajoutée à la force de piégeage [97, 98] : $\mathbf{F}_{\text{opt}}(\mathbf{r}) \simeq -k\mathbf{r} + \epsilon k \sigma e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}} \mathbf{e}_z$, où la valeur du paramètre phénoménologique ϵ a été évaluée expérimentalement autour de 0.1 dans le cas de sphères piégées. Ce modèle n'est cependant valable qu'en régime de fort piégeage et au centre du piège. Un modèle analytique plus réaliste pour le cas du nanofil invoquerait une pression de radiation colinéaire au vecteur de Poynting.

Pour les nanofils utilisés, des outils de simulation du champ de force ont été développés par G. Bachelier à partir de l'intégration numérique du tenseur de Maxwell calculé par la méthode des éléments finis. Le résultat, à comparer à la mesure expérimentale de la Figure 3.2, est présenté en Figure 3.4a. Les dérivées spatiales de cette carte simulée représentées Figure 3.4c confirment le caractère rotationnel du champ de force de chaque côté du *waist* avec un signe opposé [53].

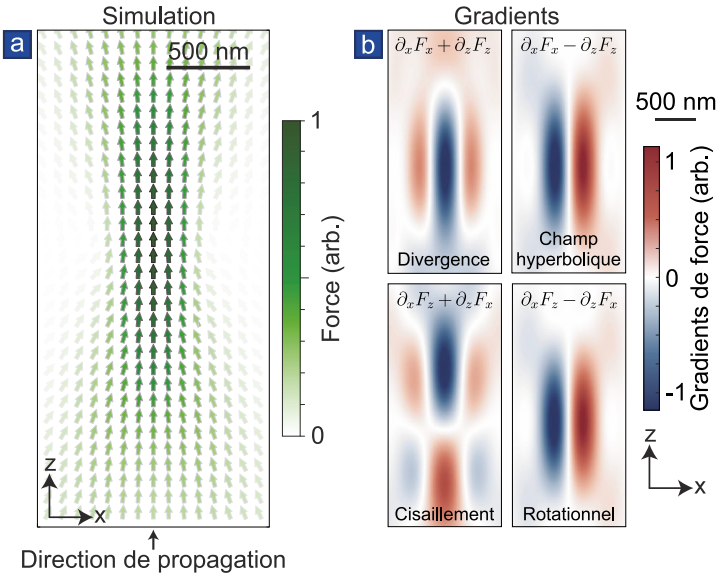


Figure 3.4 – **a.** Cartographie de force simulée dans les mêmes conditions expérimentales par G. Bachelier (adaptée de [53]). **b.** Composantes du tenseur gradient de force, calculées à partir de la cartographie simulée **a**.

Cependant, comme cela a déjà été évoqué dans la partie 2.3.7, les gradients pertinents pour quantifier la perturbation des propriétés mécaniques sont des dérivées de la force appliquée vis-à-vis de la position de la sonde et non vis-à-vis des coordonnées du laboratoire. Or, le diamètre du nanofil étant très comparable à la taille transverse du *waist* du faisceau gaussien, on peut s'attendre à ce que cette distinction soit importante. Aussi, le calcul des dérivées vis-à-vis des coordonnées du laboratoire de la Figure 3.4c confirme le caractère rotationnel du champ de force, mais ne donne pas le rotationnel mesuré par une méthode sensible aux gradients lagrangiens. Finalement, la mesure pompe-sonde utilisée pour établir la cartographie 3.4a et la mesure des gradients par la technique détaillée dans le chapitre précédent donnent donc des informations complémentaires sur le champ de force.

3.1.3 Bifurcation et instabilité dynamique

Deux signatures emblématiques du couplage d'un nanofil à un champ de force rotationnel intense ont été observées au cours de la thèse d'A. Gloppe : un phénomène de **bifurcation** caractérisé par la coalescence des fréquences des deux modes, et un régime d'**instabilité dynamique** dans lequel le nanofil entre en auto-oscillation.

Bifurcation

L'expression des fréquences propres habillées 2.13 :

$$\Omega_{\pm}^2 \equiv \frac{\Omega_{1\parallel}^2 + \Omega_{2\parallel}^2}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(\Omega_{2\parallel}^2 - \Omega_{1\parallel}^2\right)^2 + 4g_{12}g_{21}}$$

où $\Omega_{i\|}^2 = \Omega_i^2 - g_{ii}$, autorise des pulsations complexes lorsque l'argument de la racine est négatif, c'est-à-dire pour des configurations de force où $g_{12}g_{21} < 0$ et $4|g_{12}g_{21}| > \left|\Omega_{2\|}^2 - \Omega_{1\|}^2\right|^2$. Ces configurations correspondent à des forces rotationnelles, car $g_{12}g_{21} < 0$ n'est bien sûr possible, si ceux-ci sont réels, que si $g_{12} \neq g_{21}$. Dans ces conditions, les fréquences complexes des deux modes possèdent la même partie réelle. Ainsi les fréquences effectives se rejoignent : la transition consiste donc en une **bifurcation**. Une partie imaginaire de signe opposé apparaît simultanément dans l'expression des fréquences propres complexes, responsable d'une composante dissipative supplémentaire dans les susceptibilités propres $\chi_\pm[\Omega]$. Les nouveaux paramètres sont alors donnés par :

$$\begin{cases} (\Omega_\pm^{\text{eff}})^2 = \text{Re}(\Omega_\pm^2) = \dfrac{\Omega_{1\|}^2 + \Omega_{2\|}^2}{2} \\ \Gamma_\pm^{\text{eff}} = \Gamma \mp \dfrac{|\text{Im}(\Omega_\pm^2)|}{\Omega_\pm^{\text{eff}}} = \Gamma \mp \sqrt{-\dfrac{\left(\Omega_{2\|}^2 - \Omega_{1\|}^2\right)^2 + 4g_{12}g_{21}}{\Omega_{1\|}^2 + \Omega_{2\|}^2}}. \end{cases} \tag{3.3}$$

Les vecteurs propres de la matrice susceptibilité acquièrent eux aussi une partie complexe : les modes propres du système ne correspondent plus à des trajectoires rectilignes mais elliptiques droite et gauche.

Si les g_{ij} dépendent linéairement d'un paramètre P tel que la puissance optique d'un laser : $g_{ij} \equiv \gamma_{ij}P$, alors la bifurcation apparaît pour certaines valeurs seuil de P, notées $P_{\text{thres}}^\pm$, qui sont les racines du polynôme du second degré en P qui apparaît sous la racine de l'expression des pulsations propres $\Omega_\pm$. On a :

$$P_{\text{thres}}^\pm = (\Omega_2^2 - \Omega_1^2)\frac{(\gamma_{22} - \gamma_{11}) \pm 2\sqrt{-\gamma_{12}\gamma_{21}}}{4\gamma_{12}\gamma_{21} + (\gamma_{22} - \gamma_{11})^2}. \tag{3.4}$$

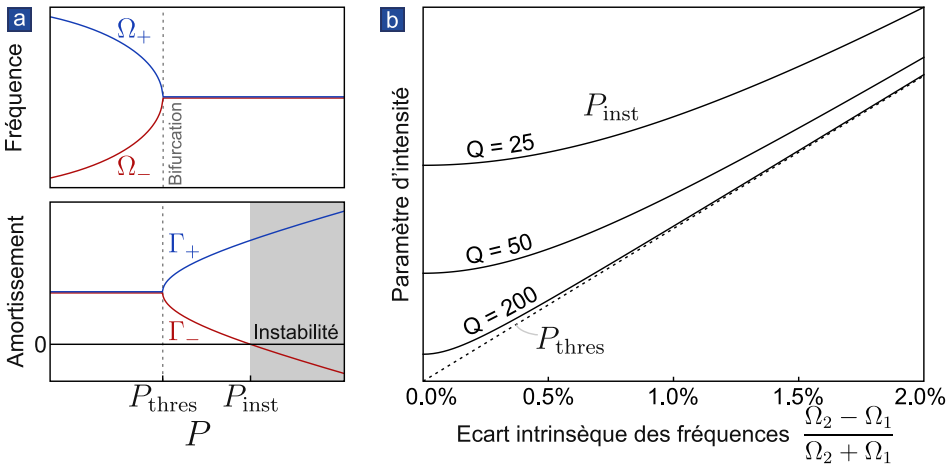


Figure 3.5 – **a.** Représentation schématique de l'évolution des fréquences propres et des taux d'amortissement dans un champ rotationnel pur. **b.** Seuils de bifurcation P_{thres} et d'instabilité P_{inst} en fonction de l'écart des fréquences naturelles, pour des paramètres typiques de ceux des nanofils standard dans un champ de force rotationnel pur ($\gamma_{ii} = 0, \gamma_{12} = -\gamma_{21}$). A grand facteur de qualité, les deux seuils se confondent.

Les deux valeurs seuil $P_{\text{thres}}^\pm$ sont ordonnées différemment selon la structure du champ de force et peuvent aussi être négatives. A titre d'exemple, pour un champ de force rotationnel pur ($\gamma_{12} = -\gamma_{21}, \gamma_{11} = \gamma_{22} = 0$), on obtient les fréquences et taux d'amortissement présentés en Figure 3.5.

Dans le cas de la force optique, le paramètre P modélise l'intensité optique et ne peut être que positif. Il existe alors des configurations de champ de force où les valeurs de $P^{\pm}_{\text{thres}}$ sont toutes les deux négatives, et la bifurcation n'a pas lieu. Selon l'équation 3.4, ces valeurs seuil sont des fonctions de $\gamma_{22} - \gamma_{11}$ et de $\sqrt{-\gamma_{12}\gamma_{21}}$ uniquement. La Figure 3.6 identifie dans l'espace de ces deux paramètres 3 domaines qui correspondent à une **bifurcation persistante**, à **une bifurcation transitoire**, et à l'**absence de bifurcation**.

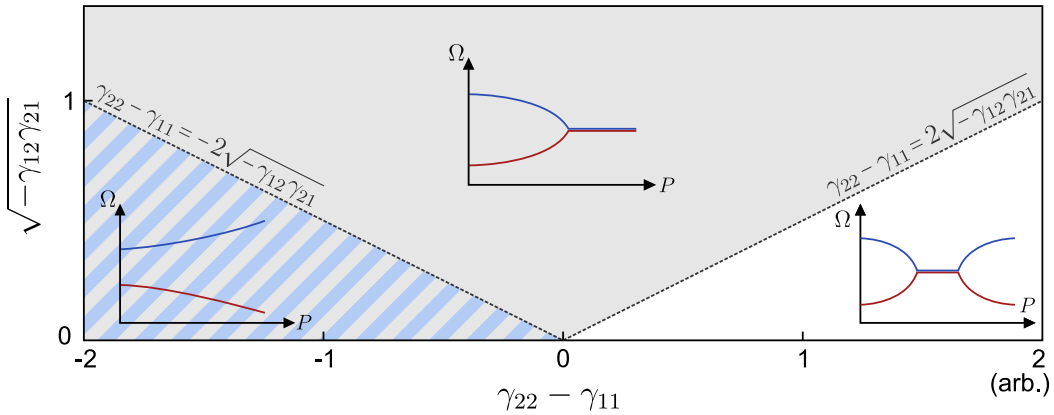


Figure 3.6 – Diagramme des domaines de $\gamma_{22} - \gamma_{11}$ et $\sqrt{-\gamma_{12}\gamma_{21}}$ qui permet d'identifier 3 classes de champs de force statiques non-conservatifs. En gris : région $P^{+}_{\text{thres}} < 0$. En bleu : région $P^{-}_{\text{thres}} < 0$. Les évolutions qualitatives des fréquences propres mécaniques sont représentées dans chaque région en fonction du paramètre P positif. La région non coloriée où $P^{+,-}_{\text{thres}} > 0$ concerne les systèmes à bifurcation transitoire et la région où une seule valeur seuil est positive, coloriée uniquement en gris, correspond aux bifurcations persistantes. Enfin, les systèmes situés dans la région en gris et bleu ne possèdent aucune valeur seuil positive : ils ne donnent pas lieu à une bifurcation car la non-conservativité du champ de force est stabilisée par les gradients axiaux. Notons que la catégorie d'un champ de force dépend de l'orientation initiale des polarisations propres du nanofil.

Instabilité dynamique

Une fois que les fréquences se sont rejointes, l'un des modes est affecté d'un taux de dissipation réduit Γ^{eff}_{-}, qui diminue lorsque l'intensité P augmente. Ce mode finit donc par devenir instable lorsque l'intensité augmente au delà d'un second seuil P_{inst} pour lequel $\Gamma^{\text{eff}}_{-} = 0$. Cette **instabilité** dynamique se traduit par l'auto-oscillation du nanofil [1]. Pour les nanofils utilisés, les seuils de bifurcation et d'instabilité sont très proches $P_{\text{inst}} - P_{\text{thres}} \simeq 1$ à $3\% P_{\text{thres}}$ (voir Figure 3.7a).

Au delà de la bifurcation et de l'instabilité dynamique, le modèle théorique présenté au début du chapitre précédent prédit d'autres signatures intéressantes des forces rotationnelles, notamment, le **cisaillement** des modes propres et donc la brisure de leur orthogonalité. Pour tester cette prédiction aux fortes conséquences, nous avons utilisé la méthode de mesure vectorielle de force testée sur le champ de force électrostatique dans le chapitre précédent, pour sonder cette fois la physique nouvelle du champ de force non-conservatif. L'expérience n'a plus pour objectif de démontrer l'existence de forces rotationnelles par l'observation de la bifurcation ou de l'instabilité : elle est cette fois focalisée sur l'étude des propriétés mécaniques et thermodynamiques intrigantes d'un champ de force non-conservatif *en dessous* du seuil de bifurcation (si celle-ci existe).

1. En pratique l'amplitude d'oscillation sature car le nanofil, sous l'effet de cette auto-oscillation, explore des régions où la structure de champ de force est incompatible avec l'instabilité.

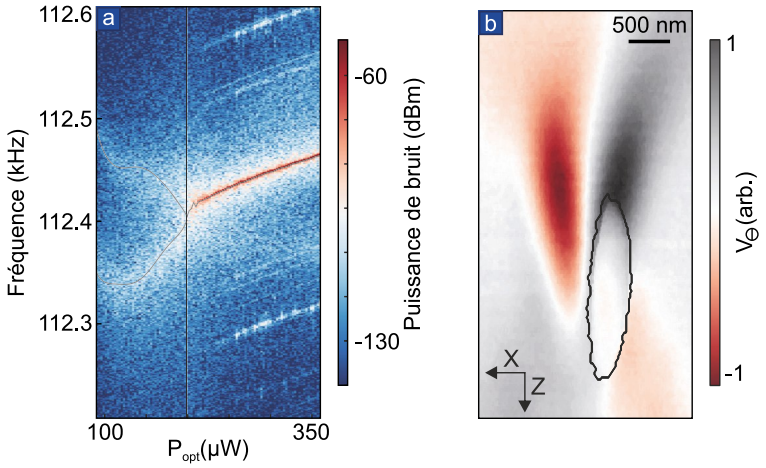


Figure 3.7 – **Mesures de la bifurcation et de la zone d'instabilité tirées de la thèse d'A. Gloppe. a.** Coalescence des fréquences des deux modes lors d'un balayage de la puissance optique. **b.** Carte de transmission du nanofil faisant apparaître la zone d'instabilité.

3.2 Montage expérimental

Le principe de mesure utilisé est le même que celui du chapitre précédent (bien que les expériences n'aient en réalité pas été menées sur le même poste) : la position du nanofil est encodée sur l'intensité et la direction de la lumière réfléchie. Une photodiode à quadrants mesure ces deux informations, par le biais d'une double mesure projective, et permet ainsi la reconstruction des trajectoires bidimensionnelles. Il existe des positions du nanofil dans le champ optique de lecture pour lesquelles les vecteurs de mesure sont presque orthogonaux : l'extrémité du nanofil est maintenue à l'une de ces positions de mesure idéale, ce qui nécessite l'utilisation d'un étage piézoélectrique de positionnement du nanofil vis-à-vis du laser de lecture. Cette fois, cependant, c'est un second laser focalisé se propageant dans la direction opposée au laser de mesure qui applique le champ de force statique, et on a retiré la contre-électrode utilisée dans le chapitre précédent.

Dans la suite, on verra qu'il est important de pouvoir mesurer, en plus du mouvement Brownien, la **réponse mécanique** du nanofil à une force-test (cette force-test ayant dans l'idéal le même profil spatial que le laser de lecture, ce dont l'importance a été discutée dans la section 1.3.3). Il faut donc pouvoir appliquer, en plus du champ de force statique rotationnel, une petite **force excitatrice** sur le nanofil, qui sera implémentée par la modulation de l'intensité du laser d'actionnement autour de sa valeur moyenne qui crée le champ de force statique.

3.2.1 Implémentation de la force optique

Montage optique

Pour permettre de séparer facilement les faisceaux de sonde et d'actionnement, le premier est un laser rouge, tandis que le second est un laser vert (voir Figure 3.8 un schéma de principe du montage). Cette différence de couleur permet également d'utiliser la différence des sections efficaces du nanofil vis-à-vis des radiations de couleurs différentes, afin de minimiser la force appliquée par le laser de sonde, et à l'inverse de maximiser celle appliquée par le laser d'actionnement.

Le laser de mesure rouge (Hélium-Néon, longueur d'onde 633 nm) est toujours injecté par un objectif de microscope de grossissement 100× et d'ouverture numérique 0.75, de grande achromaticité. Il est utilisé à faible puissance (15 μW) pour limiter la force appliquée sur le nanofil.

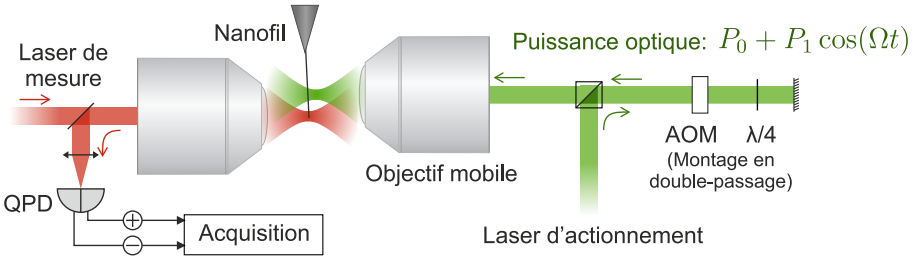


Figure 3.8 – **Schéma simplifié du montage optique.** Pour simplifier la représentation, le schéma représente les faisceaux décalés verticalement, mais les points focaux sont seulement décalés horizontalement dans l'expérience pour que le nanofil se retrouve à la position de mesure du laser de sonde et au bord du *waist* du laser d'application de la force.

De surcroît, le faisceau injecté est plus étroit que la pupille d'entrée pour réduire la focalisation et donc les gradients de force résiduels. Enfin, la position de mesure est centrée sur l'axe optique de sorte que toute force résiduelle est irrotationnelle. Le nanofil est monté sur un étage piézoélectrique qui permet de le positionner dans le laser de mesure. Un filtre passe-haut est placé juste devant la photodiode de mesure pour débarrasser le faisceau sonde réfléchi sur le nanofil de la lumière verte transmise à travers les deux objectifs.

Le faisceau qui applique la force optique (Nd : YAG doublé LaserQuantum Torus de longueur d'onde 532 nm) est injecté par un objectif de microscope identique symétrique monté sur une platine piézoélectrique séparée (Nanocube, $100 \times 100 \times 100\,\mu$m) pour le positionnement vis-à-vis du nanofil. Une puissance optique comprise entre 0 et 80 μW est utilisée pour établir des champs de forces statiques d'intensité variable.

Un schéma complet du montage optique est donné par la Figure 3.9. L'intensité du laser vert est commandée par un modulateur acousto-optique (Acousto-Optical Modulator, désormais noté AOM) monté en double-passage pour profiter d'une grande plage dynamique. L'intensité du faisceau en sortie de ce montage est fonction de la tension de commande appliquée sur l'AOM. Cette dernière est la somme d'un biais statique qui contrôle l'intensité moyenne du faisceau et donc l'intensité du champ de force statique, et d'une modulation sinusoïdale de faible amplitude ($0.25 - 1\,\mu$W) qui permet d'appliquer une petite force d'excitation sur le nanofil ($100 - 1000$ aN). Le montage de modulation dégrade la qualité spatiale du faisceau. Celui-ci est donc filtré en passant dans une fibre monomode qui permet de ne conserver que le mode gaussien TEM_{00}. Enfin, la réflexion du laser vert sur le nanofil est mesurée sur une photodiode à quadrants pour le positionnement de la sonde dans le champ de force.

Interfaçage et acquisition des données

Le schéma électrique complet d'acquisition et de commande est représenté sur la Figure 3.10. La **tension de décalage de l'AOM** est fournie par une sortie analogique de la carte d'acquisition DAQ commandée par l'interface utilisateur décrite au chapitre précédent, ce qui autorise l'exécution de scripts automatisés de balayage en puissance moyenne du champ optique. La **modulation** est fournie par la voie de sortie d'un **analyseur de réseau**, qui récupère sur ses deux entrées synchronisées les deux signaux HF de la QPD mesurant le déplacement bidimensionnel. Ainsi, l'analyseur de réseau calcule les réponses mécaniques du nanofil projetées dans les deux directions de mesure sous l'effet de la force excitatrice dont il balaye la fréquence à travers les résonances. **Deux analyseurs de spectre** mesurent également les signaux HF de la QPD en l'absence de force optique d'excitation, c'est-à-dire des projections du mouvement Brownien du nanofil, de la même manière que dans le chapitre précédent.

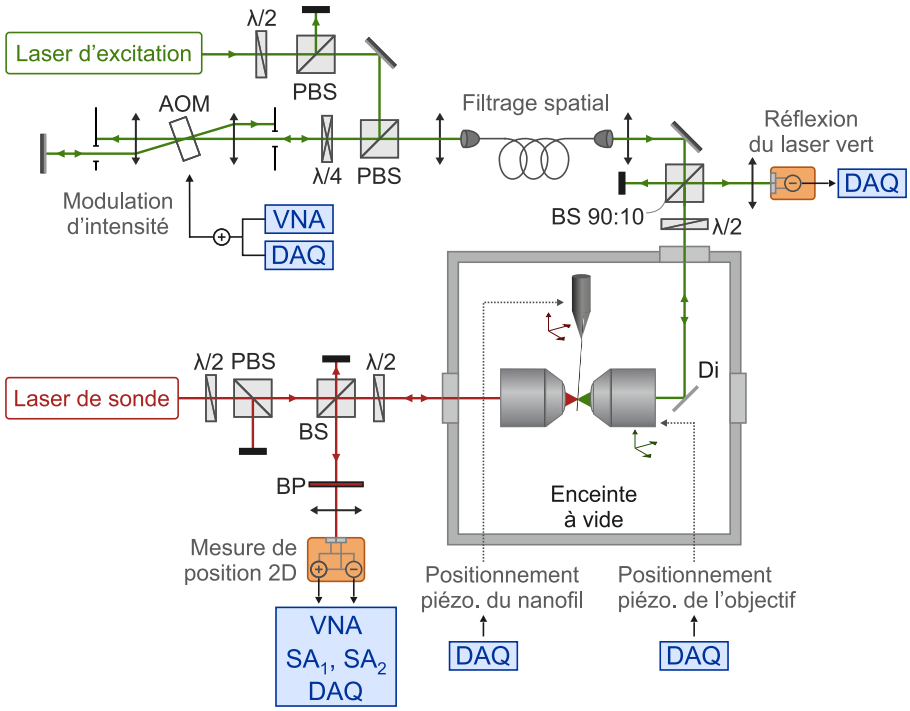


Figure 3.9 – **Schéma complet du montage optique** où l'on a seulement omis les miroirs d'alignement. PBS = Polarizing Beam Splitter (cube séparateur de polarisation), BS 90 :10 = Beam Splitter (séparateur non polarisant) asymétrique réfléchissant 90% de la lumière et transmettant les 10% restants, Di = miroir dichroïque, BP = Band Pass (utilisé comme un filtre passe-haut pour supprimer toute lumière verte du faisceau rouge mesuré), AOM = Acousto-Optic Modulator (modulateur acousto-optique), DAQ = Data AcQuisition system (carte d'acquisition), VNA = Vectorial Network Analyzer (analyseur de réseau), SA = Spectrum Analyzer (analyseur de spectre).

Nanofil utilisé

Le nanofil utilisé dans cette expérience est choisi parmi les plus longs de l'échantillon disponible (165 μm de long, 120 nm de diamètre) pour maximiser sa sensibilité à la force optique. La fréquence du mode de déflexion fondamental est alors relativement basse et les polarisations très proches de la dégénérescence : $\Omega_1/2\pi = 6.720\,\text{kHz}$, $\Omega_2/2\pi = 6.746\,\text{kHz}$. L'écart relatif des fréquences de moins de 0.4% traduit une très forte sensibilité aux gradients de force transverses que l'on cherche à mesurer (voir section 2.3.5 du Chapitre 2). Le facteur de qualité atteint 3000 dans un vide de 10^{-3} mbar et la masse effective du mode fondamental est $M_{\text{eff}} \simeq 1.5 \times 10^{-15}$ kg. Pour alléger les notations, on la notera simplement M dans la suite. Ces caractéristiques, obtenues à partir de la mesure du mouvement Brownien (voir Figure 3.11), confèrent à ce nanofil une sensibilité théorique en force de $10\,\text{aN}/\sqrt{\text{Hz}}$ à température ambiante.

Configuration de mesure de spectres et de réponses

Les deux analyseurs de spectre Agilent MXA N9020A sont utilisés avec une RBW de 1 Hz et réalisent 60 moyennes de spectres de 4000 points de fréquence. Les voies $\oplus$ et $\ominus$ sont également branchées sur les ports R et T d'un analyseur de réseau Agilent E5061B : celles-ci réalisent une acquisition synchrone, ce qui accélère fortement la prise de données. On réalise un seul balayage en fréquence d'excitation sur 400 points avec une RBW de 3 Hz.

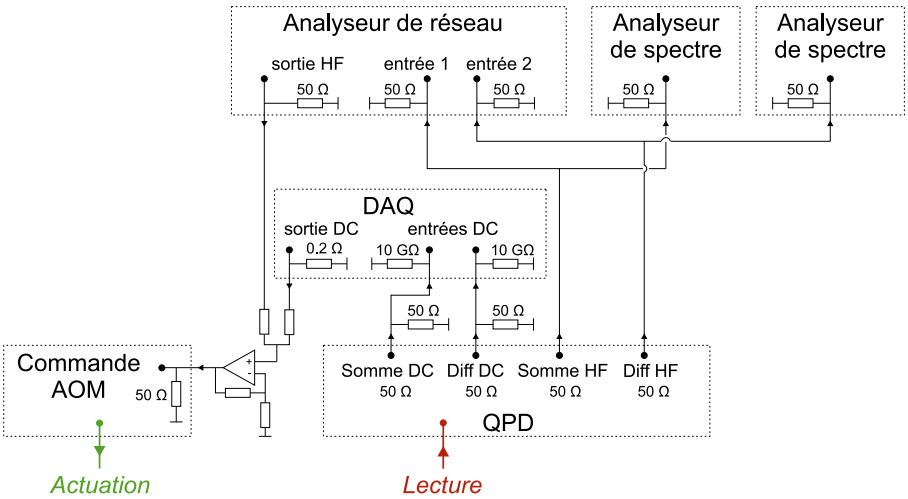


Figure 3.10 – Schéma électrique d'acquisition et de commande de l'expérience.

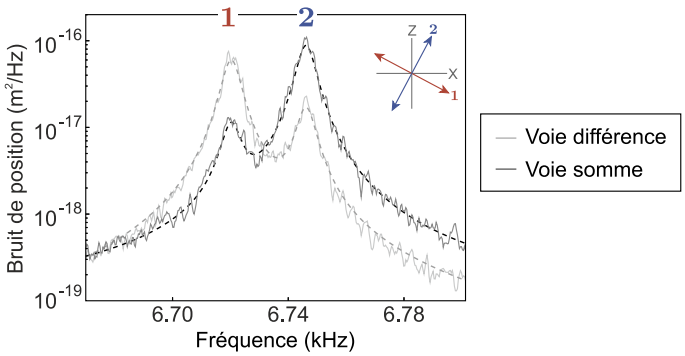


Figure 3.11 – Mouvement Brownien mesuré pour la caractérisation des paramètres mécaniques du nanofil utilisé. Insert : orientation des modes propres déduite.

3.2.2 Découplage des forces optiques

La réponse du nanofil à la force optique est mesurée dans un premier temps : il est montré que l'amplitude de mouvement est linéaire en l'amplitude de modulation de la puissance sur toute la plage de puissance utilisée.

Comme il a été expliqué précédemment, le laser d'actuation applique à la fois le champ de force statique rotationnel et la force d'excitation de faible amplitude, l'intensité du premier étant commandé par une tension de biais et l'amplitude de la seconde par l'amplitude de modulation de la tension de commande. Il est primordial de pouvoir contrôler les deux forces de manière indépendante, afin de conserver la même force d'excitation dans toutes les configurations de champ de force statique. Or l'AOM qui contrôle l'intensité de ces deux forces ne répond pas de manière linéaire à sa tension de commande (voir Figure 3.12a).

La conservation d'une profondeur de modulation constante, lorsque la puissance moyenne est balayée afin de varier l'intensité du champ de force, impose donc une calibration en fonction de l'amplitude de modulation de la commande de l'AOM (fournie par l'analyseur de réseau) et de sa composante DC (fournie par la carte d'acquisition DAQ). Pour réaliser cette calibration, une photodiode rapide calibrée collecte la lumière en sortie de l'AOM et son signal est branché en entrée de l'analyseur de spectre. Un balayage des deux variables, tension de commande DC et amplitude de modulation de la tension de commande, permet de construire l'abaque de calibration de la Figure 3.12b. Cet abaque est directement utilisé sous forme numérique par les

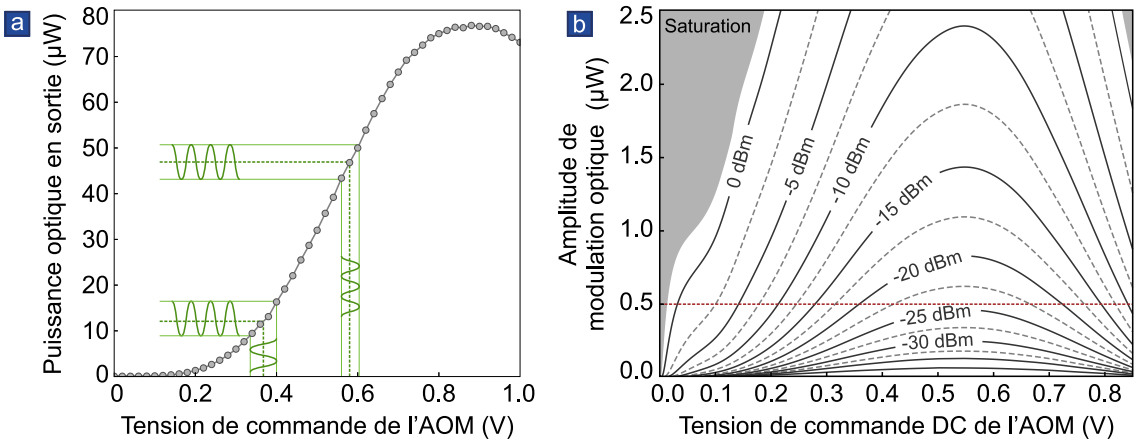


Figure 3.12 – **Calibration de l'AOM pour découpler l'intensité statique de l'intensité d'excitation. a.** Puissance optique mesurée en sortie de l'AOM en fonction de la tension de commande. On souhaite obtenir la même profondeur de modulation de la force optique pour toutes les tensions d'*offset*. **b.** Abaque utilisé directement sous forme numérique dans les programmes d'interface pour sélectionner une puissance d'excitation en fonction de la profondeur de modulation et de la tension d'*offset* désirées. A titre d'exemple, l'intersection du trait en pointillé rouge foncé avec les lignes de l'abaque donne les puissances d'excitation à appliquer en entrée de l'AOM pour obtenir une profondeur de modulation de la puissance optique de $0.5\,\mu$W. Dans la zone grisée, la caractéristique de l'AOM est trop plate atteindre la profondeur de modulation voulue sans demander des tensions de commande négatives ou supérieures à la tension maximale.

programmes d'interface pour calculer la puissance de sortie que l'analyseur de spectre doit fournir pour chaque point d'un balayage de puissance moyenne, afin que celle-ci soit convertie en modulation de puissance optique d'amplitude constante par l'AOM.

3.2.3 Mesure de réponses mécaniques vectorielles

L'excitation cohérente du nanofil par une force monochromatique d'amplitude δF orientée le long d'un vecteur unitaire $\mathbf{e}_\mathrm{F}$ engendre un déplacement excité $\delta\mathbf{r}(t)$. En régime stationnaire, ce déplacement s'écrit de manière générique $\delta\mathbf{r}(t) = \mathrm{Re}(\delta\mathbf{r}[\Omega]e^{-i\Omega t})$.

Instantanéité de la force

Certaines forces engendrent une réponse retardée : c'est le cas par exemple des forces photothermiques dues à l'absorption partielle éventuelle du faisceau optique, car leur effet ne se fait sentir qu'une fois qu'un nouveau profil de température a été établi. Ce temps d'établissement pour nos nanofils est typiquement 20 fois plus long que la période de vibration. Au contraire, la pression de radiation peut être considérée (hors cavité) comme une force instantanée aux échelles de temps mécaniques. Dans le cas d'une force retardée, la phase de la réponse ne coïncide plus avec celle de la susceptibilité que nous avons représentée sur la Figure 1.5, c'est-à-dire en particulier qu'elle ne vaut plus $\pi/2$ à résonance. Pour tester l'instantanéité de la force excitatrice, on mesure successivement la phase de la modulation d'intensité appliquée et la phase du déplacement engendré sur la même QPD. La phase du déplacement est mesurée comme d'habitude à partir du faisceau rouge réfléchi sur le nanofil. Le filtre qui supprime habituellement la lumière verte transmise à travers les deux objectifs arrivant sur cette QPD est ensuite retiré pour mesurer la phase de l'excitation. Les deux phases peuvent être alors directement comparées : cette comparaison s'affranchit en effet des déphasages de toute la chaîne d'excitation et de détection. On vérifie ainsi que la force excitatrice qui s'applique dans ce régime, sur ce

nanofil, ne donne pas lieu à une réponse retardée, mais instantanée. La trajectoire s'écrit alors $\delta\mathbf{r}(t) = \mathrm{Re}(\boldsymbol{\chi}[\Omega]\mathbf{e}_\mathrm{F}\, e^{-i\Omega t})\delta F$.

Calibration

A cause de la nature bidimensionnelle et complexe de la susceptibilité mécanique $\boldsymbol{\chi}[\Omega]$, la trajectoire $\delta\mathbf{r}(t)$ est une ellipse dont les paramètres dépendent de la fréquence d'excitation et des propriétés mécaniques du nanofil. L'analyseur de réseau mesure l'amplitude et la phase des trajectoires projetées sur les vecteurs de mesure $\mathbf{e}_{\ominus,\oplus}$ relativement au signal d'excitation qu'il produit. Il mesure ainsi :

$$\begin{cases} |\delta r_\ominus[\Omega]| & = & |\mathbf{e}_\ominus \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_F|\delta F \\ \arg(\delta r_\ominus[\Omega]) & = & \arg(\mathbf{e}_\ominus \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_F) \end{cases} \tag{3.5}$$

La seconde voie de l'analyseur de réseau mesure des quantités similaires pour $\delta r_\oplus[\Omega]$. Après compensation des déphasages introduits par chaque chaîne de détection, les réponses mesurées sont calibrées en déplacement. Les réponses calibrées sont ensuite utilisées pour calculer les composantes du déplacement complexe $\delta r_{x,z}[\Omega]$ projeté dans le repère lié à la platine piézoélectrique de positionnement par rapport au laser :

$$\begin{pmatrix} \delta r_x[\Omega] \\ \delta r_z[\Omega] \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\beta_\ominus & \sin\beta_\ominus \\ \cos\beta_\oplus & \sin\beta_\oplus \end{pmatrix}^{-1} \cdot \begin{pmatrix} \delta r_\ominus[\Omega] \\ \delta r_\oplus[\Omega] \end{pmatrix}. \tag{3.6}$$

où $\beta_{\oplus,\ominus}$ sont les angles des vecteurs de mesure par rapport à $\mathbf{e}_x$.

Les **vecteurs de mesure** sont mesurés au préalable comme il a été décrit dans le chapitre précédent. Les **fréquences** et **orientations propres** sont également obtenues comme expliqué dans le chapitre précédent grâce aux mesures de mouvement Brownien par deux analyseurs de spectre. Une fois ces paramètres connus, l'amplitude et l'orientation de la force-test sont les seuls paramètres libres de l'ajustement des deux réponses mécaniques par les expressions 3.5 et3.6. Une fois ces paramètres connus, on peut diviser la réponse par l'amplitude de la force-test pour calculer une composante de la matrice susceptibilité (par voie de mesure).

Trajectoires bidimensionnelles excitées

A chaque fréquence d'excitation correspond donc la trajectoire :

$$\delta\mathbf{r}(t) = \mathrm{Re}\left[\left(|\delta r_x|e^{i\varphi_x}\mathbf{e}_x + |\delta r_z|e^{i\varphi_z}\mathbf{e}_z\right) e^{-i\Omega t}\right] \tag{3.7}$$

avec les phases $\varphi_{x,z}[\Omega] \equiv \arg\left(\delta r_{x,z}[\Omega]\right)$. Ce sont des ellipses de petit axe r_min et de grand axe r_max, ce dernier étant incliné d'un angle ψ par rapport à $\mathbf{e}_x$ (voir Figure 3.13a) :

$$\begin{cases} r_\mathrm{max}^2 = \dfrac{|\delta r_x|^2 + |\delta r_z|^2}{2} + \dfrac{1}{2}\sqrt{\left(|\delta r_x|^2 - |\delta r_z|^2\right)^2 + 4|\delta r_x \delta r_z|^2\cos^2(\varphi_z - \varphi_x)} \\ r_\mathrm{min}^2 = \dfrac{|\delta r_x|^2 + |\delta r_z|^2}{2} - \dfrac{1}{2}\sqrt{\left(|\delta r_x|^2 - |\delta r_z|^2\right)^2 + 4|\delta r_x \delta r_z|^2\cos^2(\varphi_z - \varphi_x)} \\ \psi = \pi/2 + \dfrac{1}{2}\arctan\left(\dfrac{2|\delta r_x \delta r_z|\cos(\varphi_z - \varphi_x)}{|\delta r_x|^2 - |\delta r_z|^2}\right) \end{cases} \tag{3.8}$$

Ces expressions sont utilisées pour représenter les trajectoires elliptiques excitées à partir de la mesure des deux signaux d'amplitude et des deux signaux de phase mesurés par l'analyseur

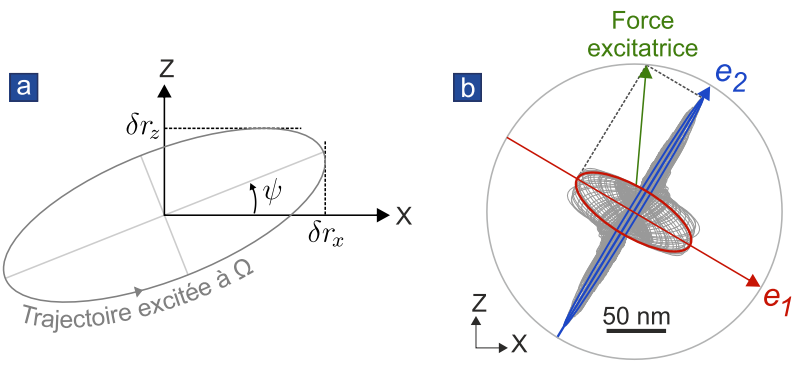


Figure 3.13 – **a.** Schéma typique d'une trajectoire elliptique excitée à une fréquence donnée. **b.** Collection des trajectoires excitées à toutes les fréquences analysées (en trait plein gris) avec une modulation de puissance optique d'amplitude 0.25 μW correspondant à 270 aN. La direction de la force excitatrice est reportée en vert, celles des modes propres en rouge et bleu. Les deux trajectoires excitées à $\Omega_1/2\pi$ et $\Omega_2/2\pi$ sont repassées en rouge et bleu : leurs grands axes coïncident avec les modes propres.

de réseau. La Figure 3.13b présente par exemple une collection de trajectoires ainsi mesurées à toutes les fréquences d'excitation dans une plage fréquentielle autour des modes propres d'un nanofil non perturbé par un champ de force extérieur.

Deux trajectoires sont plus allongées : elles correspondent à des excitations aux fréquences de résonance, et leurs grands axes sont orthogonaux. La trajectoire à la fréquence $\Omega_2/2\pi$ est plus allongée car la force excitatrice possède une grande projection sur l'axe $\mathbf{e}_2$ de ce mode. L'excitation à la fréquence $\Omega_1/2\pi$ forme une trajectoire plus ouverte : en effet, en raison de la proximité fréquentielle des modes ($\Omega_2 - \Omega_1 \gtrsim \Gamma$), il existe encore une contribution dans la direction du mode (2) à la fréquence du mode (1).

3.3 Anomalies du mouvement en champ de force non-conservatif

Le nanofil est positionné dans une zone de champ de force fortement rotationnel, c'est-à-dire, au bord du faisceau d'excitation. Le **bruit thermique de déplacement** et la **réponse** à la force-test sont mesurés grâce aux analyseurs de spectre et à l'analyseur de réseau, pour des séries de puissance optique statique du faisceau vert, c'est-à-dire d'intensité de la force non-conservative. La profondeur de modulation de la force excitatrice qui sert à mesurer les réponses mécaniques est maintenue constante lors du balayage de l'intensité du champ de force statique grâce à la calibration exposée précédemment.

On présente maintenant les résultats de cette expérience pour deux positions du nanofil dans le champ de force de part et d'autre de l'axe optique, c'est-à-dire pour deux signes opposés du rotationnel. Ces positions dans le champ de force sont représentées sur la Figure 3.14 et dénotées dans toute la suite par les symboles $\circlearrowleft$ (situation appelée "gauche") [2] et $\circlearrowright$ ("droite").

Remarquons que, pour un champ de force symétrique par rapport à l'axe optique, la divergence du champ de force $g_{11} + g_{22} = g_{xx} + g_{zz}$ conserve le même signe de part et d'autre de l'axe optique, tandis que le rotationnel $g_{12} - g_{21} = g_{xz} - g_{zx}$ change de signe. Enfin, les deux autres composantes $g_{12} + g_{21}$ et $g_{22} - g_{11}$ n'ont pas de parité définie vis-à-vis de la réflexion par l'axe optique, sauf dans des cas particuliers d'alignement du mode (1) ou (2) avec les axes

2. La dénomination gauche (droite) a été fixée par convention pour des raisons pratiques : vu de l'encastrement (ou vu sur la Figure 3.14), le sens du rotationnel est trigonométrique (anti-trigonométrique) et cela correspond à un positionnement du nanofil à gauche (droite) de l'axe optique.

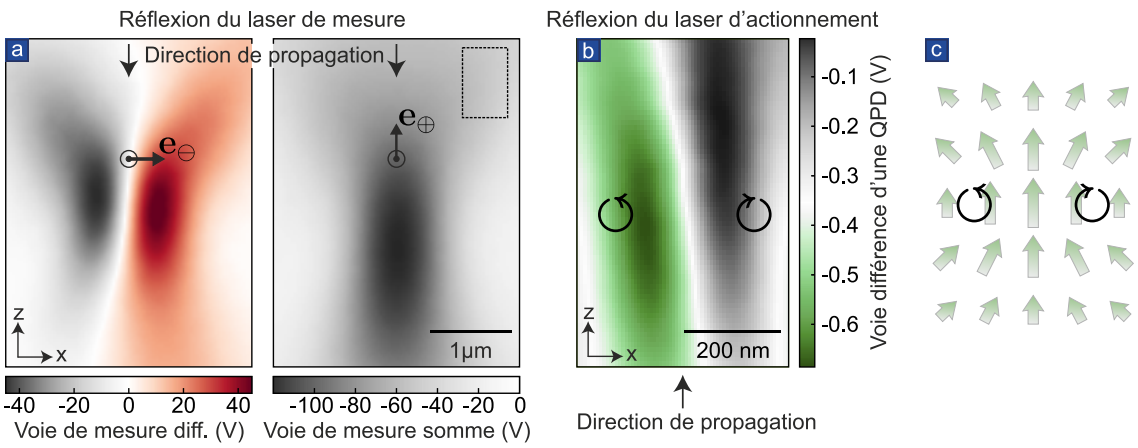


Figure 3.14 – **Images en réflexion des deux faisceaux lasers focalisés obtenues en balayant le nanofil le plan horizontal (X,Z). a.** Faisceau de **mesure** imagé sur les deux voies d'une QPD. La position de mesure idéale et les vecteurs de mesure correspondant sont indiqués. **b.** Faisceau appliquant la force optique imagé sur la voie différence d'une seconde QPD. Cette image ne sert qu'au positionnement vis-à-vis du laser vert et n'est pas utilisée pour la mesure de force. Les zones de fort rotationnel situées sur les bords du *waist* sont indiquées par ↺ et ↻. L'étendue de la carte verte est représentée en pointillés sur la carte rouge. On notera que le faisceau sonde a été intentionnellement agrandi en supprimant le télescope habituellement employé (pour ajuster la taille transverse du faisceau incident à la pupille d'entrée de l'objectif), afin de réduire sa focalisation et minimiser ainsi les gradients de force optique résiduels.

principaux du champ optique $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_z$. Les évolutions des paramètres mécaniques des deux côtés de l'axe optique ne sont donc pas nécessairement symétriques. Ainsi, pour l'orientation de la base des modes propres de l'expérience, on observe une bifurcation sur le coté gauche ↺ pour une puissance optique statique de l'ordre de $80\,\mu$W, et pas de bifurcation du côté droit (du moins dans la limite des puissances optiques auxquelles il reste raisonnable de soumettre le nanofil pour éviter sa destruction).

3.3.1 Brisure de l'orthogonalité des modes mécaniques

On place d'abord le nanofil du côté "gauche" de l'axe optique ↺. La représentation bidimensionnelle des trajectoires excitées selon la méthode expliquée dans le paragraphe précédent fournit une première représentation spectaculaire de la brisure de l'orthogonalité des modes propres. Sur la Figure 3.15, les trajectoires obtenues en excitant aux fréquences propres sont représentées en rouge et bleu : on constate que la base des modes propres, orthogonale hors champ de force non-conservatif, est **cisaillée** lorsque l'intensité du champ non-conservatif est augmentée, jusqu'à l'**alignement** des modes propres au seuil de la bifurcation.

On s'intéresse ensuite aux spectres de bruit thermique. Dans un champ de force non-conservatif, il n'est plus possible d'écrire le spectre de vibration comme une somme de fonctions Lorentziennes décrivant chacune le mouvement Brownien d'un mode habillé $(+/-)$, car il apparaît des corrélations entre les projections du mouvement dans les directions des modes propres [3]. Le mouvement Brownien peut alors être rigoureusement décrit à partir du modèle 2.32 exposé dans la section 2.1.4, qui correspond au développement modal *dans la base non perturbée* $(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$:

$$S_{\delta r_\beta}[\Omega] = \frac{S_{F_{\rm th}}}{|\Xi[\Omega]|^2} \left\{ \begin{array}{l} \cos^2\beta\left((\Omega_2^2-\Omega^2-g_{22})^2+\Omega^2\Gamma^2+g_{21}^2\right) \\ +\sin^2\beta\left(g_{12}^2+(\Omega_1^2-\Omega^2-g_{11})^2+\Omega^2\Gamma^2\right) \\ +\sin 2\beta\ \left(g_{12}(\Omega_2^2-\Omega^2-g_{22})+g_{21}(\Omega_1^2-\Omega^2-g_{11})\right) \end{array} \right\}. \tag{3.9}$$

3. Dans le chapitre précédent, on a bien assimilé les spectres à des sommes de Lorentziennes, tout en autorisant le cisaillement de la base des modes dans les analyses de mouvement Brownien. Comme nous allons le montrer, cette approximation reste valable tant que les fréquences sont résolues.

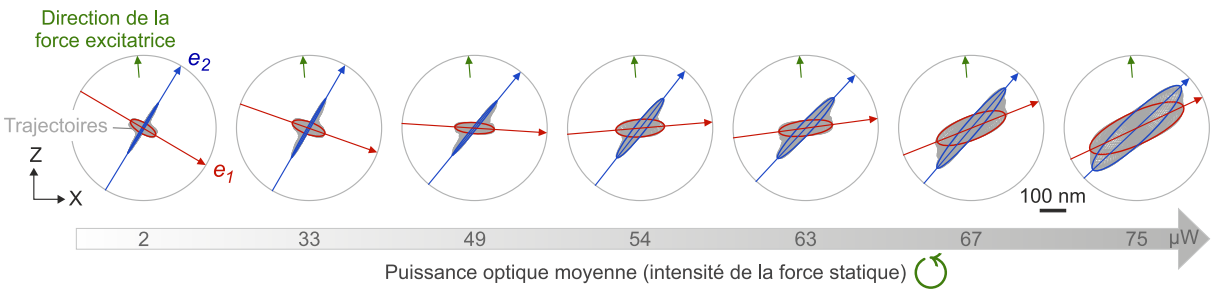


Figure 3.15 – Ensembles de trajectoires elliptiques mesurées pour des puissances optiques statiques croissantes de gauche à droite, du côté "gauche" de l'axe optique ↺. La puissance optique statique reste inférieure au seuil de bifurcation à 80 μW. Les trajectoires obtenues sous excitation aux fréquences $\Omega_-/2\pi$ ($\Omega_+/2\pi$) sont indiquées en rouge (bleu), et la direction de la force d'excitation est donnée par une flèche verte. Son amplitude est maintenue constante à 0.25 μW, ce qui correspond après calibration à 270 aN pour l'ensemble des mesures.

En réalité, contrairement au cas conservatif du chapitre précédent, il n'est plus possible d'attribuer aux modes habillés des forces de Langevin de spectre blanc et indépendantes : les forces thermiques que l'on pourrait vouloir définir seraient **corrélées** et **colorées**. Remarquons également que le modèle que nous venons de donner suppose que le bain thermique n'a pas été modifié par l'ajout de la force non-conservative.

La Figure 3.16 présente le meilleur ajustement Lorentzien (qui favorise donc l'ajustement du sommet du spectre) et l'ajustement avec le modèle complet 2.32 ou 3.9 d'une paire de spectres de bruit de position pris à puissance optique élevée $P \simeq 63\,\mu$W : le modèle Lorentzien ne parvient pas à suivre l'allure effilée et dissymétrique des pics de bruit tandis que le modèle complet donne un très bon accord.

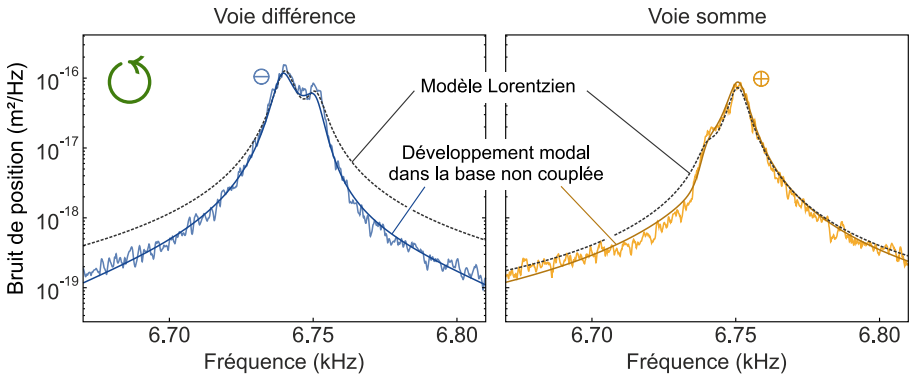


Figure 3.16 – Meilleure approximation Lorentzienne (traits noirs pointillés) et ajustement par l'expression du développement modal dans la base non-couplée 3.9 (traits pleins bleu et jaune foncé) de spectres de bruit de position mesurés sur la voie différence (à gauche, bleu clair) et somme (à droite, jaune) de la QPD, pour une puissance optique $P \simeq 63\,\mu$W proche du seuil de bifurcation, à "gauche" de l'axe optique.

Au cours de la thèse de C. Schwarz, des raies thermiques fortement dissymétriques avaient également été mesurées dans un système nanomécanique couplé à **dissipation inhomogène** (voir encadré ci-dessous). Cependant, dans le cas présent, les ajustements de tous les spectres expérimentaux montrent, avec un très bon accord, que les taux de dissipation des modes non couplés sont identiques : **la dissipation est isotrope**[4]. Ainsi la dissymétrie des pics observée

4. Formellement, le terme de dissipation dans la matrice susceptibilité s'écrit comme une matrice scalaire qui n'intervient pas dans la diagonalisation de cette dernière, de sorte que les modes couplés sont affectés des mêmes taux de dissipation que les modes non couplés, quelle que soit la structure du champ de force.

dans ce chapitre ne procède pas du même mécanisme de couplage que celle observée dans la référence [58].

Système d'oscillateurs couplés à dissipation inhomogène

Dans ce travail mené par C. Schwarz au cours de sa thèse [58], on mesure par une méthode optique le mouvement Brownien de modes résultant du couplage inertiel de deux résonateurs très différents : une membrane de graphène et une membrane de nitrure de silicium SiN percée sur laquelle celle-ci est suspendue (voir Figure 3.17a et b). Les vibrations du système couplé sont donc mesurables en sondant le mouvement de la membrane de graphène seule.

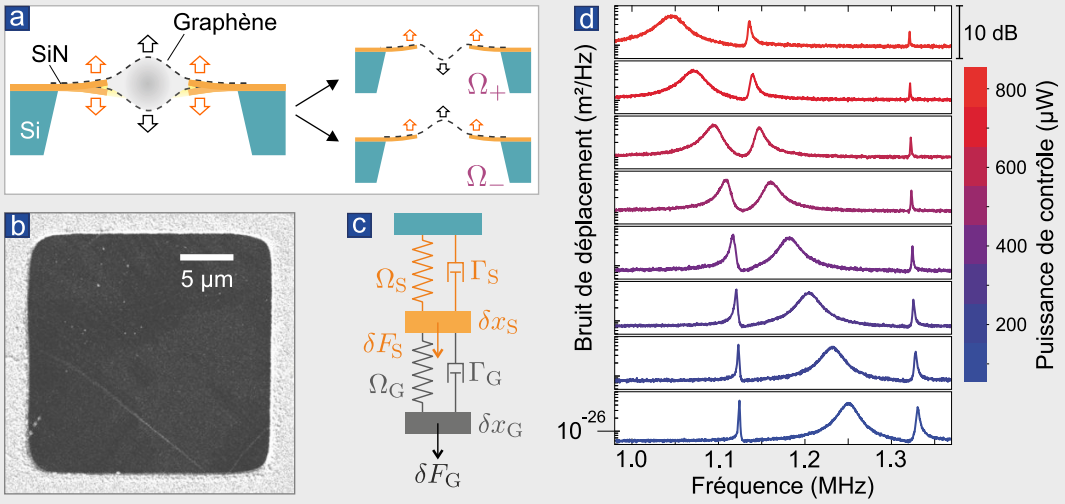


Figure 3.17 – **Figures adaptées de [58]. a.** Schéma du système : une membrane de SiN percée d'un trou de $20 \times 20\,\mu$m porte une membrane de graphène mono-couche, et schéma des deux familles de modes couplés. **b.** Image MEB de la membrane de graphène suspendue. **c.** Modèle d'oscillateurs en cascade utilisé. **d.** Spectres de bruit de déplacement du centre de la membrane de graphène pour différentes puissances optiques. Les pics fins correspondent aux modes centrés sur la membrane de graphène, le pic large au mode centré sur la membrane de SiN.

Ce système est modélisé par le couplage inertiel de deux oscillateurs de masses et de taux de dissipation très différents (d'un facteur 1000 pour les masses, 10 pour les taux de dissipation), voir Figure 3.17c. Le chauffage optique du système par un laser additionnel permet de modifier la fréquence propre d'un mode de vibration non couplé de la membrane de SiN, permettant ainsi l'ajustement du couplage entre les deux oscillateurs (voir Figure 3.17d). Une signature caractéristique d'anti-croisement est ainsi observée. La délocalisation des profils des modes couplés sur les deux membranes de dissipations intrinsèques très éloignées engendre une dissipation effective résultante inhomogène, qui est responsable de l'aspect fortement dissymétrique des pics de bruit thermique. Malgré cela, il a également été montré que le système vérifiait le théorème fluctuation-dissipation grâce à une comparaison directe de la susceptibilité mécanique mesurée du système et du spectre de son bruit thermique.

L'ajustement simultané des deux spectres de bruit mesurés par le modèle 3.9 permet ainsi de déterminer les 4 composantes g_{ij} des gradients du champ de force qui sont les seuls paramètres ajustables une fois que l'on a imposé les propriétés mécaniques non-couplées du nanofil (M, Γ,

$\mathbf{e}_{1,2}$, $\Omega_{1,2}$) déterminées par un ajustement des spectres mesurés en l'absence de perturbation extérieure. Les fréquences et les orientations sont ensuite recalculées à partir des gradients g_{ij} obtenus. Ces résultats sont rassemblés dans la Figure 3.18 ("modèle"). On les compare à ceux d'une seconde méthode d'analyse ("détection des pics" sur la Figure 3.18), analogue à celle du Chapitre 2 : une simple détermination de la position et de la hauteur des pics de bruit donne directement les orientations et les fréquences propres qui permettent ensuite de calculer les gradients g_{ij}. Cette méthode est valable au premier ordre en champ de force rotationnel et donne des résultats relativement fiables jusqu'à environ 65 μW : elle peut donc raisonnablement être utilisée pour sonder des champs de force de composante rotationnelle modérée. Enfin, une troisième méthode consiste à déterminer les grands axes des trajectoires elliptiques excitées à résonance. Les résultats de cette troisième méthode sont également représentés sur le graphe des orientations ("Trajectoires excitées") de la Figure 3.18a. Les trois méthodes donnent des résultats en bon accord. On privilégiera cependant la méthode d'ajustement par le modèle 3.9 qui est la plus robuste car elle ne nécessite pas de pré-analyse des données pour trouver les fréquences de résonance, ne requiert aucune hypothèse sur la structure du champ de force et exploite toute l'information disponible dans les spectres.

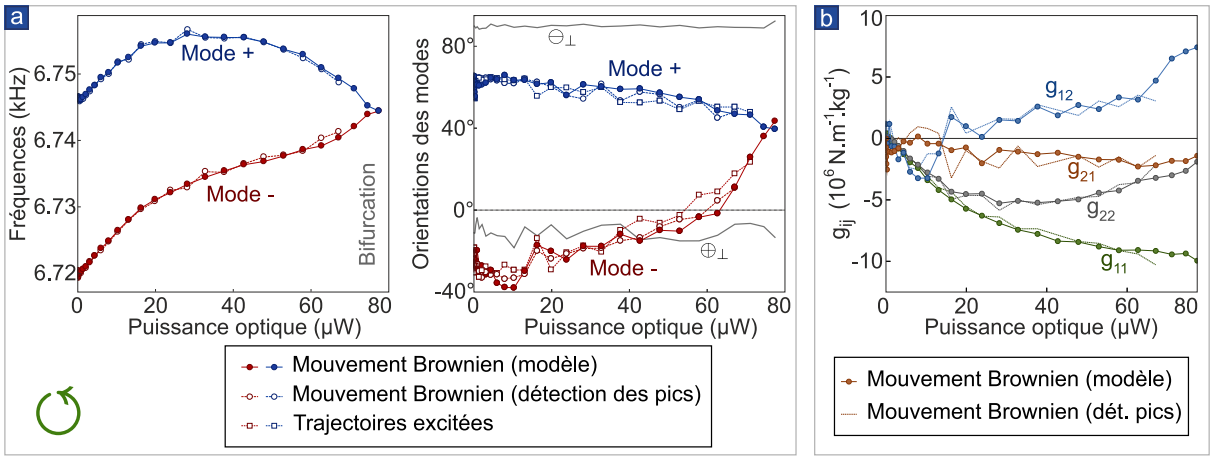


Figure 3.18 – **Analyse des spectres et des réponses mécaniques en fonction de l'intensité du champ de force non-conservatif, à "gauche" de l'axe optique. a.** Fréquences et orientations des modes propres déterminées de trois manières différentes. Les différentes méthodes sont décrites dans le texte. Les directions perpendiculaires aux vecteurs de mesure $\oplus_\perp$ et $\ominus_\perp$ sont indiquées en trait plein gris sur le graphe des orientations, elles représentent des orientations "aveugles" selon lesquelles le mouvement n'est pas détecté. **b.** Gradients de force g_{ij} déduits.

Les gradients de force g_{ij} obtenus avec le modèle et par détermination de la position des pics sont représentés sur la Figure 3.18b. Là encore les deux méthodes sont en bon accord, mais seul le modèle complet permet poursuivre l'analyse près de la bifurcation. Ces mesures confirment le fort caractère non-conservatif du champ de force, les gradients transverses g_{12} et g_{21} étant même de signe opposés.

En théorie, l'évolution des gradients de force avec la puissance optique est linéaire, le tenseur de Maxwell étant lui-même quadratique en champ électromagnétique. Les gradients croisés g_{12} et g_{21} qui sont l'objet principal de cette étude ne sont pas loin de vérifier ce comportement linéaire mais les gradients axiaux g_{11} et g_{22} présentent une dépendance plus compliquée qui peut être due à un léger **déplacement statique** du fil dans le faisceau sous l'effet de la force optique, ou au **chauffage** du fil par l'absorption partielle du faisceau vert. Le chauffage du nanofil conduirait en effet à un décalage en bloc de ses fréquences propres. L'observation de la dérive des signaux d'asservissement de l'expérience semble confirmer l'explication associée au déplacement

de la position moyenne du fil. Ce décalage statique n'est cependant pas gênant pour la suite de l'étude : en effet, on ne s'intéresse plus qu'à l'habillage des modes propres par le champ local.

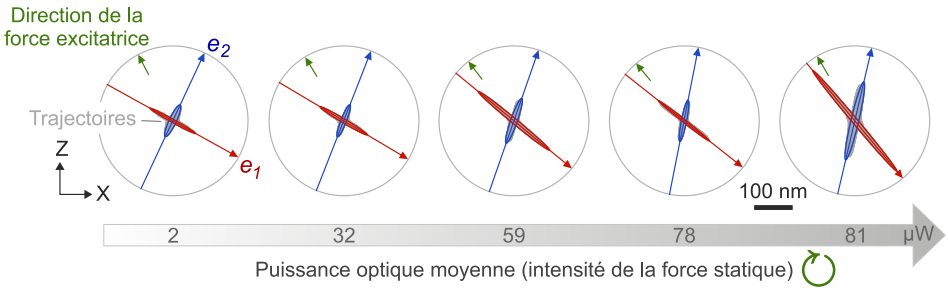


Figure 3.19 – Ensembles de trajectoires elliptiques mesurées pour des puissances optiques statiques croissantes de gauche à droite, du côté "droit" de l'axe optique ⟳. La profondeur de modulation optique utilisée (ainsi que celle de la force excitatrice) et les notations de la figure sont identiques à celles de la Figure 3.15. On constate que la base $(\mathbf{e}_-, \mathbf{e}_+)$ des modes propres s'ouvre dans l'autre sens dans ce champ de force de rotationnel négatif que dans le champ de rotationnel positif de la Figure 3.15.

Les mêmes observations ont été menées du côté "droit" (⟳) du faisceau (Figure 3.19 et 3.20). Les trajectoires démontrent alors un **cisaillement de la base des modes propres dans l'autre sens**. Le mode basse fréquence (rouge), plus susceptible que le mode haute fréquence (bleu), voit son orientation tourner plus rapidement que l'autre mode sous l'effet de la force rotationnelle, ce qui détermine le sens de fermeture de la base des modes propres. D'autre part, les fréquences s'éloignent cette fois l'une de l'autre plutôt que de se rejoindre (voir Figure 3.20). Enfin, on constate que les signes des composantes cisaillantes g_{12} et g_{21} sont bien inversés par rapport aux résultats de la figure 3.19 mesurés en champ de rotationnel positif.

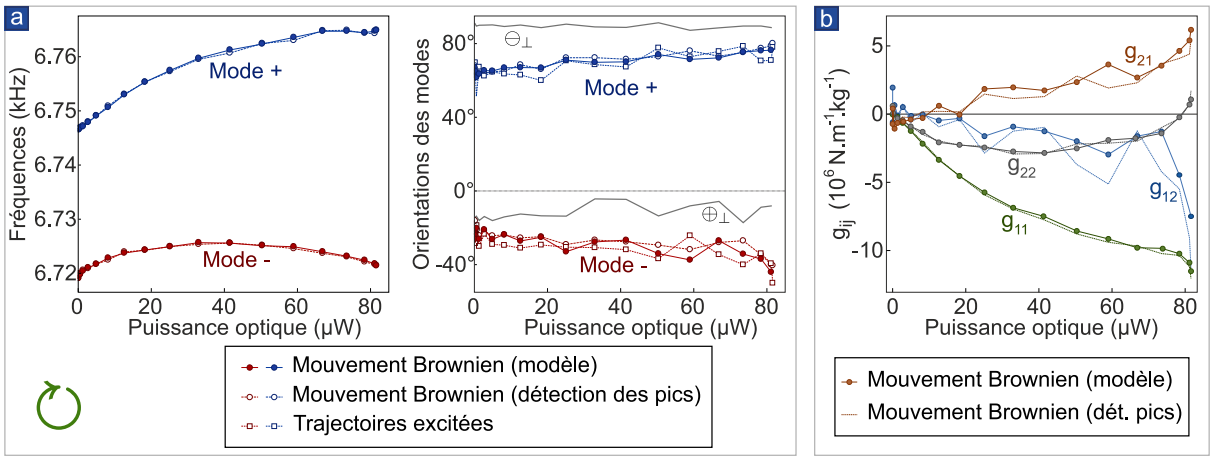


Figure 3.20 – **Analyse des spectres et des réponses mécaniques en fonction de l'intensité du champ de force non-conservatif, à "droite" de l'axe optique.** Notations identiques à celles de la Figure 3.18.

La brisure de l'orthogonalité de la base des modes propres ne constitue pas la seule anomalie du mouvement en champ de force non-conservatif : comme cela peut être observé sur les Figures 3.15 et 3.19, toutes réalisées pour la même profondeur de modulation de force excitatrice, l'amplitude du mouvement excité augmente avec l'intensité du champ de force rotationnel, ce qui reflète une augmentation de la susceptibilité. Cet effet est d'autant plus surprenant que les directions des modes s'éloignent de la direction de la force excitatrice sur la Figure 3.15 : on pourrait donc s'attendre à une perte de l'efficacité d'excitation. Le paragraphe suivant présente

l'analyse des amplitudes des spectres de Mouvement Brownien qui traduisent également une augmentation du bruit thermique.

3.3.2 Excès de bruit thermique

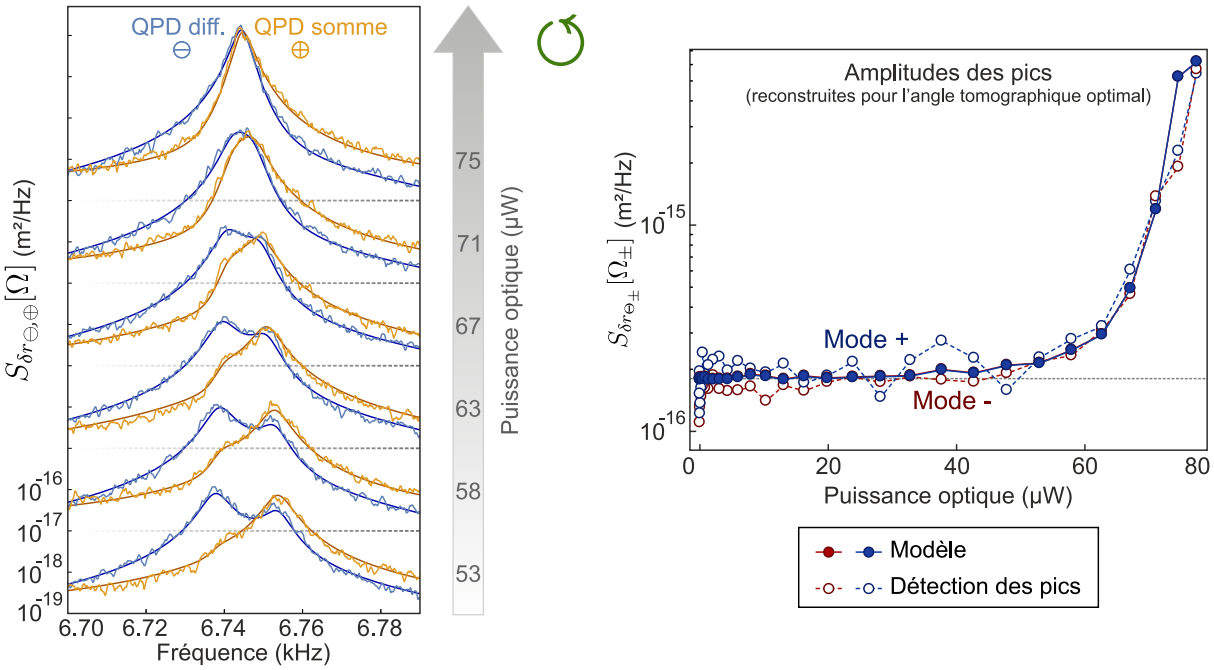


Figure 3.21 – **Excès de bruit thermique en champ de force rotationnel. a.** Spectres de bruit thermique mesurés à "gauche" de l'axe optique ↺, pour une série croissante de puissances optiques statiques, sur les voies de mesure Différence (⊖, bleu) et Somme (⊕, jaune). Les courbes en trait plein plus foncé représentent les ajustements avec le modèle (équation 3.9), qui reproduisent parfaitement les formes spectrales complexes observées. Notons que l'ensemble des données est ajusté avec les mêmes paramètres mécaniques non couplés. **b.** Amplitudes des spectres de bruit thermique à résonance dans les directions des modes propres, obtenues par pointage des pics et reconstruction des orientations. On mesure un bruit thermique supérieur d'un facteur 30 au bruit thermique dans le cas conservatif (ligne horizontale).

La Figure 3.21a présente une série de spectres de déplacement thermique mesurés à fort rotationnel. En plus de la dissymétrie spectrale prononcée qui a déjà été évoquée et qui est parfaitement reproduite par notre modèle, l'amplitude des pics de bruit augmente d'un facteur 30 par rapport aux modes non perturbés (voir les traits en pointillés de la Figure 3.21b). Cette élévation est également bien décrite par le modèle 3.9. Les tomographies angulaires théoriques calculées en Figure 3.22b et c, présentent par exemple des lobes de bruit bien plus étendus dans un champ de force rotationnel que dans un champ de force nul ou conservatif.

La densité spectrale attendue lors d'une mesure selon les directions des modes propres $\mathbf{e}_-$, $\mathbf{e}_+$ (qui sont les directions de mesure optimales à résonance, voir paragraphe 2.1.4) permet de quantifier cet excès de bruit :

$$S_{\delta r_-}[\Omega] = \frac{2\Gamma k_B T}{M\left((\Omega_-^2 - \Omega^2)^2 + \Omega^2\Gamma^2\right)}\left(1 + \frac{(g_{12} - g_{21})^2}{(\Omega_+^2 - \Omega^2)^2 + \Omega^2\Gamma^2}\right). \tag{3.10}$$

Le premier terme de la parenthèse représente une densité spectrale normale d'oscillateur harmonique amorti de pulsation propre Ω_-. Le second modélise l'excès de bruit mesuré dans la direction $\mathbf{e}_-$, dont on constate alors qu'il est plus élevé aux résonances et maximal à la résonance du mode (+). Cette expression fournit également une borne supérieure à l'excès de bruit attendu, atteinte

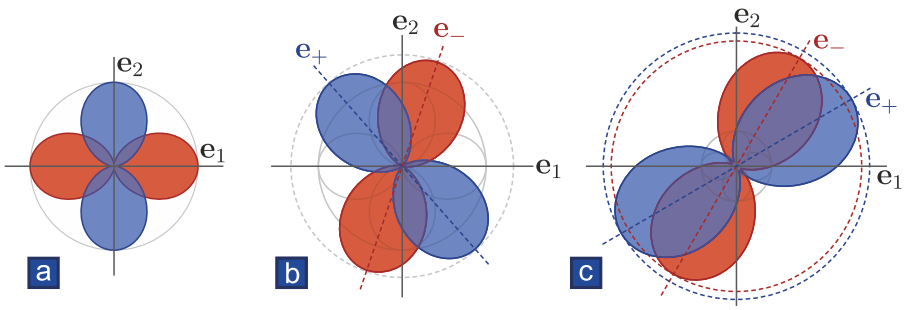


Figure 3.22 – **Tomographies angulaires théoriques en champ de force arbitraire a.** sans composantes transverses g_{12}, g_{21}, **b.** rotationnel pour mettre en évidence l'excès de bruit (car les lobes dépassent le cercle en trait plein gris qui représente l'amplitude de bruit thermique à 300 K) **c.** rotationnel très intense (pour mettre en évidence la très faible différence d'excès de bruit entre les deux modes, qui ne devient significative que très proche de la bifurcation).

à la bifurcation ($\Omega_+ = \Omega_-$) où l'excès de bruit vaut $(g_{12} - g_{21})^2/\Gamma^2\Omega_\pm^2$. De plus, cette formule permet le calcul de l'excès de bruit à partir des gradients g_{ij} obtenus grâce au modèle 3.9 qui reproduit avec un très bon accord l'excès déduit de l'amplitude des spectres (voir les traits pleins de la Figure 3.21b). Nous verrons dans les prochaines sections que cet excès de bruit est une conséquence du fait que les modes ne sont plus à l'équilibre avec le bain thermique.

Enfin, remarquons qu'un système de mesure 1D, c'est-à-dire basé sur une seule mesure projective, ne peut pas distinguer la rotation des modes propres de l'augmentation de bruit induite par les effets non-conservatifs, les deux situations donnant lieu l'une comme l'autre à une modification des amplitudes de bruit sur chaque voie de mesure. La mesure 2D, à deux vecteurs de mesure non-colinéaires, qui lit donc toutes les composantes du mouvement, nous a au contraire permis de montrer sans ambiguïté l'existence de l'excès de bruit en champ de force non-conservatif et de confirmer qu'il ne s'agit pas d'un effet de projection. Cette méthode de lecture fonctionne ainsi également en champ de force non-conservatif. L'utilisation d'une telle lecture bidimensionnelle des vibrations du nanofil est donc une condition nécessaire pour pouvoir prétendre à l'universalité de la mesure du champ de force.

3.4 Violation de la relation fluctuation-dissipation

Les observations d'un excès de bruit thermique et d'une réponse mécanique exacerbée rapportées dans la section précédente suggèrent la vérification du théorème fluctuation-dissipation. En réalité, à cause de son couplage à un champ de force non-conservatif, le système n'est plus à l'équilibre. Or, il s'agit de l'une des hypothèses du théorème : on peut donc s'attendre à une déviation à l'égalité du théorème fluctuation-dissipation.

Cette section présente d'abord une **formulation 2D du théorème**, puis le protocole expérimental suivi pour sa vérification et l'**observation de la déviation** au théorème fluctuation-dissipation. Enfin, deux parties sont dédiées à donner des interprétations physiques à cette déviation. La première propose un point de vue nouveau, **géométrique**, qui débouche sur des conclusions génériques pour les systèmes multimodes. La seconde adopte une approche **thermodynamique** : elle illustre la relation entre la déviation au théorème fluctuation-dissipation et le taux de production d'entropie et relie les résultats de cette section au **théorème de Harada et Sasa**.

Formulation du théorème fluctuation-dissipation

Le **théorème fluctuation-dissipation**, valable pour les systèmes à l'équilibre, s'écrit sous sa forme temporelle et multi-dimensionnelle [17, 107] (voir Annexe D) :

$$R_{ij}(\tau) = -\frac{1}{k_B T}\frac{d}{d\tau}\Big\langle r_i(\tau) r_j(0)\Big\rangle, \quad \text{pour } \tau \geq 0, \tag{3.11}$$

où $R_{ij}(\tau)$ représente la réponse dans la direction i à une force unitaire appliquée dans la direction j, soit :

$$R_{ij}(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi}\, \chi_{ij}[\Omega]\, e^{-i\Omega\tau}. \tag{3.12}$$

On utilise dans ce manuscrit essentiellement la **forme spectrale du théorème fluctuation-dissipation** (voir Annexe D pour le passage entre les deux formes) :

$$\boxed{S_{ij}[\Omega] = \frac{2k_B T}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{ij}[\Omega]} \tag{3.13}$$

où $S_{ij}[\Omega]$ représente les corrélations des position r_i et r_j dans deux directions arbitraires :

$$S_{ij}[\Omega] \equiv \int_{-\infty}^{\infty} d\tau\, \Big\langle r_i(\tau) r_j(0)\Big\rangle\, e^{i\Omega\tau}. \tag{3.14}$$

et $\chi_{ij}[\Omega]$ représente la susceptibilité de l'oscillateur dans la direction i aux forces appliquées dans la direction j, qui implique une définition tensorielle de la susceptibilité :

$$\chi_{ij}[\Omega] \equiv \mathbf{e}_i \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_j. \tag{3.15}$$

En Annexe D est également exposée une démonstration de ce théorème multidimensionnel, qui n'est pas basée sur une approche Hamiltonienne, et qui permet de trouver un autre théorème valide également hors équilibre.

3.4.1 Observation expérimentale

Protocole de mesure

Il s'agit de mesurer indépendamment les deux membres du théorème fluctuation-dissipation 3.13. En pratique, il est bien plus facile de mesurer avec un analyseur de spectre des **auto-corrélations** $S_{ii}[\Omega]$ que des corrélations croisées $S_{ij}[\Omega]$. C'est donc la **version uniaxiale** du théorème qui est maintenant testée impliquant les auto-corrélations $S_{\ominus\ominus}[\Omega]$ et $S_{\oplus\oplus}[\Omega]$ dont les définitions coïncident avec les densités spectrales $S_{\delta r_\ominus}[\Omega]$ utilisées jusqu'à présent.

Pour tester la validité de la relation fluctuation-dissipation, il convient d'**aligner la force-test avec une direction de mesure** ($\ominus$ ou $\oplus$) pour caractériser la susceptibilité axiale $\chi_{\ominus\ominus}[\Omega]$ ou $\chi_{\oplus\oplus}[\Omega]$ et la comparer à $S_{\ominus\ominus}[\Omega]$ ou $S_{\oplus\oplus}[\Omega]$ (voir encadré sur le théorème fluctuation-dissipation les définitions de ces termes). Une autre manière de faire, de mise en œuvre beaucoup plus simple, consiste à **appliquer une force dans une direction arbitraire** $\mathbf{e}_F$, à mesurer les susceptibilités *non* axiales $\chi_{\ominus,F}[\Omega]$ à partir des deux voies de mesure $\ominus$ et $\oplus$, les ajuster avec l'expression 3.15 et le modèle de susceptibilité $\boldsymbol{\chi}[\Omega]$ donné par l'équation 2.9 pour **reconstituer les susceptiblités axiales** $\chi_{\ominus\ominus}$ et $\chi_{\oplus\oplus}$. Cette méthode nécessite le choix d'un modèle pour la susceptibilité $\boldsymbol{\chi}[\Omega]$, et est donc légèrement moins universelle que la première mentionnée. Dans

la suite, nous avons choisi une position de travail dans le champ de force appliqué par le laser vert où la force d'excitation $\delta F \mathbf{e}_F$ est presque alignée avec le vecteur de mesure $\mathbf{e}_\oplus$ du faisceau de lecture rouge. On s'est autorisé pour cela à désaligner le faisceau sonde sur les quadrants de la QPD de mesure pour tourner le vecteur de mesure $\mathbf{e}_\oplus$ et l'aligner avec $\mathbf{e}_F$. La voie de mesure $\oplus$ permet alors de tester directement la relation fluctuation-dissipation dans le cadre du premier protocole. Cependant, on a préféré utiliser le second protocole pour exploiter toutes les données et tenir compte de tous les désalignements accidentels des vecteurs suite par exemple au décalage de la position moyenne du nanofil.

Test de la relation en l'absence de champ de force extérieur

Dans un premier temps, le champ de force statique extérieur est éteint, c'est-à-dire que la puissance optique moyenne du faisceau vert n'est que de $2\,\mu$W : une puissance qui n'affecte pas les propriétés du nanofil (voir Figure 3.18), mais permet une modulation d'amplitude $0.25\,\mu$W pour appliquer la force-test. Les réponses $\delta r_{\oplus/\ominus}[\Omega] = \chi_{\ominus/\oplus,F}[\Omega]\delta F[\Omega]$ mesurées sont représentées sur le panneau **a** de la Figure 3.23, et les spectres de mouvement Brownien $S_{\ominus\ominus}[\Omega]$, $S_{\oplus\oplus}[\Omega]$ sur le panneau **b**.

L'ajustement des réponses avec les expressions prédites par le modèle donne l'orientation de la force test (voir le panneau **c** de la Figure 3.23 où elle est représentée par une flèche verte) et son amplitude : 270 aN. Tous les paramètres étant alors connus, les susceptibilités axiales complexes sont calculées suivant le protocole exposé au paragraphe 3.2.3, puis les quantités $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\oplus\oplus}[\Omega]$ et $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\ominus\ominus}[\Omega]$ sont superposées aux spectres $S_{\oplus\oplus}[\Omega]$ et $S_{\ominus\ominus}[\Omega]$ sur le panneau **b** de la Figure. En l'absence de force rotationnelle, ces quantités coïncident parfaitement avec le spectre, et la procédure permet ainsi de vérifier la validité du théorème.

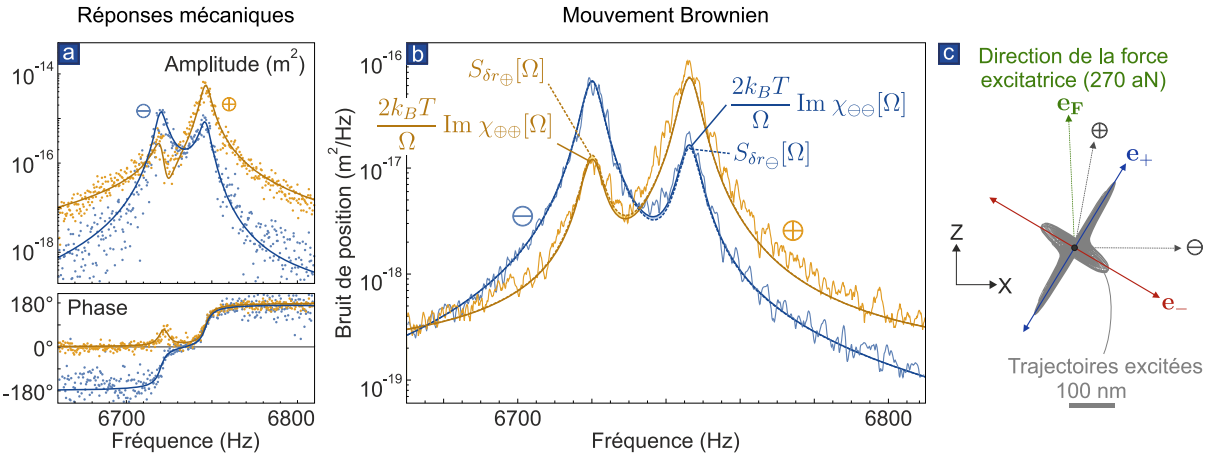


Figure 3.23 – **Vérification du théorème fluctuation-dissipation en l'absence de champ de force extérieur. a.** Amplitudes et phases des réponses mécaniques mesurées correspondant aux susceptibilités $\chi_{\ominus F}[\Omega]$ et $\chi_{\oplus F}[\Omega]$ (resp. points bleus et jaunes) et ajustements (traits bleu et jaune). **b.** Spectres de position mesurés $S_{\ominus\ominus}[\Omega]$ et $S_{\oplus\oplus}[\Omega]$ (resp. traits pleins bleu et orange) et ajustements (pointillés bleu foncé et orange foncé). On a reporté sur ces spectres les quantités $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\oplus\oplus}[\Omega]$ et $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\ominus\ominus}[\Omega]$ (resp. traits pleins bleu foncé et orange foncé) déduits des ajustements précédents. **c.** Collection des trajectoires elliptiques de l'extrémité du nanofil à toutes les fréquences d'excitation (trait plein gris), reconstruites à partir des réponses. Les orientations de mesure $\oplus$ et $\ominus$ sont représentées en gris foncé, celle de la force $\mathbf{e}_F$ en vert et celles des modes propres $\mathbf{e}_-$ et $\mathbf{e}_+$ respectivement en rouge et bleu.

Mesure en champ de force non-conservatif

Le nanofil est ensuite déplacé successivement à “gauche” ↺ puis à “droite” ↻ du faisceau qui applique le champ de force optique. Les réponses, les spectres et les collections des trajectoires sont représentés sur les Figures 3.24 et 3.25. La même procédure que précédemment est appliquée : les quantités dérivées de la susceptibilité $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\oplus\oplus}[\Omega]$ et $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\ominus\ominus}[\Omega]$ sont une fois de plus reportées sur les panneaux **b** de chaque figure représentant les spectres de position mesurés sur chaque voie.

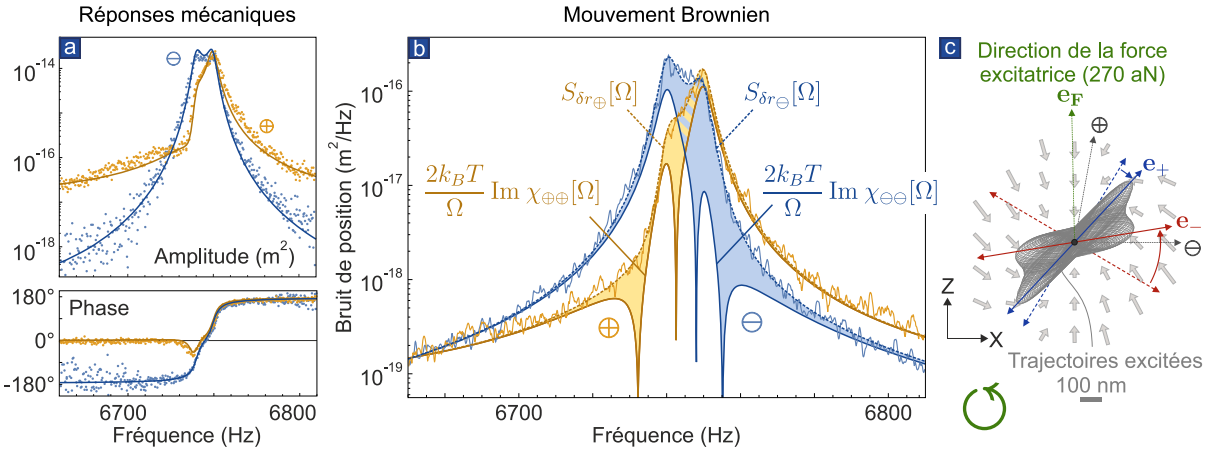


Figure 3.24 – **Déviation au théorème fluctuation-dissipation dans un champ de force rotationnel (à “gauche” ↺). a.** Amplitudes et phases des réponses mécaniques mesurées correspondant aux susceptibilités $\chi_{\ominus F}[\Omega]$ et $\chi_{\oplus F}[\Omega]$ (resp. points bleus et jaunes) et ajustements (traits pleins bleu et jaune). **b.** Spectres de position mesurés $S_{\ominus\ominus}[\Omega]$ et $S_{\oplus\oplus}[\Omega]$ (resp. traits pleins bleu et orange) et ajustements (pointillés bleu foncé et orange foncé). On a reporté sur ces spectres les quantités $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\oplus\oplus}[\Omega]$ et $\frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{\ominus\ominus}[\Omega]$ (resp. traits pleins bleu foncé et orange foncé), dont la différence avec les spectres est coloriée respectivement en bleu et jaune clair. **c.** Collection des trajectoires elliptiques de l’extrémité du nanofil à toutes les fréquences d’excitation (trait plein gris), reconstruites à partir de l’analyse des réponses. Les orientations de mesure $\oplus$ et $\ominus$ sont représentées en gris foncé, celle de la force $\mathbf{e}_F$ en vert et celles des modes propres $\mathbf{e}_-$ et $\mathbf{e}_+$ respectivement en rouge et bleu. La structure vectorielle du champ de force déduite des ajustements par le modèle est représentée par les flèches grises.

Une forte déviation, de plus de 10 dB aux fréquences proches des résonances, est cette fois observée entre les spectres et le second membre de la relation fluctuation-dissipation : elle est coloriée en bleu clair et en jaune clair sur les Figures 3.24 et 3.25. Le même type de déviation a été observé dans toutes les configurations de force et de mesure explorées expérimentalement. Cependant, comme on l’a déjà remarqué, l’orientation de mesure $\oplus$ sur la Figure 3.24 est très proche du vecteur force, de sorte que ce cas représente une mesure encore plus directe de la **violation de la relation fluctuation-dissipation** 3.13 dans le champ de force rotationnel.

En outre, le schéma **c** de la Figure 3.24 montre une particularité surprenante : la force s’exerce presque perpendiculairement au mode $-$ qui est pourtant assez fortement excité : il présente une amplitude de réponse comparable à celle du mode $+$. La même constatation surprenante peut être faite dans la situation de la Figure 3.25. Dans le paragraphe 3.4.3, il sera montré que ces situations illustrent en réalité l’origine géométrique de la violation de la relation fluctuation-dissipation, c’est-à-dire, l’apparition de **susceptibilités transverses** aux modes propres.

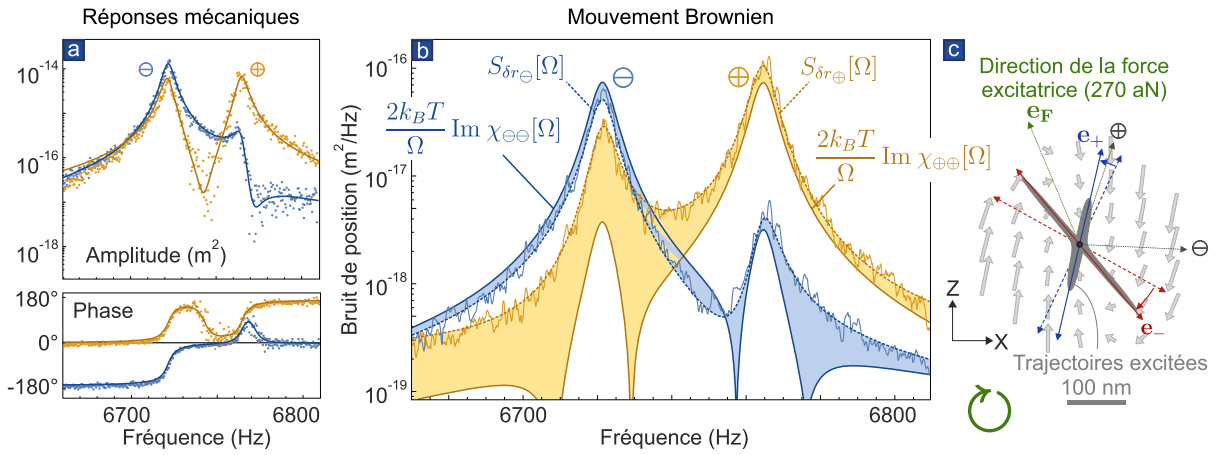


Figure 3.25 – **Déviation au théorème fluctuation-dissipation dans un champ de force rotationnel ("droit").** Même représentations que sur les Figures 3.23 et 3.24.

3.4.2 Température effective (impossibilité de définir une)

Dans certains systèmes en état stationnaire hors équilibre, il est possible de définir une **température effective** [108] qui permette de conserver l'égalité du théorème fluctuation-dissipation, à condition de remplacer la température du bain par cette température effective. L'équation 3.10 qui donne l'expression de la densité spectrale $S_{\delta r_-}[\Omega] = S_{--}[\Omega]$:

$$S_{\delta r_-}[\Omega] = \frac{2\Gamma k_B T}{M((\Omega_-^2 - \Omega^2)^2 + \Omega^2\Gamma^2)}\left(1 + \frac{(g_{12} - g_{21})^2}{((\Omega_+^2 - \Omega^2)^2 + \Omega^2\Gamma^2)}\right)$$

permet facilement de constater qu'il est impossible de définir une température effective dans notre cas. En effet, le coefficient devant la parenthèse correspond au second membre de la relation fluctuation-dissipation : $2k_B T\,\mathrm{Im}\chi_{--}[\Omega]\,/\,\Omega$. Une définition de la température effective serait alors :

$$\frac{\text{“}T_{\text{eff}}\text{”}}{T} = 1 + \frac{(g_{12} - g_{21})^2}{(\Omega_+^2 - \Omega^2)^2 + \Gamma^2\Omega^2} \tag{3.16}$$

mais cette définition dépendrait de la fréquence et est donc rejetée.

3.4.3 Interprétation géométrique

Susceptibilité tensorielle

Dans le Chapitre 2, la matrice susceptibilité a été introduite sous sa forme diagonalisée dans la base des modes propres habillés $(\mathbf{e}_-, \mathbf{e}_+)$ par l'équation 2.11 :

$$\boldsymbol{\chi}[\Omega] = \mathbf{R} \cdot \boldsymbol{\chi}_{\text{diag}}[\Omega] \cdot \mathbf{R}^{-1}, \tag{3.17}$$

où $\mathbf{R}$ est la matrice de passage de la base non-couplée à la base couplée :

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} \Delta\Omega_\perp^2 & -g_{21} \\ g_{12} & \Delta\Omega_\perp^2 \end{pmatrix}, \qquad \Delta\Omega_\perp^2 \equiv \Omega_{2||}^2 - \Omega_-^2 = \Omega_+^2 - \Omega_{1||}^2 \tag{3.18}$$

et les éléments de $\boldsymbol{\chi}_{\text{diag}}[\Omega]$ sont :

$$\boldsymbol{\chi}_{\text{diag}}[\Omega] = \begin{pmatrix} \chi_-[\Omega] & 0 \\ 0 & \chi_+[\Omega] \end{pmatrix}, \quad \chi_\pm[\Omega] = \frac{1}{M\left(\Omega_\pm^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega\right)}$$

En champ de force conservatif, les modes propres restent orthogonaux et $\mathbf{R}$ est proportionnelle à une matrice de rotation. On rappelle l'expression tensorielle de la susceptibilité 3.15 :

$$\chi_{ij}[\Omega] = \mathbf{e}_i \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_j \qquad \text{(3.15 reproduite)}$$

où $\mathbf{e}_i$ et $\mathbf{e}_j$ sont des directions arbitraires (pas nécessairement des modes propres). Deux classes de composantes particulières du tenseur susceptibilité sont maintenant définies.

La susceptibilité dans la direction β à une force test appliquée dans la direction $\mathbf{e}_F$ s'écrit :

$$\begin{aligned}
\chi_{\beta F}[\Omega] &\equiv \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_F \\
&= \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \Big(\mathbf{e}_\beta(\mathbf{e}_F \cdot \mathbf{e}_\beta) + \mathbf{e}_\beta^\perp(\mathbf{e}_F \cdot \mathbf{e}_\beta^\perp)\Big) \\
&= (\mathbf{e}_F \cdot \mathbf{e}_\beta)\Big[\mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_\beta\Big] + (\mathbf{e}_F \cdot \mathbf{e}_\beta^\perp)\Big[\mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_\beta^\perp\Big].
\end{aligned} \tag{3.19}$$

Le premier terme de 3.19 fait intervenir la **composante axiale** de la susceptibilité, définie par :

$$\boxed{\chi_\beta^{\parallel}[\Omega] \equiv \chi_{\beta\beta}[\Omega] = \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_\beta} \tag{3.20}$$

Dans les directions des modes propres, les susceptibilités axiales coïncident avec les susceptibilités $\chi_\pm[\Omega]$ d'oscillateurs harmoniques amortis de fréquence propre $\Omega_\pm/2\pi$ introduites au chapitre précédent :

$$\chi_\pm^{\parallel}[\Omega] \equiv \chi_\pm[\Omega] = \chi_{\pm\pm}[\Omega] = \mathbf{e}_\pm \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_\pm. \tag{3.21}$$

Le second terme de 3.19 est un terme de réponse dans une direction à la composante de la force qui lui est perpendiculaire. Or la susceptibilité 3.19 s'écrit aussi :

$$\chi_{\beta F}[\Omega] \equiv \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e_F} = \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{R} \cdot \boldsymbol{\chi}_{\text{diag}}[\Omega] \cdot \boldsymbol{R}^{-1} \cdot \mathbf{e}_F, \tag{3.22}$$

et, la matrice $\boldsymbol{R}$ n'étant pas, dans le cas non-conservatif, une matrice rotation, cette **susceptibilité transverse** est non-nulle dans le cas non-conservatif uniquement. Elle est donc définie par :

$$\boxed{\chi_\beta^{\perp}[\Omega] \equiv \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_\beta^\perp,} \tag{3.23}$$

et vaut, dans les directions des modes propres :

$$\begin{cases}
\chi_-^\perp[\Omega] \equiv \chi_{--^\perp}[\Omega] = \mathbf{e}_- \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_-^\perp \\
\chi_+^\perp[\Omega] \equiv \chi_{++^\perp}[\Omega] = \mathbf{e}_+ \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_+^\perp.
\end{cases} \tag{3.24}$$

Remarquons que les susceptibilités transverses des deux modes propres sont égales :

$$\chi_-^\perp[\Omega] = \chi_+^\perp[\Omega] = M\big(g_{12} - g_{21}\big)\chi_-^{\parallel}[\Omega]\chi_+^{\parallel}[\Omega]. \tag{3.25}$$

La susceptibilité 3.19 se réécrit finalement :

$$\chi_{\beta F}[\Omega] = (\mathbf{e}_F \cdot \mathbf{e}_\beta)\ \chi_\beta^{\parallel}[\Omega] + (\mathbf{e}_F \cdot \mathbf{e}_\beta^\perp)\ \chi_\beta^\perp[\Omega]. \tag{3.26}$$

En conclusion, la réponse est donc complètement caractérisée par les **susceptibilités axiales et transverses** $\chi_\beta^{\parallel}[\Omega]$ et $\chi_\beta^\perp[\Omega]$ qui s'écrivent pour des directions de mesure alignées avec les modes propres :

$$\boxed{\begin{aligned}
\chi_\pm^{\parallel}[\Omega] &= \frac{1}{M\left(\Omega_\pm^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega\right)} \\
\chi_\pm^\perp[\Omega] &= \frac{g_{12} - g_{21}}{M\big(\Omega_+^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega\big)\big(\Omega_-^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega\big)}
\end{aligned}} \tag{3.27}$$

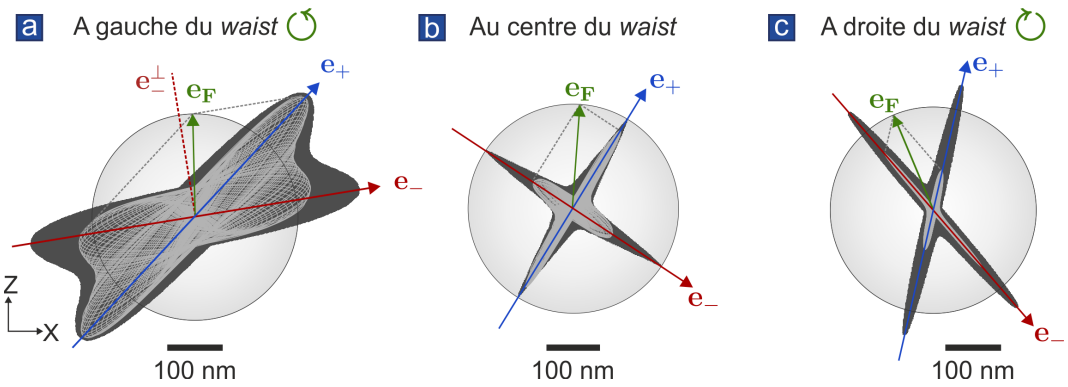


Figure 3.26 – Ensembles des trajectoires mesurées dans les trois situations des Figures 3.23 (**b**),3.24 (**a**) et 3.25 (**c**). Les trajectoires sont représentées en gris clair. L'ensemble de toutes les trajectoires qu'il est possible d'exciter pour n'importe quelle fréquence et orientation d'une force de norme fixée (à la norme réelle de la force utilisée) est représenté en gris foncé : il indique les efficacités d'excitation optimales. Le cercle gris indique l'efficacité maximale d'excitation obtenue *dans la situation conservative*. C'est aussi l'efficacité obtenue en excitant les modes *selon leurs propres directions* (y compris dans la situation non-conservative), mais il est encore bien plus efficace d'exciter un mode *dans la direction perpendiculaire à l'autre mode*, comme c'est presque le cas dans la situation **a** où les trajectoires gris clair approchent l'efficacité optimale donnée par la forme gris foncé.

Direction d'excitation optimale

Sur la Figure 3.26a, on revient sur la situation expérimentale de la Figure 3.24. Un cercle indique l'amplitude de déplacement dans la direction d'un mode propre lorsque l'on applique une force excitatrice (d'amplitude 270 aN) *dans cette même direction*.

L'ensemble des trajectoires reproduites en gris clair a été calculé pour une force de même amplitude mais dans une direction *non alignée avec les modes propres*, indiquée par le vecteur $\mathbf{e}_F$ en vert. Or, certaines de ces trajectoires sont significativement plus grandes que le déplacement maximal lorsque la force est appliquée dans la direction d'un mode propre. Ainsi **la plus grande amplitude de déplacement obtenu dans la direction d'un mode propre n'est pas atteinte en choisissant d'appliquer la force excitatrice dans la direction de ce mode**.

Cherchons donc la direction optimale d'excitation à résonance. L'expression de la réponse mesurée dans la direction du mode (-) est donnée par l'équation 3.22 :

$$\chi_{-F}[\Omega_-] = \mathbf{e}_- \cdot \boldsymbol{R} \cdot \boldsymbol{\chi}_{\text{diag}}[\Omega_-] \cdot \boldsymbol{R}^{-1} \cdot \mathbf{e}_F. \tag{3.28}$$

Si les modes sont spectralement résolus, on peut supposer que $\chi_-[\Omega_-] \gg \chi_+[\Omega_-]$, soit

$$\chi_{-F}[\Omega_-] \simeq \chi_-^{||}[\Omega_-] \frac{1}{(\Delta\Omega_\perp^2)^2 + g_{12}g_{21}} \left(\Delta\Omega_\perp^2 \cos\theta_F + g_{21}\sin\theta_F\right) \tag{3.29}$$

où θ_F représente l'orientation de la force par rapport à la direction du mode non couplé (1) : $cos\theta_F \equiv \mathbf{e}_F \cdot \mathbf{e}_1$. La parenthèse est maximale pour $\theta_F = \theta_{-F}^{\text{opt}}$ défini par :

$$\tan\theta_{-F}^{\text{opt}} \equiv \frac{g_{21}}{\Delta\Omega_\perp^2} = \frac{-1}{\tan\theta_+} = \tan(\theta_+ + \pi/2). \tag{3.30}$$

La direction d'excitation résonante optimale du mode (-) est donc **la direction perpendiculaire à l'autre mode**, donc perpendiculaire au mode (+) :

$$\theta_{\mp F}^{\text{opt}} = \theta_\pm + \pi/2. \tag{3.31}$$

Une synthèse de l'influence de la direction d'orientation sur la réponse tensorielle aux fréquences de résonances est donnée dans la Figure 3.27, en l'absence (a) et en présence (b) d'un champ de force non-conservatif. On voit que les lobes représentant la norme de la susceptibilité à résonance ($|\chi_{--}[\Omega_-]|$) dépassent la susceptibilité axiale représentée par un cercle lorsque la force excitatrice est appliquée dans la direction perpendiculaire au mode (+) indiquée par un trait en pointillés bleu clair (et vice versa pour la susceptibilité à résonance $|\chi_{++}[\Omega_+]|$).

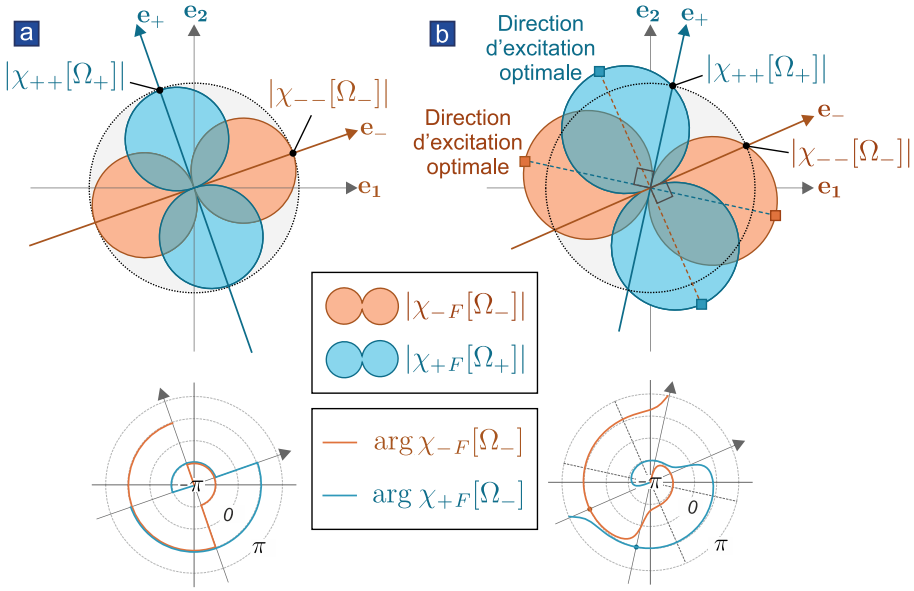


Figure 3.27 – **Représentation des susceptibilités tensorielles à résonance, dans la direction des modes propres.** En haut : amplitudes. En bas : phases. Les quantités relatives au mode basse fréquence (-) sont représentées en orange et celles relatives au mode haute fréquence (+) en bleu clair. Les susceptibilités sont tracées **a.** en champ conservatif. **b.** en champ non-conservatif. On constate que la réponse résonante axiale est inchangée (points noirs), et on voit clairement apparaître un excès de susceptibilité à résonance, qui est obtenu dans la direction d'excitation optimale, perpendiculaire à l'autre mode propre (carrés colorés).

L'efficacité d'excitation dans la direction d'un mode n'est donc pas quantifiée par le recouvrement entre la force et le mode, mais par le résidu de la force après **élimination de ses composantes dans la direction de l'autre mode** (voir schéma de projection 3.28). Dans le cas de modes orthogonaux, cela revient au même. Au contraire, cette distinction devient importante lorsque l'orthogonalité des modes propres est brisée. On retrouve dans ces principes les notions de coordonnées covariantes et contravariantes, qui prennent tout leur sens dans des bases non orthogonales.

Origine de l'excès de bruit

Le signal projeté dans la direction de mesure s'écrit :

$$\begin{aligned} \delta r_\beta[\Omega] &= \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot (\delta F_1 \mathbf{e}_1 + \delta F_2 \mathbf{e}_2) \\ &= \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \left(\delta F_\beta^{\parallel} \mathbf{e}_\beta + \delta F_\beta^{\perp} \mathbf{e}_\beta^{\perp}\right) \\ &= \chi_\beta^{\parallel}[\Omega] \delta F_\beta^{\parallel} + \chi_\beta^{\perp}[\Omega] \delta F_\beta^{\perp} \end{aligned} \tag{3.32}$$

où l'on a introduit le vecteur unitaire $\mathbf{e}_\beta^{\perp}$ perpendiculaire à $\mathbf{e}_\beta$ tel que la base $(\mathbf{e}_\beta, \mathbf{e}_\beta^{\perp})$ est directe, les susceptibilités axiales et transverses dans la direction β :

$$\chi_\beta^{\parallel}[\Omega] \equiv \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_\beta \ \text{ et } \ \chi_\beta^{\perp}[\Omega] \equiv \mathbf{e}_\beta \cdot \boldsymbol{\chi}[\Omega] \cdot \mathbf{e}_\beta^{\perp} \tag{3.33}$$

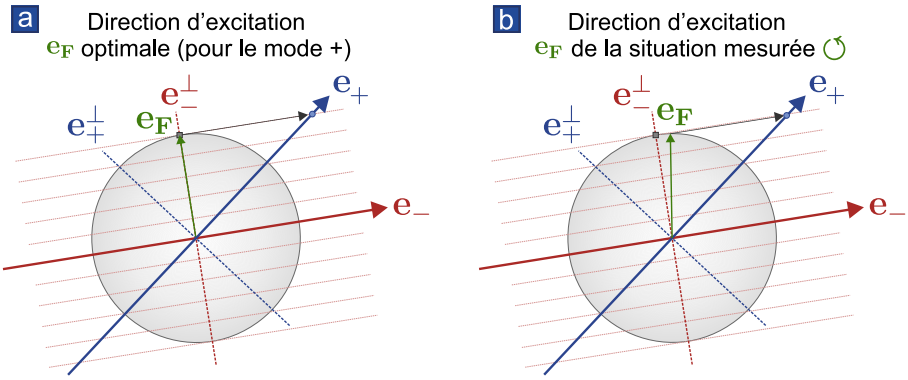


Figure 3.28 – **Schéma de projection d'une force de norme fixée sur le mode** (+)**. a.** Les directions des modes propres correspondant à la situation ↺ de l'expérience sont indiqués par des flèches rouge et bleue. La coordonnée contravariante de $\mathbf{e}_F$ sur $\mathbf{e}_+$ dans la base non-orthogonale $(\mathbf{e}_+, \mathbf{e}_-)$ est obtenue par projection selon une ligne parallèle aux traits en pointillés rouge clair. Pour une force de norme fixée, représentée par une flèche verte astreinte à pointer la circonférence du cercle gris, la projection optimale pour exciter $\mathbf{e}_+$ correspond à la direction $\mathbf{e}_-^\perp$ (carré gris, obtenu géométriquement en cherchant la tangente au cercle gris). **b.** Force excitatrice utilisée dans la situation ↺ illustrée par la Figure 3.24. La force étant presque alignée avec la direction optimale d'excitation, son efficacité d'excitation, représentée par un point bleu, est presque optimale. A partir de cette projection, on calcule qu'il peut exister un excès de réponse d'un facteur $1/\sin(\arccos(\mathbf{e}_- \cdot \mathbf{e}_+)) = (1 - (\mathbf{e}_- \cdot \mathbf{e}_+)^2)^{-1/2}$.

et un nouvel ensemble de forces de Langevin $(\delta F_\beta^{\parallel}, \delta F_\beta^{\perp})$ définies par :

$$\begin{pmatrix} \delta F_\beta^{\parallel} \\ \delta F_\beta^{\perp} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\beta & \sin\beta \\ -\sin\beta & \cos\beta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \delta F_1 \\ \delta F_2 \end{pmatrix}. \tag{3.34}$$

Celles-ci présentent la même densité spectrale que les forces de Langevin d'origine, et, comme elles, aucune corrélation croisée : $\langle \delta F_\beta^{\parallel}(t) \delta F_\beta^{\perp}(t') \rangle = 0$. Le spectre obtenu lors d'une mesure projective selon $\mathbf{e}_\beta$ peut donc aussi s'écrire comme :

$$S_{\delta r_\beta}[\Omega] = S_{F_{\text{th}}} \left(|\chi_\beta^{\parallel}[\Omega]|^2 + |\chi_\beta^{\perp}[\Omega]|^2 \right). \tag{3.35}$$

Tandis que le théorème fluctuation-dissipation standard n'implique que des susceptibilités axiales, l'expression précédente fait également apparaître les susceptibilités transverses. L'interprétation de cette équation est directe si la direction β coïncide avec celle d'un mode propre. En effet, on a vu que les susceptibilités axiales $\chi_\pm^{\parallel}[\Omega]$ avaient la forme simple de susceptibilités d'oscillateurs 1D qui vérifient le théorème fluctuation-dissipation : $S_{F_{\text{th}}} |\chi_-^{\parallel}|^2 = 2k_B T/\Omega \, \text{Im}\, \chi_-^{\parallel}[\Omega]$. L'excès de bruit thermique observé est donc entièrement gouverné par les susceptibilités transverses $\chi_\pm^{\perp}[\Omega]$.

Finalement, les deux termes de l'équation 3.10 :

$$S_{\delta r_-}[\Omega] = \frac{2\Gamma k_B T}{M((\Omega_-^2 - \Omega^2)^2 + \Omega^2\Gamma^2)} \left(1 + \frac{(g_{12} - g_{21})^2}{((\Omega_+^2 - \Omega^2)^2 + \Omega^2\Gamma^2)} \right),$$

donnée précédemment comme modèle de l'excès de bruit et utilisée pour montrer l'inanité de la température effective, prennent un nouveau sens : le premier terme provient de la **réponse axiale du mode propre** à l'excitation thermique, tandis que le second provient de la **susceptibilité transverse**. Ce terme n'est non-nul que dans le cas non-conservatif où les modes perdent leur orthogonalité et où apparaissent ces susceptibilités transverses aux modes propres. A l'approche de la bifurcation, les orientations des modes propres convergent l'une vers l'autre. Or cela signifie également que $\mathbf{e}_-^\perp \to \mathbf{e}_+^\perp$: la susceptibilité transverse, et donc l'excès de bruit, atteignent alors leur valeurs maximales.

Terme correctif au théorème fluctuation-dissipation

D'après l'équation 3.35, la somme des densités spectrales du bruit thermique mesurées dans deux directions orthogonales $\mathbf{e}_\beta$ et $\mathbf{e}_\beta^\perp$ (avec la convention $\mathbf{e}_\beta^{\perp\perp} \equiv -\mathbf{e}_\beta$) est :

$$\sum_{i=\beta,\beta^\perp} S_{\delta r_i} = S_{F_{\rm th}} \left(|\chi_{\beta\beta}|^2 + |\chi_{\beta\beta^\perp}|^2 + |\chi_{\beta^\perp\beta^{\perp\perp}}|^2 + |\chi_{\beta^\perp\beta^\perp}|^2 \right). \tag{3.36}$$

En utilisant les expressions projetées des fluctuations thermiques de position :

$$\delta r_\beta = \delta F_{\rm th,1} \left(\cos\beta\, \chi_{11} + \sin\beta\, \chi_{21}\right) + \delta F_{\rm th,2} \left(\cos\beta\, \chi_{12} + \sin\beta\, \chi_{22}\right) \tag{3.37}$$

$$\delta r_{\beta^\perp} = \delta F_{\rm th,1} \left(-\sin\beta\, \chi_{11} + \cos\beta\, \chi_{21}\right) + \delta F_{\rm th,2} \left(-\sin\beta\, \chi_{12} + \cos\beta\, \chi_{22}\right), \tag{3.38}$$

on obtient les susceptibilités axiales et transverses :

$$\begin{array}{lcl} \chi_{\beta\beta} & = & \cos^2\beta\, \chi_{11} + \sin^2\beta\, \chi_{22} + \cos\beta \sin\beta \left(\chi_{12} + \chi_{21}\right) \\ \chi_{\beta^\perp\beta^\perp} & = & \sin^2\beta\, \chi_{11} + \cos^2\beta\, \chi_{22} - \cos\beta \sin\beta \left(\chi_{12} + \chi_{21}\right) \\ \chi_{\beta\beta^\perp} & = & \cos^2\beta\, \chi_{12} - \sin^2\beta\, \chi_{21} + \cos\beta \sin\beta \left(\chi_{22} - \chi_{11}\right) \\ \chi_{\beta^\perp\beta^{\perp\perp}} & = & \sin^2\beta\, \chi_{12} - \cos^2\beta\, \chi_{21} - \cos\beta \sin\beta \left(\chi_{22} - \chi_{11}\right) \end{array}. \tag{3.39}$$

En remplaçant dans l'équation 3.36, on aboutit après calculs à :

$$\sum_{i=\beta,\beta^\perp} S_{\delta r_i} = S_{F_{\rm th}} \left(|\chi_{11}|^2 + |\chi_{12}|^2 + |\chi_{21}|^2 + |\chi_{22}|^2 \right). \tag{3.40}$$

Ainsi cette quantité ne dépend pas de la direction de mesure β choisie. D'autre part, les expressions des susceptibilités permettent également de montrer que :

$$\sum_{i=\beta,\beta^\perp} \frac{2k_BT}{\Omega} \mathrm{Im}\, \chi_{ii} = \sum_{i=1,2} \frac{2k_BT}{\Omega} \mathrm{Im}\, \chi_{ii} \tag{3.41}$$

$$= S_{F_{\rm th}} \left(|\chi_{11}|^2 + |\chi_{22}|^2 + 2\mathrm{Re}(\, \chi_{12}^\star\, \chi_{21}) \right). \tag{3.42}$$

où on a utilisé le fait que $\frac{2k_BT}{\Omega} \mathrm{Im}\, \chi_{ii} = S_{F_{\rm th}} (|\chi_{ii}|^2 + \mathrm{Re}(\, \chi_{12}^\star\, \chi_{21}))$. Finalement, la soustraction des deux quantités 3.40 et 3.42 donne directement **une correction au théorème fluctuation-dissipation** :

$$\boxed{\sum_{i=\beta,\beta^\perp} \left(S_{\delta r_i} - \frac{2k_BT}{\Omega} \mathrm{Im}\, \chi_{ii} \right) = S_{F_{\rm th}} \left|\chi_{12} - \chi_{21}\right|^2, \quad \forall\, \beta.} \tag{3.43}$$

Cette équation présente l'intérêt de restaurer le théorème fluctuation-dissipation *à toutes les fréquences*, quand le théorème de Harada et Sasa [109] (voir paragraphe suivant sur l'interprétation thermodynamique) concerne des quantités intégrées sur les fréquences. D'autre part, cette équation connecte directement la déviation observée à l'asymétrie de la matrice susceptibilité.

La seule hypothèse nécessaire est **l'égalité des taux de dissipation** des modes propres, ce théorème est donc valide pour tout système de dissipation isotrope, comme par exemple les sphères diélectriques piégées dans des pinces optiques [97, 99, 101], aussi bien en régime sous-amorti qu'en régime sur-amorti, ou les ions ou atomes piégés. Il est d'ailleurs envisageable d'étendre le formalisme développé dans cette thèse à la mesure des gradients de force en 3D à travers la mesure des modifications des propriétés mécaniques de l'oscillateur piégé.

L'expression 3.43 contient en outre une manière de vérifier la conservativité d'un système inconnu uniquement à partir de sa susceptibilité. En effet, le théorème énoncé se généralise en :

$$\sum_{i=\beta,\beta^\perp} \left(S_{\delta r_i} - \frac{2k_B T}{\Omega} \mathrm{Im}\, \chi_{ii} \right) = S_{F_{\mathrm{th}}} \left| \chi_{\mu\mu^\perp} - \chi_{\mu^\perp\mu} \right|^2, \quad \forall\, \beta, \mu \tag{3.44}$$

de sorte qu'il suffit d'appliquer une force successivement dans deux directions perpendiculaires et de vérifier l'égalité des réponses transverses mesurées pour confirmer que le système vérifie le théorème fluctuation-dissipation.

3.4.4 Interprétation thermodynamique

Taux de production d'entropie

Le mouvement dans le champ de force non-conservatif produit une entropie qui se relie simplement au travail de la force non-conservative. Le calcul du taux de production d'entropie suivant est adapté d'un article de F. Zamponi et des collaborateurs [110] où il est mené pour un oscillateur de fréquences dégénérées. Nous avons étendu le calcul aux oscillateurs non dégénérés en fréquence (ou, de manière équivalente, de fréquences habillées différemment par un champ de force conservatif).

On note $p\{\delta\mathbf{r}(t)\}$ la probabilité d'occurrence de la trajectoire $\delta\mathbf{r}(t)$ dans l'état stationnaire, et $p\{\delta\tilde{\mathbf{r}}(t)\}$ celle de la trajectoire obtenue par retournement du temps $\delta\tilde{\mathbf{r}}(t)$. L'entropie S_τ créée sur le segment de trajectoire $\delta\mathbf{r}$ défini sur l'intervalle de temps $[-\tau/2, \tau/2]$ caractérise le degré d'irréversibilité du mouvement sur cette trajectoire, elle s'exprime donc en fonction du déséquilibre entre la probabilité de la trajectoire et de son retournement temporel [110] :

$$S_\tau \equiv k_B \ln \left(\frac{p\{\delta\mathbf{r}(t)\}}{p\{\delta\tilde{\mathbf{r}}(t)\}} \right) \tag{3.45}$$

La distribution de probabilité $p\{\delta\mathbf{r}\}$ peut être déduite de celle de $\delta\mathbf{F}_{\mathrm{th}}(t)$ qui est une distribution gaussienne δ-corrélée :

$$p\{\delta\mathbf{F}_{\mathrm{th}}(t)\} \propto \exp\left[-\frac{1}{2} \iint dt\, dt'\, \delta\mathbf{F}_{\mathrm{th}}(t) \cdot \delta\mathbf{F}_{\mathrm{th}}(t')\, \frac{\delta(t-t')}{2\Gamma k_B T M} \right] \tag{3.46}$$

L'équation du mouvement donne une expression formelle de la force $\delta\mathbf{F}_{\mathrm{th}}(t)$ en fonction de la trajectoire $\delta\mathbf{r}(t)$, qui peut simplement être injectée dans l'équation précédente :

$$\begin{aligned} p\{\delta\mathbf{r}(t)\} \propto \exp\Bigg[-\frac{1}{2} \iint dt\, dt'\, \frac{\delta(t-t')}{2\Gamma k_B T M} \\ \times \Big(M\delta\ddot{\mathbf{r}}(t) + M\Gamma\delta\dot{\mathbf{r}}(t) + M\boldsymbol{\Omega}^2\delta\mathbf{r}(t) - \big(\delta\mathbf{r}(t)\cdot\boldsymbol{\nabla}\big)\mathbf{F}(\mathbf{r_0}) \Big) \\ \cdot \Big(M\delta\ddot{\mathbf{r}}(t') + M\Gamma\delta\dot{\mathbf{r}}(t') + M\boldsymbol{\Omega}^2\delta\mathbf{r}(t') - \big(\delta\mathbf{r}(t')\cdot\boldsymbol{\nabla}\big)\mathbf{F}(\mathbf{r_0}) \Big) \Bigg], \end{aligned} \tag{3.47}$$

où $\boldsymbol{\Omega} = \begin{pmatrix} \Omega_1 & 0 \\ 0 & \Omega_2 \end{pmatrix}$ et $\mathbf{F}(\mathbf{r_0})$ est le champ de force (rotationnel) local. Le retournement du temps ne change que le signe des dérivées premières :

$$\begin{aligned} p\{\delta\tilde{\mathbf{r}}(t)\} \propto \exp\Bigg[-\frac{1}{2} \iint dt\, dt'\, \frac{\delta(t-t')}{2\Gamma k_B T M} \\ \times \Big(M\delta\ddot{\mathbf{r}}(t) - M\Gamma\delta\dot{\mathbf{r}}(t) + M\boldsymbol{\Omega}^2\delta\mathbf{r}(t) - \big(\delta\mathbf{r}(t)\cdot\boldsymbol{\nabla}\big)\mathbf{F}\big(\mathbf{r_0}\big) \Big) \\ \cdot \Big(M\delta\ddot{\mathbf{r}}(t') - M\Gamma\delta\dot{\mathbf{r}}(t') + M\boldsymbol{\Omega}^2\delta\mathbf{r}(t') - \big(\delta\mathbf{r}(t')\cdot\boldsymbol{\nabla}\big)\mathbf{F}(\mathbf{r_0}) \Big) \Bigg], \end{aligned} \tag{3.48}$$

de sorte que la plupart des termes se simplifient dans le rapport des deux probabilités de l'équation 3.45 qui donne l'entropie créée pendant l'intervalle de temps τ. Il ne reste finalement qu'une série de termes d'entropie :

$$S_\tau = S_\tau^{(\mathrm{cin})} + S_\tau^{(\mathrm{rappel})} + S_\tau^{(\mathrm{F})} \tag{3.49}$$

avec

$$\begin{cases} S_\tau^{(\mathrm{cin})} & \equiv & -\displaystyle\int_{-\tau/2}^{\tau/2} dt\, \frac{M}{T}\, \delta\dot{\mathbf{r}}(t)\cdot\delta\ddot{\mathbf{r}}(t) = -\frac{\Delta E_\mathrm{c}}{T} \\ S_\tau^{(\mathrm{rappel})} & \equiv & -\displaystyle\int_{-\tau/2}^{\tau/2} dt\, \frac{M}{T}\, \delta\dot{\mathbf{r}}(t)\cdot\mathbf{\Omega}^2\delta\mathbf{r}(t) = -\frac{\Delta E_\mathrm{p}^{(\mathrm{rappel})}}{T} \\ S_\tau^{(\mathrm{F})} & \equiv & \displaystyle\int_{-\tau/2}^{\tau/2} dt\, \frac{1}{T}\, \delta\dot{\mathbf{r}}(t)\cdot\Big[\big(\delta\mathbf{r}(t)\cdot\boldsymbol{\nabla}\big)\mathbf{F}(\mathbf{r_0})\Big] = S_\tau^{(\mathrm{F,c})} + S_\tau^{(\mathrm{F,nc})} \end{cases} \tag{3.50}$$

où l'on a identifié la variation d'énergie cinétique ΔE_c et celle d'énergie potentielle $\Delta E_\mathrm{p}^{(\mathrm{rappel})}$ dans l'intervalle τ. Le dernier terme d'entropie est dû à la force extérieure et doit être décomposé pour séparer les contributions conservative et non-conservative. La partie conservative s'écrit :

$$S_\tau^{(\mathrm{F,c})} \equiv \frac{M}{T}\left[\left(g_{11}-\Omega_1^2\right)\frac{\delta r_1^2}{2} + \left(g_{22}-\Omega_2^2\right)\frac{\delta r_2^2}{2} + \left(\frac{g_{12}+g_{21}}{2}\right)\delta r_1\delta r_2\right]_{-\tau/2}^{\tau/2} = -\frac{\Delta E_\mathrm{p}^{(\mathrm{F})}}{T}, \tag{3.51}$$

La variation d'énergie potentielle due à la composante conservative de la force extérieure $\Delta E_\mathrm{p}^{(\mathrm{F})}$ complète la variation totale d'énergie potentielle $\Delta E_p = \Delta E_\mathrm{p}^{(\mathrm{rappel})} + \Delta E_\mathrm{p}^{(\mathrm{F})}$. La partie non-conservative s'écrit :

$$S_\tau^{(\mathrm{F,nc})} \equiv \frac{M}{T}\left(\frac{g_{12}-g_{21}}{2}\right)\int_{-\tau/2}^{\tau/2} \delta\mathbf{r}(t)\times\delta\dot{\mathbf{r}}(t)\, dt = \frac{W_\tau^{(\mathrm{nc})}}{T} \tag{3.52}$$

où l'on a noté $W_\tau^{(\mathrm{nc})}$ le travail de la force non-conservative pendant τ : il sera calculé dans le paragraphe suivant. Finalement, on obtient l'identité remarquable pour le segment de trajectoire :

$$-\Delta E_\mathrm{c} - \Delta E_\mathrm{p} = TS_\tau - W_\tau^{(\mathrm{nc})} \tag{3.53}$$

Les termes de bord $\Delta E_\mathrm{c}/T$ et $\Delta E_\mathrm{p}/T$ peuvent être négligés dans le calcul de S_τ pour l'estimation des taux de production d'entropie totale, car, en suivant l'argument de [110], ils peuvent être exprimés comme une dérivée totale exacte du temps, de sorte qu'il est possible de redéfinir une entropie en se passant de ces termes. En pratique, il sera montré dans la suite que le terme $W_\tau^{(\mathrm{nc})}$ est proportionnel à τ de sorte que l'entropie diverge linéairement avec la durée de l'expérience, tandis que les termes de bord sont bornés dans le cas d'une particule liée. Ainsi :

$$S_\tau \simeq \frac{W_\tau^{(\mathrm{nc})}}{T}. \tag{3.54}$$

Notons que le terme de bord qui vient d'être éliminé correspond, selon un découpage proposé par U. Seifert en 2005 [111], à la variation d'entropie *du nanofil seul*, aussi appelée **entropie stochastique** ou **entropie par trajectoire**. Son élimination du calcul de l'*entropie totale* S_τ ne laisse que le second terme qui représente selon cette nomenclature l'entropie *de l'environnement*, et qui diverge avec la durée de l'expérience. En toute rigueur, la quantité S_τ ne représente donc plus, après l'éviction du terme de bord, l'entropie totale, mais l'entropie de l'environnement.

Travail de la force non-conservative

La partie non-conservative de la force peut s'écrire en fonction du **vecteur tourbillon** $\frac{\mathbf{rot}\,\mathbf{F}}{2}$: $\mathbf{F}^{(\mathrm{nc})} = \frac{\mathbf{rot}\,\mathbf{F}}{2} \times \delta\mathbf{r}$ et sa puissance instantanée vaut $P^{(\mathrm{nc})} = \delta\dot{\mathbf{r}} \cdot \left(\frac{\mathbf{rot}\,\mathbf{F}}{2} \times \delta\mathbf{r}\right) = \frac{\mathbf{rot}\,\mathbf{F}}{2} \cdot \left(\delta\mathbf{r} \times \delta\dot{\mathbf{r}}\right)$ d'où la formule qui est apparue dans l'équation 3.52 du travail de la force non-conservative pendant la durée τ :

$$W_\tau^{(\mathrm{nc})} = M\left(\frac{g_{12} - g_{21}}{2}\right) \int_{-\tau/2}^{\tau/2} \delta\mathbf{r}(t) \times \delta\dot{\mathbf{r}}(t)\, dt. \tag{3.55}$$

Ce travail dépend naturellement du rotationnel mais aussi du terme $\int \delta\mathbf{r} \times \delta\dot{\mathbf{r}}\, dt$ dont la norme représente la surface balayée par le mouvement du nanofil. Le sens de ce vecteur (qui est aussi le moment cinétique, réduit de la masse) indique le sens de rotation de la trajectoire. A l'équilibre thermodynamique, les trajectoires sont également réparties entre celles qui tournent dans un sens et celles qui tournent dans l'autre. Cependant, comme on le montrera à partir de simulations numériques, la présence de la force rotationnelle bouleverse justement la distribution des trajectoires en favorisant l'un des sens de rotation par rapport à l'autre, de sorte que la moyenne de cette intégrale est finalement non nulle. Ce déséquilibre des trajectoires étant lui-même engendré par la force non-conservative, le facteur rotationnel apparaît une seconde fois dans le calcul qui suit.

Développons l'expression :

$$\int_{-\tau/2}^{\tau/2} \delta\mathbf{r}(t) \times \delta\dot{\mathbf{r}}(t)\, dt = \int_{-\tau/2}^{\tau/2} \Big[\delta r_1(t)\delta\dot{r}_2(t) - \delta r_2(t)\delta\dot{r}_1(t)\Big]\, dt. \tag{3.56}$$

en exprimant d'abord le premier de ces deux termes :

$$\int_{-\tau/2}^{\tau/2} \delta r_1(t)\delta\dot{r}_2(t)dt = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega'}{2\pi}\, (-i\Omega')\, \delta r_1[\Omega]\delta r_2[\Omega'] \times \tau\, \mathrm{sinc}\left(\frac{(\Omega+\Omega')\tau}{2}\right). \tag{3.57}$$

La moyenne statistique dans l'état stationnaire est notée $\langle ... \rangle$ et est réalisée en utilisant encore une fois le modèle 3.9, c'est-à-dire le développement modal dans la base non perturbée $(1, 2)$, dont les résultats sont rappelés dans l'encadré suivant.

$$\left\{\begin{array}{lcl} \delta r_1[\Omega] & = & \frac{1}{\Xi[\Omega]}\Big((\Omega_{2||}^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega)\,\delta F_{\mathrm{th},1}[\Omega] + g_{21}\,\delta F_{\mathrm{th},2}[\Omega]\Big) \\ \delta r_2[\Omega] & = & \frac{1}{\Xi[\Omega]}\Big(g_{12}\,\delta F_{\mathrm{th},1}[\Omega] + (\Omega_{1||}^2 - \Omega^2 - i\Gamma\Omega)\,\delta F_{\mathrm{th},2}[\Omega]\Big) \end{array}\right.$$

$$\langle \delta F_{\mathrm{th},i}[\Omega]\delta F_{\mathrm{th},i}[\Omega'] \rangle = 2\pi\delta(\Omega+\Omega')S_{F_{\mathrm{th},i}}[\Omega] \quad \text{et} \quad \langle \delta F_{\mathrm{th},i}[\Omega]\delta F_{\mathrm{th},j}[\Omega'] \rangle = 0 \quad \text{pour} \quad i \neq j.$$

La corrélation en δ de Dirac supprime l'une des intégrales sur la fréquence. Après calcul du terme 3.57 et de son homologue symétrique $1 \leftrightarrow 2$ dans l'équation 3.56, on obtient :

$$\langle W_\tau^{(\mathrm{nc})} \rangle = \tau \times 2k_BT\big(g_{12} - g_{21}\big)^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \frac{\Gamma^2\Omega^2}{\Big((\Omega_-^2 - \Omega^2)^2 + \Gamma^2\Omega^2\Big)\Big((\Omega_+^2 - \Omega^2)^2 + \Gamma^2\Omega^2\Big)}. \tag{3.58}$$

soit une puissance constante, qui s'exprime en fonction des susceptibilités transverses (voir équation 3.27) :

$$\boxed{\langle \dot{W}^{(\mathrm{nc})} \rangle = 2k_BT \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi}\, (\Gamma\Omega)^2 \times \frac{1}{2}\left(|\chi_-^\perp[\Omega]|^2 + |\chi_+^\perp[\Omega]|^2\right) = T\langle \dot{S} \rangle} \tag{3.59}$$

ce qui donne également le taux de production d'entropie. Il a été fait le choix de symétriser la dernière expression en utilisant $\chi_-^\perp[\Omega] = \chi_+^\perp[\Omega]$. Le calcul de l'intégrale des trois dernières expressions par le théorème des résidus est mené en Annexe E. D'après le résultat de ce calcul, le travail la force non-conservative (et donc la chaleur dissipée dans le bain) est, au premier ordre non-nul, linéaire en Γ. Le taux de dissipation pondère donc non seulement tous les échanges entre le bain et l'oscillateur, mais également le travail fourni par la force non-conservative. Ce travail est également proportionnel au carré du rotationnel, comme nous l'avions prédit quelques lignes plus tôt.

Conservation de l'énergie

Des calculs analogues permettent d'estimer la moyenne statistique de la puissance apportée au nanofil par la force de Langevin :

$$\begin{aligned}\langle \dot{W}^{(\mathrm{th})} \rangle &\equiv \frac{1}{\tau}\int_{\tau/2}^{\tau/2} \langle \delta \mathbf{F}_{\mathrm{th}}(t)\cdot \delta\dot{\mathbf{r}}(t)\rangle\, dt \\ &= 2k_BT\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,(\Gamma\Omega)^2\,\left(|\chi_-^{||}[\Omega]|^2 + |\chi_+^{||}[\Omega]|^2\right) \end{aligned} \tag{3.60}$$

et la moyenne statistique de la puissance de la **force d'amortissement** algébriquement donnée au nanofil :

$$\begin{aligned}\langle \dot{W}^{(\Gamma)} \rangle &\equiv \frac{1}{\tau}\int_{\tau/2}^{\tau/2} -M\Gamma\langle \delta\dot{\mathbf{r}}^2(t)\rangle\, dt \\ &= -2k_BT\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,(\Gamma\Omega)^2\left[\left(|\chi_-^{||}[\Omega]|^2 + |\chi_+^{||}[\Omega]|^2\right) + \frac{1}{2}\left(|\chi_-^{\perp}[\Omega]|^2 + |\chi_+^{\perp}[\Omega]|^2\right)\right] \end{aligned} \tag{3.61}$$

Ces expressions permettent de vérifier que le travail injecté par la force non-conservative est intégralement dissipé, en plus de celui toujours injecté par la force de Langevin, par le canal de dissipation habituel dans le bain. Il s'agit d'une manifestation de la conjecture de l'état stationnaire :

$$\langle \dot{W}^{(\mathrm{nc})} \rangle + \langle \dot{W}^{(\mathrm{th})} \rangle + \langle \dot{W}^{(\Gamma)} \rangle = 0. \tag{3.62}$$

Théorème de Harada et Sasa

Harada et Sasa ont montré en 2005 [109,112] un théorème relatif aux systèmes en état stationnaire hors équilibre, qui connecte la violation de l'égalité du théorème fluctuation-dissipation à l'énergie dissipée supplémentaire, c'est-à-dire, l'énergie dissipée en plus à cause de la sortie de l'équilibre. Comme cela vient d'être rappelé, le taux d'énergie dissipée supplémentaire correspond exactement à l'opposé du taux de travail de la force non-conservative, qui est lui-même proportionnel au taux de production d'entropie (équation 3.54).

Le théorème de Harada et Sasa [112] s'écrit :

$$\boxed{\langle \dot{W}^{(\mathrm{nc})} \rangle = \int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,M\Gamma\Omega^2\sum_{i=\beta,\beta^\perp}\left(S_{ii}[\Omega] - \frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\chi_{ii}[\Omega]\right) \quad \forall\beta} \tag{3.63}$$

où $\langle \dot{W}^{(\mathrm{nc})} \rangle$ représente la puissance moyenne injectée par la force non-conservative écrite précédemment, dont nous avons montré qu'elle équivaut à la puissance dissipée supplémentaire, et qu'elle est proportionnelle au taux de production d'entropie. Remarquons que la somme peut être réalisée sur n'importe quel couple de directions perpendiculaires β et $\beta^\perp$ (envisagées comme des degrés

de liberté indépendants dans les articles de T. Harada et S. Sasa). On reconnaît donc dans l'expression du théorème de Harada et Sasa une intégrale pondérée de notre expression 3.43, qui représentait une correction spectrale au théorème-fluctuation dissipation.

T. Harada et S. Sasa ont démontré ce théorème[5] pour une variété de cas, dont l'oscillateur harmonique sous-amorti, dans [109]. Une vérification expérimentale a été proposée par S. Toyabe et des collaborateurs [113] pour une particule colloïdale soumise à une excitation stochastique. La relation de Harada et Sasa est depuis utilisée en particulier pour mesurer de manière non-invasive le travail dissipé dans les systèmes hors équilibre, tels que des particules colloïdales dans des solutions de polymères [114,115], des vésicules dans le cytoplasme d'oocytes vivants [116], des molécules uniques F_1-ATPase [117], cette dernière étude ayant permis d'évaluer l'efficacité de fonctionnement de ce moteur moléculaire à près de 100%. Le développement actuel de la mesure de trajectoires bidimensionnelles résolues en temps dans notre expérience donnera accès à la puissance moyenne de la force rotationnelle indépendamment des mesures de spectres et de réponse, ce qui permettra de confirmer le théorème dans le cas de la non-conservativité géométrique.

3.5 Distribution dans l'espace des phases

Le spectaculaire excès de bruit de position présenté dans la partie 3.3.2 conduit naturellement à s'interroger sur l'allure de la densité de probabilité de présence dans l'espace des phases en présence d'un champ de force rotationnel. On montre dans cette section que la distribution de l'oscillateur dans l'espace des phases s'élargit effectivement. Cet élargissement a cependant lieu seulement dans une direction particulière : il apparaît au contraire dans la direction perpendiculaire un phénomène de compression du bruit thermique auquel est consacré la fin de la section.

On a développé une première approche analytique du calcul de la distribution avec l'aide de F. Pistolesi : l'intégration directe de l'équation de Fokker-Planck, qui donne la densité de probabilité dans l'espace des phases. Cette approche permet de dégager des propriétés générales de la distribution de probabilité. Cette méthode est exhaustive ; cependant, ses résultats s'avérant très difficiles à simplifier, il est délicat d'en extraire une signification physique. Une seconde approche analytique basée sur l'intégration de l'expression des spectres est alors employée, car elle produit des résultats sous une forme plus explicite. Enfin, pour compléter l'approche analytique, un algorithme spécifique de simulation des trajectoires Browniennes en 2 dimensions a été implémenté, qui calcule non seulement une évaluation numérique de la distribution de probabilité mais aussi des trajectoires résolues en temps.

5. T. Harada et S. Sasa donnent également une expression de la violation des égalités multi-axiales du théorème fluctuation dissipation dans [109], mais l'interprétation de la quantité qui corrige le théorème fluctuation-dissipation est alors plus délicate : il s'agit de U_{ij}, une quantité homogène à une énergie dont la variation sur l'élément de trajectoire de durée τ vaut :

$$U_{ij,\tau} \equiv \left(\frac{\mathrm{rot}\mathbf{F}}{2}\right) \int_{-\tau/2}^{\tau/2} \delta r_i(t)\delta\dot{r}_j(t)\, dt. \tag{3.64}$$

La violation de la version multiaxiale de l'égalité du théorème fluctuation-dissipation s'écrit alors :

$$\langle \dot{U}_{ij} \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi}\, \Gamma M \Omega^2 \left(S_{ij}[\Omega] - \frac{2k_B T}{\Omega} \mathrm{Im}\chi_{ij}[\Omega] \right) \quad \forall i, j. \tag{3.65}$$

Il est donc possible de mesurer une violation de la version multiaxiale du théorème fluctuation-dissipation pour un oscillateur dans un champ de force rotationnel.

Cette section s'organise en quatre sous-parties. La première détaille les deux méthodes analytiques et la méthode de simulation numérique. Les premiers résultats obtenus sont donnés et commentés dans la deuxième partie. La troisième partie aborde le phénomène de compression du bruit thermique et propose quelques voies d'interprétation. Enfin, une courte quatrième partie conclut sur la portée de ce phénomène pour la mesure de force et de position.

3.5.1 Méthodes d'évaluation de la densité de probabilité

Equation de Fokker-Planck

Soit un processus stochastique multidimensionnel $\mathbf{X}_t$ dont l'évolution est régie par :

$$d\mathbf{X}_t = \boldsymbol{\mu}(\mathbf{X}_t, t)dt + \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{X}_t, t)d\mathbf{W}_t \tag{3.66}$$

où $\mathbf{W}_t$ est un processus de Wiener modélisant la force de Langevin, $\boldsymbol{\mu}$ le vecteur de dérive et $\boldsymbol{\sigma}$ la matrice de diffusion. Dans le cas où la diffusion est additive, c'est-à-dire que $\boldsymbol{\sigma}$ ne dépend pas de la position (ce qui est bien notre cas), l'**équation de Fokker-Planck** qui régit l'évolution de la densité de probabilité $p(\mathbf{x}, t)$ s'écrit :

$$\partial_t p = -\,\partial_{x_i}\Big(\mu_i\, p\Big) + \frac{\sigma_{ik}\,\sigma_{jk}}{2}\,\partial^2_{x_i x_j} p \tag{3.67}$$

où la convention de sommation d'Einstein des indices répétés est utilisée.

Le système de deux oscillateurs qui nous occupe possède 4 coordonnées de phase $\mathbf{x} = \{r_1, r_2, v_1, v_2\}$: les deux positions et les deux vitesses. Pour ce système, le vecteur de dérive $\boldsymbol{\mu}(\mathbf{x}, t)$ est linéaire en $\mathbf{x}$ et indépendant du temps : $\boldsymbol{\mu}(\mathbf{x}, t) \equiv \mathbf{B} \cdot \mathbf{x}$ (voir l'expression de la matrice $\mathbf{B}$ ci-dessous). L'équation de Fokker-Planck prend alors la forme :

$$\partial_t p(\mathbf{x}, t) = -B_{ik}\,\partial_{x_i}\Big(x_k\, p(\mathbf{x}, t)\Big) + \frac{D_{ij}}{2}\,\partial^2_{x_i x_j} p(\mathbf{x}, t). \tag{3.68}$$

où on a utilisé la convention de sommation des indices répétés d'Einstein, avec les matrices de dérive $\mathbf{B}$ et de diffusion $\mathbf{D} \equiv {}^t\boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\sigma}$:

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ -\Omega^2_{1||} & g_{21} & -\Gamma & 0 \\ g_{12} & -\Omega^2_{2||} & 0 & -\Gamma \end{pmatrix}, \qquad \mathbf{D} = \frac{2\Gamma k_B T}{M} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{3.69}$$

Sous forme explicite, l'équation de Fokker-Planck s'écrit :

$$\begin{aligned} \partial_t\, p = \;& - \; v_1\,\partial_{r_1} p - v_2\,\partial_{r_2} p + 2\Gamma p \\ & - \; \Big[-\Gamma v_1 - \Omega^2_{1||} r_1 + g_{21} r_2\Big]\partial_{v_1} p - \Big[-\Gamma v_2 - \Omega^2_{2||} r_2 + g_{12} r_1\Big]\partial_{v_2} p \\ & + \; \frac{\Gamma k_B T}{M}\Big(\partial^2_{v_1}\, p + \partial^2_{v_2}\, p\Big) \end{aligned} \tag{3.70}$$

On peut montrer [18] que l'équation de Fokker-Planck dans le cas d'une dérive linéaire admet une solution stationnaire gaussienne (c'est-à-dire, dont toutes les projections sur des droites de l'espace des phases sont des fonctions gaussiennes) à tous les instants. On cherche maintenant la solution stationnaire $p_{\mathrm{st}}(\mathbf{x})$ qui vérifie :

$$-B_{ik}\,\partial_{x_i}\Big(x_k\, p_{\mathrm{st}}(\mathbf{x}, t)\Big) + \frac{D_{ij}}{2}\,\partial^2_{x_i x_j} p_{\mathrm{st}}(\mathbf{x}, t) = 0. \tag{3.71}$$

En injectant l'*ansatz* gaussien suivant :

$$p_{\rm st}(\mathbf{x}) \propto \exp\Big(-\sum_{i,j} A_{ij}\, x_i\, x_j\Big), \quad \mathbf{A} \equiv \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 2a_{r_1r_1} & a_{r_1r_2} & a_{r_1v_1} & a_{r_1v_2} \\ a_{r_1r_2} & 2a_{r_2r_2} & a_{r_2v_1} & a_{r_2v_2} \\ a_{r_1v_1} & a_{r_2v_1} & 2a_{v_1v_1} & a_{v_1v_2} \\ a_{r_1v_2} & a_{r_2v_2} & a_{v_1v_2} & 2a_{v_2v_2} \end{pmatrix}, \tag{3.72}$$

dans l'équation de Fokker-Planck, on obtient les 10 paramètres de la distribution stationnaire, dont l'expression complète n'est malheureusement pas très pratique et n'est donc donnée qu'en Annexe F. L'étude de cas simples permet tout de même de dégager diverses propriétés de la probabilité de distribution.

• En l'**absence de force extérieure**, la matrice $\mathbf{A}$ est diagonale : les positions et vitesses sont toutes décorrélées entre elles. La distribution en r_1 est légèrement plus étalée que celle en r_2 en raison des différences de fréquences, car, le mode (1) étant par définition le mode de basse fréquence, il est affecté d'une susceptibilité supérieure à celle de l'autre mode.

• En présence d'une **force non rotationnelle** ($g_{12} = g_{21}$), $\mathbf{A}$ prend la forme :

$$\mathbf{A} = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 2a_{r_1r_1} & a_{r_1r_2} & 0 & 0 \\ a_{r_1r_2} & 2a_{r_2r_2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2a_{v_1v_1} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2a_{v_2v_2} \end{pmatrix}, \tag{3.73}$$

Ainsi, sous l'effet de la rotation des modes de fréquences naturelles différentes (si $g_{12} \neq 0$), une corrélation apparaît entre les composantes 1 et 2 de la position, tandis qu'il n'existe toujours aucune corrélation entre les vitesses dans les directions 1 et 2 ou entre les vitesses et les positions.

• En présence d'une **force rotationnelle** ($g_{12} \neq g_{21}$), tous les termes de $\mathbf{A}$ sont non-nuls : toutes les positions et les vitesses sont corrélées. La distribution stationnaire de probabilité est un ellipsoïde gaussien en 4 dimensions, dont les axes principaux ne sont ni alignés avec les directions r_1, r_2, v_1, v_2, ni même inclus dans les plans définis par les paires de ces coordonnées.

• Pour de **grands facteurs de qualité** $\Gamma/\Omega_{1,2} \to 0$, la matrice $\mathbf{A}$ est alors diagonale par blocs :

$$\mathbf{A} = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 2a_{r_1r_1} & a_{r_1r_2} & 0 & 0 \\ a_{r_1r_2} & 2a_{r_2r_2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2a_{v_1v_1} & a_{v_1v_2} \\ 0 & 0 & a_{v_1v_2} & 2a_{v_2v_2} \end{pmatrix} \tag{3.74}$$

Les coefficients restants de la matrice $\mathbf{A}$ dans cette limite des grands facteurs de qualité sont relativement simples (voir Annexe F). Les positions sont corrélées entre elles, les vitesses également, mais il n'existe aucune corrélation entre une position et une vitesse (quel que soit le champ de force). Dans ce cas, les directions propres de l'ellipsoïde gaussien sont incluses dans les plans (r_1, r_2) et (v_1, v_2). La corrélation entre positions et vitesses constatée dans le point précédent est donc une correction apparaissant pour de faibles facteurs de qualité. Il apparaît ainsi pertinent d'étudier en priorité les projections de la distribution de probabilité dans les plans (r_1, r_2) et (v_1, v_2) qui persistent à grand facteur de qualité et renseignent donc véritablement sur la physique du couplage non-symétrique.

Dans la suite, on étudie donc les projections dans ces plans de la probabilité de distribution dans le cas le plus général (Q, g_{ij} arbitraires). La projection de la fonction gaussienne ellipsoïdale

en dimension 4 dans le plan (r_1, r_2) est une fonction gaussienne elliptique :

$$p_{\rm st}(r_1,r_2) \;\propto\; \int_{-\infty}^{\infty} dv_1 \int_{-\infty}^{\infty} dv_2\; p_{\rm st}(r_1,r_2,v_1,v_2) \;\propto\; \exp\Big[-\Big(b_{r_1r_1}\,r_1^2 + b_{r_2r_2}\,r_2^2 + b_{r_1r_2}\,r_1r_2\Big)\Big] \tag{3.75}$$

avec les coefficients :

$$\begin{aligned}
b_{r_1r_1} &= \frac{a_{r_1r_1}a_{v_1v_2}^2 + a_{r_1v_1}^2 a_{v_2v_2} + a_{r_1v_2}^2 a_{v_1v_1} - a_{r_1v_1}a_{r_1v_2}a_{v_1v_2} - 4a_{r_1r_1}a_{v_1v_1}a_{v_2v_2}}{a_{v_1v_2}^2 - 4a_{v_1v_1}a_{v_2v_2}} \\
b_{r_2r_2} &= \frac{a_{r_2r_2}a_{v_1v_2}^2 + a_{r_2v_1}^2 a_{v_2v_2} + a_{r_2v_2}^2 a_{v_1v_1} - a_{r_2v_1}a_{r_2v_2}a_{v_1v_2} - 4a_{r_2r_2}a_{v_1v_1}a_{v_2v_2}}{a_{v_1v_2}^2 - 4a_{v_1v_1}a_{v_2v_2}} \\
b_{r_1r_2} &= \frac{1}{a_{v_1v_2}^2 - 4a_{v_1v_1}a_{v_2v_2}}\Big[a_{r_1r_2}a_{v_1v_2}^2 + 2(a_{r_1v_1}a_{r_2v_1}a_{v_2v_2} + a_{r_1v_2}a_{r_2v_2}a_{v_1v_1}) \\
&\quad -a_{v_1v_2}(a_{r_1v_2}a_{r_2v_1} + a_{r_1v_1}a_{r_2v_2}) - 4a_{r_1r_2}a_{v_1v_1}a_{v_2v_2}\Big]
\end{aligned} \tag{3.76}$$

On a bien sûr les mêmes expressions en échangeant r et v pour la projection dans le plan (v_1, v_2).

Approche spectrale

Le calcul analytique des paramètres de la distribution 3.76 et de ses projections est extrêmement lourd et difficile à simplifier. Une approche parallèle est maintenant développée : elle est basée sur le calcul de l'intégrale des spectres pour obtenir des expressions analytiques plus simples des variances du mouvement Brownien dans les plans de l'espace des phases.

La variance de la projection du bruit thermique de position dans une direction $\mathbf{e}_\beta$ est donnée par :

$$\Delta r_\beta^2 \equiv \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} S_{\delta r_\beta}[\Omega]. \tag{3.77}$$

On montre à partir du modèle 3.9 que cette quantité se décompose en :

$$\Delta r_\beta^2 = \cos^2\beta\,\Delta r_{cc}^2 + \sin^2\beta\,\Delta r_{ss}^2 + 2\cos\beta\sin\beta\,\Delta r_{cs}^2 \tag{3.78}$$

où Δr_{cc}^2, Δr_{ss}^2 et Δr_{cs}^2 ne dépendent pas de β. Ainsi la variance mesurée selon $\mathbf{e}_1$ ($\mathbf{e}_2$) est directement le premier (deuxième) de ces coefficients. De même, la variance en vitesse dans une direction $\mathbf{e}_\beta$ est :

$$\Delta v_\beta^2 \equiv \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \Omega^2 S_{\delta r_\beta}[\Omega] \tag{3.79}$$

et se décompose en :

$$\Delta v_\beta^2 = \cos^2\beta\,\Delta v_{cc}^2 + \sin^2\beta\,\Delta v_{ss}^2 + 2\cos\beta\sin\beta\,\Delta v_{cs}^2. \tag{3.80}$$

Les coefficients $\Delta r_\#^2$ et $\Delta v_\#^2$ s'expriment comme des intégrales spectrales de la même forme que celle du travail de la force non-conservative. Le calcul de ces coefficients par la méthode des résidus réalisé dans l'Annexe E donne :

$$\left\{\begin{aligned}
\Delta r_{cc}^2 &= \frac{k_BT/M}{(\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2 + 2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\,\frac{\left(\Omega_{2||}^4 + \Omega_+^2\Omega_-^2 + g_{21}^2\right)\left(\Omega_+^2+\Omega_-^2+2\Gamma^2\right) - 4\Omega_{2||}^2\Omega_+^2\Omega_-^2}{\Omega_+^2\Omega_-^2} \\
\Delta r_{ss}^2 &= \frac{k_BT/M}{(\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2 + 2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\,\frac{\left(\Omega_{1||}^4 + \Omega_+^2\Omega_-^2 + g_{12}^2\right)\left(\Omega_+^2+\Omega_-^2+2\Gamma^2\right) - 4\Omega_{1||}^2\Omega_+^2\Omega_-^2}{\Omega_+^2\Omega_-^2} \\
\Delta r_{cs}^2 &= \frac{k_BT/M}{(\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2 + 2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\,\frac{\left(g_{12}\Omega_{2||}^2 + g_{21}\Omega_{1||}^2\right)\left(\Omega_+^2+\Omega_-^2+2\Gamma^2\right) - 2\Omega_+^2\Omega_-^2(g_{12}+g_{21})}{\Omega_+^2\Omega_-^2}
\end{aligned}\right. \tag{3.81}$$

et

$$\begin{cases} \Delta v_{cc}^2 &= \dfrac{k_B T}{M}\left(1 - \dfrac{2g_{21}(g_{12}-g_{21})}{(\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\right) \\ \Delta v_{ss}^2 &= \dfrac{k_B T}{M}\left(1 + \dfrac{2g_{12}(g_{12}-g_{21})}{(\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\right) \\ \Delta v_{cs}^2 &= \dfrac{k_B T}{M}\dfrac{(g_{12}-g_{21})\left(\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2\right)}{(\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}. \end{cases} \tag{3.82}$$

Simulation de la distribution dans l'espace des phases

Un algorithme d'intégration numérique de l'équation stochastique du mouvement a été implémenté en Python pour simuler des trajectoires. L'algorithme de Itō-Taylor d'ordre fort 1.5 est choisi [118] (voir sa description en Annexe G). Un algorithme "faible" (voir [118]) aurait suffi pour calculer uniquement l'évolution de la densité de probabilité mais on désire également simuler des trajectoires, ce qui requiert un algorithme "fort".

Dans un premier temps, on a souhaité limiter les durées de simulation pour comprendre la physique en jeu. Pour cela, on simule les trajectoires d'un oscillateur peu réaliste mais dont les fréquences sont très résolues (voir tableau ci-dessous). Le facteur de qualité relativement bas (100) et le grand écart des fréquences permet de simuler en une durée raisonnable des échantillons de trajectoires statistiquement représentatifs.

Paramètres		
Fréquences	$\Omega_1/2\pi$	100 Hz
	$\Omega_2/2\pi$	110 Hz
Taux d'amortissement	$\Gamma/2\pi$	1 Hz
Masse (effective)	M	1.5×10^{-15} kg
Pas d'échantillonnage	Δt	0.1 ms
Nombre d'échantillons	N	2×10^6
Grandeurs caractéristiques		
Durée totale	$N\Delta t$	200 s soient $1257\,\Gamma^{-1}$
N. d'échantillons par période	$\frac{2\pi}{\Delta t\,\Omega}$	~ 91
Taille typique des trajectoires	$\Delta x_{\mathrm{th}\,1,2}$	2.64 μm, 2.40 μm

3.5.2 Etude de la densité de probabilité

On présente maintenant les résultats analytiques et numériques obtenus avec les méthodes décrites dans le précédent paragraphe.

Evolution de la probabilité de distribution dans un champ rotationnel pur

On s'intéresse à la situation emblématique d'un champ de force rotationnel pur. L'intensité de la force rotationnelle est contrôlée par un paramètre d'intensité P :

$$\begin{pmatrix} g_{11} & g_{12} \\ g_{21} & g_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -\gamma P \\ \gamma P & 0 \end{pmatrix}, \quad P \in [0, P_{\mathrm{thres}}]. \tag{3.83}$$

Dans le cas du rotationnel pur et de l'oscillateur en question, le seuil de bifurcation P_{thres} correspond à $\gamma P_{\mathrm{thres}} \simeq 4.15 \times 10^4\,\mathrm{Hz}^2$.

La Figure 3.29 représente des histogrammes 2D des projections de la densité de probabilité stationnaire $p_{\text{st}}(\mathbf{x})$ dans le plan $(r_1,\ r_2)$ pour une force rotationnelle croissante, s'approchant finalement de la puissance de bifurcation du système.

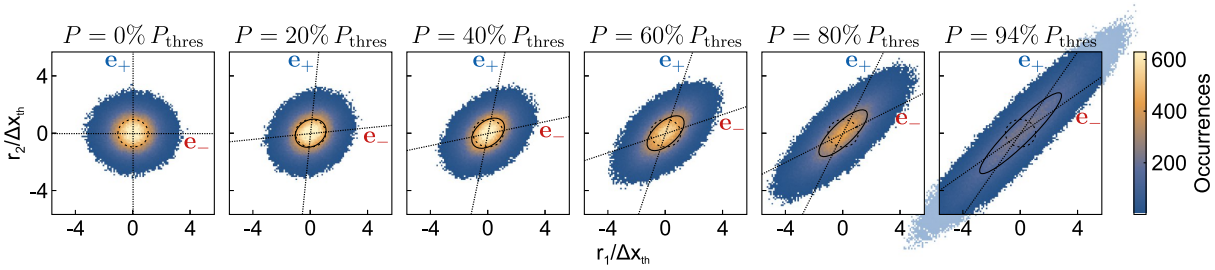


Figure 3.29 – **Histogrammes 2D des positions simulées**, pour une série croissante d'intensité de la force rotationnelle. Le pas de l'histogramme est $0.1\Delta x_{\text{th}}$. Les ellipses en trait plein noir correspondent à (1) écart-type de la distribution gaussienne (dont les paramètres sont obtenus par tomographie angulaire des distributions simulées, voir texte). Pour comparaison, l'ellipse correspondant au cas non perturbé ($P = 0$) est reportée sur toutes les vignettes successives en pointillés noirs. Les directions des modes propres calculées pour chaque intensité du champ rotationnel sont superposées en pointillés.

Ces distributions projetées sont de forme gaussienne elliptique, comme prévu d'après la solution analytique de l'équation de Fokker-Planck. L'étalement progressif de la distribution est une manifestation de l'excès de bruit mesuré précédemment, mais le calcul des distributions permet également de mettre en évidence la **forte ellipticité** de la statistique dans les plans (r_1, r_2). Les mêmes constatations sont faites pour la projection dans le plan (v_1, v_2) qui présente une évolution très similaire.

Extraction des paramètres principaux

Une tomographie angulaire de chaque distribution simulée en Figure 3.29 a ensuite été réalisée pour déterminer les orientations principales et les variances correspondantes de la densité de probabilité. Pour cela, la trajectoire bidimensionnelle simulée est projetée (avant digitalisation en histogramme, celle-ci n'étant utilisée que pour la représentation des données) sur une succession d'axes paramétrés par un angle β balayé par pas de 0.18° entre 0° et 180°. Pour chaque orientation "de mesure", la variance Δr_β^2 de la trajectoire projetée à été calculée. Les variances extrémales et les orientations correspondantes sont enregistrées pour comparaison avec les valeurs analytiques obtenues, en injectant les coefficients donnés en Annexe F dans les équations 3.76 ou en utilisant les coefficients 3.81. Les deux méthodes de calcul de la solution analytique donnent bien sûr rigoureusement le même résultat. Les résultats de ces tomographies sont rassemblés dans la Figure 3.30.

En champ de force nul, la distribution en position est légèrement plus étalée dans la direction du mode (1) que dans celle du mode (2) en raison de la fréquence plus faible du mode (1) (on rappelle que la variance en position d'un oscillateur 1D est $\Delta r_{\text{th}}^2 = \frac{k_B T}{M_{\text{eff}}\Omega_m^2}$), ce qui est déjà presque discernable sur la Figure 3.29 en raison du grand écart en fréquence choisi pour la simulation. Cela fixe les orientations principales des distributions en position initiales à 0° et 90° (voir Figure 3.30a), mais celles-ci tendent vers ±45° à fort rotationnel. La distribution initiale des vitesses ne dépend pas de la fréquence $\left(\Delta v_{\text{th}}^2 = \frac{k_B T}{M_{\text{eff}}}\right)$, elle est parfaitement circulaire, ce qui résulte en une large indétermination des orientations principales de la distribution simulée en vitesse (voir Figure 3.30b, en bas). Par convention, on a fixé à ±45° les orientations théoriques principales de la distribution initiale, celles-ci correspondant presque exactement à ces valeurs par la suite, lorsque les orientations principales deviennent bien déterminées.

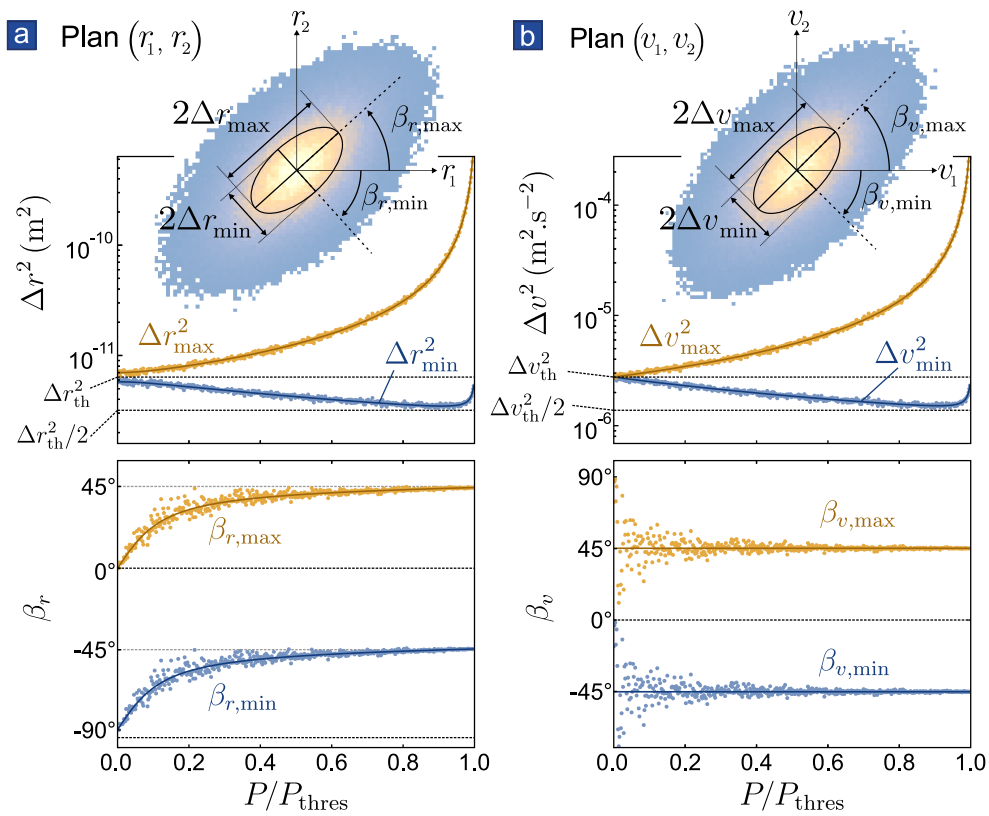


Figure 3.30 – **Variances (en haut) et orientations des directions principales (en bas) des projections de la densité de probabilité dans les plans a. (r_1, r_2) et b. (v_1, v_2)** en fonction de l'intensité d'un champ de force rotationnel pur. La définition des quantités est donnée par les pictogrammes insérés en haut. Les points sont obtenus par analyse des trajectoires simulées (voir texte) et les traits pleins représentent les prédictions théoriques.

Les variances minimales suivent une évolution particulièrement intéressante : celles-ci deviennent inférieures aux valeurs non perturbées Δr^2_{th}, Δv^2_{th}. Elles approchent même $0.5\Delta r^2_{\text{th}}$, (et $0.5\Delta v^2_{\text{th}}$ pour les vitesses) à fort rotationnel, mais remontent en flèche juste avant le seuil de bifurcation.

Ce phénomène est d'autant plus intéressant qu'il advient simultanément pour les positions et pour les vitesses dans les directions $\beta_{r,\min}$, $\beta_{v,\min}$, qui coïncident à fort rotationnel : **sous l'effet de la force rotationnelle, les distributions en position et en vitesse sont resserrées simultanément** - dans une direction de l'espace, tandis que les distributions s'étalent dans la direction perpendiculaire.

Courant de probabilité

Le produit $\mathbf{r} \times \mathbf{v}$ représente le taux d'aire balayée par la trajectoire du nanofil et apparaît dans le travail des forces non-conservatives 3.55. Le signe de cette quantité donne en outre le sens de parcours des trajectoires. Les simulations permettent de mettre en évidence le déséquilibre de la répartition des trajectoires qui explique la puissance moyenne non-nulle des forces non-conservatives (voir Figure 3.31). Il existe donc un sens de rotation privilégié, imposé par le signe du rotationnel de la force. Le déséquilibre moyen est, d'après l'équation 3.56, proportionnel au rotationnel de la force. Ce déséquilibre correspond à un courant de probabilité équivalent à celui observé directement par le groupe de D. Grier pour des sphères colloïdales piégées à cause des forces non-conservatives appliquées par les lasers piégeants [99].

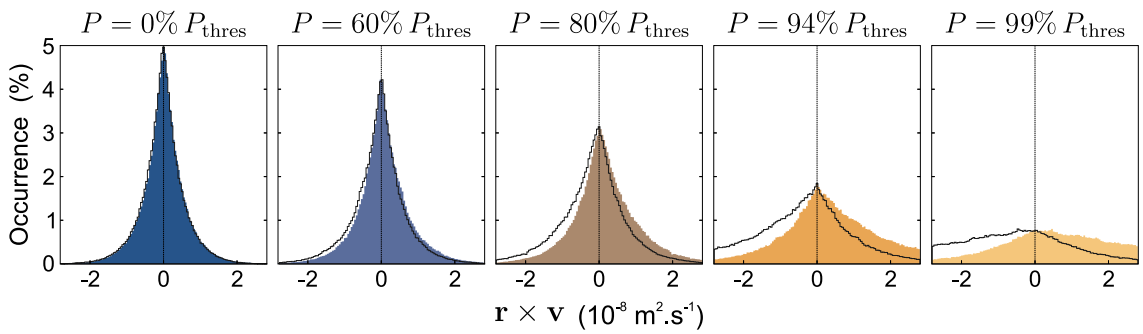


Figure 3.31 – **Histogrammes du produit vectoriel $\mathbf{r} \times \mathbf{v}$** dont le signe donne le sens de parcours des trajectoires. Simulations réalisées pour le nanofil fictif de fréquences bien résolues décrit plus haut dans un champ de force rotationnel pur. En couleurs : histogrammes, en traits noirs : courbes symétriques par rapport à l'axe vertical central en pointillés, représentées pour mettre en évidence la dissymétrie des ces distributions.

Evolution de la probabilité de distribution dans un champ purement cisaillant

Avant de discuter plus en profondeur les implications de la compression de bruit, on évalue sa robustesse au changement de paramètres expérimentaux en étudiant une autre champ de force non-conservatif paradigmatique, un cisaillement pur :

$$\begin{pmatrix} g_{11} & g_{12} \\ g_{21} & g_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ \gamma P & 0 \end{pmatrix}. \tag{3.84}$$

Ce champ de force très particulier modifie l'une des orientations des polarisations propres sans modifier les fréquences propres. Ainsi, tous les phénomènes liés à la non-conservativité précédemment décrits : le cisaillement de la base des modes propres, la sortie de l'équilibre et la violation de l'égalité du théorème fluctuation-dissipation, persistent dans cette structure de champ force, tandis que le phénomène de bifurcation n'a jamais lieu. En l'absence de seuil de bifurcation, on utilise cette fois comme métrique des gradients réduits du champ de force g_{ij} la valeur $\gamma P_m = \frac{\Omega_2^2 - \Omega_1^2}{2}$ (mais il n'y a pas besoin de se restreindre à $P < P_m$ comme on se restreignait à $P < P_{\text{thres}}$ dans le cas précédent).

Les distributions en position sont représentées en Figure 3.32. Les résultats des tomographies angulaires correspondantes sont données par la Figure 3.33. Le grand axe des distributions de position est toujours aligné avec la direction du mode 1 en champ de force nul à cause de la différence en fréquence. A l'allumage du champ de force, le grand axe amorce son alignement avec une direction bissectrice des modes habillés mais tend à fort champ cisaillant vers le mode de basse fréquence.

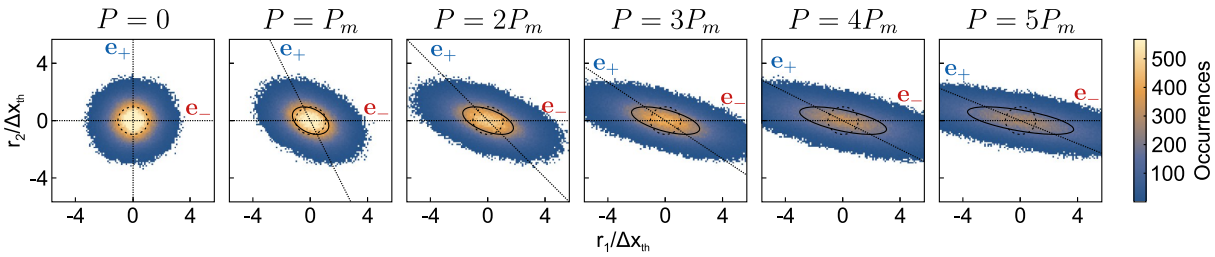


Figure 3.32 – **Histogrammes 2D des positions simulées**, pour une série croissante d'intensité de la force cisaillante (g_{21}). Le pas de l'histogramme est $0.1\Delta x_{\text{th}}$. Mêmes conventions que sur la Figure 3.29.

Les observations sur les variances faites précédemment persistent pour cet autre champ de force paradigmatique : la distribution des positions et des vitesses se retrouve étalée dans une

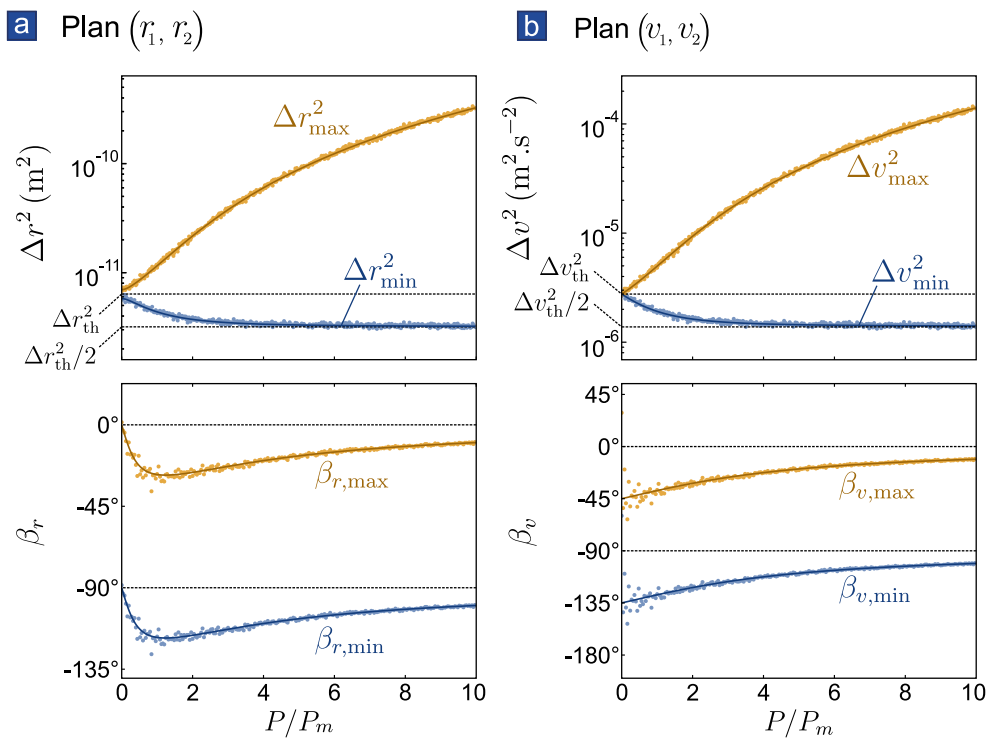


Figure 3.33 – **Variances (en haut) et orientations des directions principales (en bas) des projections de la distribution de probabilité dans les plans a. (r_1, r_2) et b. (v_1, v_2)** en fonction de l'intensité d'un champ de force cisaillant pur. Mêmes conventions que sur la Figure 3.30.

direction et comprimée dans la direction perpendiculaire en-dessous des variances thermiques non perturbées. On n'observe cependant pas de remontée des variances minimales $\Delta r^2_{\min}$, $\Delta v^2_{\min}$ à forte puissance, ni d'asymptote verticale pour les variances maximales $\Delta r^2_{\max}$, $\Delta v^2_{\max}$ comme dans le cas rotationnel pur. Les premières convergent respectivement vers $0.5\Delta r^2_{\text{th}}$ et $0.5\Delta v^2_{\text{th}}$, tandis que les secondes présentent un comportement asymptotique linéaire en puissance du champ de force. On notera qu'un tel champ de force permet d'augmenter arbitrairement le bruit thermique du nanofil.

3.5.3 Caractérisation de la compression de bruit d'un oscillateur réaliste

Des simulations réalisées pour des oscillateurs de fréquences et facteurs de qualité plus réalistes montrent que le phénomène de compression de bruit est robuste, à condition que les fréquences restent spectralement résolues. Dans le cas contraire, la variance minimale n'atteint pas la moitié de la variance thermique non perturbée, et la remontée de celle-ci apparaît à plus basse puissance. Il semble d'ailleurs que la décompression apparaisse, pour un oscillateur de fréquences initialement bien résolues, lorsque les fréquences habillées par le champ de force ne sont plus séparées que d'une largeur spectrale environ.

Les simulations ont permis de compléter jusque-là les calculs analytiques (et de vérifier qu'aucune erreur ne s'était glissée dans les évaluations numériques des formules analytiques très encombrantes) : nous avons constaté le très bon accord entre les deux approches. Pour étudier un oscillateur réaliste et vérifier que le phénomène n'est pas négligeable dans ce régime, on se passe désormais des simulations, qui sont très longues pour des oscillateurs faiblement dégénérés. On étudie donc les prédictions théoriques pour l'oscillateur suivant qui est très proche de l'oscillateur expérimental avec lequel on a observé le cisaillement de la base des modes propres et la violation du théorème fluctuation-dissipation :

Paramètres		
Fréquences	$\Omega_1/2\pi$	6.70 kHz
	$\Omega_2/2\pi$	6.72 kHz
Taux d'amortissement	$\Gamma/2\pi$	6.7 Hz
Masse (effective)	M	1.5×10^{-15} kg
Grandeurs déduites		
Taille typique des trajectoires	Δr_{th}	39.5 nm, 39.3 nm
Facteur de qualité	$Q = \frac{\Omega_1+\Omega_2}{2\Gamma}$	1000
Ecart relatif des fréquences	$\frac{(\Omega_2-\Omega_1}{\Omega_2+\Omega_1)/2}$	0.3 %

Plans canoniques de l'espace des phases

Par analogie avec le phénomène de compression de bruit ou *squeezing* traditionnel, on peut se demander si la compression de bruit apparaît dans des plans de l'espace des phases impliquant une coordonnée de position et sa variable conjuguée pour l'énergie. On cherche à présent ce qu'il en est pour notre oscillateur réaliste en calculant sa distribution dans l'espace des phases. On étudie d'abord le cas du champ de force purement rotationnel : $\begin{pmatrix} g_{11} & g_{12} \\ g_{21} & g_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \gamma P \\ -\gamma P & 0 \end{pmatrix}$.

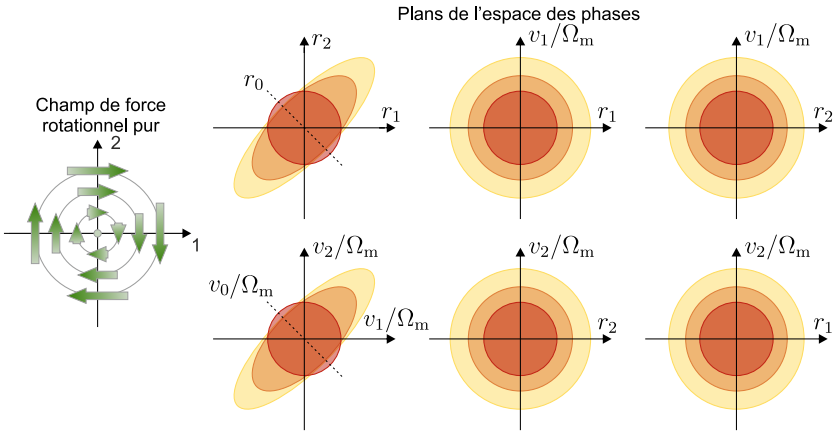


Figure 3.34 – Distributions de probabilité dans différents plans de l'espace des phases de l'oscillateur réaliste, en l'absence de champ de force (ellipses rouges), dans un **champ de force rotationnel pur** d'intensité $0.75\gamma P_{\text{thres}}$ (ellipses oranges) et $0.79\gamma P_{\text{thres}}$ (ellipses jaunes). Les ellipses représentent la limite à 1 écart-type des distributions de probabilité gaussiennes, de sorte que les grands axes des ellipses rouges mesurent $2\Delta x_{\text{th}}$ (environ 79 nm).

Les densités de probabilité projetées dans différents plans de l'espace des phases sont représentées sur la Figure 3.34. La corrélation entre les coordonnées de phase n'apparaît que dans les plans $(r_1,\ r_2)$ et $(v_1,\ v_2)$, et on observe qu'il existe des coordonnées $r_0 \simeq \frac{r_2-r_1}{2}$, $v_0 = \frac{v_2-v_1}{2}$ qui définissent des plans dans lesquels **la compression de bruit apparaît à la fois pour la position et pour la vitesse** (voir Figure 3.35), alors que ces deux observables sont conjuguées pour l'énergie. Les mêmes constatations sont faites dans le cas d'un champ de force de cisaillement, voir Figure 3.36.

Il existe donc des directions de l'espace selon lesquelles le bruit de position mais aussi le bruit de la variable conjuguée à la position sont comprimés simultanément. Cette compression isotrope dans un plan de phase constitue une différence importante entre le système présent, non conservatif et donc non Hamiltonien, et dont les quantités conjuguées vis-à-vis de l'énergie

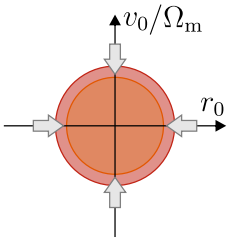


Figure 3.35 – Plan de phase (r_0, v_0) défini sur la Figure précédente 3.34 de l'oscillateur hors champ de force (ellipse rouge) et dans un champ de force rotationnel d'intensité $0.75P_{\text{thres}}$ (ellipse orange).

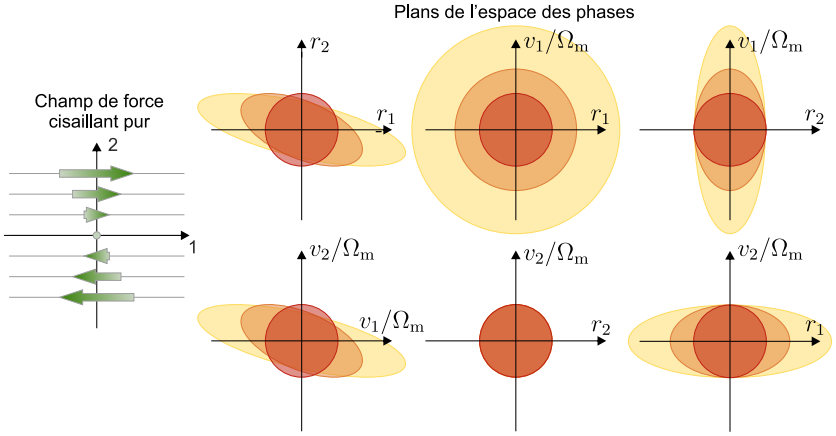


Figure 3.36 – Plans de phase de l'oscillateur de référence décrit dans le texte, hors champ de force (ellipses rouges), dans un **champ de force cisaillant pur** ($g_{21} \neq 0$) d'intensité $2\gamma P_m$ (ellipses oranges) et $4\gamma P_m$ (ellipses jaunes). Les ellipses représentent la limite à 1 écart-type des distributions de probabilité gaussiennes, de sorte que les grands axes des ellipses rouges mesurent $2\Delta x_{\text{th}}$.

n'ont plus de pertinence, et le phénomène de *squeezing* traditionnel dans lequel le bruit est systématiquement rejeté sur la quadrature conjuguée à la quadrature comprimée.

Robustesse du phénomène de compression de bruit

Dans le cas de l'oscillateur réaliste, la variance comprimée vaut au minimum 66% de sa valeur non perturbée et ce minimum est atteint à 76% de la puissance de bifurcation, dans un champ de force rotationnel pur. Les variances minimales sont largement indépendantes de la fréquence moyenne, tant que le facteur de qualité et l'écart relatif en fréquence restent fixés. Pour cette raison, on a choisi d'étudier l'évolution des variances minimales dans un champ rotationnel pur en fonction du **facteur de qualité** (1000 dans la situation canonique, Figure 3.37a), de l'**écart relatif en fréquence** (0.3% dans la situation canonique, Figure 3.37b) et de l'**importance d'une composante axiale** supplémentaire du champ de force (de type g_{11}, voir 3.37c). Enfin, on compare le cas du rotationnel pur et celui du cisaillement pur (voir 3.37d).

Cette étude permet de dégager les bonnes propriétés d'un oscillateur pour démontrer cet effet de compression de bruit :

- La diminution du facteur de qualité s'accompagne d'une diminution de la capacité de compression de bruit de l'oscillateur. Un **facteur de qualité aussi grand que possible** est donc souhaitable pour conserver le régime des fréquences résolues le plus longtemps possible. Le taux de dissipation devrait dans l'idéal être plusieurs dizaines de fois supérieur à l'écart des fréquences propres.

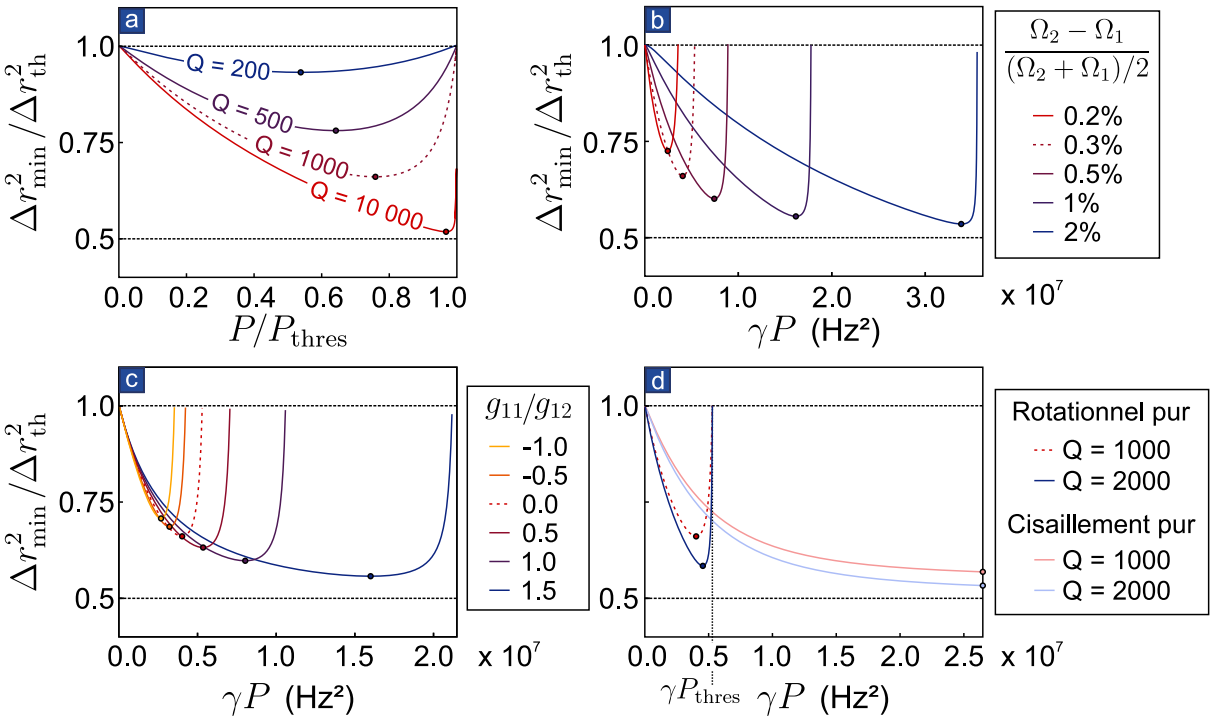


Figure 3.37 – Evolution de la variance minimale avec la puissance du champ de force pour les paramètres de références cités dans le texte d'un oscillateur réaliste, dont on a fait varier **a.** le facteur de qualité (le taux d'amortissement est recalibré pour chaque Q par $\Gamma = (\Omega_1 + \Omega_2)/2Q$, la puissance P_{thres} est inchangée pour chaque valeur de Q), **b.** l'écart relatif des fréquences (la fréquence moyenne ayant été laissée inchangée) et **c.** l'importance relative d'une composante axiale supplémentaire du tenseur gradient de force (de type g_{11}), qui a pour effet d'augmenter la puissance de bifurcation. La compression optimale est indiquée par un point sur chaque courbe. **d.** Comparaison du cas rotationnel pur et du cas cisaillement pur, pour deux facteurs de qualité. Les courbes correspondant à la situation de référence sont en pointillés sur chaque figure.

- Un grand écart entre les fréquences propres naturelles permet d'atteindre une meilleure compression, mais la puissance de seuil à laquelle est normalisée la Figure 3.37b augmente car l'oscillateur perd sa sensibilité aux composantes non-axiales du champ de force lorsqu'il s'éloigne de la dégénerescence. Or, il est préférable que ces phénomènes soient accessibles à puissance optique modérée pour éviter le chauffage parasite du nanofil. On préfèrera donc jouer sur le facteur de qualité que sur l'écart en fréquence pour favoriser la résolution des fréquences. Pour la même raison, il est également souhaitable que **la fréquence moyenne** soit **aussi basse que possible**. Un **écart relatif des fréquences entre** 0.1% **et** 0.5% est par ailleurs satisfaisant.

- La Figure 3.37c montre que les **champs de forces axiaux** peuvent augmenter ou diminuer le facteur de compression optimal selon (respectivement) qu'ils rapprochent ou éloignent les fréquences propres. Ainsi, **les configurations** $g_{11} > 0$**,** $g_{22} < 0$ **sont favorables** (l'une et l'autre ayant presque la même signature) tandis que les configurations de signe opposé sont défavorables. La puissance à laquelle le minimum est atteint est cependant augmentée pour le gradient favorable, la même limitation existe donc pour les gradients axiaux que pour l'écart des fréquences propres.

- L'avantage du **champ de force purement cisaillant** (par exemple $g_{21} \neq 0$ seulement) est qu'il permet dans toutes les configurations d'**atteindre un facteur de compression arbitrairement proche de 0.5** (dans la limite des forts champs), mais la convergence

se fait beaucoup plus lentement vis-à-vis de l'intensité du champ de force que dans un **champ de force rotationnel pur** (voir Figure 3.37d).

Discussion sur le phénomène de compression de bruit thermique

La compression du bruit de position ressemble au phénomène de *squeezing* évoqué brièvement dans le Chapitre 1, bien que la configuration expérimentale soit très différente de celle qui permet généralement l'apparition du *squeezing*. Ce paragraphe compare nos résultats théoriques à ceux des études existantes au sujet de la compression de bruit, et propose un début d'interprétation.

La compression du bruit d'une quadrature d'un oscillateur apparaît lorsque sa raideur (ou son taux d'amortissement) est modulée à **la fréquence double** de la fréquence de résonance. Dans le cas du *squeezing* mécanique, la modulation peut être implémentée par l'application d'une force extérieure de rétroaction mimant une force de rappel (ou d'amortissement) proportionnelle à la position de l'oscillateur (ou à la vitesse de celui-ci) [119], ou plus directement en agissant sur la fréquence via une non-linéarité (géométrique par exemple, comme dans le cas de la non-linéarité électromécanique [120, 121]). La compression concerne alors **une seule quadrature**, le bruit étant rejeté sur l'autre. La variance de la quadrature comprimée dans une expérience de *squeezing* paramétrique peut être diminuée jusqu'à la moitié de sa valeur.

Notons qu'il existe des techniques de *squeezing* alternatives qui permettent de comprimer un état mécanique au-delà de cette valeur. Ces techniques sont en particulier intéressantes pour **comprimer les fluctuations quantiques** d'un résonateur puisqu'il faudrait dans un schéma de compression paramétrique que l'occupation moyenne de ce résonateur soit déjà inférieure à 1 phonon avant *squeezing*, et donc qu'il soit déjà très proche de son état fondamental. Il peut s'agir par exemple de rétroagir sur la quadrature amplifiée pour la stabiliser comme dans ce travail du groupe de F. Marin [122]. A. Kronwald et des collaborateurs ont également proposé en 2013 une technique basée sur d'utilisation de deux excitations d'amplitudes et de fréquences différentes (un ton intense décalé vers le rouge par rapport à la résonance du mode dont on souhaite comprimer le bruit et un ton plus faible décalé vers le bleu). Cette technique a été utilisée dans les groupes de M. A. Sillanpää [34], K. Schwab [36] et J. D. Teufel [35], pour comprimer le bruit quantique de tambours capacitifs.

Le phénomène de *squeezing* a également été observé dans des **systèmes à deux modes** : celui-ci concerne alors **la quadrature de l'un des modes et l'autre quadrature de l'autre mode** [123, 124]. Plusieurs implémentations ont permis d'observer la version mécanique du phénomène [61, 67, 125]. Des schémas de modulation plus complexes sont également utilisés pour surpasser la limite de compression de la variance à sa valeur moitié [67] (excitation paramétrique pulsée) et ouvre la voie à l'intrication d'oscillateurs mécaniques [126].

Dans notre cas, il s'agit bien sûr de compression du bruit thermique, mais nos conclusions devraient encore être valable pour des oscillateurs ultrafroids. La question de la possibilité d'observer une telle compression des fluctuations quantiques est cependant plus complexe car elle doit prendre en compte l'action en retour de la mesure qui peut être difficile à modéliser dans notre géométrie particulière. Le système est parfaitement linéaire et n'est soumis à aucune excitation paramétrique. De manière surprenante, la compression de l'espace des phases apparaît ici à la fois et environ dans la même proportion pour une coordonnée d'espace r_0 et pour sa variable conjuguée v_0, ce qui n'arrive pas dans les schémas de *squeezing*, même à deux modes, comme nous venons de le souligner. En cela, la compression qui nous occupe se rapproche d'un refroidissement, mais la description en ces termes serait incomplète en raison de l'impossibilité de définir une température effective que nous avons déjà évoquée, et de la modification qualita-

tive forte du bruit thermique, qui donne même lieu à un courant de probabilité. Il est en outre troublant de constater que cette compression des variances semble limitée, comme dans le cas du *squeezing* par amplification paramétrique, à la moitié de leurs valeurs initiales.

Ce phénomène de compression isotrope n'est possible que grâce au caractère non-symétrique du couplage des modes assisté par la force non-conservative. A cause de ce couplage les variables conjuguées pertinentes pour le théorème fluctuation-dissipation ne le sont plus vis-à-vis de l'énergie, mais vis-à-vis d'une autre quantité [127] : celle qui apparaît dans le théorème fluctuation-dissipation alternatif présenté en Annexe D et que l'on peut nommer **entropie stochastique** [111] :

$$s = -k_B \ln p_{\rm st}(\mathbf{x}). \tag{3.85}$$

La variable conjuguée à r_β vis-à-vis de cette entropie stochastique (multipliée par T) est :

$$\tilde{p}_\beta = k_B T\, \partial_{v_\beta} \ln p_{\rm st}(\mathbf{x}), \tag{3.86}$$

L'expression analytique de cette quantité n'est pas spécialement informative. A grand facteur de qualité et dans un champ de force purement rotationnel, on calcule cependant :

$$\tilde{p}_1 = M\left(v_1 + \frac{g_{12}-g_{21}}{\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2}\, v_2\right), \quad \tilde{p}_2 = M\left(v_2 + \frac{g_{12}-g_{21}}{\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2}\, v_1\right) \tag{3.87}$$

et de manière générale

$$\tilde{p}_\beta = M\left(v_\beta + \frac{g_{12}-g_{21}}{\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2}\, v_\beta^\perp\right). \tag{3.88}$$

Cette définition réintroduit une quantité bruyante ($v_0^\perp$) dans la quantité conjuguée à r_0 pour laquelle apparaît le phénomène de compression. Elle propose donc une résolution au paradoxe précédent qui semblait autoriser la compression de bruit simultanée de deux grandeurs conjuguées. Il s'agit néanmoins d'une direction de recherche théorique et expérimentale pour la suite.

3.5.4 Rapport signal sur bruit du système hors équilibre

L'observation de la compression du bruit thermique soulève finalement la question suivante : existe-t-il un gain de sensibilité aux forces dans certaines directions (par exemple, dans les directions où le bruit est comprimé) qui pourrait être mis à profit pour la mesure de force ? Ce passage développe le calcul analytique du rapport signal-sur-bruit (ou *Signal-to-Noise Ratio*, noté aussi SNR).

On envisage la mesure dans la direction $\mathbf{e}_\beta$ d'une excitation de force d'amplitude δF appliquée dans la direction $\mathbf{e}_F$ formant un angle θ_F avec le mode 1. La mesure de la puissance du signal de réponse, proportionnel à $\delta F^2\, |\chi_{\beta F}[\Omega]|^2$, est limitée par les fluctuations Browniennes intégrées par l'appareil de mesure sur sa bande passante, la *Resolution BandWidth*, RBW. Le rapport signal-sur-bruit pour une détection de la position dans la direction de mesure $\mathbf{e}_\beta$ est alors :

$$\mathrm{SNR}_{\beta\, F}[\Omega] = \frac{\delta F\, \chi_{\beta F}[\Omega]}{S_{\beta\beta}[\Omega]\, \mathrm{RBW}}, \tag{3.89}$$

soit :

$$\mathrm{SNR}_{\beta\, F}[\Omega] = \mathrm{SNR}_0\, \frac{|\cos\theta_F A[\Omega] + \sin\theta_F B[\Omega]|^2}{|A[\Omega]|^2 + |B[\Omega]|^2} \tag{3.90}$$

avec :

$$\begin{cases} A[\Omega] & \equiv & \cos\beta(\Omega_2^2 - g_{22} - \Omega^2 - i\Omega\Gamma) + \sin\beta g_{12} \\ B[\Omega] & \equiv & \cos\beta g_{21} + \sin\beta(\Omega_1^2 - g_{11} - \Omega^2 - i\Omega\Gamma) \\ \mathrm{SNR}_0 & \equiv & \dfrac{\delta F^2}{S_{F_{\mathrm{th}}}\,\mathrm{RBW}} \end{cases} \tag{3.91}$$

SNR_0 est le meilleur rapport signal-sur-bruit que l'on obtiendrait dans le cas d'un nanofil non perturbé, atteint en mesurant dans la direction d'application de la force. Cette quantité est indépendante de la fréquence d'excitation (tant que le mouvement Brownien surpasse le bruit de mesure à cette fréquence d'excitation).

Il s'agit donc de déterminer s'il existe une orientation de mesure $\mathbf{e}_\beta$, d'excitation $\mathbf{e}_F$ ou une fréquence d'excitation $\Omega/2\pi$ qui rende le facteur devant SNR_0 dans l'équation 3.90 inférieur à 1, ou de manière équivalente, si la différence du numérateur et du dénominateur :

$$R \equiv |\cos\theta_F A[\Omega] + \sin\theta_F B[\Omega]|^2 - |A[\Omega]|^2 - |B[\Omega]|^2 \tag{3.92}$$

peut être rendue positive. Commençons par trouver l'angle optimal d'excitation en fonction des autres paramètres. La quantité R se réécrit :

$$R = -\frac{|A[\Omega]|^2 + |B[\Omega]|^2}{2} + \cos 2\theta_F \frac{|A[\Omega]|^2 - |B[\Omega]|^2}{2} + \sin 2\theta_F \,\mathrm{Re}(A^*[\Omega]B[\Omega]). \tag{3.93}$$

et présente donc des extrêma pour θ_F^{opt} tel que :

$$\tan 2\theta_F^{\mathrm{opt}} = \frac{2\mathrm{Re}(A^*[\Omega]B[\Omega])}{|A[\Omega]|^2 - |B[\Omega]|^2}, \tag{3.94}$$

la valeur extrémale étant :

$$R^{\mathrm{opt}} = \frac{1}{2}\sqrt{\left(|A|^2 - |B|^2\right)^2 + 4\mathrm{Re}^2[A^*B]\Big)^2} - \frac{|A|^2 + |B|^2}{2}. \tag{3.95}$$

En comparant les carrés des deux membre, on vérifie que $R^{\mathrm{opt}} > 0$ est équivalent à :

$$\mathrm{Re}^2[A^*B] > |A|^2|B|^2, \tag{3.96}$$

ce qui est impossible puisque $\cos\big(\arg(A) - \arg(B)\big) \leq 1$. Ainsi,

$$\mathrm{SNR}_{\beta\,F}[\Omega] \leq \mathrm{SNR}_0, \quad \forall\,\Omega,\, \mathbf{e}_\beta,\, \mathbf{e}_F. \tag{3.97}$$

En conclusion, le rapport signal-sur-bruit de la mesure de force n'est jamais meilleur pour le nanofil habillé par le champ de force non-conservatif que pour le nanofil seul, quelles que soient les orientations d'excitation et de mesure et la fréquence d'excitation. La forme explicite de A et B n'a pas été utilisée pour obtenir ce résultat, de sorte qu'il est général à tout système multidimensionnel.

Le *squeezing* dont il était question dans le précédent paragraphe s'accompagne donc d'une réduction équivalente de la susceptibilité dans la direction de la compression ($\chi_{\beta_{\mathrm{r,min}},F}$). Ainsi le phénomène ne présente pas d'intérêt pour la mesure de force (et peut même dégrader celle-ci). Il reste cependant intéressant pour la mesure de position ou de grandeurs assimilées (comme la mesure de métrique de l'espace).

3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, on a démontré la possibilité de mesurer des champs de force rotationnels grâce aux outils de mesure vectorielle développés dans le Chapitre 2. La mesure a permis de vérifier la validité de la procédure de mesure vectorielle pour cette dernière composante du champ de force qui n'avait pas été testée dans le Chapitre 2 et a donc confirmé l'universalité de la méthode.

Au delà de cette validation, nous avons montré expérimentalement que l'habillage d'un oscillateur multidimensionnel par un champ de force non-conservatif brisait l'orthogonalité des modes, qui est pourtant, hors champ non-conservatif, une propriété robuste de la classe de symétrie du système. En amenant l'oscillateur hors équilibre, la force non-conservative viole par ailleurs l'égalité du théorème fluctuation-dissipation. La puissance injectée par la force dans le nanofil est restituée au bain thermique mais cette nouvelle configuration des échanges thermiques modifie profondément l'état de vibration de l'oscillateur, qui présente désormais un large supplément de bruit. Cet état ne peut cependant pas être décrit par une température effective et un taux de dissipation effectif qui restaureraient le théorème fluctuation-dissipation, comme par exemple dans le cas de la **friction froide**, car les déformations des raies de bruit thermique et de la susceptibilité mécanique ne se suivent pas.

On a montré que ces bouleversements sont reliés à l'apparition de susceptibilités transverses aux modes propres, ou plus généralement, de susceptibilités transverses non égales. Cette constatation nous a permis de donner non seulement une expression de la correction du théorème fluctuation-dissipation hors équilibre dans notre cas, mais aussi une méthode de vérification expérimentale de la conservativité d'un système. Cette interprétation géométrique vient compléter dans la configuration des couplages non réciproques le point de vue de Harada et Sasa qui relie la violation de la relation fluctuation-dissipation à la nouvelle configuration d'échanges thermiques.

Enfin, on a montré analytiquement et numériquement que l'évolution non-Hamiltonienne d'un tel système avait pour conséquence une compression de bruit simultanée pour deux coordonnées de phase pourtant conjuguées vis-à-vis de l'énergie mécanique. Une suggestion d'interprétation à cette surprenante observation est apportée par une autre forme du théorème fluctuation-dissipation modifié (valable hors équilibre) qui implique les quantités conjuguées non pas vis-à-vis de l'énergie mécanique, mais vis-à-vis de l'entropie stochastique. La position et la vitesse ne seraient plus alors les quantités conjuguées pertinentes, ce qui expliquerait la possibilité de la compression de bruit simultanément en position et en vitesse.

L'une des perspectives à court terme de ce travail est l'observation expérimentale de cette compression de bruit. Il sera également bientôt possible de mesurer de trajectoires résolues en temps. Pour cela, le montage du Chapitre 2, plus stable et plus pratique d'utilisation que le montage du chapitre présent, a été modifié pour porter un objectif fibré à la place de la structure de champ électrostatique utilisée précédemment. Les trajectoires bidimensionnelles sont enregistrées avec une carte d'acquisition rapide et un module de boucle à verrouillage de phase, qui peut être programmé pour acquérir les quadratures de deux signaux d'entrée. La mesure de trajectoires individuelles ouvre la voie à l'exploitation de notre système pour la thermodynamique stochastique : l'observation de trajectoires d'entropie négative [111] et la vérification de théorèmes de fluctuation [110, 127] sont désormais des objectifs envisageables.

Chapitre 4

Corrélations d'intensité spatio-temporelles d'un émetteur de photons uniques en mouvement

Sommaire

4.1 La fonction d'autocorrélation d'intensité $g^{(2)}(\tau)$ 154
4.1.1 L'interféromètre de Hanbury Brown et Twiss 154
4.1.2 Formalisation des effets Hanbury Brown-Twiss 155
4.1.3 Autocorrélation de différentes sources de lumière 157
4.2 Autocorrélation de la fluorescence d'un centre NV^- 160
4.2.1 Un défaut coloré dans le diamant 160
4.2.2 Mesure de fluorescence 163
4.2.3 Mesure de la fonction d'autocorrélation 165
4.3 Montage de mesure de corrélations spatio-temporelles d'intensité 166
4.3.1 Fonctionnalisation d'un nanofil par un centre NV unique 167
4.3.2 Montage optique 167
4.3.3 Champ d'excitation 169
4.3.4 Le montage d'actionnement 170
4.4 Encodage des fluctuations thermiques sur la statistique photonique 174
4.4.1 Développement de la fonction de corrélation 174
4.4.2 Autocorrélation temporelle de l'intensité 177
4.4.3 Corrélation spatio-temporelle de l'intensité 179
4.5 Mesure optique de fluctuations de position à faible nombre de photons 181
4.5.1 Principe et optimisation 181
4.5.2 Mesure de densité spectrale en régime de photons uniques 183
4.6 Conclusion 185

L'un des objectifs du développement récent des systèmes hybrides mécaniques [30, 128–137] est de créer et d'explorer des états non-classiques du mouvement d'objets macroscopiques. Ces systèmes combinent deux briques élémentaires : un oscillateur mécanique et un système quantique à deux niveaux. Dans un système hybride mécanique archétypique, l'évolution quantique du système à deux niveaux s'imprime sur celle du résonateur macroscopique et, à l'inverse, la dynamique de l'oscillateur s'imprime sur celle du qubit. Or le couplage entre ces deux objets très différents est peu favorisé : l'optimisation des systèmes hybrides mécaniques passe alors à la fois par la maximisation de ce couplage et par la réduction de la masse du résonateur mécanique pour rendre le qubit plus sensible à la dynamique de ce dernier. La réduction de

la masse s'accompagne cependant d'une diminution de l'interaction avec les sondes habituelles du mouvement opto- ou électro-mécaniques. De nouvelles stratégies de lecture du mouvement sont alors nécessaires dans ces régimes d'interaction faible entre un résonateur mécanique et une sonde de son mouvement.

Il a été établi dans les derniers chapitres que les nanofils de SiC présentaient une sensibilité extrême aux champs de force extérieurs : ils constituent donc un choix de premier plan pour être intégrés dans un système hybride. En 2011, notre équipe a fait la démonstration qu'ils pouvaient être couplés avec succès à un spin électronique unique [71] : celui d'un défaut coloré du diamant appelé centre NV, attaché à l'extrémité d'un nanofil. En effet, la signature de la dynamique de ce nanofil a été observée sur l'évolution de la population du qubit de spin. L'observation de l'autre versant du couplage, c'est-à-dire d'états non-classiques du mouvement engendrés par le couplage à un objet d'évolution quantique, est l'une des thématiques de l'équipe. Elle nécessite de pouvoir détecter de très faibles forces : c'est ce qui a motivé les études présentées aux chapitres précédents.

Dans ce chapitre, on revient sur ce système pour en proposer une étude purement photophysique à travers la mesure de l'autocorrélation d'intensité de la fluorescence du centre NV, qui se comporte également comme un émetteur de photons uniques. La mise en mouvement de cet émetteur module ses capacités d'excitation et d'émission de photons au cours du temps et dans l'espace. Un dispositif de mesure d'autocorrélation d'intensité traditionnel est alors adapté pour mesurer la corrélation *spatio*-temporelle d'intensité à l'instar de l'expérience initiale de R. Hanbury Brown et R. Q. Twiss [138]. Pour mettre en lumière la forte similarité avec cette expérience, la première section dresse un bref historique de la mesure de l'autocorrélation d'intensité et donne les signatures de quelques émetteurs archétypiques. La deuxième section présente l'émetteur quantique, c'est-à-dire le centre NV, et la mise en œuvre de la mesure de l'autocorrélation de sa fluorescence. La troisième section détaille la méthode de fabrication d'un nanofil portant un centre NV et le montage expérimental qui permet de mesurer ces corrélations spatio-temporelles. Pour explorer tous les régimes de diffusion, on autorise l'extension des trajectoires à se comparer aux autres dimensions caractéristiques du système - notamment, la taille transverse du volume de détection - en exacerbant activement le mouvement Brownien du nanofil. La quatrième partie formalise l'encodage de ces fluctuations thermiques de position sur la fonction d'autocorrélation d'intensité mesurée et y confronte les observations dans deux configurations particulières du montage expérimental, avec un excellent accord. Enfin, ces observations conduisent à envisager une stratégie de détection des fluctuations de position dans le régime des très petits flux de photons, ce qui sera le sujet de la cinquième et dernière section. Le principe en est démontré grâce à l'émetteur quantique qui n'émet effectivement en moyenne que très peu de photons par période mécanique (et surtout, comme nous le verrons, moins d'un photon par durée de décohérence mécanique), mais il sera montré que cette mesure est directement adaptable aux résonateurs légers et peu couplés à la lumière tels que les nanotubes de carbone ou les membranes de graphène, et plus généralement aux expériences ne pouvant supporter des flux de photons élevés, notamment celles ayant lieu en environnement cryogénique.

4.1 La fonction d'autocorrélation d'intensité $g^{(2)}(\tau)$

4.1.1 L'interféromètre de Hanbury Brown et Twiss

En 1956, R. Hanbury Brown et R. Q. Twiss présentent une mesure du diamètre angulaire de Sirius A, l'étoile la plus brillante de la constellation du Grand Chien : $0.0063''$ [139], très proche de la valeur actuelle : $0.00593'' \pm 0.00016''$ estimée en 2003 [140] grâce aux données du

Very Large Telescope, VLT, fonctionnant en mode interféromètre.

L'appareil de mesure utilisé par R. Hanbury Brown et R. Q. Twiss en 1956 est couramment appelé **interféromètre de Hanbury Brown et Twiss** [141, 142], mais ses inventeurs ont également proposé le nom d'**interféromètre d'intensité** car il ne mesure pas d'interférence de phase. Il comporte deux voies de mesure de l'intensité des ondes radiofréquences ou optiques. L'un des deux dispositifs de mesure est monté sur un rail, ce qui permet de modifier arbitrairement la **ligne de base**, c'est-à-dire la distance entre les volumes de l'espace observés par les deux détecteurs. La **corrélation croisée des fluctuations des intensités** incidentes sur ces détecteurs est calculée de manière analogique. En pointant initialement les deux détecteurs sur Sirius et en augmentant progressivement la ligne de base, Hanbury Brown et Twiss observent une chute de cette corrélation à cause de la séparation spatiale progressive des volumes observés par les deux photodétecteurs. Dans le cas de la mesure d'une étoile visible, le diamètre apparent de l'étoile est largement plus petit que l'ouverture angulaire du volume de collection et la ligne de base critique est déterminée par la taille de la source. Hanbury Brown et Twiss ont également réalisé en 1956 une expérience de laboratoire reproduisant leur dispositif en plus petit [138] (voir Figure 4.1), avec une source suffisamment étendue (une lampe à arc en vapeur de mercure) pour que la ligne de base critique soit la taille des volumes mesurés et non celle de la source.

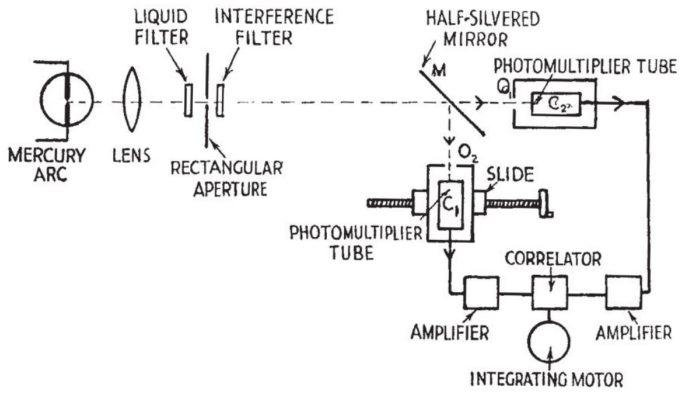


Figure 4.1 – Figure tirée de [138] : schéma de l'expérience de laboratoire de 1956 de Hanbury Brown et Twiss, qui permet de mesurer la corrélation spatiale d'une source étendue.

Hanbury Brown et Twiss mettent alors en évidence l'excès d'autocorrélation à ligne de base ou délai nul des sources thermiques de lumière. A la suite de ce travail, le phénomène de la corrélation (à ligne de base nulle) des sources lumineuses thermiques monochromatiques est relié par R. J. Glauber dans les années 1960 [143] à la nature bosonique des photons. T. Jeltes et des collaborateurs [144] montrent en 2007 que le phénomène analogue pour des particules fermioniques est un défaut de corrélation à trajectoires équivalentes au lieu d'un excès de corrélation (voir Figure 4.2). Ils utilisent pour cela deux isotopes de l'Hélium : des nuages d'atomes froids de ^{4}He et de ^{3}He, relâchés de leur piège magnétique sur une plaque CCD qui mesure la corrélation spatiale des flux d'atomes.

4.1.2 Formalisation des effets Hanbury Brown-Twiss

Dans un formalisme universel développé dans [145] par L. Mandel et E. Wolf, la fonction d'autocorrélation d'intensité s'exprime en fonctions des opérateurs champ électrique :

$$\hat{E}^-(\mathbf{r},t) = \sum_k \varepsilon_k \, \hat{a}_k^\dagger e^{i(\omega_k t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r})}, \qquad \hat{E}^+(\mathbf{r},t) = \sum_k \varepsilon_k \, \hat{a}_k e^{-i(\omega_k t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r})} \tag{4.1}$$

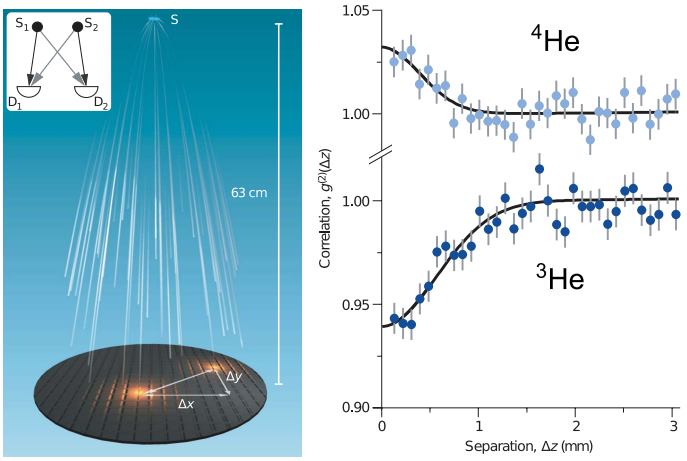


Figure 4.2 – Figure tirée de [144] : schéma du dispositif expérimental à gauche et corrélation spatiale mesurée à droite, montrant un profil de groupement d'atomes pour ^{4}He et un profil de dégroupement pour ^{3}He à trajectoires équivalentes.

où k indice les modes du champs électromagnétique, ε_k est le volume du mode k, ω_k la pulsation associée et $\hat{a}_k, \hat{a}_k^\dagger$ les opérateurs création et annihilation d'un photon, qui vérifient les relations de commutation habituelles des bosons : $[\hat{a}_k, \hat{a}_{k'}^\dagger] = \delta(k-k')$, $[\hat{a}_k, \hat{a}_{k'}] = 0$ et $[\hat{a}_k^\dagger, \hat{a}_{k'}^\dagger] = 0$. La corrélation des intensités mesurées, pour l'une, en $\mathbf{r}_1$ à l'instant t, et pour l'autre, en $\mathbf{r}_2$ à l'instant $t+\tau$, vaut alors :

$$g^{(2)}(\tau, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1,t)\hat{E}^-(\mathbf{r}_2,t+\tau)\hat{E}^+(\mathbf{r}_2,t+\tau)\hat{E}^+(\mathbf{r}_1,t)\rangle}{\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_1,t)\hat{E}^+(\mathbf{r}_1,t)\rangle\langle \hat{E}^-(\mathbf{r}_2,t)\hat{E}^+(\mathbf{r}_2,t)\rangle}, \tag{4.2}$$

où $\langle A \rangle$ est la moyenne sur l'état du champ. Le temps et l'espace jouent donc un rôle très similaire dans cette fonction de corrélation. On ne va d'abord s'intéresser qu'aux fonctions d'autocorrélation au même point.

Pour un champ monochromatique $\hat{a}, \hat{a}^\dagger$, la seule contribution de chaque opérateur de champ dans l'équation précédente est un opérateur $\hat{a}^\dagger$ ou $\hat{a}$ et on a, à tous les délais τ [146, 147] :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}\rangle}{\langle \hat{a}^\dagger\hat{a}\rangle^2} = 1 + \frac{\Delta n^2 - \langle \hat{n}\rangle}{\langle \hat{n}\rangle^2} \tag{4.3}$$

où $\hat{n} = \hat{a}^\dagger\hat{a}$ et $\Delta n = \sqrt{\langle \hat{n}^2\rangle - \langle \hat{n}\rangle^2}$. On voit donc apparaître une relation entre la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\tau)$ et les fluctuations d'intensité Δn. Pour un champ non monochromatique, ce résultat n'est a priori plus valable, mais il reste valable *à délai τ nul* où les évolutions à différentes fréquences ne brouillent pas le résultat de l'autocorrélation, soit :

$$g^{(2)}(0) = 1 + \frac{\Delta n^2 - \langle \hat{n}\rangle}{\langle \hat{n}\rangle^2}. \tag{4.4}$$

Il est cependant possible de calculer l'évolution temporelle de la fonction d'autocorrélation en faisant l'hypothèse que les champs présentent des fluctuations gaussiennes [145]. Notons que les états de Fock ne rentrent pas dans cette définiton. Cette hypothèse permet d'utiliser une formule de réduction des espérances à plusieurs (4) variables en espérances à 2 variables (formule de Wick), de sorte que la formule de la fonction d'autocorrélation 4.2 devient après calculs [148] :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2. \tag{4.5}$$

où on a fait apparaître la **fonction d'autocorrélation d'ordre 1** :

$$\mathrm{g}^{(1)}(\tau) = \frac{|\langle \hat{E}_1^- \hat{E}_2^+ \rangle|}{\sqrt{\langle \hat{E}_1^- \hat{E}_1^+ \rangle \langle \hat{E}_2^- \hat{E}_2^+ \rangle}}. \tag{4.6}$$

Or, cette fonction d'autocorrélation temporelle est, par définition, la transformée de Fourier (normalisée) du spectre de la source. Le temps d'effondrement de la fonction d'autocorrélation est donc anti-corrélé à la largeur spectrale de la source.

4.1.3 Autocorrélation de différentes sources de lumière

Sources thermiques

Une source thermique (monochromatique) typique est le corps noir qui a pour matrice densité :

$$\hat{\rho}_{\mathrm{th}} = 2\,\mathrm{sh}\Big(\frac{\hbar\omega}{2k_BT}\Big) \sum_n e^{-\frac{\hbar\omega}{k_BT}\left(n+\frac{1}{2}\right)} |n\rangle\langle n| \quad \rightarrow \quad \langle \hat{n} \rangle = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_BT}} - 1},\ \Delta n^2 = \frac{1}{4}\frac{1}{\mathrm{sh}^2\Big(\frac{\hbar\omega}{2k_BT}\Big)} \tag{4.7}$$

et donc d'après l'équation 4.4 :

$$\mathrm{g}^{(2)}_{\hat{\rho}_{\mathrm{th}}}(0) = 1 + \frac{\Delta n^2 - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 2. \tag{4.8}$$

La fonction $\mathrm{g}^1(\tau)$ s'effondre ensuite en un temps inversement proportionnel à la largeur du spectre. D'après l'équation 4.5, la fonction $\mathrm{g}^2(\tau)$ tend alors vers 1. Il en résulte un profil particulier que l'on appelle *bunching* ou **groupement de photons**, car il représente la tendance des photons dans un état thermique à arriver groupés par paquets de plusieurs sur les détecteurs, plutôt que séparés ou de manière incorrélée.

L'une des premières mesures du *bunching* à partir de la fonction d'autocorrélation *temporelle* a été publiée par B. L. Morgan et L. Mandel en 1966 [149] en utilisant une lampe à arc de mercure car il s'agit de l'une des sources les plus monochromatiques parmi les sources thermiques disponibles à l'époque. Plus récemment, le groupe de C. Fabre a réalisé une mesure du *bunching* sur des sources beaucoup plus étendues spectralement [150] : un corps noir à 3000 K et une source à émission spontanée amplifiée, ce qui nécessite des techniques d'acquisition beaucoup plus rapides.

Sources cohérentes

Un état cohérent, parfaitement monochromatique, tel celui produit par un laser, s'écrit comme une superposition quantique d'états de Fock avec des poids tels que la statistique $P(n)$ du nombre de photons n est Poissonienne :

$$|\alpha\rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_n \frac{\alpha^n}{n!}|n\rangle, \quad P(n) = |\langle n|\alpha\rangle|^2 = e^{-|\alpha|^2}\frac{|\alpha|^{2n}}{n!} \tag{4.9}$$

On a alors :

$$\langle \hat{n} \rangle = |\alpha|^2, \quad \Delta n^2 = |\alpha|^2 \quad \rightarrow \quad \mathrm{g}^{(2)}_{|\alpha\rangle}(0) = 1 + \frac{\Delta n^2 - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 1. \tag{4.10}$$

La fonction d'autocorrélation d'une source cohérente est ainsi une fonction constante égale à 1.

Sources quantiques

Une source de photons uniques émet l'état de Fock $|1\rangle$, pour lequel $\Delta n = 0$. la formule 4.4 donne donc :

$$g^{(2)}_{|1\rangle}(0) = 1 + \frac{\Delta n^2 - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 0. \tag{4.11}$$

Ce résultat caractérise l'impossibilité de mesurer deux photons au même instant puisque les photons sont émis un par un : ce phénomène est appelé *antibunching* ou **dégroupement de photons**. A temps non nuls, l'autocorrélation croît avec la probabilité que la source émette un nouveau photon et tend vers 1 à temps long, la source perdant la mémoire de la première émission. A faible excitation, la fonction d'autocorrélation temporelle d'une source quantique est donc typiquement de la forme :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-t/\tau} \tag{4.12}$$

avec τ la durée de vie de la source. Le défaut de corrélation à temps court est donc la signature expérimentale du phénomène d'*antibunching*.

Ce résultat est impossible à obtenir à partir de la définition classique de l'autocorrélation d'intensité définie par :

$$g^{(2)}_{\text{classique}}(\tau) \equiv \frac{\overline{I(t)I(t+\tau)}}{\overline{I(t)}^2} \tag{4.13}$$

où $\overline{A(t)}$ représente la moyenne temporelle de $A(t)$. $|\overline{A(t)}|$ est une norme sur l'espace des fonctions du temps t donc vérifie une relation de Cauchy-Schwarz : $|\overline{I(t)I(t+\tau)}| \leq |\overline{I(t)}||\overline{I(t+\tau)}|$, soit (en utilisant la stationnarité et la positivité de I) :

$$g^{(2)}_{\text{classique}}(\tau) \leq g^{(2)}_{\text{classique}}(0). \tag{4.14}$$

La mesure d'une corrélation inférieure à 1 à temps nul ne peut être modélisée dans le formalisme classique.

Ce sont H. J. Kimble, M. Dagenais et L. Mandel [151] qui ont pour la première fois observé et identifié l'*antibunching* d'une source de photons uniques en 1977. Un schéma de leur expérience en Figure 4.3a montre la source de photons "uniques" utilisée (un jet d'atome de sodium traversant un laser d'excitation et atténué pour qu'un seul atome contribue au champ à chaque instant). L'effondrement de la corrélation en Figure 4.3b après 25 ns est dû à la sortie des émetteurs du volume de détection.

Lame séparatrice

L'existence d'un temps mort après détection d'un photon sur les photodétecteurs les rendent insensibles aux éventuelles arrivées de photons à court délai après une première arrivée détection. L'utilisation de **deux détecteurs** et d'une lame séparatrice permet de s'affranchir de cette limitation (voir par exemple le schéma de la Figure 4.3a).

Ce dispositif à deux ports d'entrée a, b et deux ports de sortie c, d (voir Figure 4.4) ne perturbe pas la mesure de la fonction d'autocorrélation. Par exemple, si la source de photons uniques émet dans le port a (soit l'état $|1\rangle_a$), on obtient en sortie de la lame séparatrice l'état intriqué :

$$|1\rangle_a \otimes |0\rangle_b = \hat{a}^\dagger |0\rangle \to \frac{\hat{c}^\dagger - \hat{d}^\dagger}{\sqrt{2}}|0\rangle = \frac{|1\rangle_c \otimes |0\rangle_d - |0\rangle_c \otimes |1\rangle_d}{\sqrt{2}} \tag{4.15}$$

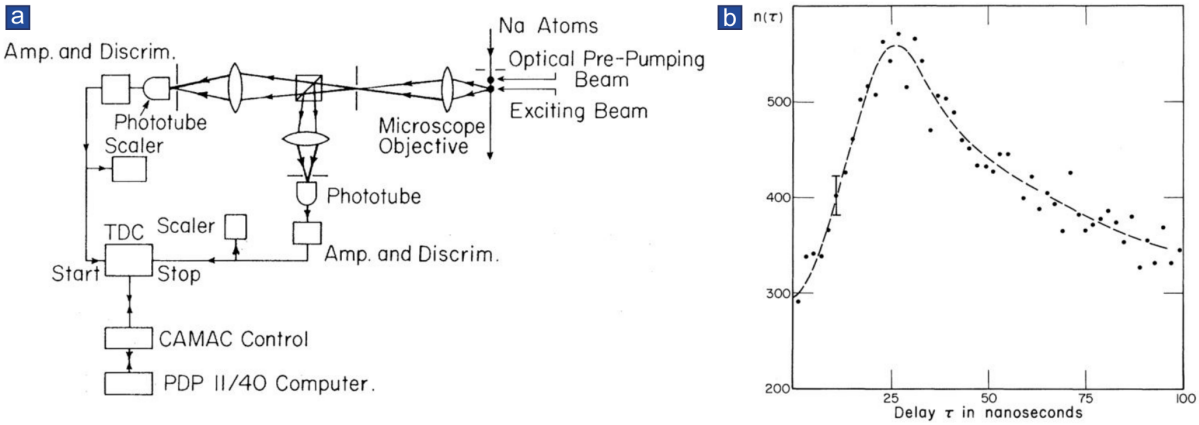
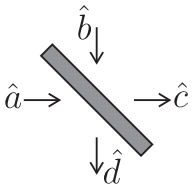


Figure 4.3 – Figures tirées de [151] : schéma du dispositif expérimental à gauche et corrélation temporelle mesurée à droite, montrant un profil d'*antibunching* à délai nul, en contradiction avec la prédiction classique $g^{(2)}(\tau) < g^{(2)}(\tau)(0)$.



$$\begin{pmatrix}\hat{c}\\ \hat{d}\end{pmatrix} = S\begin{pmatrix}\hat{a}\\ \hat{b}\end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix}1 & 1\\ -1 & 1\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat{a}\\ \hat{b}\end{pmatrix}$$

Figure 4.4 – Modélisation d'une lame séparatrice de flux équilibrée, c'est-à-dire qu'elle transmet autant de lumière qu'elle n'en réfléchit.

La fonction d'autocorrélation à délai nul vaut :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{d}^\dagger \hat{c}^\dagger \hat{c}\hat{d}\rangle}{\langle \hat{d}^\dagger \hat{d}\rangle \langle \hat{c}^\dagger \hat{c}\rangle} \tag{4.16}$$

soit $g^{(2)}(0) = 0$. Ce résultat est identique à celui qui aurait été mesuré avec un seul détecteur sans temps mort pour l'état entrant par le port a. Il amène en outre un autre éclairage sur le phénomène d'*antibunching* : chaque photon émis ne peut être détecté que sur une seule des deux voies de mesure c ou d, ce qui résulte en $g^{(2)}(0) = 0$. Ce dispositif expérimental permet donc d'identifier et de caractériser des sources de photons uniques.

Effet d'un bruit de fond

On suppose que l'émetteur de photons uniques produit des photons $\hat{a}_1$ dans le port a, mais qu'un bruit de fond parasite Poissonien non corrélé avec le signal [152] $D_{a_2}(\alpha) \equiv e^{\alpha\hat{a}_2^\dagger - \alpha^*\hat{a}_2}$ rentre également par ce port qui voit finalement l'état $\hat{a}_1^\dagger D_{a_2}(\alpha)|0\rangle$. Comme dans le cas précédent, la présence de la lame séparatrice ne change pas le résultat de l'autocorrélation : on peut trouver l'expression du champ en fonction des opérateurs d'échelles associés aux ports c et d, ou directement calculer l'autocorrélation pour l'état entrant dans le port a. On trouve :

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{(1+\overline{n})^2} \tag{4.17}$$

où la valeur $\overline{n} = |\alpha|^2$ est l'intensité du bruit en termes de nombre de photons. Ainsi en présence d'un bruit de fond incorrélé à la source de photons uniques, le profil d'*antibunching* n'atteint pas la valeur 0 mais est d'autant moins profond que le bruit de fond est important.

Plusieurs émetteurs de photons uniques

Il arrive souvent que plusieurs émetteurs $\hat{a}_1 ... \hat{a}_N$ se retrouvent dans le volume de détection d'un montage expérimental. On les suppose incorrélés. Encore une fois, la présence de la lame séparatrice ne change pas le résultat. Dans le cas où les émetteurs sont détectés avec la même efficacité, on trouve :

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{N}. \tag{4.18}$$

L'*antibunching* est d'autant moins profond qu'il y a d'émetteurs. En particulier, deux émetteurs mesurés avec les mêmes efficacités de détection entraînent $g^{(2)}(0) = 0.5$. On considère en général que $g^{(2)}(0) < 0.5$ est la signature de la présence d'*un seul* émetteur de photons uniques dans le volume de collection, la corrélation résiduelle pouvant être attribuée par exemple à un bruit de fond.

4.2 Autocorrélation de la fluorescence d'un centre NV$^-$

Dans cette section, on présente l'émetteur quantique utilisé dans l'expérience : le centre coloré NV$^-$ (Nitrogen Vacancy defect) composé d'un atome d'azote substitutionnel et d'une lacune dans un des sites voisins normalement occupé par un autre atome de carbone. Dans cette thèse, on a travaillé avec des **nanocristaux de diamant** contenant ce type de défaut cristallin coloré. Le spectre du centre NV est d'abord exposé avec le niveau de détail adéquat pour la compréhension des travaux présentés. Sans considération de spin, ce spectre peut être simplifié en un modèle à 3 niveaux qui décrit convenablement le comportement photophysique du centre coloré, ainsi que cela sera ensuite démontré. Enfin, cette section décrit le montage de mesure de la fluorescence du centre NV et celui de son autocorrélation.

4.2.1 Un défaut coloré dans le diamant

Structure du centre NV

Le centre NV est un défaut dans le réseau cristallin d'atomes de carbone du diamant, constitué d'un atome d'azote substitutionnel et d'une lacune créée par l'absence d'un atome de carbone voisin, comme illustré Figure 4.5a. Le centre NV a donc la géométrie d'un tétraèdre dont un axe (celui reliant la lacune V à l'atome d'azote N) est particularisé.

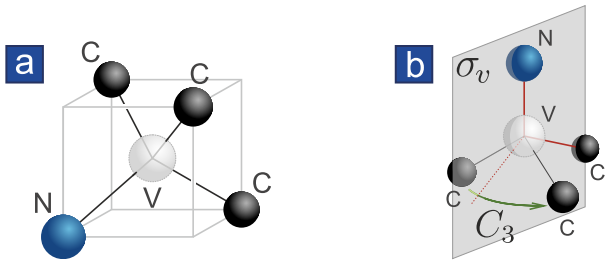


Figure 4.5 – **a.** Schéma du centre NV dans la maille cristalline de diamant. **b.** Mise en évidence de la géométrie tétraédrique du centre NV. On a représenté en gris l'un des trois plans de symétrie noté σ_v (contenant les axes repassés en rouge) et la rotation d'angle $2\pi/3$ notée C_3.

Les électrons mis en jeu par les atomes du centre NV sont au nombre de 5. Si la popuplation électronique se limite à ces 5 électrons, il s'agit d'un centre neutre noté NV^0, mais il arrive très fréquemment que le centre capture un électron supplémentaire, ce qui en fait un centre chargé négativement NV$^-$ à **6 électrons**. Ce défaut cristallin est le plus fréquemment utilisé et étudié :

on l'appellera désormais simplement "centre NV" sans préciser sa charge.

Les termes spectraux du centre NV$^-$ peuvent être calculés à partir de la connaissance de son groupe de symétrie (C_{3v}), ils sont donnés classés en énergie sur la Figure 4.6a. Le centre NV est un **système de spin global 1**. L'état fondamental est un **triplet de spin**, dont on verra que la dégénerescence est légèrement levée. Il existe aussi un **niveau excité de spin 1** : deux fonctions orbitales dégénérées (dont la fonction de spin est toujours un triplet). Ce niveau excité est accessible à partir de l'état fondamental par des transitions optiques préservant le spin. Enfin, il existe un **système de niveaux de spin global 0**.

Fluorescence

Le centre NV a été découvert [153, 154] et étudié d'abord en tant que source fluorescente très brillante. Le niveau fondamental de spin 0 et le niveau excité de spin 1 sont couplés par une transition optique dont la **ZPL** (Zero-Phonon Line), c'est-à-cire le pic intense dans le spectre d'émission ou d'absorption, se situe autour de 637 nm. Cette ZPL, aussi bien dans le spectre d'absorption que dans le spectre d'émission, est accompagnée d'une **bande phononique** (*phonon sideband*), visible sur le spectre présenté en Figure 4.6c, qui traduit la présence d'une continuité de niveaux d'énergie vibrationnels pour chaque niveau électronique.

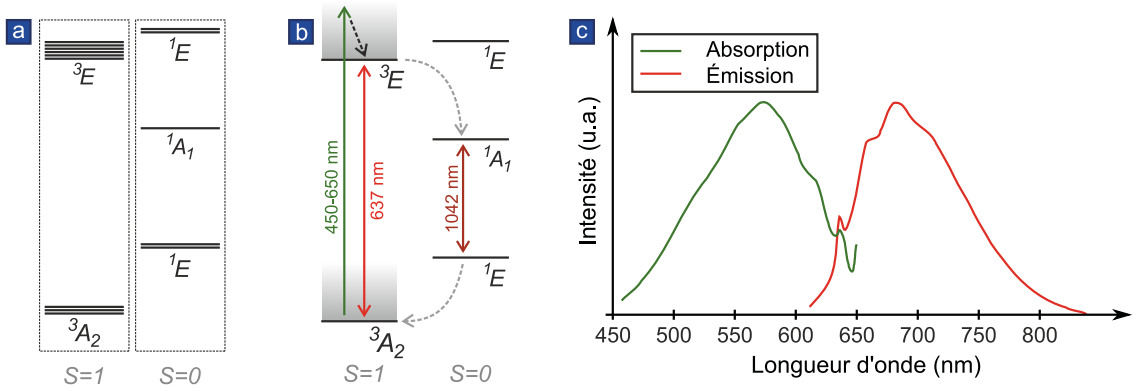


Figure 4.6 – **a.** Spectre du centre NV obtenu à partir de l'Hamiltonien Coulombien uniquement. **b.** Représentation simplifiée des transitions entre niveaux électroniques et vibrationnels. Traits pleins de couleur : transitions optiques, traits noirs pointillés : transitions non-radiatives, traits gris pointillés : conversion inter-système (ISC : InterSystem Crossing). **c.** Spectres d'absorption et d'émission du centre NV à température ambiante tirés de [155].

La bande phononique dans le spectre d'absorption traduit la possibilité d'exciter le centre NV de manière **non-résonante** (flèche verte de la Figure 4.6b) avec un photon d'énergie supérieure à celle de la ZPL, par exemple avec de la lumière verte. Il s'ensuit une désexcitation (flèche en pointillés noirs de la Figure 4.6b) très rapide (durée : quelques picosecondes) vers le niveau excité à zéro phonon. La désexcitation peut alors se faire soit par une deuxième transition optique produisant une lumière de **fluorescence rouge**, soit par une désexcitation via le système de spin 0. Si la **désexcitation** est **optique** (flèche rouge sur la Figure 4.6b) elle peut se faire directement vers l'état fondamental à zéro phonon ou vers un niveau vibrationnel excité, c'est-à-dire que le photon émis peut avoir une énergie inférieure à celle de la ZPL à 637 nm, ce qui engendre la bande phononique du spectre d'émission entre 640 nm et 840 nm. L'absorption et la fluorescence donnent une coloration rosée aux diamants contenant des centres NV, mais celle-ci est généralement masquée par une coloration jaune plus intense (voir Figure 4.7) due à la présence d'atomes d'azote substitutionnels, fréquents dans les diamants par ailleurs riches en centres NV. Enfin notons que, le niveau excité correspondant à une paire de fonctions orbitales, la transition

optique est en réalité associée à deux dipôles optiques perpendiculaires à l'axe N-V du centre. Ce dédoublement de la transition optique n'est pas résolu à température ambiante.

Figure 4.7 – Extrait d'une collection de diamants étudiés dans la thèse de T. Hainschwang [156], tous classés comme diamants de type Ib, typiquement riches en azote et donc en centres NV.

La désexcitation du centre NV peut également se faire en passant par le système de niveaux de spin 0, via des transitions non-radiatives et ne conservant pas le spin du centre NV appelées **ISC** (*InterSystem Crossing*), assistées par exemple par les couplages électron-phonon et spin-orbite. Cette voie de désexcitation implique également une transition optique dans l'infrarouge entre les niveaux de spin 0, mais les couplages non-radiatifs étant bien plus faibles que les couplages dipolaires, cette voie de désexcitation est finalement plus lente que la voie purement radiative. Dans la suite, on assimilera alors le système de spin 0 entier à un niveau unique de durée de vie plus importante que celle associée à la transition optique principale.

Modèle photophysique à 3 niveaux

Dans l'expérience qui nous occupe, on s'intéresse à la transition optique principale des niveaux fondamentaux aux niveaux excités, et l'expérience ayant lieu à température ambiante, on ne résout pas les orientations individuelles des dipôles optiques perpendiculaires à l'axe N-V. Sous ces hypothèses, le centre NV peut être envisagé comme un système à 3 niveaux [157] schématisé sur la Figure 4.8, le système de spin 0 étant collectivement représenté par un unique niveau métastable. La flèche verte représente l'excitation optique non résonante, affectée d'un taux de transition proportionnel à l'intensité optique de pompe vue par le centre NV, la flèche rouge représente la désexcitation spontanée de taux Γ_0 qui s'accompagne de l'émission d'un photon rouge (637 nm).

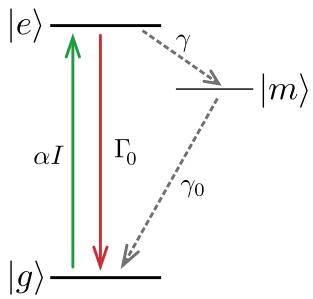


Figure 4.8 – Représentation schématique du système simplifié à 3 niveaux qui modélise la photophysique du centre NV.

On introduit les populations des trois niveaux fondamental σ_g , excité σ_e et métastable σ_m, vérifiant $\sigma_g + \sigma_e + \sigma_m = 1$. La dynamique photophysique du centre NV est alors régie par l'équation de Bloch optique [158] :

$$\begin{pmatrix} \dot{\sigma}_g(t) \\ \dot{\sigma}_e(t) \\ \dot{\sigma}_m(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\alpha I & \Gamma_0 & \gamma_0 \\ \alpha I & -\Gamma_0 - \gamma & 0 \\ 0 & \gamma & -\gamma_0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \sigma_g(t) \\ \sigma_e(t) \\ \sigma_m(t) \end{pmatrix} \tag{4.19}$$

Des ordres de grandeurs des taux de transitions sont donnés par exemple dans la thèse d'A. Beveratos [152] : $\Gamma_0^{-1} \simeq 12\,\text{ns}$ (et $\simeq 25\,\text{ns}$ dans un nanocristal), $\gamma^{-1} \sim 185\,\text{ns}$, $\gamma_0^{-1} \sim 430\,\text{ns}$,

et $\alpha = 1.33\,.10^7\,\mathrm{s}^{-1}/\mathrm{mW}$, mais il a été observé que ces taux varient d'un nanocristal à l'autre et doivent être ajustés pour chaque émetteur. L'état stationnaire du système 4.19 est :

$$\begin{cases} \sigma_g^\infty = \dfrac{\gamma_0(\gamma+\Gamma_0)}{\gamma_0(\gamma+\Gamma_0)+\alpha I(\gamma+\gamma_0)} \\ \\ \sigma_e^\infty = \dfrac{I\alpha\gamma_0}{\gamma_0(\gamma+\Gamma_0)+\alpha I(\gamma+\gamma_0)} \end{cases} \tag{4.20}$$

La population de l'état excité varie donc linéairement avec l'intensité de pompe à faible intensité, puis y devient moins sensible au-delà de l'intensité de saturation :

$$I_{\mathrm{sat}} \equiv \frac{\gamma_0(\gamma+\Gamma_0)}{\alpha(\gamma+\gamma_0)}. \tag{4.21}$$

On définit le paramètre de saturation $s = I_{\mathrm{sat}}/I$. Les populations à l'équilibre s'écrivent alors simplement :

$$\sigma_g^\infty = \frac{1}{1+s}, \qquad \sigma_e^\infty = \frac{\gamma+\gamma_0}{\gamma_0}\frac{s}{1+s} \tag{4.22}$$

4.2.2 Mesure de fluorescence

Éclairé par une lumière non résonante verte (532 nm), le centre NV produit donc un signal de fluorescence rouge dont le flux maximal est de 1 photon toutes les 12 ns, ce qui correspond à une puissance optique de 26 pW. La mesure de la fluorescence couplée à des balayages de la position de l'échantillon permet localiser un centre NV sur un échantillon. Un échantillon portant un centre NV est pour cela monté derrière un objectif de microscope 100x identique à celui utilisé dans le Chapitre 2, d'ouverture numérique NA = 0.75, qui réalise à la fois la focalisation du laser d'excitation vert et la collection de la fluorescence rouge propagée en arrière.

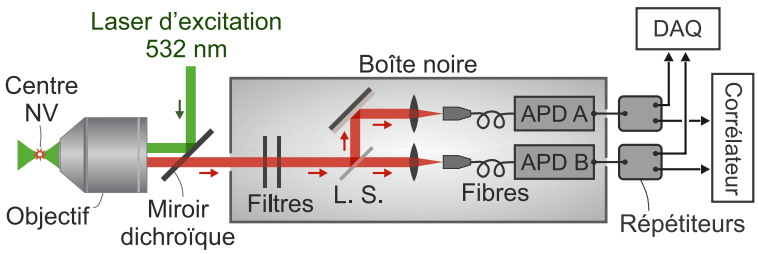


Figure 4.9 – Montage simplifié de mesure de la fluorescence et de l'autocorrélation d'intensité. L.S. = Lame Séparatrice.

Cependant, le centre NV émet des photons de fluorescence dans toutes les directions - de manière seulement moins efficace dans les directions de chaque dipôle électrique où seul l'autre dipôle contribue - alors que l'angle solide de collection n'est que de 0.34π stéradians, soit 17% des 4π de l'angle solide d'émission. Ainsi le flux moyen maximal pouvant être observé avec l'objectif utilisé est seulement de 7 MHz. L'efficacité de collection est encore réduite par les pertes optiques, de sorte que les flux maximaux effectivement détectés sur le montage sont de l'ordre de 200 kHz pour un seul centre NV, ce qui ne correspond plus qu'à 63 fW. La détection de ce faible taux de fluorescence requiert quelques précautions pour s'affranchir des parasites lumineux :

- les expériences sont réalisées dans le noir, et des boîtes sont construites autour du trajet de la fluorescence pour réduire la luminosité parasite. Les interstices sont comblés avec de la mousse d'emballage, les reflets dans les boîtes sont évités en utilisant si possible des objets noirs et mats.

- tous les miroirs employés sur le trajet du laser d'excitation intense sont diélectriques (et non métalliques) pour éviter que la fluorescence du métal ne s'ajoute à celle du centre NV. Cette contrainte est levée sur le trajet optique de la fluorescence seule.

- la lumière d'excitation verte est soigneusement filtrée (voir description complète du montage) pour ne pas polluer la mesure de fluorescence.

La fluorescence est mesurée par des **modules compteurs de photons** (ou SPCM, *Single Photon Counting Modules*) basés sur le principe des **photodiodes à avalanche** (Avalanche PhotoDiode), que l'on appellera APD dans la suite. Ces détecteurs sont capable de détecter un unique photon avec une efficacité quantique de l'ordre de 60% dans le rouge, et produisent alors une impulsion de tension d'une durée de 20 ns et d'une amplitude de 3 V. Le détecteur met ensuite 30 ns de plus à rétablir sa capacité de détection. Le bruit électronique (*dark noise*) des détecteurs utilisés, montés dans une boîte fermée pour diminuer la luminosité ambiante, a été mesuré autour de 50 coups par seconde.

Le signal digital est ensuite envoyé sur un dupliqueur digital, développé par C. Hoarau du pôle électronique de laboratoire, basé sur l'emploi de portes logiques rapides, qui produit jusqu'à 5 répliques de l'impulsion de tension. Ces répliques sont envoyées vers les différents dispositifs de mesure. Pour la mesure de fluorescence, l'une des répliques est ainsi branchée sur une entrée "compteur" d'une carte d'acquisition (NI PCIe-6323) qui compte le nombre d'impulsions (ou clics) reçues pendant une durée déterminée par un signal d'horloge - c'est-à-dire, une suite de créneaux de tension - produit sur une seconde voie "compteur" de la carte. La carte est programmée pour commencer le comptage des clics sur le front montant du signal d'horloge et pour l'arrêter sur un front descendant (voir Figure 4.10). Le nombre de clics comptés est converti en flux en le divisant par la durée active du signal d'horloge, c'est-à-dire sa demi-période. En synchronisant le déplacement d'éléments piézoélectriques sur les fronts montants du signal d'horloge, on peut alors réaliser des cartes de fluorescence. Le comptage de photons ne débutant pas immédiatement au moment du déplacement, mais seulement avec le front montant suivant, ce dispositif ne tient ainsi pas compte du signal reçu avant la stabilisation de la position (dont la durée typique est de l'ordre de la milliseconde pour les platines employées).

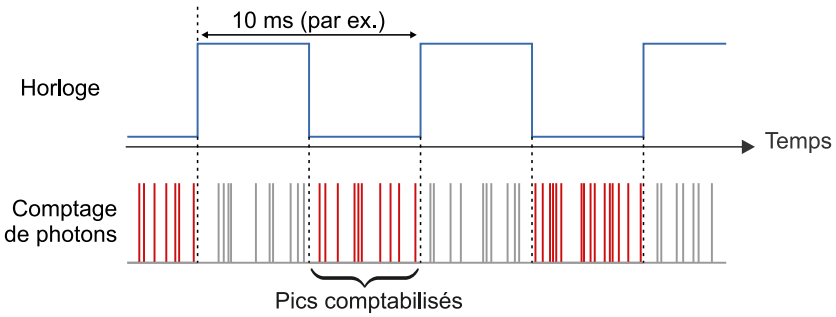


Figure 4.10 – Schéma explicatif du comptage de photons. En bleu : signal d'horloge, en gris : signal digital produit par l'APD constitué d'une suite d'impulsions chacune déclenchée à la détection d'un photon, en rouge : impulsions comptabilisées.

Grâce à ce dispositif, on a caractérisé l'intensité I_{sat} de saturation du centre NV dans ses conditions d'utilisation : attaché à l'extrémité d'un nanofil suspendu (on expliquera dans un prochain paragraphe la fabrication de cet échantillon) et éclairé par l'objectif de microscope. Pour cela, on mesure le taux de fluorescence Φ proportionnel à la population stationnaire de l'état excité σ_e^∞, représenté sur la Figure 4.11a. L'ajustement du graphe de la Figure 4.11a par l'équation 4.22 donne alors $I_{\text{sat}} = 597\,\mu$W. La mesure est réalisée 100 fois pour chaque

intensité pendant des intervalles de $\Delta t = 15\,\text{ms}$, très grand devant les temps caractéristiques de la photophysique. L'écart-type $\Delta\Phi$ correspond à la loi en $\sqrt{\Phi}/\sqrt{\Delta t}$ caractéristique des bruits Poissoniens, représentée sur la Figure 4.11b superposée à la mesure des écart-types.

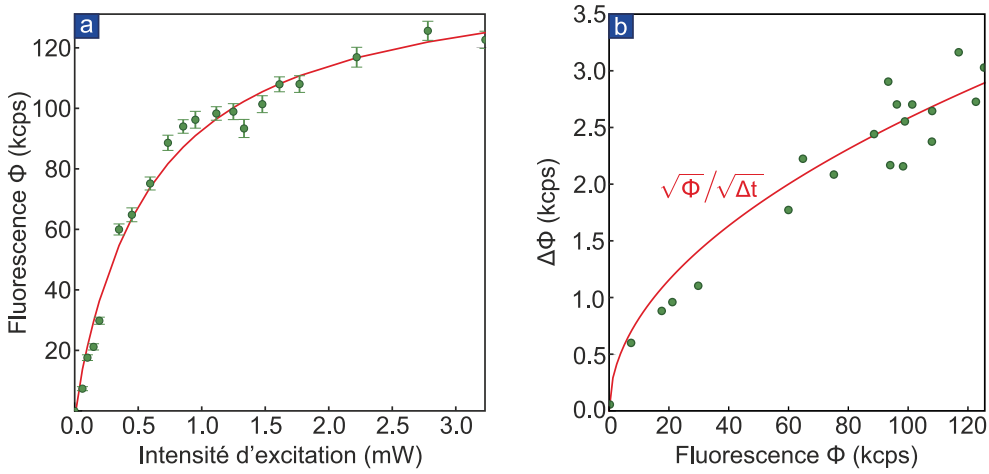


Figure 4.11 – **a.** Fluorescence mesurée en fonction de l'intensité d'excitation, ajustée par l'expression 4.22 de σ_e^∞. On a également représenté l'écart type du taux de fluorescence pour chaque point. Il est reporté sur la Figure **b.** où il est représenté en fonction de la valeur moyenne de la fluorescence. L'écart-type du taux de fluorescence suit la loi $\Delta\Phi = \sqrt{\Phi}/\sqrt{\Delta t}$ avec $\Delta t = 15\,\text{ms}$ représentée par en trait plein rouge.

4.2.3 Mesure de la fonction d'autocorrélation

Comme il a déjà été évoqué au début du chapitre, il est nécessaire d'utiliser deux détecteurs pour s'affranchir du temps mort de 50 ns des détecteurs à avalanche après la détection d'un photon. Le chemin optique de la fluorescence est séparé en deux par une lame séparatrice. La fonction d'autocorrélation est mesurée à travers la **statistique des délais entre deux détections**. Pour cela, le signal de sortie des deux APD est envoyé à un corrélateur électronique FastComTec MCS6A qui permet de résoudre des intervalles de temps aussi petits que 100 ps. La détection d'une première impulsion de tension sur une voie appelée *start* du corrélateur déclenche la mesure sur la seconde voie, appelée *stop*. Toutes les détections sur la voie *stop* sont alors enregistrées pendant un temps défini, puis la mesure sur la voie *stop* est arrêtée et le corrélateur attend une nouvelle détection sur la voie *start*. Le corrélateur souffrant également d'un temps mort au déclenchement de la mesure sur la voie *stop*, l'arrivée du signal sur cette voie est artificiellement **retardée** de sorte que le délai nul soit translaté vers un délai plus grand que le temps mort. Le retard est implémenté par un câble BNC de 30 m et calibré à 100 ns en utilisant le profil d'antibunching des centres NV.

Bunching et antibunching

On suppose qu'une première émission a lieu à $t = 0$. De manière générale, l'intensité de la fluorescence du centre NV Φ est $\Gamma_0\sigma_e(t)$ le taux de désexcitation optique. En conséquence, la probabilité d'émettre un second photon après l'émission d'un premier est proportionnelle à $\Gamma_0\sigma_e^0(t)$ avec $\sigma_e^0(t)$ la population de l'état excité calculée à partir du système 4.19 en prenant pour état initial $\{\sigma_g(0) = 1, \sigma_e(0) = 0, \sigma_m(0) = 0\}$, c'est-à-dire l'état juste après une émission, soit :

$$\mathrm{g}^{(2)}(\tau) = \frac{\sigma_e^0(\tau)}{\sigma_e^\infty} \tag{4.23}$$

où σ_e^∞ est la population stationnaire de l'état excité, qui ne contient plus de mémoire de la première détection à $t = 0$.

La solution $\sigma_e^0(\tau)$ de l'équation d'évolution 4.19 donne :

$$g^{(2)}(\tau) = A' e^{-t/\tau_1} + B' e^{-t/\tau_2} + 1, \tag{4.24}$$

avec les deux temps caractéristiques :

$$\begin{aligned} \tau_1^{-1} &= \frac{1}{2}\left(\gamma + \Gamma_0 + \gamma_0 + \alpha I + \sqrt{(\gamma + \Gamma_0 + \gamma_0 + \alpha I)^2 - 4(\gamma_0(\gamma + \Gamma_0) + \alpha I(\gamma + \gamma_0))}\right) \\ \tau_2^{-1} &= \frac{1}{2}\left(\gamma + \Gamma_0 + \gamma_0 + \alpha I - \sqrt{(\gamma + \Gamma_0 + \gamma_0 + \alpha I)^2 - 4(\gamma_0(\gamma + \Gamma_0) + \alpha I(\gamma + \gamma_0))}\right). \end{aligned} \tag{4.25}$$

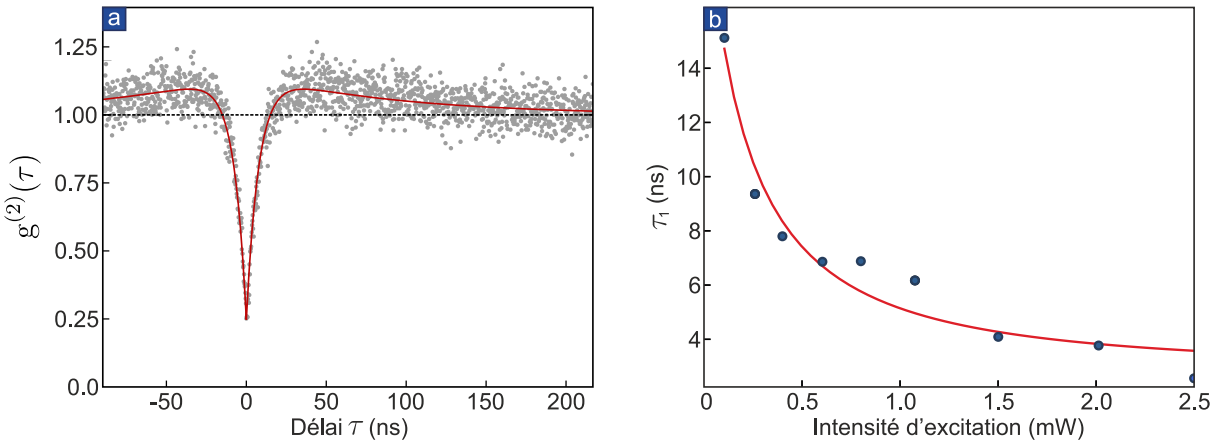


Figure 4.12 – **a.** Mesure de l'autocorrélation d'intensité ajustée par la fonction 4.24. **b.** Durée de vie τ_1 en fonction de l'intensité d'excitation.

Les deux temps caractéristiques τ_1 et τ_2 dépendent de l'intensité de pompe I. τ_1 caractérise le profil fin d'*antibunching* de l'autocorrélation, visible sur la mesure de la fonction d'autocorrélation présentée Figure 4.12a. Cet antibunching représente la transition optique entre le niveau excité et le niveau fondamental, et c'est ce temps - extrapolé à puissance nulle - qu'on appellera durée de vie dans le cas du centre NV. Cette durée de vie est typiquement estimée à 12 ns. Son évolution en fonction de l'intensité est présentée sur le graphe principal de la Figure 4.12. τ_2 caractérise quant à lui un profil de *bunching* : l'autocorrélation est alors supérieure à 1 (ce que l'on peut également constater sur l'insert de la Figure 4.12). Cette signature est une conséquence de la perte à longs délais de population dans le canal de désexcitation non-radiatif. L'amplitude de ce *bunching* dépend également fortement de l'intensité. On mesure typiquement $\tau_2 \simeq 300$ ns.

Enfin, les centres NV inclus dans des nanocristaux de diamant sont soumis, à cause de la proximité des surfaces, à des environnements électriques complexes qui influent sur leurs paramètres photophysiques effectifs α, Γ_0, γ et γ_0 de sorte que ceux-ci dépendent également du spécimen.

4.3 Montage de mesure de corrélations spatio-temporelles d'intensité

On explique maintenant la fonctionnalisation d'un nanofil de SiC similaire à ceux utilisés dans les précédents chapitres par un centre NV unique hébergé dans un nanocristal, et l'intégration

de cet échantillon dans un dispositif expérimental de mesure de corrélations spatio-temporelles d'intensité.

4.3.1 Fonctionnalisation d'un nanofil par un centre NV unique

Le nanofil utilisé dans ce chapitre mesure de long 46 μm et 200 nm de diamètre. Une fois fonctionnalisé, sa masse effective est de 2×10^{-15} kg et la fréquence du premier mode de vibration est 190 kHz, avec un taux de dissipation de 59.4 kHz à pression ambiante, où les polarisations mécaniques ne sont pas résolues. Des nanocristaux de diamant sont accrochés à l'extrémité par simple trempage dans une gouttelette de solution commerciale de nanocristaux de diamants de 50 à 100 nm de diamètre. Ceux-ci sont suffisamment petits, étant donnée la densité en défauts dans ce type de diamant, pour que l'occurrence des cristaux contenant 2 centres NV soit très faible devant l'occurrence des cristaux à 1 centre NV (elle-même très faible).

Longueur	L	46 μm
Diamètre	$2R$	200 nm
Masse effective	M_{eff}	$2.0 \cdot 10^{-15}$ kg
Fréquence de résonance	$\Omega_{\text{m}}/2\pi$	190 kHz
Largeur de résonance (dans l'air)	$\Gamma/2\pi$	59.4 kHz

La gouttelette de solution est déposée sur un coin de *wafer* de silicium car cette surface parfaitement lisse permet d'obtenir un grand angle de mouillage, donc des gouttes bien rondes. Le trempage se fait en déplaçant le *wafer* grâce à un module piézoélectrique à 3 axes de grande course (PI Nanocube, $100 \times 100 \times 100\,\mu$m). L'extrémité libre du nanofil est d'abord positionnée au point focal d'un objectif de microscope qui focalise une éclairage laser (voir Figure 4.13a). Le sommet de la goutte est amené sous ce point focal avec le module piézoélectrique, en cherchant à rendre horizontales les franges de diffraction produites en transmission. Le *wafer* est ensuite levé jusqu'à ce que la goutte rentre en contact avec l'extrémité libre du nanofil, sous le contrôle d'une caméra CCD observant la scène éclairée en lumière blanche. Un ménisque de petite taille (déterminée par le diamètre du nanofil) se forme, ce qui permet de ne tremper que le bout du fil. Cette opération est éventuellement répétée plusieurs fois jusqu'à l'observation d'une fluorescence plus forte à l'extrémité du nanofil. La présence d'un centre NV et son unicité sont ensuite contrôlés par la mesure de l'autocorrélation d'intensité et par celle du signal ODMR (voir Chapitre 5, section 5.2.2). La Figure 4.13b reproduit une image de fluorescence du centre NV unique ainsi attaché sur le nanofil de 46 μm de long.

En se basant sur les différents essais d'attache de centres NV par cette méthode, il semble qu'elle soit assez efficace pour des fils peu homogènes tels que ceux utilisés par l'équipe PNEC de l'ILM à Lyon ($> 50\%$ de réussite), tandis qu'elle présente un rendement plus faible ($< 10\%$) pour des nanofils très réguliers de phase 3C pure, ce qui laisse à penser que les inhomogénéités de surface jouent un rôle dans l'accroche des nanocristaux.

4.3.2 Montage optique

On décrit maintenant le montage complet de mesure de corrélations spatio-temporelles de la fluorescence du centre NV attaché à l'extrémité du nanofil.

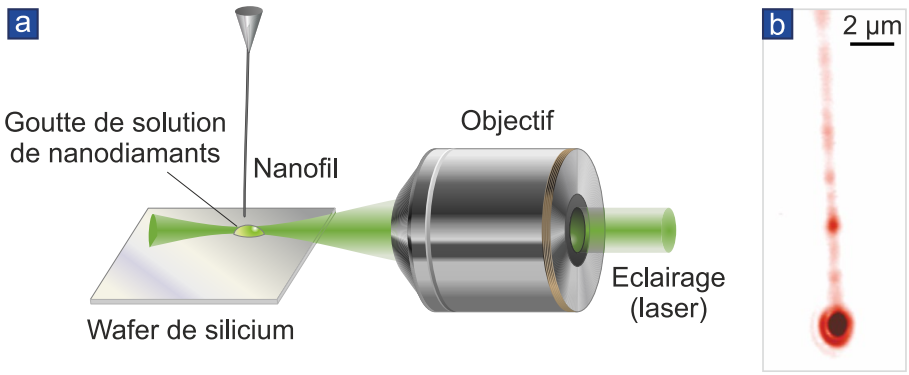


Figure 4.13 – **a.** Schéma du trempage d'un nanofil dans une gouttelette de solution de nanocristaux de diamant déposée sur un *wafer* de silicium. **b.** Image de fluorescence observée sur une caméra CCD d'un centre NV unique attaché à l'extrémité d'un nanofil. Un laser vert (532 nm) est focalisé à l'extrémité du nanofil. La lumière de ce laser de pompe est filtrée avant la caméra CCD qui n'enregistre donc que la lumière rouge de la fluorescence. Le guidage de la lumière de fluorescence dans le nanofil est mis en évidence sur cette image, celui-ci n'apparaissant pas (aussi clairement) si le laser d'excitation est focalisé ailleurs que sur le centre NV. La fluorescence maximale correspond environ à 40 kcps sur cette image éclairée avec 500 μW de puissance optique verte.

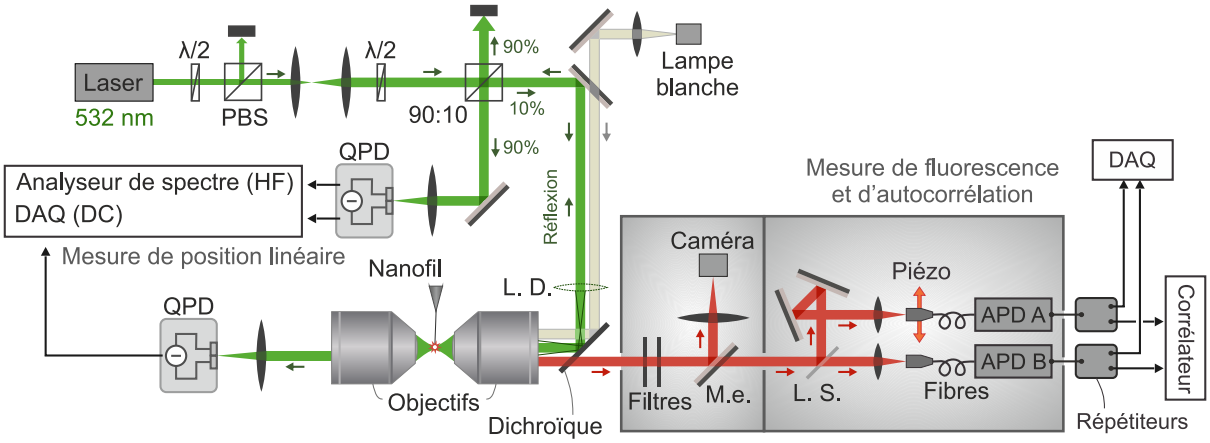


Figure 4.14 – Montage optique complet. (90 : 10) : cube réfléchissant 90% de la lumière et transmettant 10% de la lumière. PBS : Polarizing BeamSplitter (cube séparateur de polarisation). L.D. : lentille de défocalisation. M.e. : miroir escamotable. L.S : lame séparatrice. DAQ : carte d'acquisition NI e-6323.

L'injection : Le dispositif d'injection est similaire à celui du Chapitre 2, mais fonctionnait sans enceinte à vide à l'époque des mesures du chapitre présent. Le même laser vert d'excitation (de longueur d'onde 532 nm) est utilisé. Sa polarisation est ajustée par une lame demi-onde avant injection dans l'objectif de microscope de focalisation (Zeiss Epiplan-Neofluar LD EC, 100x, ouverture numérique 0.75).

Devant cet objectif, le nanofil est suspendu et porté par une **platine piézoélectrique** PI P-733 3 axes. La lumière verte rétro-diffusée sur le nanofil, ainsi que la lumière de fluorescence rouge sont collectées toutes les deux par l'objectif d'injection. Un **miroir dichroïque** disposé derrière cet objectif réfléchit les longueurs d'ondes inférieures à 580 nm. La lumière verte rétro-diffusée (de puissance typiquement comprise entre 0.5 et 3 mW) est renvoyée vers un cube déséquilibré faisant office de circulateur, puis arrive sur une QPD afin de réaliser une mesure continue de position, comme dans les chapitres précédents. La lumière rouge de fluorescence (environ 1 fW) est transmise vers le montage de comptage de photons et d'autocorrélation dans lequel le faisceau est divisé en 2 par une lame séparatrice (Semrock PulseLine). Deux filtres sont ajoutés en

renfort du filtrage par le miroir dichroïque avant la détection par les APD : un **filtre réjecteur** centré sur la fréquence du laser et **filtre passe-haut**.

Les APD utilisées (Excelitas SPCM-AQRH-15) sont fibrées : la fluorescence de chacune des deux voies est alors injectée dans une **fibre multimode** dont le cœur mesure 50 μm de diamètre. Les lentilles de focalisation à l'entrée de ces fibres sont montées sur des translations pour un réglage fin de leur position le long de l'axe optique : il s'agit d'aligner le volume collecté par les APD avec le volume éclairé par le laser d'excitation.

Ligne de base : L'un des supports de fibre du montage d'autocorrélation est monté sur un **axe piézoélectrique latéral** PI de course 500 μm afin de pouvoir modifier le point de visée de cette APD et de mesurer des corrélations entre différents points dans l'espace. En jouant sur la position transverse du nanofil et sur la position de ce détecteur mobile, on peut alors mesurer la corrélation entre deux point situés n'importe où sur l'axe horizontal transverse (X). Ce degré de liberté supplémentaire a d'abord été utilisé pour mesurer le grandissement réel du montage confocal. Pour cette mesure on utilise la fraction de lumière verte d'excitation résiduelle transmise par le miroir dichroïque, les filtres étant temporairement retirés. La position du détecteur mobile correspond à un point du plan "image", tandis que celle du nanofil est un point du plan "objet" : en balayant les deux positions, on mesure la carte en deux dimensions de la Figure 4.15 qui une fois analysée donne le facteur de grandissement $\gamma_g = 128.2$.

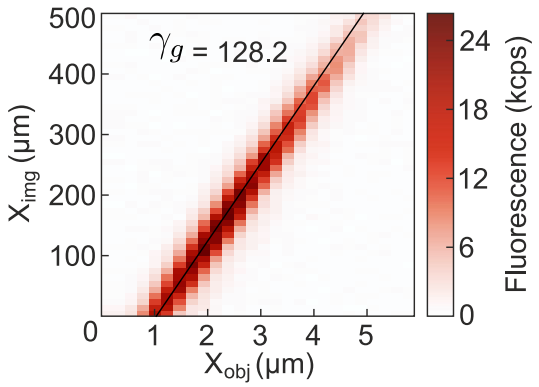


Figure 4.15 – Image de fluorescence du centre NV obtenue en balayant la position du nanofil (axe horizontal) et la position du volume de détection (axe vertical), ajustée par la droite noire donnant le grandissement réel.

4.3.3 Champ d'excitation

On souhaite mesurer la fluorescence du centre NV en différentes positions dans une région de l'espace de la taille de la trajectoire du centre NV suspendu qui pourra atteindre par la suite quelques microns. Or, le champ d'excitation (lumière verte) est focalisé par l'objectif de microscope. Pour observer la fluorescence dans une zone spatiale étendue, il est nécessaire d'élargir le champ d'éclairage. On verra que ce régime, où l'intensité lumineuse de pompage peut être considérée comme homogène sur l'étendue de la trajectoire, permet également de simplifier l'expression de l'autocorrélation développée dans la prochaine section. Plusieurs approches ont été testées pour élargir le champ d'excitation (voir Figure 4.16) : lentilles de différentes distances focales, diaphragme disposé sur le trajet du faisceau parallèle pour supprimer les angles extrêmes.

Pour évaluer la taille du champ d'excitation, on peut se servir du centre NV comme d'un réflecteur ponctuel et du degré de liberté du détecteur mobile pour s'affranchir du caractère

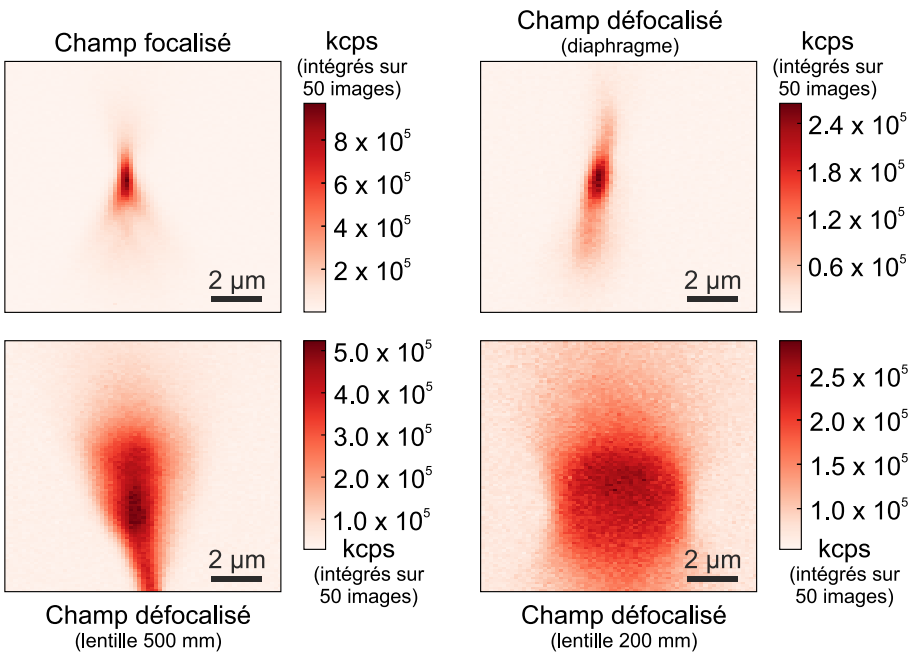


Figure 4.16 – Images du champ d'excitation obtenues de la manière décrite dans le texte, pour le montage non modifié (en haut à gauche) et en ajoutant divers objets défocalisants : un diaphragme en haut à droite, une lentille de distance focale 500 mm en bas à gauche et une de distance focale 200 en bas à droite.

confocal du montage qui ne permet de sonder le champ que dans un volume très restreint. Une série de 50 images de fluorescence de 50 pixels de large sont réalisées, en balayant le nanofil dans le plan horizontal (X,Z) et en mesurant le flux collecté sur l'APD mobile : entre chaque image, le volume de collection est déplacé transversalement de l'équivalent d'un pixel de ces cartes. Le volume d'excitation, déterminé par l'objectif et l'éclairage choisi, est donc le même sur chaque image mais le volume de collection est balayé transversalement. La technique d'imagerie du volume d'excitation transversal consiste ainsi à intégrer la fluorescence sur les positions du volume de collection pour ne conserver que l'information de la position du volume d'excitation. Les images sont donc sommées et on obtient une image du champ d'excitation. On note qu'on ne s'intéressera dans la suite qu'au mouvement du nanofil selon l'axe X transverse, ce pourquoi on a pu se contenter d'une sommation sur les positions transverses du détecteur mobile. La Figure 4.16 représente le résultat obtenu pour plusieurs techniques de défocalisation : le diaphragme ne s'est pas montré assez efficace, la lentille de focale 500 mm, là où elle était placée, ne focalisait le faisceau seulement quelques microns plus loin, la lentille de 200 mm fournit quant à elle un champ d'excitation large et relativement homogène sur une largeur de plusieurs microns. On a ainsi monté une lentille de défocalisation de focale 200 mm sur une monture escamotable en amont de l'objectif de microscope.

4.3.4 Le montage d'actionnement

Dans la suite, on souhaite en particulier étudier l'influence du mouvement Brownien sur l'autocorrélation d'intensité de l'émetteur quantique en mouvement. A température ambiante, l'extension des trajectoires Browniennes reste bien inférieure au *waist* de détection du centre NV qui définit la résolution optique de notre appareil. Afin d'étudier tous les régimes rencontrés dans une expérience de couplage hybride, on souhaite cependant autoriser les trajectoires à surpasser ces distances. Pour cela, le nanofil est soumis à une force électrostatique comme dans le Chapitre 2, appliquée par une contre-électrode approchée latéralement, qui mime une force de Langevin supplémentaire s'exerçant sur le nanofil. Cette section détaille donc le montage d'actionnement

qui permet de simuler des mouvements Browniens de température arbitraire.

Description du montage

Une pointe de tungstène identique à celle qui sert de support au nanofil est positionnée à proximité de l'extrémité libre du nanofil qui porte le nanocristal de diamant. Cette pointe de tungstène sert de contre-électrode comme dans le Chapitre 2. Un amplificateur à faible bruit de gain 50 permet d'appliquer des tensions typiques de 100 V. La pointe additionnelle est positionnée de sorte à ce que la force électrostatique s'applique dans la direction X horizontale et transverse à l'axe optique. Dans cette configuration, la force n'est appliquée que dans cette direction et les polarisations mécaniques des modes ne sont pas résolues car l'expérience est réalisée dans l'air, de sorte qu'on peut restreindre la description de la situation à 1 dimension. La force ponctuelle équivalente s'exerçant sur le bout du fil peut être écrite :

$$F_{\mathrm{el}} = \kappa(V - V_0)^2. \tag{4.26}$$

où κ est un coefficient que l'on cherche maintenant à calibrer.

Calibration statique

Pour cela on applique une série de tensions DC sur le nanofil et on mesure la déflexion statique induite (voir Figure 4.17). La déflexion statique du nanofil s'écrit :

$$x_0' = \chi[0]\kappa(V - V_0)^2 \tag{4.27}$$

avec la susceptibilité statique :

$$\chi[\Omega = 0] = \frac{1}{M_{\mathrm{eff}}\Omega_m^2} \simeq 351\,\mathrm{m.N^{-1}}, \tag{4.28}$$

L'ajustement de la déflexion statique mesurée représentée en Figure 4.17b par la fonction 4.27 donne ainsi l'efficacité électromécanique d'actionnement :

$$\kappa^{\mathrm{statique}} = 2.4 \cdot 10^{-13}\,\mathrm{N.V^{-2}}, \tag{4.29}$$

et la tension minimale est évaluée $V_0 = -6.16\,\mathrm{V}$. Cette valeur est un peu élevée pour être expliquée par des travaux de sortie de matériaux neutres, mais on peut envisager la présence d'une charge résiduelle piégée à l'extrémité du fil.

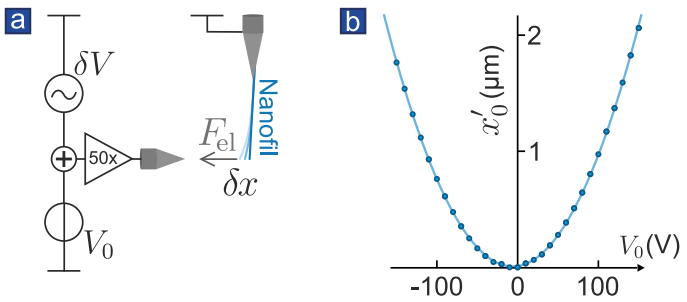


Figure 4.17 – **a.** Schéma du montage d'actionnement. **b.** Positions statiques du nanofil x_0' (points bleus) mesurées pour une série de différences de potentiel V_0 entre les pointes de tungstène. Pour mesurer la position statique x_0' du nanofil, une image "XZ" (horizontale) de la fluorescence du centre NV est acquise pour chaque point de tension et ajustée par une fonction gaussienne en 2 dimensions. La courbe en trait plein bleu clair est un ajustement avec l'équation 4.27 qui donne la calibration électromécanique.

Actionnement dynamique

Une modulation de tension sinusoïdale excite le mouvement du nanofil. Pour obtenir un régime d'actionnement linéaire, une tension d'*offset* V_0 beaucoup plus grande que le signal d'excitation $\delta V(t) = V_1 \cos \Omega t$ est ajoutée à celui-ci, comme le représente le schéma de la Figure 4.17a. Par exemple, pour une excitation sinusoïdale du nanofil $V(t) = V_0 + V_1 \cos \Omega t$, on obtient au premier ordre en V_1 :

$$\delta x(t) \simeq \chi[0]\kappa V_0^2 + 2\chi[\Omega]\kappa V_0 V_1 \cos \Omega t \tag{4.30}$$

Les images CCD de fluorescence intégrées sur de nombreuses oscillations mécaniques sont représentées sur la Figure 4.18a, où l'amplitude d'excitation est variée. Ces distributions ont une forme de "dos de chameau" car l'oscillateur passe plus de temps aux tournants de sa trajectoire sinusoïdale qu'en son milieu.

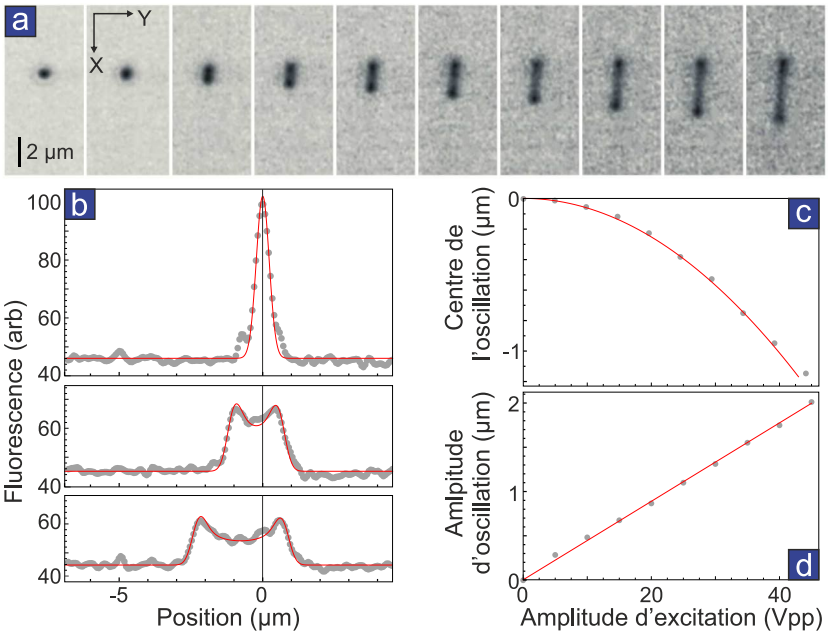


Figure 4.18 – **a.** Images CCD de la source de photons uniques oscillante, excitée par une force électrostatique, monochromatique et résonante d'amplitude croissante. **b.** Les coupes transverses de fluorescence sont ajustées par la fonction $\Phi(x) = \Phi_0/T_m \int_0^{T_m} dt e^{-2(x-x_0-\Delta x \cos \Omega_m t)^2/w_0^2}$ qui moyenne la fonction de détection sur une période d'oscillation. Les paramètres d'ajustement x_0' et Δx sont reportés dans les panneaux **c.** et **d.** Le léger décalage qui apparaît dans la direction de l'électrode est dû aux termes quadratiques en V_1 ignorés dans l'équation 4.30.

Mouvement Brownien artificiel

De la même manière il est possible d'exciter le nanofil avec un bruit blanc gaussien (sommé de la tension d'*offset*), simulant ainsi une force de Langevin. Le générateur Agilent 33500B permet de générer un bruit blanc gaussien d'amplitude et de largeur de spectre ajustables. On notera sa densité spectrale de puissance S_V, indépendante de la fréquence sur la plage fréquentielle d'intérêt (autour de la résonance mécanique).

La densité spectrale de la force appliquée est, à forte tension de décalage :

$$S_{\mathrm{F}}[\Omega] = 4\kappa^2 V_0^2 S_V, \tag{4.31}$$

qui se rajoute donc à la force de Langevin initiale de densité spectrale $2M_{\text{eff}}\Gamma k_B T$. Ainsi, un mouvement Brownien de température arbitraire est généré, avec une température effective :

$$T_{\text{eff}} = T + \kappa^2 \frac{2V_0^2 S_V}{M_{\text{eff}} k_B \Gamma}. \tag{4.32}$$

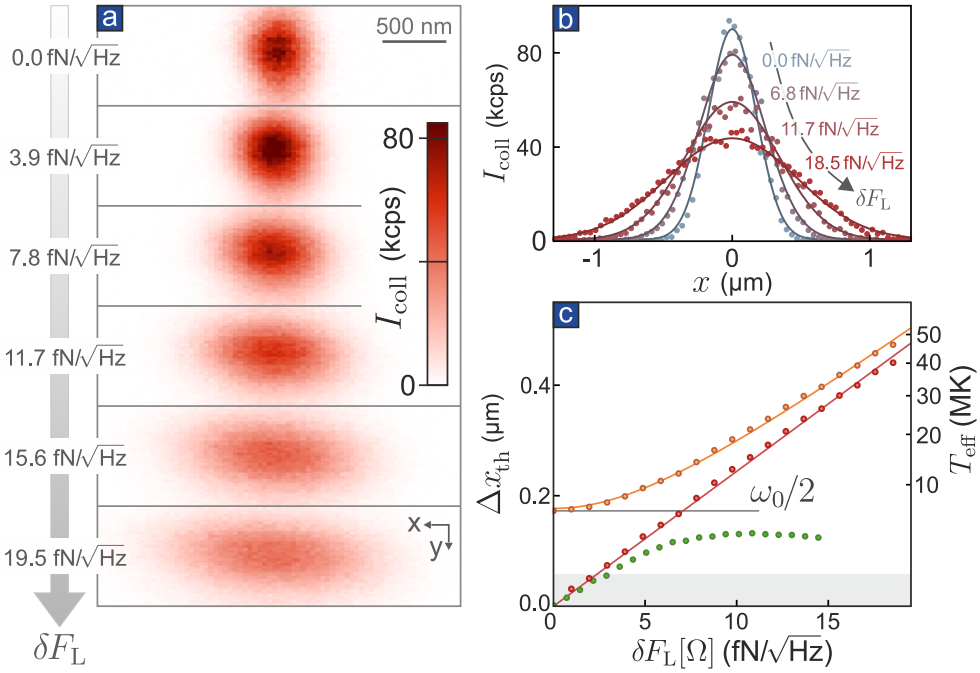


Figure 4.19 – **a.** Images de fluorescence obtenues en balayant le nanofil excité artificiellement dans le plan vertical XY. La source de photons uniques oscillante est ici excitée par une force de Langevin électrostatique artificielle, d'amplitude quadratique moyenne linéairement croissante. **b.** Les coupes transverses des images de fluorescence sont ajustées par la fonction 4.34. **c.** Points oranges : Évolution de l'amplitude quadratique moyenne du bruit de position Δx_{th} en fonction de l'amplitude du bruit de force rajouté. Points rouges : mêmes données, déconvoluées de la taille w_0 du volume de collection. Points verts : amplitude de bruit thermique mesurée sur la photodiode à quadrants mesurant la réflexion du laser de pompe. Cette mesure n'est linéaire et pertinente qu'à faible température effective et sature à température effective plus importante.

La Figure 4.19a représente des cartes verticales (X,Y) de l'intensité de fluorescence de la source de photons uniques en mouvement Brownien artificiel, moyennée sur de nombreuses périodes d'oscillation mécanique. Ces images sont obtenues cette fois avec les compteurs de photons, et sont mesurées pour des amplitudes de bruit croissantes, c'est-à-dire pour des températures effectives croissantes. Des coupes transverses de ces images $\Phi(x_0)$ sont représentées en Figure 4.19b. Pour une température de 300 K, c'est-à-dire, en l'absence d'exacerbation du mouvement Brownien, le profil de l'image de fluorescence est déterminé par le profil de collection $\Pi(x)$ qui est assimilé à celui d'un mode TEM00 :

$$\Pi(x) \equiv e^{-\frac{2x^2}{w_0^2}}, \qquad \Phi_{300\,\text{K}}(x_0) \simeq \Phi_0 \Pi(x), \tag{4.33}$$

où w_0 est le *waist* optique de détection et Φ_0 le flux de photons maximal collecté au centre du volume. Lorsque la température effective augmente, l'extension des trajectoires Browniennes cesse d'être négligeable vis-à-vis de la taille du volume de collection. La répartition de la fluorescence est alors donnée par la convolution :

$$\Phi(x_0) = \Phi_0 \int_{\infty}^{\infty} \Pi(x - x_0) \frac{e^{-\frac{x^2}{2\Delta x_{\text{th}}^2}}}{\sqrt{2\pi}\Delta x_{\text{th}}} dx = \frac{\Phi_0}{\sqrt{2\pi}\Delta x_{\text{th}}} e^{-\frac{x_0^2}{2(\Delta x_{\text{th}}^2 + (w_0/2)^2)}}. \tag{4.34}$$

On ajuste les coupes de la Figure 4.19b avec cette expression. Les points oranges de la Figure 4.19c représentent l'étalement quadratique moyen total des images $\sigma_{\text{tot}} \equiv \sqrt{\Delta x_{\text{th}}^2 + (w_0/2)^2}$ et les points rouges l'extension de la trajectoire Brownienne artificielle seule Δx_{th}. La température effective est calculée à partir de la valeur de Δx_{th}. Pour comparaison, les points verts de la Figure 4.19c représentent la même mesure réalisée en utilisant non pas le faisceau de fluorescence rouge, mais la réflexion du faisceau d'excitation vert sur le fil, envoyée sur une QPD. En intégrant le spectre des fluctuations de position calibré, on obtient une autre mesure de Δx_{th}^2. Cependant, le fil parcourt dans ce dispositif des distances extrêmement grandes, jusqu'à $0.5\,\mu$m en écart-type, alors que la photodiode ne permet une mesure linéaire de la position que dans une plage de l'ordre de 100 nm représentée par la zone grisée de la Figure 4.19c. Au delà, la mesure linéaire à la QPD décroche de la mesure d'écart-type basée sur les cartes de fluorescence. Cependant, on peut vérifier le bon accord des deux mesures dans le domaine de pertinence de la mesure à la QPD.

Les températures effectives obtenues sont extrêmement élevées, jusqu'à 5×10^7 K, comme le montre l'axe de droite du graphe de la Figure 4.19c. On obtient à partir de l'ajustement de Δx_{th} :

$$T_{\text{eff}} = 2.87 \times 10^{10} (\text{K.Hz.V}^{-2}) \times S_V, \tag{4.35}$$

ce qui correspond à :

$$\kappa^{\text{dynamique}} = 1.22 \times 10^{-13}\,\text{N.V}^{-2}$$

Cette valeur est du même ordre de grandeur que la valeur statique donnée précédemment. La variation d'un facteur 2 est probablement due à la différence des distances pointe-nanofil, les deux mesures ayant été réalisées à plusieurs jours d'intervalle.

4.4 Encodage des fluctuations thermiques sur la statistique photonique

Il est ainsi possible d'engendrer de manière contrôlée des amplitudes d'oscillation thermique excédant la résolution latérale du montage : cela permet d'étudier les corrélations en différents points de l'espace. On démontre dans cette section que les fluctuations thermiques de position sont encodées sur les corrélations spatio-temporelles d'intensité en raison de la modulation de l'efficacité de détection au cours du mouvement. On exposera d'abord un modèle et un développement analytique qui permettent d'interpréter des signatures observées qui seront présentées et analysées à la fin de la section.

4.4.1 Développement de la fonction de corrélation

Le cas adiabatique

Dans le cas d'un champ d'excitation large, l'intensité vue par le centre coloré est identique en tout point de sa trajectoire. La fluorescence mesurée est modulée sur de courtes échelles de temps par la photophysique du centre NV et sur les grandes échelles de temps par le mouvement du centre NV qui entre et sort du volume de collection. La fonction de corrélation de l'intensité est alors séparable en :

$$\text{g}^{(2)}(\tau, x_1, x_2) = \frac{\sigma_e(\tau)\,\langle \Pi_1(\xi(t) - x_1)\Pi_2(\xi(t+\tau) - x_2)\rangle_T}{\mathcal{N}} \tag{4.36}$$

où $\xi(t)$ est la trajectoire de l'émetteur quantique, $\langle ... \rangle_T$ représente la moyenne sur la durée T d'acquisition. Les fonctions $\Pi_{1,2}(x)$ représentent les profils de collection des deux détecteurs *start* et *stop*, centrés en x_1 et x_2 respectivement. $\mathcal{N}$ est une fonction de normalisation sur laquelle on

reviendra plus tard. On développe alors les deux probabilités de détection, ce qui ne requiert que la possibilité de développer en série entière les profils de collections centrés respectivement en x_1 et x_2. Le numérateur $\mathrm{G}^{(2)}(\tau, x_1, x_2)$ s'écrit :

$$\mathrm{G}^{(2)}(\tau, x_1, x_2) \equiv \sigma_e(\tau) \left\langle \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{d^n \Pi_1}{dx^n}\Big|_{x_1} \frac{d^m \Pi_2}{dx^m}\Big|_{x_2} \frac{(\xi(t) - x_1)^n (\xi(t+\tau) - x_2)^m}{n!\, m!} \right\rangle_T \tag{4.37}$$

$$\mathrm{G}^{(2)}(\tau, x_1, x_2) = \sigma_e(\tau) \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{n!\, m!} \frac{d^n \Pi_1}{dx^n}\Big|_{x_1} \frac{d^m \Pi_2}{dx^m}\Big|_{x_2} \sum_{p=0}^{n} \sum_{q=0}^{m} \binom{n}{p} \binom{m}{q} x_1^{n-p} x_2^{m-q} \langle \xi(t)^p \xi(t+\tau)^q \rangle \tag{4.38}$$

$\binom{n}{m}$ est la combinaison de m éléments d'un ensemble de taille n. On a omis et on omettra dans la suite l'indice T des moyennes temporelles.

Utilisation de la formule de Wick pour le développement de la fonction $g^{(2)}$

Puisque $\xi(t)$ est une variable aléatoire à distribution Gaussienne, on peut utiliser une propriété statistique très utile pour réduire $\langle \xi(t)^p \xi(t+\tau)^q \rangle$ à une somme de termes plus maniable : la formule de Wick. Pour n variables aléatoires conjointement gaussiennes $x_{\{i=0...n\}}$ *quelque soit leurs autocorrélations ou corrélations croisées* :

$$\begin{cases} \langle x_1 ... x_n \rangle = \sum_{k \in \mathcal{C}_{\text{paires}}} \langle x_{k_0} x_{k_1} \rangle ... \langle x_{k_{n/2-1}} x_{k_{n/2}} \rangle & \text{si } n \text{ est pair} \\ \langle x_1 ... x_n \rangle = 0 & \text{si } n \text{ est impair} \end{cases} \tag{4.39}$$

où $\mathcal{C}_{\text{paires}}$ est l'ensemble des configurations appariées pour les indices $1...n$, où chaque indice n'apparaît qu'une fois exactement et sans considération d'ordre. Les hypothèses de cette propriété sont vérifiées par nos variables aléatoires $\{\xi(t), ..., \xi(t), \xi(t+\tau), ..., \xi(t+\tau)\}$; elle permet donc de réduire les corrélations d'ordre élevé $\langle \xi(t)^p \xi(t+\tau)^q \rangle$ dans l'équation 4.38 et, sous réserve de convergence, d'exprimer la fonction $\mathrm{G}^{(2)}(\tau, x_1, x_2)$ uniquement en fonction de **puissances de la variance Δx_{th} et de l'autocorrélation** $C_\xi(\tau)$ de $\xi(t)$. Finalement, on montrera que :

$$\boxed{\mathrm{g}^{(2)}(\tau, x_1, x_2) = \frac{\sigma_e(\tau)}{A_0} \sum_{j=0}^{\infty} A_j \left(\frac{-C_\xi(\tau)}{w_0^2/2} \right)^j} \tag{4.40}$$

où les coefficients A_j ne dépendent pas du temps τ mais uniquement de $\Delta x_{\text{th}}, x_1$ et x_2. Cette expression explicite la manière dont la fonction d'autocorrélation de position $C_\xi(\tau)$ de l'oscillateur est encodée dans la fonction de corrélation $\mathrm{g}^{(2)}$ de la fluorescence mesurée en différents points de l'espace.

Calcul des coefficients A_j : Afin de faciliter l'évaluation de la contribution de chaque terme à la corrélation totale, une représentation diagrammatique peut être utilisée dont les principes sont expliqués en Figure 4.20. Un vertex représente la position $\xi(t)$ à un temps t et une ligne rejoignant deux vertex est une corrélation $C_\xi(t'-t)$ entre les positions à ces deux temps. Une ligne peut connecter une position à elle-même, représentant ainsi un facteur de variance $C_\xi(0) = \Delta x_{\text{th}}^2$.

Quelques exemples de diagrammes sont représentés Figure 4.21 pour les deux premiers ordres du développement.

En comptant toutes les manières possibles d'obtenir un terme où la corrélation apparaît à une puissance j dans le développement du terme $\langle \xi^p(t) \xi^q(t+\tau) \rangle$, c'est-à-dire toutes les manières

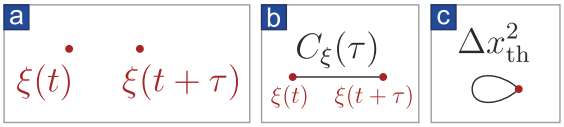


Figure 4.20 – **Grammaire diagrammatique utilisée pour représenter les ordres de développement. a.** Les évaluations de la trajectoire sont représentées chacune par un point. **b.** Une corrélation à deux temps $C_\xi(\tau)$ est représentée par une ligne. **c.** Une autocorrélation $C_\xi(0) = \Delta x^2_{\text{th}}$ est représentée par une boucle.

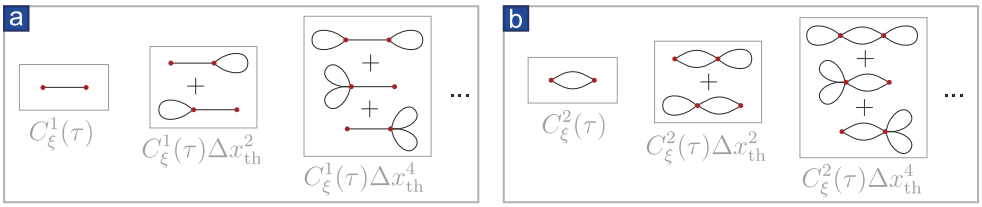


Figure 4.21 – **Quelques exemples de diagrammes. a.** Quelques diagrammes faisant intervenir la corrélation $C_\xi(\tau)$ à l'ordre 1,**b.** à l'ordre 2.

d'obtenir la contribution $C^j_\xi(\tau)\Delta x^{(p+q)-2j}_{\text{th}}$, on obtient le facteur :

$$\underbrace{\binom{p}{j}\binom{q}{j}}_{\text{I}}\ \underbrace{j!}_{\text{II}}\ \underbrace{\frac{(p-j)!}{(\frac{p-j}{2})!2^{\frac{p-j}{2}}}}_{\text{III}}\ \underbrace{\frac{(q-j)!}{(\frac{q-j}{2})!2^{\frac{q-j}{2}}}}_{\text{IV}} \tag{4.41}$$

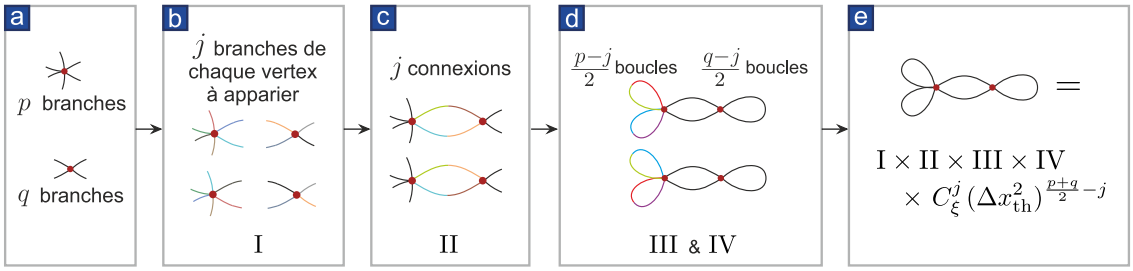


Figure 4.22 – **Etapes de calcul du terme associé à un diagramme.**

Le calcul de ce facteur est expliqué diagrammatiquement par la Figure 4.22. I représente le nombre de manières de sélectionner j éléments de chaque ensemble de taille p (pour $\xi(t)$) et q (pour $\xi(t+\tau)$) pour produire une paire hybride $C^j_\xi(\tau)$. Une fois que ces j éléments de chaque ensemble ont été sélectionnés, il y a encore $j!$ manière de les combiner pour obtenir le facteur $C^j_\xi(\tau)$, ce qui est pris en compte par le facteur II. De même, les $p-j$ et $q-j$ éléments restants de chaque groupe peuvent être associés de différentes manières, ce qui correspond aux facteurs III et IV. Finalement, on obtient lorsque p et q sont de même parité :

$$\langle \xi(t)^p \xi(t+\tau)^q \rangle = \underbrace{\sum_{j=0}^{\min(p,q)}}_{\text{j de la parité de p et q}} C^j_\xi(\tau)(\Delta x^2_{\text{th}})^{\frac{p+q}{2}-j} \frac{p!q!}{2^{\frac{p+q}{2}-j} j!(\frac{p-j}{2})!(\frac{q-j}{2})!} \tag{4.42}$$

et $\langle \xi(t)^p \xi(t+\tau)^q \rangle = 0$ si p et q sont de parités différentes.

Les profils de collection associés aux deux détecteurs n'ont pas encore été précisés, la formule

4.38 reste donc générale sur ce point. On leur attribue maintenant la forme gaussienne 4.33 :

$$\Pi_1(x) = \Pi_2(x) = e^{-\frac{2x^2}{w_0^2}}. \tag{4.43}$$

On peut ainsi pousser le calcul de l'équation 4.38 en utilisant un développement en série de $u \mapsto e^{-u^2}$. Finalement, les coefficients apparaissant dans l'équation 4.40 s'écrivent :

$$\mathrm{g}^{(2)}(\tau, x_1, x_2) = \frac{\sigma_e(\tau)}{A_0} \sum_{j=0}^{\infty} A_j \left(\frac{-C_\xi(\tau)}{w_0^2/2} \right)^j$$

où

$$\begin{cases} A_{2j} & = & \dfrac{1}{(2j)!} \displaystyle\sum_{n,m=0}^{\infty} \dfrac{(2n+2j)!(2m+2j)!}{(n+j)!(m+j)!} \left(\dfrac{-2x_1^2}{w_0^2} \right)^n \left(\dfrac{-2x_2^2}{w_0^2} \right)^m \Lambda_{n,m}^{\text{pair}} \\ A_{2j+1} & = & \dfrac{-2x_1x_2}{w_0^2(2j+1)!} \displaystyle\sum_{n,m=0}^{\infty} \dfrac{(2n+2j+2)!(2m+2j+2)!}{(n+j+1)!(m+j+1)!} \left(\dfrac{-2x_1^2}{w_0^2} \right)^n \left(\dfrac{-2x_2^2}{w_0^2} \right)^m \Lambda_{n,m}^{\text{impair}}, \end{cases} \tag{4.44}$$

avec

$$\begin{cases} \Lambda_{n,m}^{\text{pair}} & = & \displaystyle\sum_{p,q=0}^{n,m} \dfrac{\left(\frac{\Delta x_{\text{th}}^2}{2x_1^2}\right)^p \left(\frac{\Delta x_{\text{th}}^2}{2x_2^2}\right)^q}{(2n-2p)!(2m-2q)!p!q!} \\ \Lambda_{n,m}^{\text{impair}} & = & \displaystyle\sum_{p,q=0}^{n,m} \dfrac{\left(\frac{\Delta x_{\text{th}}^2}{2x_1^2}\right)^p \left(\frac{\Delta x_{\text{th}}^2}{2x_2^2}\right)^q}{(2n-2p+1)!(2m-2q+1)!p!q!}. \end{cases} \tag{4.45}$$

A délai infini, l'autocorrélation $C_\xi(\tau)$ tend vers 0, de sorte qu'il ne reste que le terme A_0 de ce développement. Le dénominateur $\mathcal{N}$ est donc simplement égal à A_0.

On remarquera que l'extension des trajectoires Browniennes Δx_{th} et les positions x_1 et x_2 apparaissent systématiquement divisées par la taille du *waist* w_0, ce qui amène à définir les variables adimensionnées pertinentes pour la suite :

$$\Delta\tilde{x}_{\text{th}} \equiv \frac{\Delta x_{\text{th}}}{w_0}, \qquad \tilde{x}_{1,2} \equiv \frac{x_{1,2}}{w_0}. \tag{4.46}$$

4.4.2 Autocorrélation temporelle de l'intensité

Comme on l'a vu dans le paragraphe 4.3.4, le mouvement Brownien naturel n'est pas résolu, l'extension typique des trajectoires restant largement plus petite que la taille du volume de collection. La mesure de l'autocorrélation $\mathrm{g}^{(2)}(\tau, 0, 0)$ à 300 K, dans le cas où les volumes de collection sont centrés sur la trajectoire, comme représenté sur le schéma Figure 4.23a, ne fait donc apparaître que le profil d'*antibunching* de l'émetteur quantique, ainsi que le *bunching* à plus longs délais, caractéristique des centres NV (voir premières lignes en haut de la carte de la Figure 4.23b).

En augmentant artificiellement la température de la manière décrite dans le paragraphe 4.3.4, on obtient un profil oscillant à cause de la mesure de termes de corrélation $C_x i^j$, dont l'amplitude croît avec la température effective (voir Figure 4.23b). On note que la période des oscillations (2.6 μs) est la demi-période mécanique.

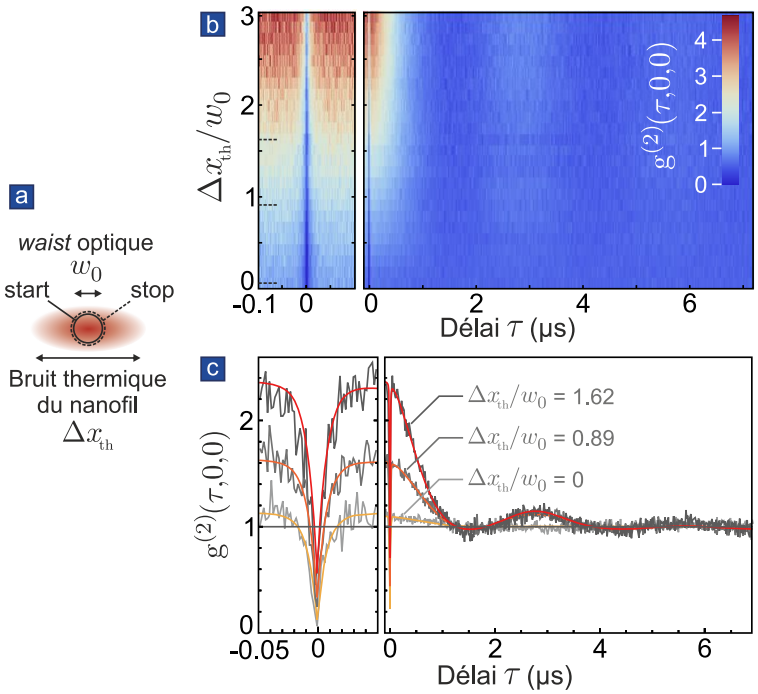


Figure 4.23 – **a.** Schéma de l'arrangement de l'expérience : la mesure des fonctions de corrélations est réalisée sur un nanofil artificiellement échauffé, en positionnant les deux détecteurs *start* et *stop* au centre de la trajectoire. **b.** Fonction de corrélations spatio-temporelles mesurées et simulées, normalisées à délai infini et pour des détecteurs centrés. **c.** Coupes de la figure b : corrélations temporelles qui sont en bon accord avec l'expression analytique 4.40, calculée en utilisant les coefficients A_{2j} de l'équation 4.47 (trait pleins colorés).

Expression analytique dans le cas centré

Par ailleurs, les coefficients impairs A_{2j+1} du développement 4.40 sont nuls lorsque l'un des détecteurs est centré ($x_1 = 0$ ou $x_2 = 0$). Seules les puissances paires de la fonction d'auto-corrélation sont mesurées, avec les coefficients

$$A_{2j}(0,0) = \frac{1}{2j!}\left(\sum_{n=0}^{\infty}\frac{(2n+2j)!}{(n+j)!n!}(-\Delta\tilde{x}_{\text{th}}^2)^n\right)^2, \tag{4.47}$$

d'où la fréquence d'oscillation double de celle de l'oscillateur mécanique. L'expression analytique 4.40 sans paramètre ajustable est superposée aux corrélations spatio-temporelles mesurées et reproduit parfaitement les données expérimentales (voir Figure 4.23c).

Groupement de photons

Un profil de *bunching* très prononcé apparaît avec l'augmentation de la température effective : on calcule maintenant l'amplitude de ce profil par une méthode plus simple que le développement analytique précédent. On introduit la distribution de position Brownienne :

$$P(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\Delta x_{\text{th}}^2}}e^{-\frac{x^2}{2\Delta x_{\text{th}}^2}}. \tag{4.48}$$

La corrélation d'intensité à délai infini due à l'oscillateur correspond au produit des moyennes des flux détectés, ceux-ci étant incorrélés :

$$\mathrm{G}_{\text{osc}}^{(2)}(\infty, x_1, x_2) \propto \int dx\, P(x)\,\Pi(x-x_1)\int dx\, P(x)\,\Pi(x-x_2), \tag{4.49}$$

et à délai nul,

$$\mathrm{G}^{(2)}_{\mathrm{osc}}(0, x_1, x_2) \propto \int dx\, P(x)\, \Pi(x - x_2)\, \Pi(x - x_1) \tag{4.50}$$

L'amplitude du groupement de photons à délai nul vaut ainsi, en fonction des variables adimensionnées 4.46 :

$$\frac{\mathrm{G}^{(2)}_{\mathrm{osc}}(0, x_1, x_2)}{\mathrm{G}^{(2)}_{\mathrm{osc}}(\infty, x_1, x_2)} = \frac{1 + 4\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}}}{\sqrt{1 + 8\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}}}} \exp\left(- \frac{8\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}}}{(1 + 4\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}})(1 + 8\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}})} \left(4\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}}(\tilde{x}_1 - \tilde{x}_2)^2 - 2\tilde{x}_1\tilde{x}_2 \right) \right), \tag{4.51}$$

et pour le cas centré $\tilde{x}_1 = \tilde{x}_2 = 0$:

$$\frac{\mathrm{G}^{(2)}_{\mathrm{osc}}(0, 0, 0)}{\mathrm{G}^{(2)}_{\mathrm{osc}}(\infty, 0, 0)} = \frac{1 + 4\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}}}{\sqrt{1 + 8\Delta\tilde{x}^2_{\mathrm{th}}}} > 1. \tag{4.52}$$

Cette dernière formule reproduit bien le profil de groupement observé, représenté sur la Figure 4.24 (où on a pris la valeur maximale de l'autocorrélation $\mathrm{g}^{(2)}$ plutôt que sa valeur en 0 pour s'affranchir de la signature d'*antibunching* de l'émetteur quantique à délai nul).

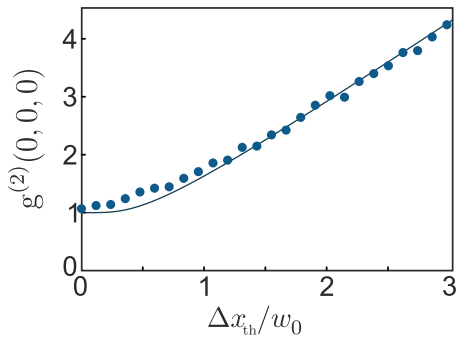


Figure 4.24 – Valeurs maximales de la fonction d'autocorrélation $\mathrm{g}^{(2)}(\tau, 0, 0)$ mesurées (points bleus), donnant l'amplitude du groupement de photons, en fonction de la température effective de l'oscillateur. La courbe bleu foncé est une représentation sans paramètre ajustable de la formule 4.52.

Ce profil de *bunching* traduit l'émergence d'un **nouveau canal de pertes photoniques** pour le système de détection, dû à l'émission hors du volume de détection, et analogue au profil de groupement que présentent les émetteurs quantiques possédant un état métastable sombre.

Si ce régime correspond à de très grandes températures effectives pour le nanofil étudié (la température a été augmentée de 5 ordres de grandeurs), il devient pertinent pour des mécanismes de lecture super-résolus impliquant des volumes de collection plus petits que la longueur d'onde [159] ou pour des oscillateurs de très faible masse effective. Par exemple, la masse typique d'un nanotube de carbone est justement 5 à 6 ordres de grandeurs plus petite que celle d'un nanofil de SiC utilisé avec, par ailleurs, des paramètres mécaniques comparable. On poursuit donc l'étude de ce régime pertinent en mesurant cette fois des corrélations *spatio*-temporelles pour caractériser la diffusion de l'émetteur dans l'espace et dans le temps.

4.4.3 Corrélation spatio-temporelle de l'intensité

La ligne de base est augmentée dans le régime où la signature du mouvement Brownien artificiel est bien visible sur la fonction d'autocorrélation, c'est-à-dire pour une température effective très élevée (environ 5×10^7 K). La Figure 4.25 présente la mesure de $\frac{\mathrm{G}^{(2)}(\tau,0,\delta)}{\mathrm{G}^{(2)}(\infty,0,0)}$, où le volume de collection correspondant au *start* de la mesure d'autocorrélation reste centré sur la

trajectoire Brownienne, tandis que la position du volume correspondant au *stop*, notée δ, est déplacée à travers la trajectoire du centre NV. Cette expérience reproduit donc dans une certaine mesure l'expérience de laboratoire Hanbury Brown et Twiss [138] qui démontre l'existence d'un groupement de photons à ligne de base nulle pour une source étendue, la taille de la source étant plus large que le volume de collection. En pratique, l'autocorrélation est mesurée pendant un temps T fixe pour chaque position du détecteur *stop*. La taille du profil de *bunching* initial est réduite jusqu'à devenir un *antibunching* effectif lorsque les volumes de détection sont séparés et qu'il devient impossible d'émettre dans les deux volumes à la fois en un court délai.

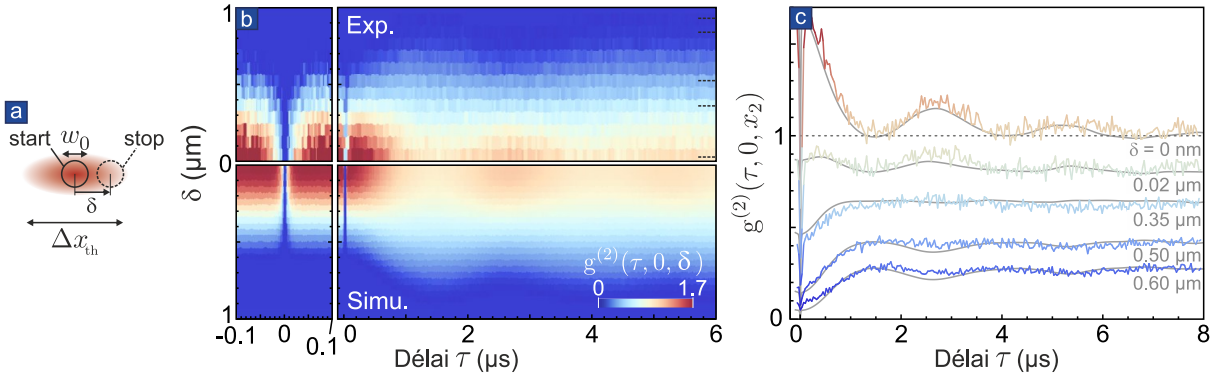


Figure 4.25 – **a.** Schéma de l'arrangement de l'expérience : la mesure des fonctions de corrélations est réalisée sur un nanofil artificiellement échauffé, en maintenant le détecteur *start* au centre de la trajectoire, tout en variant la position du détecteur *stop* latéralement. **b.** Corrélations spatio-temporelles mesurées et simulées, normalisées à délai infini et pour des détecteurs centrés. **c.** Coupes de la carte b des corrélations spatio-temporelles et résultats de simulations superposées sans paramètre ajustable en traits plein gris.

Dans le prolongement de nos définitions précédentes, on introduit la séparation adimensionnée :

$$\tilde{\delta} \equiv \frac{\delta}{w_0}. \tag{4.53}$$

Comme dans le cas des deux détecteurs centrés, les coefficients impairs A_{2j+1} du développement analytique sont nuls puisque $x_1 = 0$. Les coefficients pairs sont donnés par :

$$A_{2j}(0,\delta) = \frac{1}{(2j)!}\left(\sum_{n=0}^{\infty}\frac{(2n+2j)!}{(n+j)!n!}(-\Delta\tilde{x}_{\text{th}}^2)^n\right)\left(\sum_{m=0}^{\infty}\frac{(2m+2j)!}{(m+j)!m!}\left(-2\tilde{\delta}^2\right)^m\sum_{q=0}^{m}\frac{\left(\Delta\tilde{x}_{\text{th}}^2/2\tilde{\delta}^2\right)^q}{(2m-2q)!q!}\right). \tag{4.54}$$

La réapparition d'une signature de *bunching* dans les Figures 4.25b et c autour de $\tau = 2.6\,\mu$s et la modulation temporelle de l'extension latérale de la fonction de corrélation reflètent la diffusion de l'émetteur dans l'espace et le temps consécutivement à sa détection en $x = 0$ à $\tau = 0$, sans restriction sur sa vitesse. Cette mesure rappelle ainsi celle de traces temporelles de la position $\xi(t)$ mesurées en temps réel sur la QPD à température ambiante sur la Figure 4.26 (en l'absence d'exacerbation du mouvement Brownien), qui n'est possible que grâce au flux de photons élevé (10^{15} Hz) de la lumière réfléchie, qui est bien supérieur au taux de relaxation mécanique. Ainsi, la mesure de la corrélation d'intensité a permis de réaliser la même mesure de la diffusion spatio-temporelle de l'oscillateur que sur la Figure 4.26, mais dans le **régime de comptage de photons**, donc dans le régime où les détecteurs perçoivent moins d'un photon par oscillation mécanique, mais aussi et surtout par durée de relaxation mécanique. Ces résultats suggèrent donc la possibilité d'utiliser la corrélation spatio-temporelle d'intensité pour résoudre les fluctuations thermiques d'un oscillateur à très faible flux de photons.

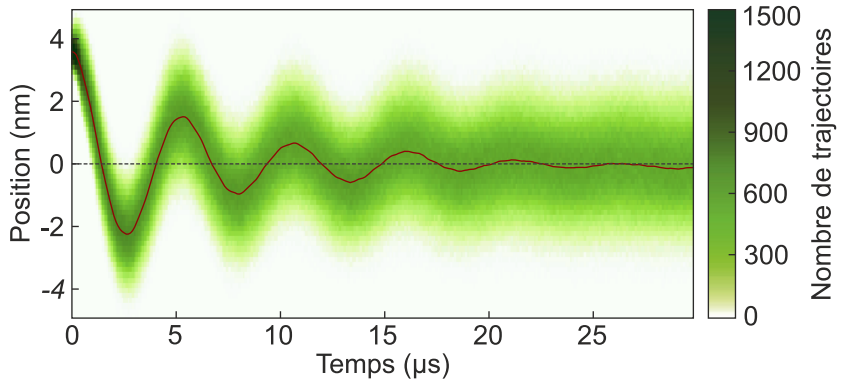


Figure 4.26 – Corrélations spatio-temporelles de l'oscillateur en mouvement Brownien non exacerbé mesurées grâce à la lumière verte de pompe réfléchie sur le nanofil. On a enregistré quelques secondes de signal résolu en temps sur la QPD positionnée en réflexion, codant la position de l'oscillateur, puis on a sélectionné des tranches de 30 μs consécutives au passage par un point de l'espace choisi arbitrairement ($x = 3.6$ nm). On a ainsi représenté en vert l'histogramme des positions consécutives au passage en cette position du nanofil à partir de l'accumulation de ces traces sélectionnées. En pratique, on a exclu l'utilisation de deux tranches séparées de moins de 30 μs pour éviter l'apparition de corrélations supplémentaires dénuées d'information nouvelle. La courbe rouge foncé représente la position moyenne après passage en $x = 3.6$ nm à $t = 0$, calculée à partir de l'histogramme vert.

4.5 Mesure optique de fluctuations de position à faible nombre de photons

On cherche donc maintenant à implémenter la mesure de la fonction d'autocorrélation de position d'un oscillateur, $C_\xi(\tau)$, à partir de la mesure de la corrélation d'intensité entre deux points de détection. Un tel schéma de mesure de position a déjà été proposé par V. Puller, B. Lounis et F. Pistolesi dans une étude focalisée sur un système ressemblant à celui dont il est maintenant question : une molécule émettrice unique sur un nanotube de carbone oscillant [160].

4.5.1 Principe et optimisation

Pour réaliser cette mesure, il est intéressant de se placer dans la configuration d'une photodiode à quadrants, c'est-à-dire que les deux volumes de détection seront placés de part et d'autre de la trajectoire, en $\pm\delta$, comme sur la Figure 4.27a.

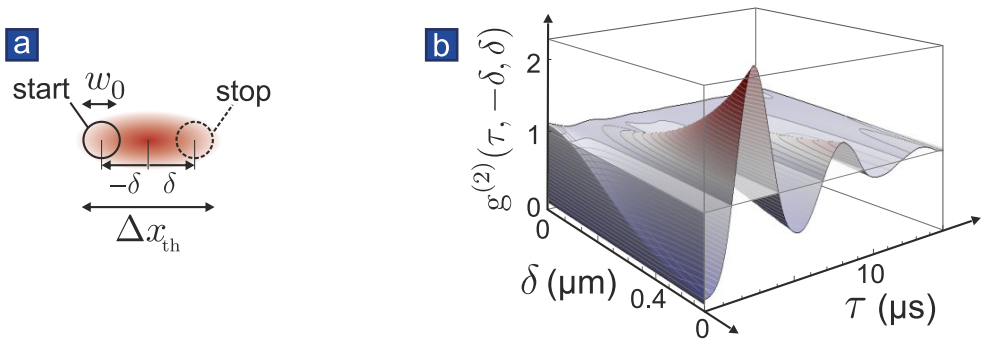


Figure 4.27 – **a.** Schéma de la situation expérimentale reproduisant une photodiode à deux quadrants. Les deux détecteurs sont positionnés de chaque côté de la trajectoire, à une distance δ du centre. **b.** Fonction de corrélation temporelle $g^{(2)}(\tau, -\delta, \delta)$ calculées pour différentes valeurs de séparation et pour $\Delta\tilde{x}_{\mathrm{th}} = 0.4$. Lorsque cette dernière est suffisamment importante, on reconnaît le profil oscillant de la fonction d'autocorrélation de l'oscillateur.

On calcule la corrélation mesurée en fonction de la demi-séparation δ et du délai τ. Dans la décomposition 4.40 qui donne $\mathrm{g}^{(2)}(\tau, x_1, x_2)$:

$$\mathrm{g}^{(2)}(\tau, x_1, x_2) = \frac{\sigma_e(\tau)}{A_0} \sum_{j=0}^{\infty} A_j \left(\frac{-C_\xi(\tau)}{w_0^2/2} \right)^j,$$

la composante que l'on souhaite mesurer est **la corrélation $C_\xi(\tau)$ à la puissance 1**. On a vu que si l'un des détecteurs est centré, comme dans le paragraphe précédent, alors les coefficients impairs $A_{2j'+1}$ sont nuls (équation 4.44) et $C_\xi(\tau)$ n'est pas du tout mesurée, d'où l'adoption de la configuration symétrique $x_1 = -x_2 = \delta$. Les termes d'ordre impair croissent avec la demi-séparation δ, jusqu'à dominer les coefficients d'ordre pair : on constate sur la Figure 4.27b que l'autocorrélation change de périodicité (de la moitié de la période mécanique à la période mécanique) et le profil de groupement de photons à temps nul s'inverse comme dans la situation précédente en raison de l'impossibilité d'émettre dans les deux canaux à la fois.

L'étape suivante est de maximiser A_1, le coefficient qui pondère le terme en $C_\xi(\tau)$, vis-à-vis des autres coefficients, et en particulier des coefficients d'ordre faible (les puissances suivantes de la corrélation étant moins élevées, elles perturbent moins, même fortement coefficientées, la mesure de la corrélation à la puissance 1). Le calcul analytique des premiers A_j en fonction de la demi-séparation (adimensionnée) $\tilde{\delta}$ et de l'extension des trajectoires $\Delta\tilde{x}_{\mathrm{th}}$ est donné en Figure 4.28. Pour de faibles extensions thermiques Δx_{th}, il indique une séparation optimale pour mesurer A_1, qui est relativement indépendante de Δx_{th}. Cette séparation correspond également à un minimum de A_2, ce qui la rend encore plus favorable.

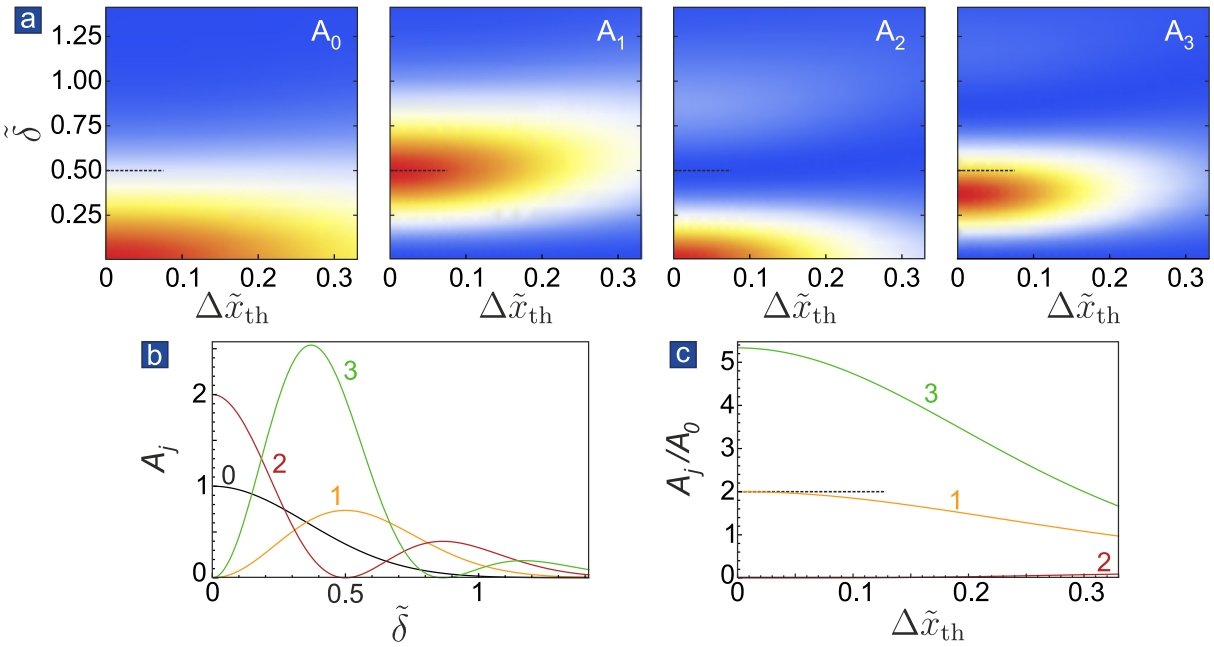


Figure 4.28 – **Calcul des premiers coefficients A_j dans la situation de lecture symétrique. a.** Calcul en fonction de l'extension des trajectoires Browniennes et de la séparation des détecteurs. **b.** Calcul des quatre premiers coefficients en fonction de la séparation des détecteurs, à très faible extension thermique $\Delta x_{\mathrm{th}} \ll \delta$. **c.** Calcul des coefficients normalisés par le premier A_0 en fonction de l'extension thermique dans le cas $\delta = \delta^\star = w_0/2$. On constate qu'ils sont indépendants de l'extension des trajectoires lorsqu'elle est petite devant la résolution optique.

Dans le cas symétrique les coefficients A_j s'écrivent : :

$$A_{2j}(\delta,-\delta) = \frac{1}{(2j)!}\left(\sum_{n=0}^{\infty}\frac{(2n+2j)!}{(n+j)!}(-2\tilde{\delta}^2)^n\sum_{p=0}^{n}\frac{\left(\Delta\tilde{x}_{\mathrm{th}}^2/2\tilde{\delta}^2\right)^p}{(2n-2p)!p!}\right)^2 \tag{4.55}$$

et

$$A_{2j+1}(\delta,-\delta) = \frac{1}{(2j+1)!}\left(\sum_{n=0}^{\infty}\frac{(2n+2j+2)!}{(n+j+1)!}(-2\tilde{\delta}^2)^n\sum_{p=0}^{n}\frac{\left(\Delta\tilde{x}_{\mathrm{th}}^2/2\tilde{\delta}^2\right)^p}{(2n-2p+1)!p!}\right)^2 \tag{4.56}$$

Lorsque $\Delta x_{\mathrm{th}} \ll \delta$, on peut ne conserver que le terme $p = 0$ dans la seconde somme, et exprimer les premiers coefficients sous la forme :

$$A_0(\delta,-\delta) \simeq e^{-4\tilde{\delta}^2}, \qquad A_1(\delta,-\delta) \simeq 8\tilde{\delta}^{-4\tilde{\delta}} \qquad A_2(\delta,-\delta) \simeq 2\left(1-4\tilde{\delta}^2\right)^2 e^{-4\tilde{\delta}^2} \tag{4.57}$$

ce qui donne la séparation optimale qui annule A_2 : $\tilde{\delta}^\star \equiv 1/2$, c'est-à-dire $\delta^\star \equiv w_0/2$. Finalement le régime de mesure optimal correspondant au cas où $\Delta x_{\mathrm{th}} \ll \delta, w_0$ donne :

$$\mathrm{g}^{(2)}(\tau,\delta^\star,-\delta^\star) \simeq \sigma_e(\tau)\left(1-4\frac{C_\xi(\tau)}{w_0^2}+...\right) \tag{4.58}$$

Il ne s'agit pas du cas expérimental pour lequel l'extension du mouvement Brownien est bien plus grande que la taille du *waist* de détection. Les calculs analytiques montrent cependant que la condition de bonne détection est robuste à l'extension de Δx_{th} (voir Figure 4.28a et c) sur la plage de convergence du développement (la convergence numérique n'est pas atteinte pour $\Delta\tilde{x}_{\mathrm{th}} > 0.35$).

4.5.2 Mesure de densité spectrale en régime de photons uniques

La mesure est ainsi réalisée dans la configuration $\delta \simeq \delta^\star$ et $\Delta x_{\mathrm{th}} = 0.4\,w_0$ avec des flux de photons de 5×10^4 cps sur chaque détecteur. Cette mesure est reproduite en Figure 4.29a, sur laquelle on reconnaît la fonction d'autocorrélation d'un oscillateur harmonique et la signature résiduelle de l'*antibunching* à temps court. Cette mesure a été intégrée pendant 1 h30 min 37 s. Ce long temps d'intégration est nécessaire en raison du court intervalle τ_{bin} utilisé pour la mesure d'autocorrélation τ_{bin} (1.6 ns), choisi pour permettre la résolution du profil d'*antibunching* de l'émetteur quantique. Sur la partie droite de la Figure 4.29a, on a moyenné le résultat de cette mesure par tranches de 16 ns : le nombre d'intervalles de temps qui constituent les premières 20 μs de la mesure (15040) est donc réduit d'un facteur 10. Cela revient à faire la mesure avec un échantillonnage temporel de 16 ns, largement suffisant pour résoudre les fluctuations de flux d'origine mécanique. Le bruit Poissonien relatif sur la détection dans chaque canal est inversement proportionnel à la racine carrée du nombre de photons détectés, donc inversement proportionnel à $\sqrt{\tau_{\mathrm{bin}}T}$. On voit donc que la mesure faite avec des canaux 10 fois plus longs nécessiterait un temps de moyennage 10 fois moins long pour obtenir le même niveau de bruit relatif que la Figure 4.29a, soit 5 min 40 au lieu de 90 min. Notons que ce temps est toujours assez long en raison de la nécessité de réarmer les détecteurs à chaque détection et de la perte des photons *start* suivant le photon déclencheur : pour la mesure présentée, 33 millions de détections *start* ont été utilisées seulement, de sorte que la durée utile sur les 90 min est finalement $33\times10^6\times15040$ bins $\times$ 1.6 ns = 13 min environ.

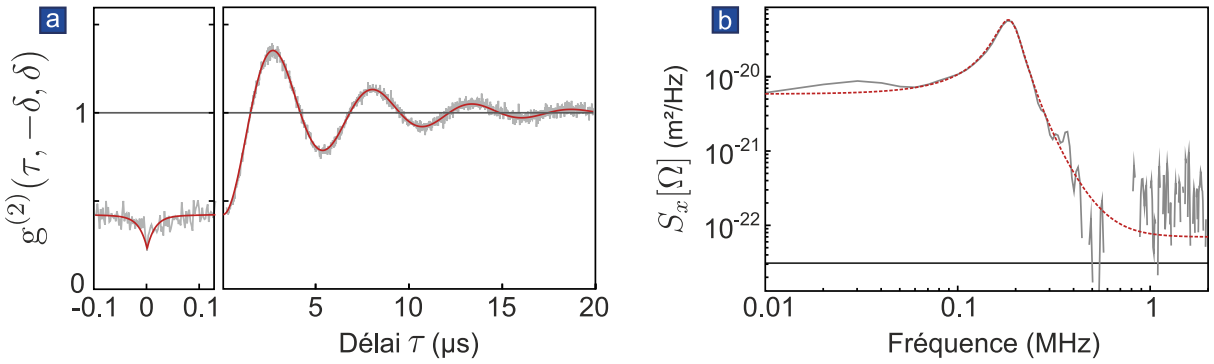


Figure 4.29 – **a.** Mesure de la corrélation d'intensité dans une disposition symétrique des détecteurs, pour $\delta \simeq \Delta x_{\text{th}}$. Les paramètres de la mesure sont donnés dans le texte. Ajustement en pointillés rouges avec un produit de la fonction σ_e de l'émetteur quantique et de la fonction d'autocorrélation d'un oscillateur harmonique amorti [18]. **b.** Transformée de Fourier de cette corrélation à laquelle on a soustrait la constante 1. Certains points manquent au spectre à haute fréquence en raison de leur négativité accidentelle. On reconnaît le spectre de vibration de l'oscillateur très amorti (puisqu'il évolue à pression ambiante) qui est ajusté par une courbe théorique en pointillés rouges.

Sensibilité quadratique : Le nombre de photons détectés dans chaque intervalle temporel τ_{bin} après intégration sur un temps T est alors $\Phi_1\Phi_2\tau_{\text{bin}}T$, où Φ_1 et Φ_2 sont les flux de photons sur chaque détecteur. Le bruit relatif de détection évolue donc comme la racine carrée de l'inverse de ce nombre. Finalement, en supposant les flux identiques sur chaque détecteur $\Phi_1 = \Phi_2 = \Phi$ et en supposant valable la formule de l'autocorrélation 4.58 la sensibilité équivalente de cette méthode de mesure est :

$$C_\xi^{\min} = \frac{w_0^2}{4\Phi\sqrt{\tau_{\text{bin}}}} \simeq (24\,\text{nm})^2/\sqrt{\text{Hz}} \tag{4.59}$$

pour un flux de photons de 5×10^4 cps et un intervalle de temps $\tau_{\text{bin}} = 16\,\text{ns}$. Notons que cette sensibilité n'a pas la forme d'une sensibilité habituelle en $\text{m}/\sqrt{\text{Hz}}$ ou en m^2/Hz en raison du caractère quadratique de la mesure.

Pour donner une comparaison avec une mesure classique linéaire, on détermine une sensibilité équivalente valable pour le temps d'intégration utilisé dans la Figure 4.29a. La sensibilité n'est en principe limitée que par la largeur de la distribution du nombre de photons dans chaque canal de détection de largeur τ_{bin}. On a moyenné l'écart-type de chaque canal effectif de 16 ns. On estime alors la sensibilité équivalente de la mesure intégrée aux alentours de $C_\xi^{\min} = 3 \times 10^{-23}\,\text{m}^2/\text{Hz}$ pour 5 min 40 d'intégration effective, ce qui est représenté par le trait horizontal sur la Figure 4.29b. Cela correspond à $\xi_{\min} \simeq 5.5 \times 10^{-12}\,\text{m}/\sqrt{\text{Hz}}$ pour 5 min 40 d'intégration.

Dans le cas d'une détection linéaire, le bruit de grenaille $\delta\Phi_{\text{shot}} = \sqrt{\delta\Phi}$ limite la sensibilité :

$$\delta\xi_{\text{shot}} = \sqrt{\Phi}\frac{1}{\left|\frac{\partial\Phi}{\partial\xi}\right|}. \tag{4.60}$$

En supposant que la détection se fait sur le flanc d'une fonction gaussienne telle que $\Pi(x)$, $\left|\frac{\partial\Phi}{\partial\xi}\right|_{\max} \simeq \Phi_0/w_0$:

$$\delta\xi_{\text{shot}} \simeq \frac{w_0}{\sqrt{\Phi_0}} \simeq 1.6 \times 10^{-9}\,\text{m}/\sqrt{\text{Hz}} \tag{4.61}$$

pour $w_0 \simeq 380\,\text{nm}$ et $\Phi_0 = 5 \times 10^4$ cps. Cette sensibilité, qui est déjà de trois ordres de grandeur moins intéressante, ne dépend pas, par définition, du temps d'intégration, tandis que la sensibilité équivalente que nous avons donnée pour la mesure d'autocorrélation s'améliore avec

le temps d'intégration.

Cependant, notons que la mesure que nous avons présentée est en principe réalisable à flux de photons arbitraire, c'est-à-dire, comme nous l'avons déjà évoqué, y compris **à flux de photons inférieur au temps de décohérence** Γ de l'oscillation mécanique. En l'occurrence, $\Gamma/2\pi = 5.94 \times 10^4\,\mathrm{Hz}$ et le flux de photons sur chaque détecteur est légèrement inférieur : $4.70 \times 10^4\,\mathrm{Hz}$, mais la mesure ne souffre pas de ces ordres de grandeurs. A l'inverse, pour l'établissement d'un spectre à partir d'une mesure linéaire, le taux d'information doit absolument être supérieur au taux de décohérence.

Au delà de la détection de la position d'un émetteur quantique, la mesure d'autocorrélation présente donc le grand intérêt d'être une mesure optique compatible avec la détection du mouvement Brownien d'**oscillateurs interagissant très peu avec la lumière**, comme les nanotubes de carbone ou les membranes de graphène. Ces oscillateurs sont par ailleurs typiquement très légers : une masse typique de nanotube de carbone est par exemple $10^{-20}\,\mathrm{kg}$, soit 5 ordres de grandeur en dessous de la masse d'un nanofil de SiC utilisé. L'extension de bruit thermique d'un tel nanotube vibrant à 1 MHz est donc $\Delta x_{\mathrm{th}} \simeq 102\,\mathrm{nm}$ à température ambiante et 12 nm à 4 K. Ces ordres de grandeurs se comparent très favorablement à la sensibilité de l'expérience décrite $(24\,\mathrm{nm})^2/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ (ou $\xi_{\min} \simeq 5.5 \times 10^{-12}\,\mathrm{m}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ en 5 min 40). Le mouvement Brownien d'un nanotube de carbone, même à température cryogénique, est ainsi détectable avec cette méthode qui sélectionne uniquement les événements à 2 détections. La rareté de ceux-ci n'entraîne qu'une augmentation des temps de mesure nécessaires, mais en principe pas de perte de rapport signal-sur-bruit.

Enfin, cette analyse a été développée dans l'espace des positions : le mouvement de l'émetteur dans le volume de collection module le flux de photons reçu. Cependant, la sensibilité peut être fortement augmentée en exploitant les gradients de l'émission, non plus dans l'espace réel, mais dans un espace des paramètres implémentés par un couplage de l'émetteur à d'autres degrés de liberté. Ainsi en utilisant les propriétés du spin électronique du centre NV immergé dans un fort gradient de champ magnétique, il est possible d'engendrer des gradients de fluorescence arbitrairement élevés [74, 159]. De même, il a été montré que le spectre d'émission d'une boîte quantique insérée dans une structure conique semiconductrice vibrante est fortement affectée par ces vibrations, les deux systèmes étant même dans le régime de l'interaction ultraforte du couplage hybride [161]. Il serait également possible de calculer les corrélations dans l'espace des fréquences en se basant sur une technique développée à l'Institut Néel [162]. Une étude similaire a d'ailleurs été menée à Bâle dans le groupe de M. Poggio [163].

4.6 Conclusion

La source lumineuse que nous avons construite dans ce chapitre à partir d'un émetteur quantique attaché à un oscillateur est un source étendue très particulière, car elle présente des corrélations spatio-temporelles qui n'existaient pas dans la lampe à décharge au mercure utilisée par Hanbury Brown et Twiss pour mesurer le groupement de photons d'une source thermique. A partir d'autocorrélations spatio-temporelles d'intensité, nous avons ainsi pu mesurer la diffusion d'un émetteur après sa localisation en un point de l'espace déterminé par la position d'un détecteur *start*.

A partir de cette réflexion, nous avons abouti à l'étude d'un nouveau régime de mesure digitale et quadratique pertinente à très faibles flux de photons. Nos expériences, conduites avec une dizaine de femtoWatt de lumière collectée, tombent dans le régime inaccessible à la mesure linéaire où la décohérence mécanique survient plus rapidement que l'accumulation d'information.

En exacerbant artificiellement le mouvement Brownien jusqu'à ce qu'il outrepasse la taille du *waist* de mesure, nous avons finalement construit un système-test mimant les caractéristiques mécaniques et optiques d'un nanotube de carbone qui n'interagit que très peu avec la lumière, et montré que notre mesure était compatible avec la détection d'un tel oscillateur même en milieu cryogénique. Le développement de telles techniques de mesure s'avère très important pour la nano-optomécanique à très basse température. En effet, les résistances thermiques des oscillateurs deviennent très importantes à basse température (autour de 10^{13} K/W pour nos nanofils de SiC à environ 50 mK), ce qui limite les flux de lumière utilisés pour sonder le mouvement (au picoWatt pour nos expériences).

Le régime d'interaction entre l'émetteur quantique et l'oscillateur mécanique reste à explorer : les temps caractéristiques mécaniques, et notamment la période mécanique $(\Omega_\mathrm{m}/2\pi)^{-1} \simeq 1\,\mu$s, doivent pour cela être fortement diminués pour s'approcher de la durée de l'*antibunching* du centre NV (12 ns) qui mesure le délai de la désexcitation radiative et de celle du *bunching* (300 ns), qui correspond à la détection du canal de désexcitation sombre. Les temps mécaniques se comparent cependant favorablement aux temps caractéristiques d'évolution de spin du centre NV, qui n'ont pas été exploités dans ce chapitre. Cette interaction spin-mécanique est l'objet de l'expérience dont le principe est exposé dans le chapitre suivant.

Chapitre 5

Couplage spin-oscillateurs

Sommaire

5.1 Systèmes hybrides spin-mécaniques 187
5.1.1 Systèmes hybrides mécaniques existants 187
5.1.2 Système hybride à nanofil de SiC 188
5.1.3 Spin électronique du centre NV 190
5.1.4 Forces dépendantes de l'état de spin 193
5.2 Construction de l'expérience 193
5.2.1 Micro-guides d'onde insérables dans un laser focalisé 193
5.2.2 Mesure optique de l'état de spin (ODMR) 198
5.2.3 Positionnement d'un spin dans un champ magnétique inhomogène . 201
5.2.4 Oscillations cohérentes : habillage par un champ micro-onde oscillant 208
5.2.5 Protocoles de manipulation du spin 209
5.3 Observations de triplets de Mollow 213
5.3.1 Double habillage d'un qubit de spin 213
5.3.2 Triplet de Mollow phononique 216
5.3.3 Destruction de la cohérence par le bruit sur une bande latérale . . . 220
5.4 Conclusion 223

5.1 Systèmes hybrides spin-mécaniques

Dans ce dernier chapitre sont exposés les développements expérimentaux et les résultats obtenus dans l'expérience du système hybride spin-oscillateur en couplage magnétique. Les propriétés du spin électronique du centre NV sont d'abord introduites, ainsi que son couplage aux vibrations de l'oscillateur. Les développements expérimentaux sont ensuite exposés, puis les résultats obtenus concernant l'observation et l'analyse des triplets de Mollow phononiques.

5.1.1 Systèmes hybrides mécaniques existants

L'élaboration de différents systèmes hybrides mécaniques au cours de la dernière décennie a été motivée par la perspective de révéler la nature quantique de la matière à l'échelle macroscopique, avec pour objectif emblématique l'observation d'états non-classiques du mouvement. Un système hybride mécanique couple en effet généralement un oscillateur mécanique à un degré de liberté quantique. Ainsi, la première observation d'un résonateur dans son état quantique fondamental par A. D. O'Connell dans le groupe d'A. N. Cleland [30] a été réalisée à travers la mesure de l'échange cohérent d'excitations entre le système mécanique et un qubit supraconducteur : cette expérience fondatrice illustre l'utilisation du couplage hybride comme méthode de lecture de l'état mécanique d'un résonateur occupé par un très faible nombre de

phonons. A l'inverse, le groupe de M. L. Roukes a réussi à réaliser la spectroscopie d'une boîte à paire de Cooper à partir de la mesure de l'oscillation mécanique d'un NEMS (Nano-ElectroMechanical System) [131]. Ce versant du couplage a également été observé dans le groupe de M. A. Sillanpää pour un qubit supraconducteur couplé à un micro-résonateur. Une autre classe de système hybride interface des résonateurs avec des nuages d'atomes ou d'ions froids : l'équipe de P. Treutlein a par exemple observé en 2014 le refroidissement sympathique d'une membrane optiquement couplée à un nuage d'atomes [164]. Pour illustrer encore d'autres types de systèmes hybrides, citons la mise en évidence du couplage d'une structure conique oscillante à une boîte quantique incluse à sa base par I. Yeo et des collaborateurs [161] et de celui du transport de charges uniques dans des nanotubes de carbone suspendus avec les vibrations de ceux-ci par B. Lassagne [128] et G. Steele [130] et leurs collaborateurs.

Enfin, une classe florissante de systèmes hybrides est celle des systèmes spin-mécanique. Si le spin est un défaut hébergé dans un cristal comme c'est le cas du centre NV, il existe un couplage intrinsèque aux vibrations du réseau, comme dans les systèmes hybrides à boîte quantique. Les groupes de P. Maletinsky et d'A. Jayich ont récemment pu démontrer l'observation du couplage par contrainte de centres NV uniques au mouvement de leviers en diamant [137,165]. Ces systèmes sont robustes et versatiles mais le couplage est relativement faible. De manière un peu analogue, certains systèmes utilisent le couplage d'un aimant moléculaire de très grand spin à la déformation d'un champ de ligand, comme ceux développés par l'équipe de W. Wernsdorfer [136]. Enfin, il est également possible de coupler un spin à un déplacement mécanique par un couplage Zeeman, en immergeant le spin dans un gradient de champ magnétique. L'avantage d'un tel système est que la force du couplage n'est limitée que par la difficulté technique d'établir un fort gradient de champ magnétique.

Ainsi, l'une des orientations de recherche de l'équipe est d'étudier le couplage optomécanique hybride fort. Dès 2011, la modulation de la population du spin d'un centre NV sous l'effet d'une oscillation mécanique a été observée [71]. Le système utilisé, constitué de l'un de nos nanofils de SiC portant un unique centre NV attaché à son extrémité libre (ainsi que dans le chapitre précédent) plongé dans un fort gradient de champ magnétique, a démontré la possibilité d'opération en régime de couplage fort. Ce travail a par ailleurs motivé le développement des nanofils de SiC comme sondes de force ultrasensibles.

5.1.2 Système hybride à nanofil de SiC

Le système hybride impliquant un nanofil et un centre NV unique a ensuite été reconstruit dans une version améliorée dont un schéma de principe est donné en Figure 5.1. Dans cette version, le nanofil est encore une fois suspendu, son extrémité libre pointant vers le bas et portant un centre NV unique. Une piste micro-onde est positionnée à proximité de l'extrémité libre : la circulation d'un courant dans cette piste engendre un champ magnétique facilement contrôlable : notamment, il est possible de produire des champs oscillants pour manipuler l'état de spin du centre NV. On verra que la fluorescence du centre NV dépend de cet état quantique : cette propriété est utilisée pour faire une lecture optique du spin. Cette lecture nécessite donc l'excitation du centre NV, toujours réalisée par un laser vert non-résonant, et la mesure de sa fluorescence, selon le même principe que dans le chapitre précédent. Enfin, une micro-bille magnétique également positionnée à proximité du centre NV produit un champ magnétique inhomogène qui couple le résonateur et le spin.

Cette version du système a été améliorée et développée vers la fin de la thèse de S. Rohr. Avant cela, il a étudié les signatures du couplage hybride dans les régimes pouvant être atteints dans la configuration du système spin-oscillateur, à partir d'un système-test [72] (voir Figure

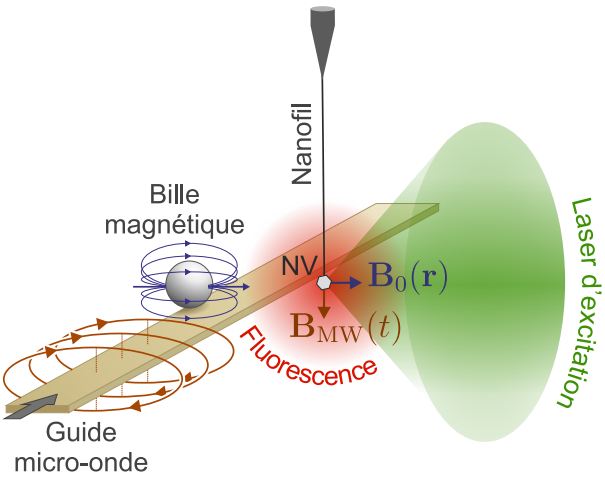


Figure 5.1 – Schéma de principe de l'expérience de couplage hybride avec un nanofil de SiC.

5.2). Ce système est conçu sans élément mécanique : l'impact du mouvement d'un nanofil dans un gradient de champ est reproduit par l'immersion du centre NV dans un champ magnétique oscillant à la période mécanique. Le système est par ailleurs constitué d'une plaque de quartz transparente sur laquelle une piste d'or a été lithographiée pour la manipulation micro-onde du spin. On utilise la même solution commerciale de nanocristaux de diamant que celle employée dans le Chapitre 4 pour attacher un émetteur unique à un nanofil. Quelques gouttes de cette solution sont étalées par *spin-coating* sur la plaque de quartz. Un centre NV est sélectionné parmi ceux qui sont observables, pour sa proximité avec la piste lithographiée et pour son orientation favorable vis-à-vis des champs magnétiques engendrés par le passage d'un courant dans cette piste. Un objectif de microscope focalise la lumière verte d'excitation sur le centre NV choisi et collecte la fluorescence qui est analysée de la même manière que dans le Chapitre 4.

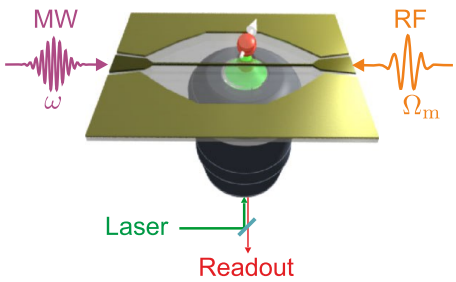


Figure 5.2 – Schéma tiré de [73] du système hybride test développé au cours de la thèse de Sven Rohr.

Grâce à la versatilité de ce système-test, de très nombreux régimes de fréquence et de dissipation mécaniques ont pu être étudiés théoriquement et expérimentalement au cours de la thèse de S. Rohr. Le couplage du spin du centre NV à un champ micro-onde oscillant donne lieu à des oscillations de population appelées **oscillations de Rabi** dont la formalisation est donnée dans le paragraphe suivant. On envisage alors généralement le système couplé comme un nouveau système à deux niveaux **habillé** par le champ micro-onde. Dans une expérience de couplage hybride, ce nouveau système à deux niveaux est à nouveau habillé par l'oscillation mécanique dans un gradient de champ magnétique, c'est-à-dire, habillé par un champ de phonons. La description théorique rapide de ce second couplage est exposée à la suite de celle des oscillations de Rabi. Comme ce paragraphe le montrera, ce couplage, qui constitue l'originalité du système hybride, est responsable d'une signature emblématique des systèmes hybrides : la population du qubit de spin se met à osciller à *trois* fréquences différentes au lieu d'une. La transformée de Fourier de l'évolution de la population fait donc apparaître trois pics au lieu d'un seul,

ce qui a valu au phénomène découvert par Mollow en 1969 [166] le nom de **triplet de Mollow**.

L'influence des paramètres mécaniques (fréquence mécanique, taux de dissipation, nature Brownienne ou cohérente des trajectoires) sur cette signature a donc été étudiée en profondeur au cours de la thèse de S. Rohr. En particulier, la dynamique de la population du centre NV, lorsqu'elle est excitée à une fréquence proche de la fréquence mécanique, adopte un comportement oscillant *exactement* à la fréquence mécanique [73]. Après une minutieuse caractérisation de ce phénomène de **synchronisation** grâce au système-test (entre beaucoup d'autres aspects du travail sur ce système-test, développés dans la thèse de S. Rohr [72]), le système spin-mécanique a été reconstruit par B. Pigeau et S. Rohr selon l'agencement décrit par la Figure 5.1 légèrement modifié depuis le système utilisé en 2011 [71], pour mettre en évidence à la fois le triplet de Mollow, cette fois réellement de nature *phononique* [74], et la synchronisation de la population du qubit de spin sur la dynamique de l'oscillateur.

Enfin, le système spin-mécanique a été reconstruit une deuxième fois à la fin de cette thèse sur le modèle de l'expérience détaillée au Chapitre 2 qui permet, d'une part, une meilleure immunité aux dérives thermiques, et d'autre part, un confort de manipulation supérieur en raison du découplage des positionnements du nanofil par rapport au laser d'excitation et de la structure de champ (piste micro-onde) vis-à-vis du nanofil. La construction de ce système hybride stabilisé permettrait l'observation d'autres signatures prédites grâce au système-test pendant la thèse de S. Rohr. En particulier, il a été montré que la dynamique de la population du spin à la fréquence principale du triplet de Mollow était affectée par le bruit aux fréquences des bandes latérales du triplet. On a évoqué la possibilité de faire fonctionner les qubit comme un analyseur de spectre à partir d'une bande latérale balayée en fréquence en variant l'intensité du couplage hybride. La mise en évidence de cette propriété du triplet de Mollow sur le système spin-mécanique constitue l'un des premiers objectifs expérimentaux du nouveau dispositif.

Ce chapitre détaille en particulier la construction de la nouvelle expérience dans une première partie. La version plus ancienne du système hybride qui a donné lieu à la première observation du triplet de Mollow phononique est déjà décrite en détail dans la thèse de S. Rohr [72], ainsi que le détail du couplage hybride. On se contentera donc, dans une deuxième partie, d'évoquer rapidement les résultats de cette expérience plus ancienne, et de donner les résultats préliminaire de la nouvelle expérience.

5.1.3 Spin électronique du centre NV

Le spectre simplifié présenté sur la Figure 4.6 peut être affiné en apportant quelques corrections au Hamiltonien de Coulomb polyélectronique considéré jusqu'à présent. Ces perturbations sont à l'origine de faibles brisures de la symétrie C_{3v} du défaut, qui s'expriment elles-mêmes en termes des représentations irréductibles de C_{3v}, et qui résultent en une succession de levées de dégénérescence des multiplets orbitaux et de spin.

Les corrections les plus importantes sont celles dues au **couplage spin-orbite**, au **couplage spin-spin** et celles dues aux **contraintes internes** naturelles dans le diamant. La Figure 5.3 présente les levées de dégénérescence dues aux deux premières corrections [167, 168]. La correction due au couplage aux contraintes du réseau n'est pas représentée : elle achève de lever toutes les dégénérescence spin-orbitales en fixant notamment pour chaque multiplicité E une base des états non dégénérés $E_{(x,y)}$ ou $E_{(1,2)}$.

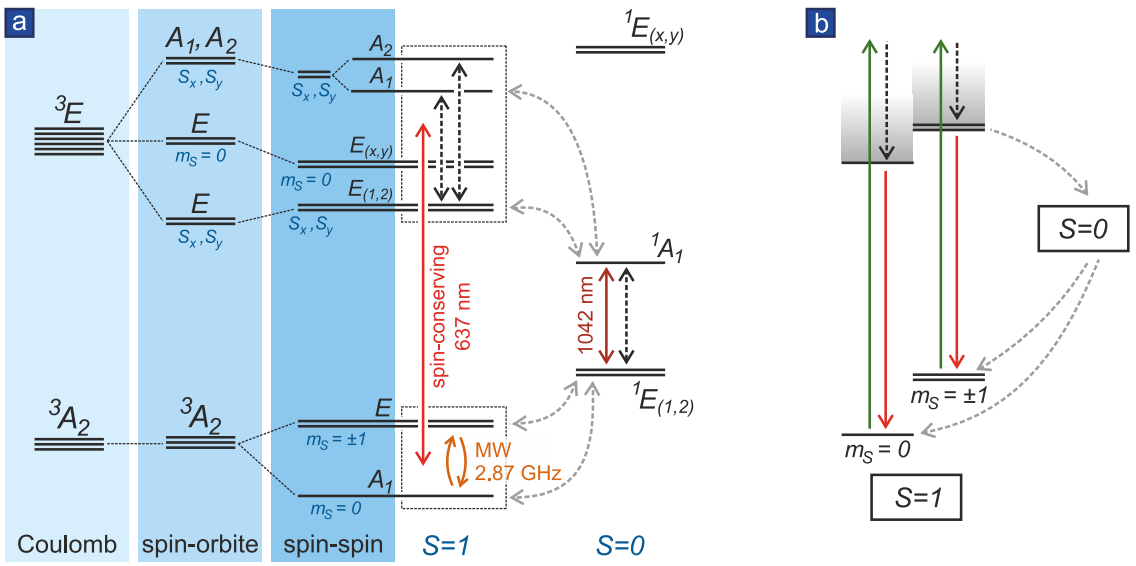


Figure 5.3 – **a.** A gauche : levées de dégénérescence dues au couplage spin-spin et spin-orbite du système de spin 1. Le système de spin 0, représenté à droite, n'est bien sûr pas sensible à ces couplages. Les géométries des fonctions d'ondes orbitales sont indiquées en noir, des considérations pertinentes sur les fonctions d'onde de spin sont indiquées en bleu. Les transitions résonantes sont représentées : en trait plein de couleur les transitions optiques, en traits noirs pointillés les transitions non-radiatives assistées par des couplages phonon-électron [169], et en traits gris pointillés les ISC. **b.** Modèle simplifié illustrant la polarisation du centre NV dans son état fondamental.

Sélectivité des transitions ISC : Les transitions optiques conservent le spin, le système de spin 0 n'est donc peuplé qu'à travers des transitions de type ISC. Cependant, il a été montré expérimentalement et théoriquement [168, 169] que, parmi tous les niveaux dérivés du niveau excité ^3E, seuls ceux qui dérivent des niveaux de projection de spin non nulle $m_S = \pm 1$ (qui sont en fait tous, après les corrections dues au coulage spin-spin et au couplage aux contraintes, des états propres de S_x ou S_y et donc n'ont pas de projection de spin définie) sont couplés au niveau $^1A_1$, comme le représente la Figure 5.3, avec $\Gamma_{E_{(1,2)}} \simeq \Gamma_{A_1}/2$ [168].

Du côté de la désexcitation $^1E \rightarrow^3 A_2$, les couplages aux niveaux de $m_S = 0, \pm 1$ semblent à peu près équivalents [169] $\Gamma_0/\Gamma_{\pm 1} \in [1.1, 2]$.

Polarisation dans l'état fondamental : L'écart en énergie entre le niveau fondamental de spin $m_S = 0$ et les autres niveaux du triplet fondamental $m_S = \pm 1$ est de $h \times 2.87\,\text{GHz}$ soit une température équivalente d'un peu moins de 140 mK.

Pourtant, la grande sélectivité des couplages ISC en projection de spin permet de préparer le centre NV dans son état fondamental de spin $m_S = 0$ à température ambiante [167], ce qui constitue un attrait majeur du centre NV puisqu'on peut alors l'utiliser comme un système à deux niveaux même sans environnement cryogénique.

La Figure 5.3b est une simplification du spectre donné en Figure 5.3 a illustrant le mécanisme à l'origine de ce phénomène. Une fois dans le système de projection de spin $m_S = 0$, le centre NV y reste en principe bloqué puisqu'il n'y a pas de voie de sortie. Au contraire, si le centre NV est dans un autre état de spin, chaque cycle d'excitation/désexcitation assisté par la radiation non-résonante (verte) lui donne une chance de changer de projection de spin vers le système $m_S = 0$, de sorte que le système $m_S = \pm 1$ est très vite dépeuplé. Ainsi il est possible de **pola-**

riser le centre NV **dans son état fondamental** $m_S = 0$ simplement en l'éclairant avec une lumière d'excitation non-résonante, comme un laser vert.

Utilisation du centre NV comme un système à 2 niveaux : Très fréquemment, l'état fondamental du centre NV ($^3A_2$) est utilisé comme un système à deux niveaux. Il s'agit, comme nous l'avons vu, d'un triplet de spin mais il existe une dégénérescence naturelle entre les niveaux de spin $m_S = 0$ d'une part, et $m_S = \pm 1$ d'autre part, en raison de couplages spin-spin et de contraintes de la maille cristalline. Cette levée de dégénérescence est très reproductible d'un centre NV hébergé dans un nanocristal à un autre et vaut, comme pour les centres NV hébergés dans un cristal massif, $D_g/2\pi = 2.87\,\text{GHz}$ en unités de fréquence, soit un terme $\hbar D \sigma_z^2$ en plus dans le Hamiltonien du triplet fondamental [170].

De plus, la dégénérescence des niveaux $m_S = \pm 1$ est également légèrement levée par les contraintes anisotropes du réseau, mais cette dégénérescence est beaucoup moins reproductible et beaucoup plus faible, et est pris en compte par le terme additionnel $\hbar E(\sigma_x^2 - \sigma_y^2)$ où E peut prendre n'importe quelle valeur de 20 kHz à 20 MHz. Les champs électriques extérieurs contribuent à lever cette dégénérescence de la même manière que les champs internes du réseau. Il est également possible d'ajouter un champ magnétique statique extérieur pour obtenir une levée franche de cette dégénérescence par effet Zeeman, sans affecter l'état de spin $m_S = 0$. Le terme correspondant du Hamiltonien est $-g\mu_B \mathbf{B} \cdot \boldsymbol{\sigma}$ avec $g = 2$ le facteur de Landé de l'électron et μ_B le magnéton de Bohr.

Finalement, tous les niveaux du triplet fondamental peuvent donc être suffisamment séparés en énergie pour que chaque transition soit résolue et que leurs populations soient manipulées et lues séparément. Ainsi, dans la suite, on envisagera un centre NV plongé dans un champ magnétique statique qui éloigne son état de spin $m_S = -1$ vers les hautes énergies. Les deux niveaux restants $|0\rangle$ et $|1\rangle$ seront considérés comme un système à deux niveaux. Le centre NV forme ainsi un qubit de spin, l'état $m_S = -1$ n'étant que très peu favorablement peuplé tant que la population est pompée dans l'état de spin fondamental et que seule la transition résolue entre les états $m_S = 0, 1$ est excitée par les protocoles de manipulation du spin. Enfin, notons que le triplet de spin de l'état excité affiche une même levée de dégénérescence similaire à celle de l'état fondamental, à ceci près que les niveaux $m_S = \pm 1$ ne sont éloignés, à température ambiante, que de $D_e/2\pi = 1.42\,\text{GHz}$ de l'état $m_S = 0$ au lieu de 2.87 GHz. Cette transition n'est donc pas résonante aux fréquences d'excitation du système fondamental.

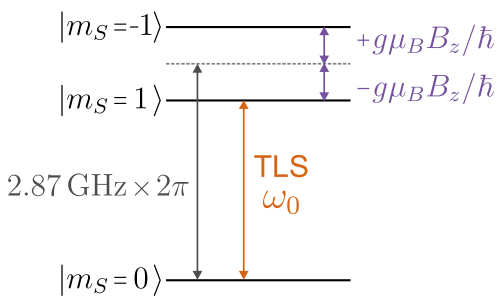


Figure 5.4 – Schéma des niveaux d'énergies du triplet de spin fondamental. La levée de dégénérescence des niveaux de projection de spin ± 1 sépare les énergies des transitions $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = 1$ et $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = -1$, ce qui permet d'envisager dans la suite le système de niveaux $m_S = 0, 1$ comme un système à deux niveaux isolé (TLS, *two level system* sur le schéma) dont la pulsation de transition sera notée ω_0.

5.1.4 Forces dépendantes de l'état de spin

Le Hamiltonien de couplage Zeeman entre le moment magnétique associé à un spin représenté par l'opérateur $\hat{\boldsymbol{\sigma}}$ et un champ magnétique $\mathbf{B}$ s'écrit :

$$H_{\text{Zeeman}} = -g\mu_B \, \mathbf{B}(\mathbf{r}) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \tag{5.1}$$

où $g \simeq 2$ le facteur de Landé électronique, et μ_B le magnéton de Bohr. Dans un champ magnétique inhomogène, il s'exerce donc la force dépendante du spin sur l'oscillateur :

$$F_{\text{spin},i} = -g\mu_B \, \partial_i B_j \, \hat{\sigma}_j \tag{5.2}$$

Dans le cas du centre NV limité à deux états de spin, le saut d'un état à l'autre se traduit par une variation d'une unité de la valeur de la moyenne de l'opérateur de spin $\hat{\sigma}_z$. Le retournement du spin est donc à l'origine d'une variation de force :

$$|\delta F_{\text{spin},i}| = g \, \mu_B \, \partial_i B_z. \tag{5.3}$$

Dans un gradient de champ magnétique élevé mais réaliste (déjà atteint avec notre type de système) de 10^5 T/m, cette variation vaut environ 20 aN. Or, nous avons vu qu'il s'agit justement de la sensibilité typique de nos nanofils ($20\,\text{aN}/\sqrt{\text{Hz}}$). La modulation de l'état de spin à la résonance mécanique permettrait donc, à condition d'optimiser le système, de mesurer le recul du nanofil dû au retournement d'un unique spin électronique. En particulier, la sensibilité en force mesurée récemment en environnement cryogénique est multipliée par un facteur 100, ce qui assouplirait la condition sur le gradient de champ.

5.2 Construction de l'expérience

5.2.1 Micro-guides d'onde insérables dans un laser focalisé

La manipulation et la lecture de qubits de spin nécessitent le contrôle local du champ électromagnétique : il faut notamment disposer d'un moyen d'engendrer des champs magnétiques oscillants à des fréquences proches de la transition du qubit, soit en l'occurrence, dans la gamme des micro-ondes.

Une solution [74,171] consiste à se servir du champ magnétique induit par la circulation d'un courant oscillant dans un conducteur linéique proche du spin. Cette implémentation présente l'avantage de pouvoir allumer et éteindre rapidement le champ magnétique oscillant en agissant simplement sur le courant.

Cependant, le pompage optique des centres NV par un faisceau lumineux perpendiculaire au nanofil présente quelques contraintes pratiques : tous les objets placés dans le faisceau de détection sont susceptibles de diffuser la lumière, ce qui donne lieu à des effets d'ombrage et d'autres aberrations de mesure. Il a donc fallu développer des microguides d'ondes adaptés à la situation expérimentale.

Principe général de conception

L'angle de gravure naturel du silicium {100} est de 54.7°. Il est donc supérieur à l'angle de focalisation des faisceaux par l'objectif de microscope 100x (48°, voir Figure 5.5b). Ce fait est mis à profit pour sculpter une piste de section trapézoïdale schématisée en Figure 5.5. La piste obtenue est alors suffisamment effilée en son sommet pour être insérée perpendiculairement au faisceau, près du *waist* optique, en limitant l'interception de celui-ci. Le guide est par ailleurs assez large à sa base pour assurer la solidité mécanique cruciale compte tenu de la longueur de

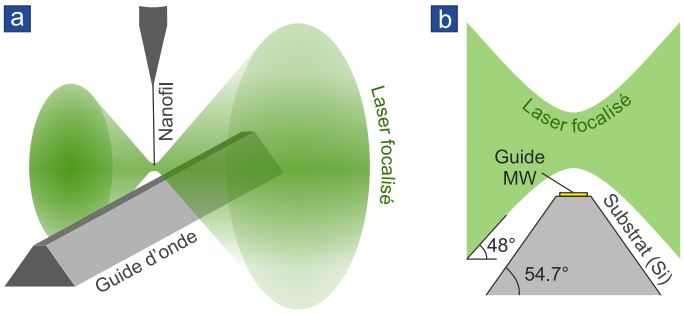


Figure 5.5 – **a.** Schéma de positionnement du guide par rapport au faisceau focalisé. **b.** Coupe transversale du schéma précédent illustrant le principe de la conception : l'angle naturel de gravure du silicium est supérieur à l'angle de focalisation du faisceau gaussien.

la piste (typiquement 1 mm).

Au sommet du piédestal prismatique à base trapézoïdale, trois pistes (Figure 5.6c) sont lithographiées :

- une différence de potentiel appliquée entre les deux pistes latérales permet d'établir un champ électrique statique ou RF (radiofréquence) pour l'actionnement mécanique du nanofil
- la piste centrale sert de guide micro-onde (ou MW, micro-wave) pour l'établissement d'un champ magnétique oscillant.

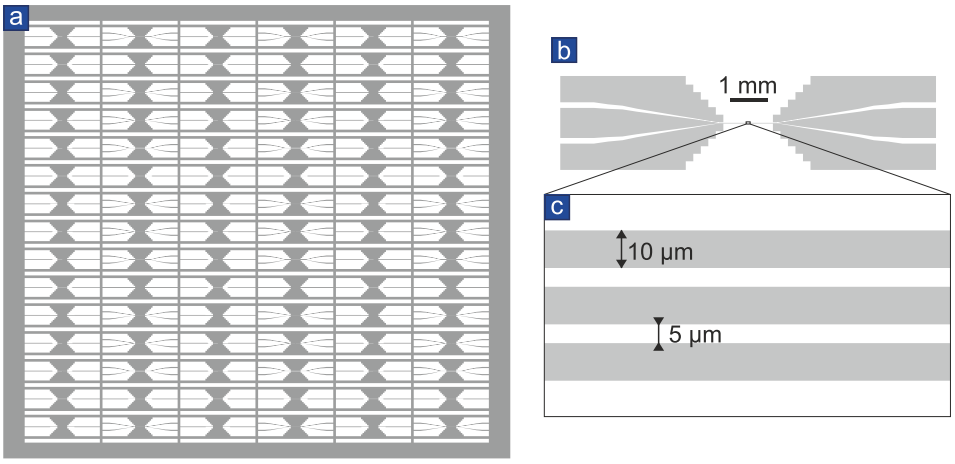


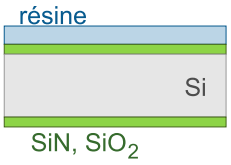
Figure 5.6 – **a.** Dessin en taille réelle reporté en chrome sur une plaque de verre par lithographie laser réalisée par Bruno Fernandez et Sébastien Dufresnes, afin de servir de masque pour la lithographie UV des pistes conductrices. Le métal constituant les pistes se trouvera finalement dans les parties blanches. **b.** Grandissement x5 (et négatif) du dessin a. La taille de la piste est 1.3 mm. **b.** Grandissement x5 (et négatif) du dessin a. La taille de la piste est 1.3 mm. **c.** Grandissement x10 du dessin b, montrant la triple piste lithographiée.

Les fréquences RF et MW utilisées (respectivement < 10 MHz et entre 1 et 3 GHz) sont relativement éloignées, de sorte que les pistes latérales peuvent être capacitivement découplées de la piste centrale. Ainsi, les pistes latérales sont perçues comme des plans de masse par le guide micro-onde à sa fréquence d'opération, ce qui le rapproche d'un guide coplanaire (ou CPW, *coplanar waveguide*) idéal pour le transport de micro-ondes. Les pistes se terminent de part et d'autre du guide par des plateformes plus larges pour la connexion électrique.

Processus de fabrication

Le processus finalement retenu, initialisé avec A. Kuhn et établi avec l'aide précieuse de S. Dufresnes et B. Fernandez du pôle Nanofab, se déroule donc en deux étapes principales. La première (points 1 à 4) concerne la lithographie des pistes conductrices. La seconde (points 5 à 7) consiste en la gravure du substrat autour de ces pistes. Le détail du processus est développé ci-dessous :

(1)

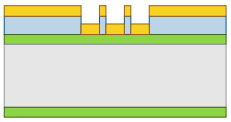


Le substrat est un wafer commercial de **silicium de 200 μm** d'épaisseur recouvert des deux côtés pour l'isolation électrique d'une couche de **SiO_2 de 200 nm** puis d'une couche de **Si_3N_4 de 240 nm**.

(2)

Une couche de **résine positive S1818** est insolée par rayons **UV lointains** à travers un **masque en chrome** qui dessine la forme des pistes, et développée.

(3)

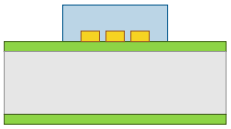


Des couches d'accroche de **5 nm de Ta** puis de **20 nm de Pt** sont déposées par **pulvérisation cathodique**, une méthode relativement agressive qui garantit une bonne adhérence des films. Le métal des pistes est ensuite déposé dans un bâti à **canon à électrons** : **200 nm d'Au** puis **10 nm de Pt** pour limiter la fluorescence parasite.

(4)

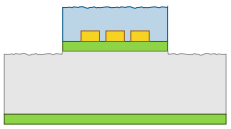
Une étape de **lift-off** finalise la lithographie des pistes conductrices. Cette étape assez délicate est réalisée en plusieurs trempages dans des bains d'acétone sous agitation assez lente car les couches lithographiées sont relativement épaisses.

(5)



Une seconde couche de résine assez épaisse est déposée et insolée par UV lointains à travers un **masque de plastique** plus large que les pistes.

(6)



La résine sert de masque lors d'une étape de gravure **RIE** (Reactive Ion Etching) des couches isolantes de SiN et de SiO_2 dans un **plasma de SF_6**. L'épaisseur gravée est contrôlée par interférométrie.

(7)

La gravure complète du substrat en silicium est réalisée dans **une solution de KOH concentrée à 45% en masse à 85°C** pendant environ 5h. Le platine, l'or et le nitrure de silicium SiN résistent très bien, l'oxyde de silicium SiO_2 est seulement légèrement attaqué. La réaction très exothermique s'accompagne d'un dégagement gazeux important, ce qui a tendance à faire glisser ou à arracher les pistes trop fines ou peu adhérentes.

Gravure anisotrope du silicium et masquage sacrificiel

La gravure du silicium {100} par la potasse concentrée (KOH) présente l'intérêt d'être anisotrope : elle ne grave presque pas les plans cristallins {111}, qui sont les plus densément remplis de la structure cristalline type "diamant" du silicium. Ainsi ces plans, illustrés sur la Figure 5.7a, font office de plans d'arrêt de la gravure. Le résultat d'une gravure-test après un processus simplifié est représenté en Figure 5.7b et c. Cependant, trois difficultés majeures liées à cette gravure ont dû être contournées pour la fabrication de micro-guides plus élaborés que celui présenté sur cette Figure.

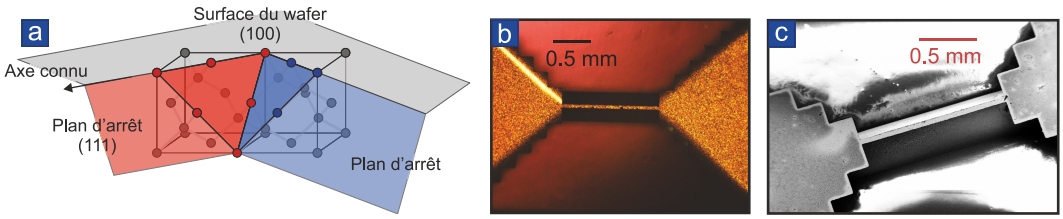


Figure 5.7 – **a.** Schéma des plans d'arrêt de la gravure dans un angle concave bien respecté. **b.** Photographie du résultat d'une gravure pour un processus de fabrication simplifié sans structuration des couches conductrices. **c.** Image au MEB (microscope électronique à balayage) du même guide.

La première difficulté est l'adhérence médiocre des pistes lithographiées sur des verres tels que le SiN. Or, cette adhérence est critique lors de la réaction de gravure au KOH exothermique et accompagnée d'un violent dégagement gazeux. Finalement, les couches d'accroche des pistes ont été déposées par pulvérisation cathodique réalisée avec P. David. Le métal se dépose alors avec une énergie plus grande que dans un bâti classique de dépôt par canon à électrons, et les films minces produits adhèrent alors mieux à leur substrat. Une couche de platine est ajoutée comme seconde couche d'accroche pour sa miscibilité relative avec l'or. Le reste du dépôt a été réalisé dans un bâti de dépôt par canon à électrons. Les pistes se sont avérées d'autant plus adhérentes qu'elles étaient épaisses et larges.

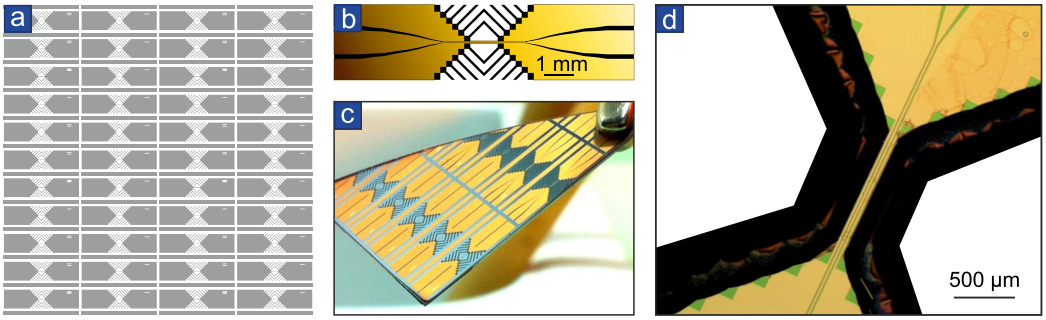


Figure 5.8 – **a.** Détail du second masque (plastique) en taille réelle. **b.** Superposition du masque de gravure du silicium (en noir) et du masque de lithographie des pistes (en gradient de jaunes). **c.** Photographie d'un morceau de wafer structuré à la fin de l'étape 6, juste avant la gravure finale du silicium. L'or apparaît jaune, le SiN sombre et le silicium exposé argenté-bleuté. L'aspect mat de l'or et du SiN est dû à une couche de résine résiduelle qui les recouvre, rendue granuleuse par l'attaque précédente en RIE. **d.** Photographie au microscope du résultat de la gravure (à la fin de l'étape 7). Le SiN apparaît en vert. Dans le coin supérieur droit, on distingue un reste de résine qui ne gêne pas l'utilisation du guide. La base du guide se distingue sur le fond noir grâce au liseré coloré des membranes résiduelles de SiN et SiO_2 du fond de l'échantillon.

La seconde difficulté est liée à la gravure intempestive entre les pistes conductrices. Les lignes du dessin des pistes de la Figure 5.6b inclinées autrement que de 0° ou de 90° n'intersectent pas de plan {111} d'arrêt de la gravure. Si un masque suivant ce dessin est proposé à la gravure, celle-ci sous-grave alors complètement les détails inclinés et les pistes se retrouvent suspendues.

C'est la raison pour laquelle une seconde étape de masquage (étapes 5 à 7) a été ajoutée au procédé : elle permet de conserver la couche de SiN entre et au-delà des pistes, ce qui interdit la gravure du silicium à ces endroits (puisque le SiN résiste extrêmement bien à l'attaque par la potasse).

Le masque utilisé est représenté en Figure 5.8a en taille réelle et imprimé sur un plastique transparent. La Figure 5.8b superpose ce second masque (en noir) avec le dessin des pistes (en gradient de jaunes) pour indiquer les zones supplémentaires protégées.

La troisième difficulté concerne les **angles convexes** du dessin. Si la gravure du silicium respecte parfaitement les angles concaves, elle sous-grave systématiquement tous les angles convexes, ce qui fragilise les structures. Après plusieurs essais et ajustements des paramètres de gravure (température du bain, épaisseur du substrat gravé...), un dessin a été retenu, qui protège les angles convexes critiques par des bandes sacrificielles obliques [172–174] (Figures 5.8a, b et c). On obtient ainsi le résultat après gravure imagé au microscope optique reproduit en Figure 5.8d. Le microguide est ensuite monté sur un support en titane photographié sur la Figure 5.9a, conçu et fabriqué spécialement pour le montage optique (réalisation : J. Jarreau).

Dépôt d'une microbille magnétique

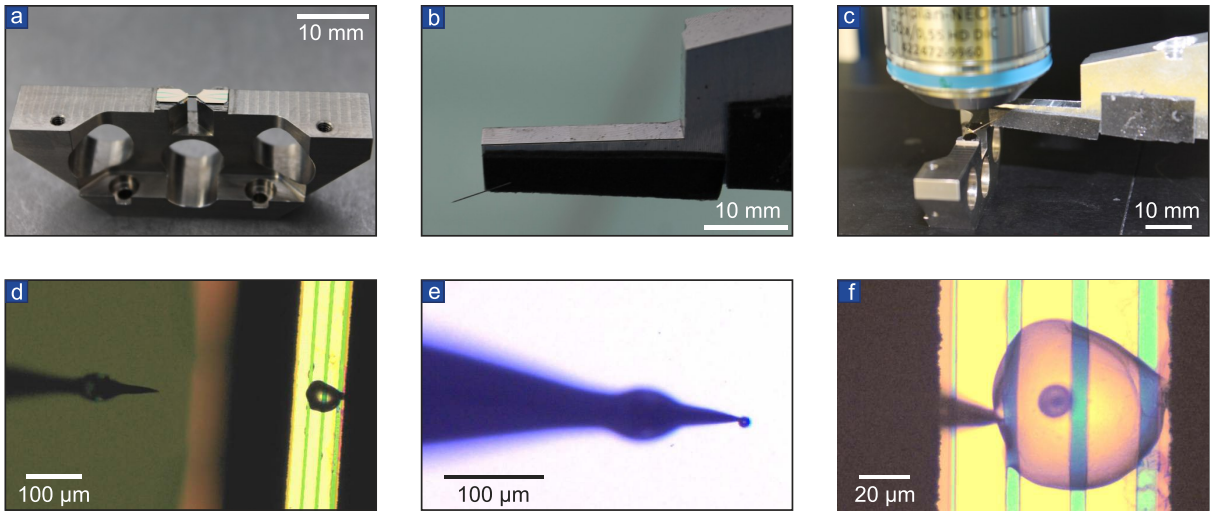


Figure 5.9 – **a.** Montage du guide sur un porte-échantillon adapté à la présence des objectifs de microscope. **b.** Pointe de collage en tungstène montée sur micro-manipulateurs (non visibles). **c.** Dispositif de collage sous microscope (50x). **d.** Dépôt d'une goutte de colle sur le guide par une pointe effilée visible à gauche. **e.** Sélection d'une microbille parmi un ensemble dispersé sur un *wafer* de silicium. **f.** Dépôt de la bille dans la goutte.

Une microbille magnétique de néodyme-fer-bore, fabriquée par N. Dempsey et son équipe est utilisée pour produire un fort gradient de champ magnétique à proximité de l'extrémité du fil. Cette bille est collée sous un microscope au moyen d'un micro-manipulateur maœuvrant une pointe de tungstène similaire à celles servant de support aux nanofils (Figure 5.9b) : une goutte de colle est déposée au préalable sur le microguide (photographies des Figure 5.9c et d), puis une bille de 12 μm est sélectionnée, collée au bout de la pointe (voir Figure 5.9b), et enfin déposée dans la goutte de colle sur le microguide au-dessus de la piste centrale (Figure 5.9c). La colle est ensuite étalée avec la pointe afin de limiter la proéminence verticale de la goutte.

La bille se comporte comme un dipôle magnétique très proche de l'idéalité. Son aimantation a été fixée dans la direction perpendiculaire au guide par immersion dans un champ magnétique

d'1 T à température ambiante, dans un trou de champ mis à disposition par le LNCMI (Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses) voisin, avec l'aimable concours de P. Chometon.

Intégration du guide dans l'expérience

Les trois pistes du guide sont enfin reliées par microsoudure aux trois pistes d'une plaque PCB de chaque côté du guide (voir Figure 5.10) pour sa connexion électrique. Les plaques PCB symétriques ont été réalisées par C. Hoarau du pôle électronique du laboratoire qui a également conçu le dispositif de découplage capacitif des pistes micro-onde et radio-fréquence sur les bords des plaques.

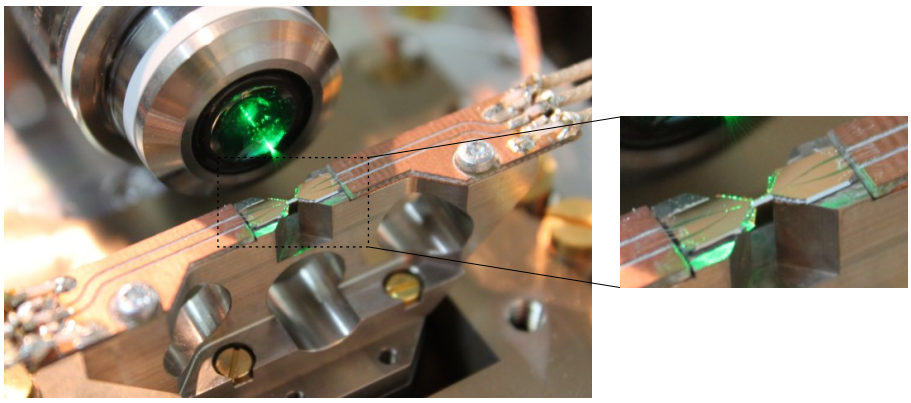


Figure 5.10 – Intégration électrique du guide, supports réalisés par C. Hoarau. Le guide est ici photographié dans sa disposition finale : le support est vissé par les vis en laiton visibles en bas de l'image sur l'étage piézoélectrique miniature lui-même inséré dans la lumière d'un second étage piézoélectrique. Le guide est alors juste en dessous du point focal de l'objectif d'injection du laser d'excitation visible sur cette photographie. Comme dans les expériences précédentes, un second objectif est placé symétriquement à celui-ci, puis le support en forme de kiosque auquel est suspendu le nanofil est vissé, un pied entre chaque élément, de sorte à recouvrir les deux objectifs et le guide. L'extrémité libre du nanofil se retrouve alors à la fois au point focal des objectifs et juste au dessus de la partie centrale du guide d'onde.

Le guide remplace finalement la pointe électrostatique dans l'expérience décrite au Chapitre 2 : son positionnement est donc désolidarisé du réglage du montage de détection, de la même manière que dans les expériences décrites précédemment.

5.2.2 Mesure optique de l'état de spin (ODMR)

La mesure optique de l'état de spin s'appuie sur la différence de taux de fluorescence des différents états de spin du centre NV (voir Figure 5.11). L'état de spin $m_s = 0$ réalise des cycles optiques rapides, tandis que les états de spin $m_s = \pm 1$ peuvent réaliser soit un cycle optique rapide, soit un cycle lent (car il implique un changement de système de spin) via l'état métastable sombre : le centre NV est donc moins fluorescent s'il est dans cet état de spin. Cette différence de fluorescence fournit un moyen pratique de lire l'état de spin, souvent appelé ODMR (Optically Detected Magnetic Resonance). Ainsi, en partant d'un centre NV polarisé dans son état fondamental $m_S = 0$ selon le mécanisme de pompage optique évoqué dans le paragraphe 5.1.3 [167], on enregistre une baisse de fluorescence lorsque le qubit de spin est soumis à un champ micro-onde résonant avec une transition $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = 1$ ou $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = -1$ qui peuple l'état de spin $m_s = \pm 1$.

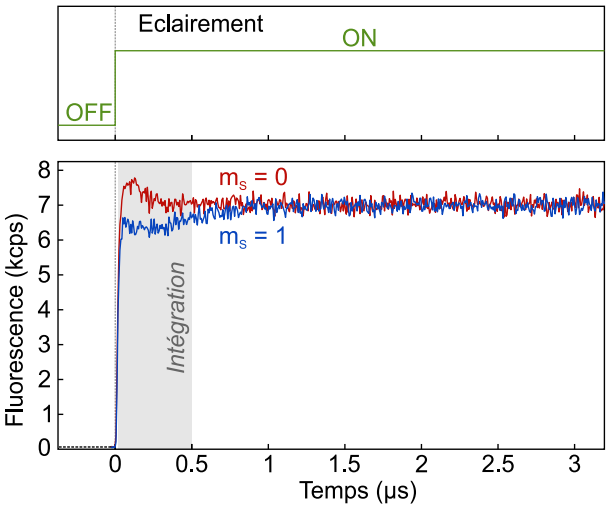


Figure 5.11 – **Différence de fluorescence** entre les états de spin 0 (rouge) et 1 (bleu) d'un centre NV attaché au bout d'un nanofil après l'allumage rapide du faisceau d'excitation. On observe le profil de *bunching* évoqué dans le Chapitre 4 (section 4.1.3) pour l'état de spin $|m_S = 0\rangle$, l'évolution de la population du spin initialement polarisé dans l'état $|m_S = 1\rangle$ étant plus complexe. Le spin est préparé dans son état excité par application d'un *pulse* π micro-onde (voir paragraphe ultérieur sur la manipulation du spin).

En l'absence d'excitation résonante à la transition de l'état fondamental vers celui-ci, l'état de spin $m_S = -1$ n'est pas peuplé. La fluorescence stationnaire totale peut alors être décrite de manière phénoménologique comme la somme des contributions de l'état de spin $m_S = 0$ (brillant, de taux de fluorescence ϕ_0) et de celle de l'état de spin $m_S = 1$ (moins brillant, de taux de fluorescence ϕ_1). L'existence des états métastables de spin global 0 en tant que canal de désexcitation sombre est prise en compte par le taux de fluorescence réduit attribué à ce dernier état. Plus généralement, les taux de fluorescence effectifs ϕ_1 et ϕ_0 tiennent compte du temps passé dans les états non-brillants de chaque système $m_S = 0$ et $m_S = 1$. La fluorescence s'écrit donc :

$$\Phi[\delta] = (\phi_0\,\rho_0^{\mathrm{st}} + \phi_1\,\rho_1^{\mathrm{st}})\frac{s}{s+1} = \left(\left(\frac{\phi_1+\phi_0}{2}\right) + \left(\frac{\phi_0-\phi_1}{2}\right)\left(\rho_0^{\mathrm{st}} - \rho_1^{\mathrm{st}}\right)\right)\frac{s}{s+1}, \tag{5.4}$$

où on a noté $\rho_0^{\mathrm{st}}, \rho_1^{\mathrm{st}}$ les populations stationnaires des deux systèmes concernés (la notation σ étant réservée aux opérateurs de spin dans ce chapitre), qui vérifient la relation de fermeture $\rho_0^{\mathrm{st}} + \rho_1^{\mathrm{st}} = 1$. On a également inclu de manière phénoménologique les effets de saturation optique via le paramètre $s = I/I_{\mathrm{sat}}$. On peut montrer [72,175] que la différence des populations $\rho_1^{\mathrm{st}} - \rho_0^{\mathrm{st}}$ suit une loi Lorentzienne du désaccord $\delta = \omega - \omega_0$ entre la pulsation de transition du qubit et celle du champ micro-onde :

$$\rho_1^{\mathrm{st}} - \rho_0^{\mathrm{st}} \propto \frac{\Gamma_{\mathrm{eff}}^2}{\delta^2 + \Gamma_{\mathrm{eff}}^2}, \tag{5.5}$$

où on a fait apparaître la largeur Γ_{eff} de la transition. Celle-ci dépend des taux de dissipation et de décohérence du qubit de spin, et est de plus éventuellement artificiellement augmentée par le pompage par le champ micro-onde et par l'existence d'un couplage hyperfin avec le spin nucléaire de l'atome d'azote du centre NV. Finalement, la fluorescence s'écrit donc :

$$\Phi[\delta] = \Phi_0\left(1 - C\frac{\Gamma_{\mathrm{eff}}^2}{\delta^2 + \Gamma_{\mathrm{eff}}^2}\right), \tag{5.6}$$

où Φ_0 est le taux de fluorescence hors résonance qui dépend de la configuration de saturation et des taux de fluorescence de chaque état, et C est un contraste qui dépend de la différence

des taux de fluorescence, des puissances optique et micro-onde, ainsi que de la différence des populations.

En pratique, la pulsation micro-onde est balayée à travers la pulsation de transition ω_0 du système à 2 niveaux, tandis qu'une excitation constante en lumière verte pompe le centre NV. On mesure alors continuellement le flux moyen de photons de fluorescence. Lorsque la pulsation micro-onde vaut exactement la pulsation de transition ω_0, l'état brillant est partiellement dépeuplé au profit de l'état sombre, et la fréquence de transition peut être détectée par la baisse de fluorescence. Le résultat de cette mesure, dite de **résonance paramagnétique de l'électron** (ou **ESR**, Electronic Spin Resonance), a été ajusté dans la suite par la fonction de l'équation 5.6.

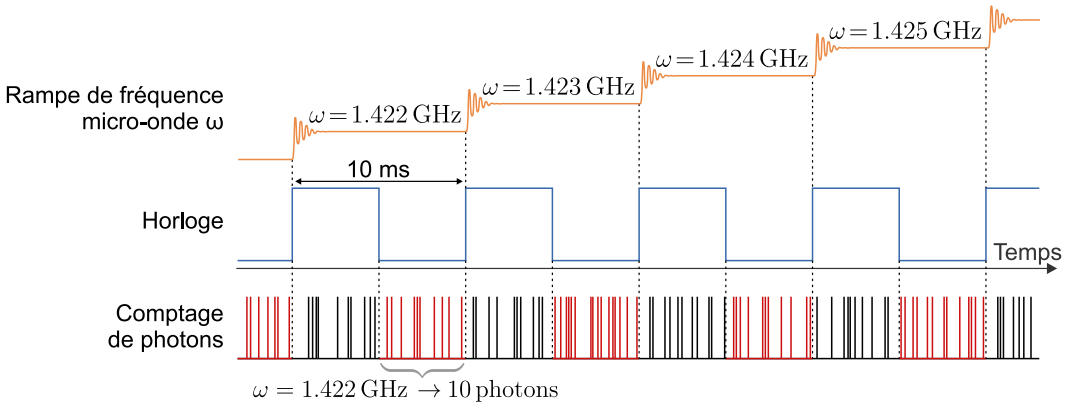


Figure 5.12 – **Protocole d'une expérience d'ESR.** La carte d'acquisition est programmée pour générer des créneaux de tension ("Horloge", trait plein bleu) sur l'une de ses voies de comptage (qui peuvent servir aussi bien d'entrée pour des signaux à mesurer que de sortie pour des signaux digitaux programmés). Les fronts montants sont utilisés pour déclencher les changements de fréquence micro-onde sur une rampe préalablement configurée. Le comptage de photons est réalisé de manière synchronisée ainsi que dans le chapitre précédent (voir paragraphe 4.2.2) : les impulsions de tension fournies par la photodiode à avalanche (APD), envoyées sur une seconde voie de comptage, sont comptés entre chaque front descendant et le front montant suivant du signal d'horloge. Le nombre de photons comptés à chaque pas de fréquence est divisé par la demi-période du signal d'horloge pour donner une mesure de flux. Les photons arrivant au début de chaque pas de fréquence micro-onde ne sont pas comptés pour éviter la mesure pendant le régime transitoire du générateur de fréquence micro-onde.

Cette expérience est réalisée à partir du programme d'interfaçage en Python utilisé tout au long de la thèse. Celui-ci prépare le générateur micro-onde vectoriel SMBV100A à réaliser des rampes de fréquence micro-onde, en changeant de fréquence à chaque fois que le front montant d'une impulsion de tension est détecté. D'autre part, il prépare la carte d'acquisition DAQ pour qu'elle enregistre des nombres de photons de manière également synchronisée sur des créneaux de tension (voir l'explication de la mesure de fluorescence dans le Chapitre 4, section 4.2.2). Enfin, la même carte NI est utilisée pour produire une suite de créneaux de période typique $5 - 20\,\mathrm{ms}$, utilisés pour déclencher à la fois le changement de fréquence et la mesure de fluorescence. Pour éviter de commencer à compter les photons immédiatement après un changement de fréquence, les photons ne sont comptés qu'à partir d'un front descendant jusqu'au front montant suivant. La procédure est répétée plusieurs fois pour moyenner le résultat de la mesure de fluorescence. La Figure 5.13 présente le résultat de cette mesure pour un centre NV typique hors champ magnétique. Les deux transitions $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = 1$ et $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = -1$ y apparaissent à des fréquences légèrement différentes autour de 2.857 GHz.

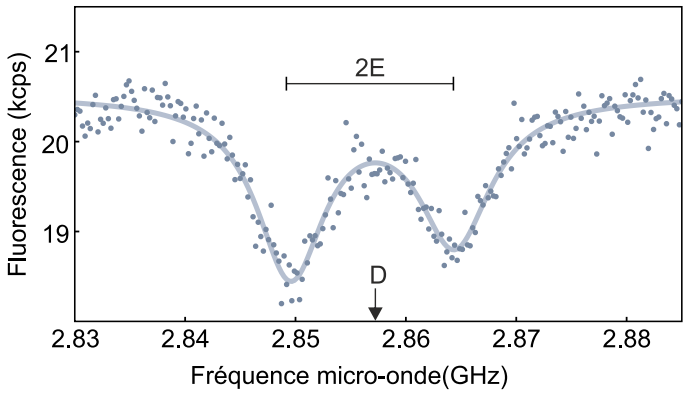


Figure 5.13 – Mesure d'ESR adaptée de [72], pour un centre NV typique hébergé dans un nanocristal de diamant hors champ magnétique. On a représenté la levée de dégénérescence $2E$ entre les deux transitions de spin autorisées $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = 1$ et $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = -1$. L'ajustement par une somme incohérente de fonctions Lorentziennes de la forme de l'expression 5.6 en trait plein bleu clair donne $D = 2.857\,\text{GHz}$ et $E = 7.57\,\text{MHz}$.

5.2.3 Positionnement d'un spin dans un champ magnétique inhomogène

Modèle de la fluorescence dans l'espace autour d'un dipôle magnétique

On utilise des cartes de fluorescence réalisées en balayant le nanofil autour de la micro-bille magnétique pour orienter et positionner le centre NV en un point favorable pour l'étude du couplage hybride, c'est-à-dire un point où on trouve :

- un fort gradient de champ magnétique statique
- un champ magnétique statique B_0 orienté selon l'axe optique z. De plus, il est particulièrement intéressant d'amener la fréquence de transition par effet Zeeman statique autour de 1.42 GHz (ce qui correspond à environ 51 mT) car les deux états pertinents du triplet de spin excité sont alors presque dégénérés. Les transitions de spin dites "flip-flop" entre les spins électronique et nucléaire (de l'atome d'azote du NV) sont alors favorisées. Le pompage continu du spin électronique dans son état $m_S = 0$ entraîne alors une polarisation du spin nucléaire et l'affinement consécutif des raies spectrales ESR [176, 177]. Cette condition d'opération est appelée ESLAC pour Excited State Level Anti-Crossing.
- un fort constraste d'ESR : dans l'idéal, le champ magnétique oscillant produit par le guide d'onde serait perpendiculaire à l'axe N-V
- des taux de fluorescence suffisamment élevés, pour limiter le temps de moyennage.

Ce positionnement est donc crucial pour la suite de l'expérience. On peut montrer qu'il existe une position idéale devant la bille magnétique (on retrouve une position derrière la bille magnétique mais le champ d'excitation est alors masqué par celle-ci). Grâce au modèle de la fluorescence d'un centre NV établi par B. Pigeau, exposé dans [74] et développé dans la suite, on a construit un protocole pour trouver l'orientation et la position idéales.

On assimile la microbille à un dipôle parfait $\boldsymbol{\mathcal{M}}$ positionné au centre de la bille. Le champ magnétique y s'exprime en fonction de l'aimantation totale de la sphère :

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi}\left(\frac{(\boldsymbol{\mathcal{M}}\cdot\mathbf{r})\mathbf{r}}{|\mathbf{r}|^5} - \frac{\boldsymbol{\mathcal{M}}}{|\mathbf{r}|^3}\right), \qquad \boldsymbol{\mathcal{M}} \equiv m_0\frac{4}{3}\pi R_{\text{sph}}^3. \tag{5.7}$$

où m_0 dénote l'aimantation volumique de la bille magnétique. On repère l'orientation du dipôle magnétique de la bille avec deux angles θ_S et ϕ_S :

$$\begin{pmatrix} B_X \\ B_Y \\ B_Z \end{pmatrix} = R_Z(\phi_S) \cdot R_Y(\theta_S) \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \mathcal{M} \end{pmatrix} \tag{5.8}$$

où R_Y et R_Z sont les matrices de rotation autour des axes Y et Z respectivement :

$$R_Y(\theta) = \begin{pmatrix} \cos\theta & 0 & \sin\theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin\theta & 0 & \cos\theta \end{pmatrix}, \qquad R_Z(\theta) = \begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta & 0 \\ \sin\theta & \cos\theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{5.9}$$

Ce champ magnétique est injecté dans l'expression du Hamiltonien local du centre NV, les composantes pertinentes sont donc finalement celles du vecteur champ magnétique dans le repère attaché au centre NV. On repère aussi l'orientation de celui-ci avec deux angles θ_{NV} et ϕ_{NV}, de sorte que les composantes du champ magnétique dans la base attachée au centre NV sont :

$$\begin{pmatrix} B_x \\ B_y \\ B_z \end{pmatrix}_{\text{NV}} = R_Z(\theta_{\text{NV}}) \cdot R_Y(\phi_{\text{NV}}) \cdot \begin{pmatrix} B_X \\ B_Y \\ B_Z \end{pmatrix}. \tag{5.10}$$

On ne conserve dans le modèle qu'un triplet de spin fondamental, un triplet de spin excité et un état métastable, soient 7 niveaux notés $|\psi_1\rangle$ à $|\psi_7\rangle$, représentés avec leurs taux de transitions sur la Figure 5.14.

La matrice des taux de transition (le numéro de la ligne dénote le niveau de départ, le numéro

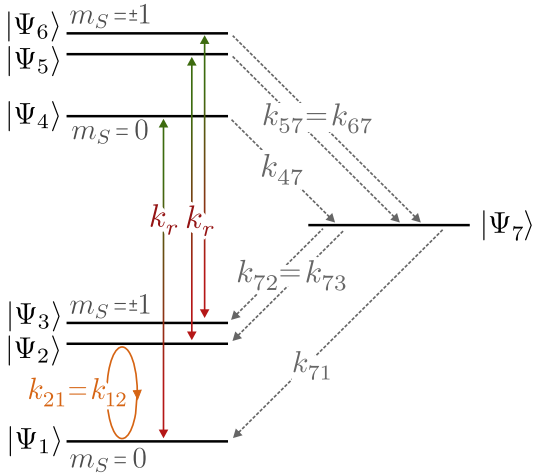


Figure 5.14 – Modèle à 7 niveaux, hors champ magnétique, utilisé pour les simulations, développé dans [74].

de la colonne le niveau d'arrivée) est :

$$K_0 = \begin{pmatrix} 0 & k_{12} & k_{13} & \beta k_r & 0 & 0 & 0 \\ k_{12} & 0 & 0 & 0 & \beta k_r & 0 & 0 \\ k_{13} & 0 & 0 & 0 & 0 & \beta k_r & 0 \\ k_r & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & k_{47} \\ 0 & k_r & 0 & 0 & 0 & 0 & k_{57} \\ 0 & 0 & k_r & 0 & 0 & 0 & k_{57} \\ k_{71} & k_{72} & k_{72} & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{5.11}$$

k_{12} et k_{13} ne sont non-nuls qu'en présence d'une excitation micro-onde résonante respectivement entre les niveau 1 et 2 d'une part et 1 et 3 d'autre part. k_r représente le taux de désexcitation

brillante. Le paramètre β permet d'asymétriser les taux d'excitation laser non-résonante et de relaxation spontanée. Les équations de Bloch faisant intervenir ces taux de transition régissent la dynamique des populations $\{\rho_i\}_{i=1...7}$. En leur ajoutant la condition de fermeture $\sum_{i=1}^{7}\rho_i = 1$ soit $\rho_7 = 1 - \sum_{i=1}^{6}\rho_i$, on trouve l'équation d'évolution suivante :

$$\dot{\boldsymbol{\rho}} = M \cdot \boldsymbol{\rho} + L \tag{5.12}$$

où M est une matrice de dimension 6×6 et L un vecteur de dimension 1×6 dont les coefficients sont donnés par :

$$\begin{cases} (M)_{ij} = (K_0)_{ji} - (K_0)_{7i} & i,j < 7, j \neq i \\ (M)_{ii} = -\displaystyle\sum_{k=1}^{7}(K_0)_{ik} - (K_0)_{7i} & i,j < 7 \end{cases} \qquad (L)_i = (K_0)_{7i}. \tag{5.13}$$

Les populations stationnaires sont alors les solutions de l'équation stationnaire $M\boldsymbol{\rho} = -L$. Enfin, la fluorescence du système est donnée par les populations des niveaux excités $(4, 5, 6)$:

$$F \propto k_r\,\rho_4 + k_r\,\rho_5 + k_r\,\rho_6 \tag{5.14}$$

Hamiltonien des triplets de spin fondamental et excité du centre NV

Chaque sous-famille de 3 niveaux $(|\psi_1\rangle, |\psi_2\rangle, |\psi_3\rangle)$ et $(|\psi_4\rangle, |\psi_5\rangle, |\psi_6\rangle)$ est une famille propre du Hamiltonien [170] :

$$\frac{H_{NV}}{\hbar} = D\sigma_z^2 + E(\sigma_x^2 - \sigma_y^2) - \frac{g\mu_B}{\hbar}\mathbf{B}\cdot\boldsymbol{\sigma} \tag{5.15}$$

où D est la levée de dégénerescence entre $|m_S = 0\rangle$ et $|m_S = \pm 1\rangle$, et E la levée de dégénerescence due aux contraintes du réseau et aux champs électriques entre les niveaux $|m_S = +1\rangle$ et $|m_S = -1\rangle$. Les matrices σ_x, σ_y et σ_z sont les matrices de Pauli de dimension 3 (distinguées par l'absence de chapeau des matrices de Pauli en dimension 2 utilisées dans les autres sections de ce chapitre) exprimées ci-dessous dans la base $(|m_S = 0\rangle, |m_S = 1\rangle, |m_S = -1\rangle)$:

$$\sigma_x = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 0 & i & -i \\ -i & 0 & 0 \\ i & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}. \tag{5.16}$$

Dans cette base, le Hamiltonien s'écrit :

$$\frac{H_{NV}}{\hbar} = \begin{pmatrix} 0 & -\dfrac{g\mu_B}{\hbar}\dfrac{B_x + iB_y}{\sqrt{2}} & -\dfrac{g\mu_B}{\hbar}\dfrac{B_x - iB_y}{\sqrt{2}} \\ -\dfrac{g\mu_B}{\hbar}\dfrac{B_x - iB_y}{\sqrt{2}} & D - \dfrac{g\mu_B}{\hbar}B_z & E \\ -\dfrac{g\mu_B}{\hbar}\dfrac{B_x + iB_y}{\sqrt{2}} & E & D + \dfrac{g\mu_B}{\hbar}B_z \end{pmatrix} \tag{5.17}$$

Notons que les taux de transition utilisés ici sont bien les taux de transition entre les états de spin $m_S = 0, \pm 1$ et non entre les états propres $m_S = 0, x, y$, ce qui explique qu'on ne parte pas des Hamiltoniens des triplets diagonalisés hors champ magnétique mais des Hamiltoniens écrits dans ces bases non propres. On suppose que l'état métastable noté 7 n'est pas modifié par le champ magnétique. La matrice de passage vers le Hamiltonien de dimension 7×7 diagonalisé est alors diagonale par bloc :

$$P = \begin{pmatrix} P_g & (0) & (0) \\ (0) & P_e & 0 \\ (0) & (0) & 1 \end{pmatrix} \tag{5.18}$$

où P_g et P_e sont les matrices de passage qui diagonalisent les Hamiltoniens des triplets fondamental et excité respectivement. On note $\hat{V}$ le Hamiltonien d'interaction dipolaire qui correspond aux transitions optiques des états fondamentaux aux états excités. Le taux transition de l'état modifié $|\psi_i'\rangle$ à l'état modifié $|\psi_j'\rangle$ est alors, sous l'hypothèse de l'absence de cohérences entre états :

$$(K_0)_{ij} \propto |\langle\psi_j|\hat{V}|\psi_i\rangle|^2 \rightarrow (K_0')_{ij} \propto |\langle\psi_j'|\hat{V}|\psi_i'\rangle|^2 = \sum_p \sum_q |(P)_{ip}|^2 \, |(P)_{qj}|^2 \, (K_0)_{pq}. \tag{5.19}$$

Finalement, en définissant la matrice :

$$R_{ij} = |(P)_{ij}|^2, \tag{5.20}$$

on peut écrire une relation simple entre taux de transition couplés et non-couplés :

$$K_0' = R \cdot K_0 \cdot R. \tag{5.21}$$

On calcule numériquement les populations stationnaires modifiées ρ_i' à partir de l'équation de Bloch avec la nouvelle matrice M, notée M', et du nouveau vecteur L noté L', définies à partir de K_0' au lieu de K_0 : $M'\rho' = -L'$. Finalement, le taux de fluorescence en présence du champ magnétique est :

$$F = \sum_{i=4}^{6} \sum_{j=1}^{3} (K_0')_{ij} \, \rho_i'. \tag{5.22}$$

Grandeurs utilisées dans la simulation

Hamiltonien du centre NV		
$E/2\pi$	10 MHz	Champ de contrainte
$D_g/2\pi$	2.87 GHz	Effet Jahn-Teller dans le triplet fondamental
$D_e/2\pi$	1.42 GHz	Effet Jahn-Teller dans le triplet excité
$\frac{g\mu_B}{h}$	28 GHz/T	Rapport gyromagnétique
Taux de transitions		
$k_{12} = k_{21}$	$0 - 5$ MHz	Fréquence de Rabi $1 - 2$
$k_{13} = k_{31}$	$0 - 5$ MHz	Fréquence de Rabi $1 - 3$
k_r	67 MHz	$= k_{14}, k_{25}, k_{36}$
βk_r	67 MHz	$= k_{41}, k_{52}, k_{63}$
k_{47}	6.4 MHz	
k_{57}	50 MHz	$= k_{67}$
k_{71}	0.8 MHz	
k_{72}	0.6 MHz	$= k_{73}$
autres k_{ij}	0 Hz	
Sphère magnétique		
R_{sph}	$9\,\mu$m	Rayon de la sphère
m_0	5.5×10^5 A/m	Aimantation volumique de la sphère

Cartes de fluorescence et alignement

La Figure 5.15 présente des cartes de fluorescence simulées pour caractériser les orientations relatives du centre NV et d'une bille magnétique. On envisage le déplacement de la bille dans un plan (x, z) (notons l'emploi des minuscules pour différencier ces coordonnées de celles du nanofil vis-à-vis du laser), tandis que la fluorescence est mesurée. Il est équivalent d'envisager un balayage du centre NV dans le champ magnétique de la bille sur les plans dessinés en gris. Un ton micro-onde à 2.7 GHz est ajouté au modèle, ce qui fait apparaître 4 lobes correspondant à la tranche de l'espace où l'une des transitions est résonante à cette fréquence. On a affecté à cette résonance la fréquence de Rabi 2 MHz (qui caractérise son intensité) et la largeur spectrale de 20 MHz, exagérée par rapport aux 7 MHz typiquement mesurés, pour augmenter la visibilité des lobes résonants. La surface sombre centrale quadrilobée sur la Figure 5.15a (simulée pour la situation d'alignement optimale) correspond à la baisse de fluorescence en présence de composantes transverses du champ qui couplent l'état fondamental $m_S = 0$ aux états de spin excités $m_S = \pm 1$ moins brillants.

4 cornes de fluorescence sont disposées autour de cette zone sombre, où l'orientation du champ affecte moins les taux de branchement des états de différent spin. Ces zones sont intéressantes pour l'expérience car elles s'avancent près de la bille magnétique, assurant ainsi un champ magnétique et un gradient de champ magnétique élevés, tout en permettant de conserver un fort taux de fluorescence. Dans les deux cornes disposées le long de l'axe z, le champ magnétique statique et son gradient sont orientés selon z, tandis que dans les deux cornes latérales, le champ magnétique est orienté selon z et son gradient selon x. Le gradient peut être choisi dans l'une ou l'autre des orientations, le couplage hybride étant alors maximisé pour un mouvement dans la direction du gradient. En pratique, on a choisi la situation d'opération la plus confortable selon les centres NV, nanofils et structures de champ, l'excitation mécanique possédant toujours, en pratique, des composantes dans toutes les directions. La Figure 5.15b présente la même carte réalisée 10 μm au-dessus de l'équateur de la bille : elle montre que les cornes disposées selon z ne sont pas robustes dans cette direction, à la différence des cornes disposées selon x qui servent en pratique à l'alignement car elles restent visibles sur des cartes horizontales réalisées au-dessus de la bille.

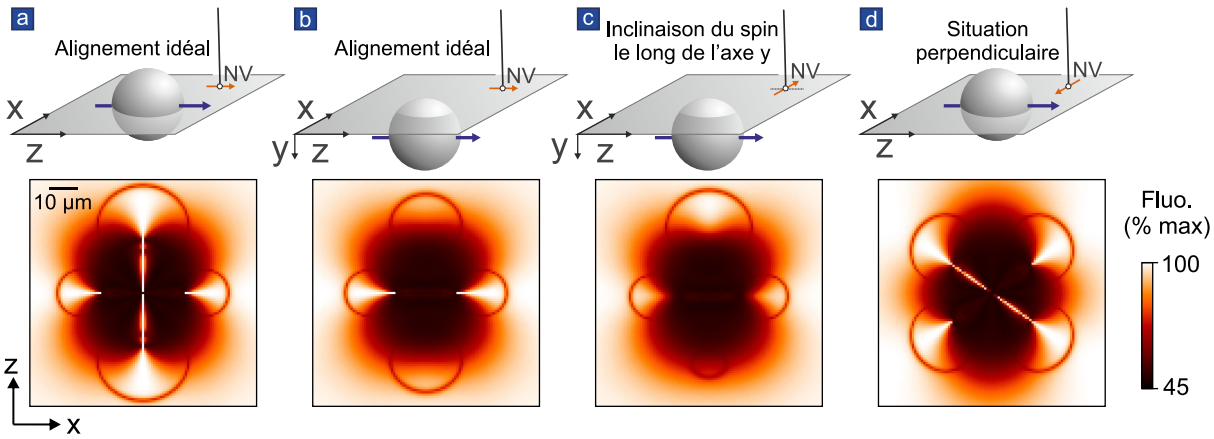


Figure 5.15 – **Quelques cartes de fluorescence simulées,** en présence d'un ton micro-onde à 2.7 GHz. **a.** Carte de fluorescence simulée pour un centre NV dans l'alignement idéal, balayant le plan (x, z) équatorial de la bille (cette carte est donc irréalisable, le nanofil et la bille ne pouvant s'interpénétrer). **b.** Carte similaire pour un centre NV balayant un plan (x, z) 10 μm au-dessus de l'équateur de la bille. **c.** Même carte que b., pour un centre NV incliné le long de l'axe y de 20°. **d.** Carte dans le plan (x,z) équatorial de la bille pour un centre NV dont le spin est aligné avec l'axe x.

Sur la Figure 5.15c, on a simulé la fluorescence d'un centre NV incliné de 20° le long de l'axe y. Au premier ordre en cet angle, la figure de fluorescence, tranches résonantes comprises, est également inclinée dans la direction du spin, ce qui se traduit sur la carte réalisée encore une fois 10 μm au-dessus de l'équateur de la bille par la disparition presque totale de la tranche résonante à petits z et le résidu de corne de fluorescence qui l'accompagne, par l'agrandissement de la tranche résonante à grand z et par la restauration de la corne de fluorescence associée. Enfin sur la Figure 5.15d, on a simulé la fluorescence d'un centre NV aligné avec l'axe x au lieu de l'axe z. Cette inclinaison, contrairement à celle le long de l'axe y, peut facilement être compensée en faisant tourner le nanofil sur son axe, la caractérisation des figures de fluorescence associées permet donc d'évaluer la compensation nécessaire. Il apparaît que la fluorescence ne suit pas complètement le spin : elle est inclinée de 45° (et non de 90°) par rapport à la situation idéale, ce qui doit être pris en compte dans les protocoles d'alignement.

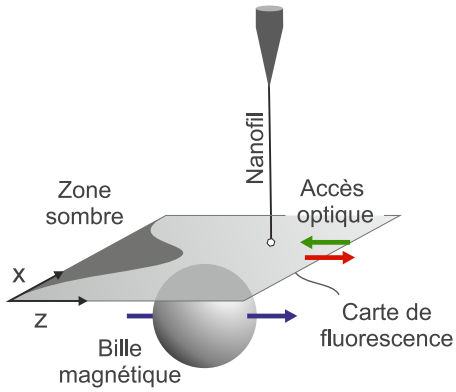


Figure 5.16 – Position des cartes de fluorescence pour l'alignement d'un centre NV vis-à-vis de la micro-bille magnétique. Le guide portant la bille est balayé pendant que la fluorescence est enregistrée : finalement ces cartes correspondent à la fluorescence qui serait mesurée si le centre NV était balayé sur la surface grise horizontale au-dessus de la bille. Sur les cartes réelles, la bille est responsable de l'ombrage de la partie de la carte située en aval de sa position (ce qui correspond aux petits z).

On présente maintenant des cartes de fluorescence réelles, mesurées 13 μm au-dessus de l'équateur d'une bille magnétique de rayon 9 μm (voir Figure 5.16), l'interprétation de ces cartes grâce aux simulations et la compensation de l'inclinaison dans le plan (x, z). On a imagé sur la Figure 5.17 la fluorescence de deux centres NV disposés verticalement à environ 2 μm d'intervalle sur le même nanofil et donc optiquement séparables. Ces deux centres NV se sont trouvés être orientés de la même manière dans le plan (x, z), mais être tous les deux légèrement inclinés dans des directions différentes le long de l'axe y. En pratique, cette inclinaison ne peut pas être compensée, mais elle n'est pas gênante pour la manipulation tant qu'elle reste faible. Il est cependant bien plus confortable de travailler avec un centre NV qui pointe vers le haut à grands z car la présence du guide d'onde sous la bille limite la zone accessible au centre NV : il vaut donc mieux positionner le centre de la figure de fluorescence au-dessus de son équateur.

Le premier montage du nanofil (noté 0° sur la Figure 5.17) a montré des figures de fluorescence compatibles avec une inclinaison des centres NV dans le plan (x,z) de 135° vis-à-vis de l'axe z, c'est-à-dire que le centre NV 1 choisi pour l'expérience nécessitait une rotation de cet angle pour que la tranche résonante frontale se retrouve du côté des grands z. Cette figure est également compatible avec une inclinaison de 19° dans la direction y. Au premier essai de compensation de l'écart angulaire à l'axe z, on s'est trompé de sens de rotation et on a imprimé l'équivalent d'une rotation de $360° - 135° = 225°$ au nanofil : les spin des centres se sont retrouvés presque perpendiculaires au dipôle magnétique de la bille, ainsi que sur la Figure 5.15d. Le deuxième essai (bas de la Figure 5.17, rotation de 135°) a permis de trouver la situation

d'alignement idéale étant donnée l'inclinaison résiduelle selon l'axe y.

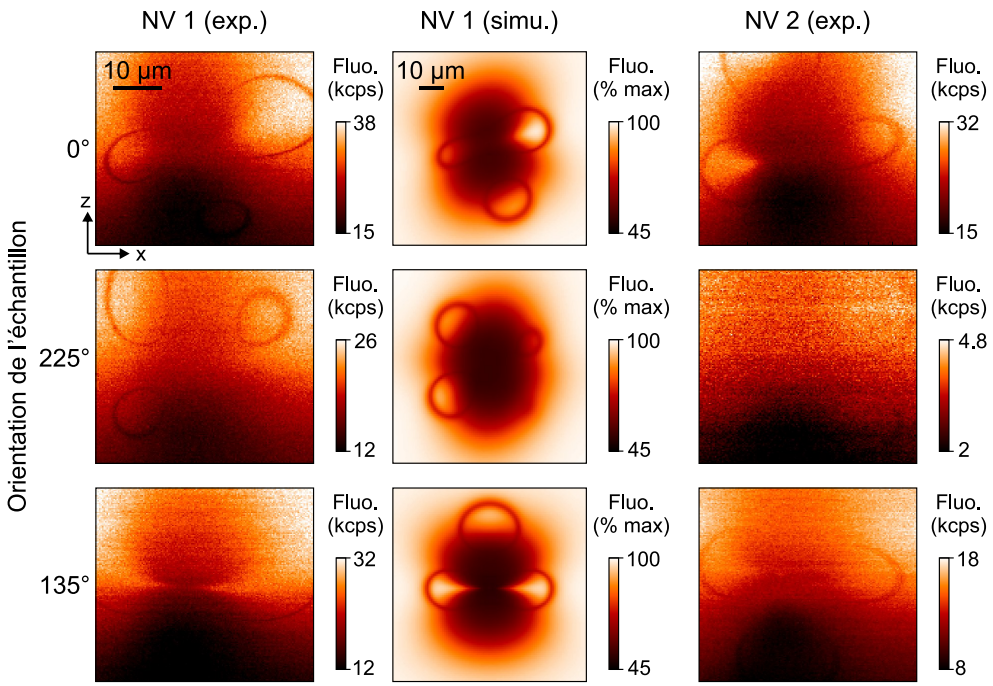


Figure 5.17 – Cartes horizontales (x, z) de fluorescence de deux centres NV collés sur le même nanofil à deux altitudes séparées de 2 μm, mesurées quelques microns au-dessus d'une bille magnétique, en présence d'un ton micro-onde de 2.7 GHz responsable des tranches résonantes sombres. Le centre NV1 est brillant et contrasté tandis que le NV2 l'est un peu moins et présente une signature double d'ESR (qui peut être due au couplage supplémentaire à un spin nucléaire 1/2 voisin comme celui d'un atome de carbone ^{13}C). On a représenté le résultat de simulations reproduisant à peu près les cartes de fluorescence du NV1. Chaque ligne représente les cartes obtenues pour une orientation du nanofil, et donc des centres NV, vis-à-vis de la bille magnétique.

Notons que certaines sources de modulation des figures de fluorescence ne sont pas prises en compte dans le modèle utilisé pour réaliser des simulations. Notamment, la bille magnétique masque une partie des chemins d'excitation et de fluorescence lorsque le nanofil se retrouve derrière celle-ci le long de l'axe optique, ce qui résulte en une zone sombre supplémentaire à petits z sur les cartes de la Figure 5.17 (voir aussi schéma de la Figure 5.16). L'intensité des lobes résonants dépend également fortement de l'orientation locale du champ magnétique micro-onde engendré par le passage d'un courant dans le guide. Idéalement, celui-ci est perpendiculaire au spin, mais il se trouve que son orientation n'est pas favorable à grands z sur les cartes 5.17, ce qui se traduit par la disparition de la tranche résonante sur la carte en bas à gauche.

Après orientation du centre NV, l'alignement dans la position de l'expérience se fait en réalisant des cartes successives. La Figure 5.18 tirée de [74] montre l'approche du centre NV du centre de la corne de fluorescence frontale à partir de cartes verticales s'approchant progressivement de la bille magnétique, jusqu'à ce que la zone brillante ne représente plus qu'un point.

A partir de mesures d'ESR successives en plusieurs points autour du point de fonctionnement, le gradient de champ magnétique est calibré. On a mesuré des gradients jusqu'à 10000 T/m. Les mesures qui suivent réalisées avec cette nouvelle expérience sont réalisées dans un gradient de champ magnétique de 5000 T/m.

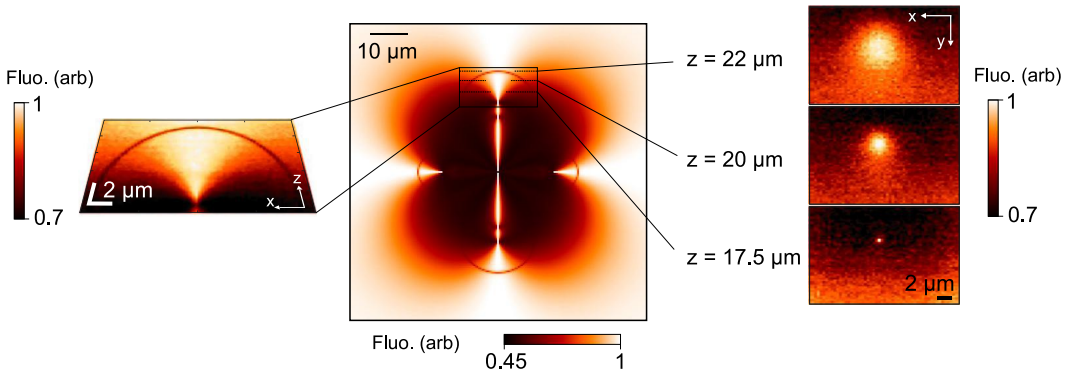


Figure 5.18 – A gauche et à droite : cartes horizontales et verticales de la fluorescence d'un centre NV bien aligné tirées de [74], en présence d'un ton micro-onde à 2.4 GHz. Au centre : carte horizontale simulée de la fluorescence sur laquelle on a représenté la zone imagée à gauche et les positions des coupes transversales représentées à droite.

5.2.4 Oscillations cohérentes : habillage par un champ micro-onde oscillant

L'outil principal utilisé dans ce travail pour sonder le spectre du système hybride dont nous venons de détailler la construction est la mesure d'**oscillations de Rabi** du qubit. Il s'agit d'oscillations de la population du qubit de spin sous l'effet d'un champ transverse à l'axe de quantification, oscillant à sa fréquence de transition. Cette section présente donc d'un point de vue théorique l'habillage du spin du centre NV, envisagé comme un système à deux niveaux ainsi que nous l'avons expliqué dans la section 5.1.3, par un champ micro-onde. Le paragraphe suivant aborde la mise en œuvre expérimentale de la mesure de l'évolution des populations du qubit habillé.

Le spin du centre NV est donc décrit comme un système à deux niveaux d'énergie de transition $\hbar\omega_0$. On introduit les matrices de Pauli en dimension 2 adaptées :

$$\hat{\sigma}_x \equiv \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}; \quad \hat{\sigma}_y \equiv \begin{pmatrix} 0 & i \\ -i & 0 \end{pmatrix}; \quad \hat{\sigma}_z \equiv \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{5.23}$$

On immerge ce spin dans un champ magnétique oscillant à une fréquence micro-onde $\omega/2\pi$, parallèle à l'axe x (et donc perpendiculaire à l'axe de quantification du spin z, qui est en l'occurrence déterminé par l'axe privilégié du centre NV). On notera $\hat{b}^\dagger$ ($\hat{b}$) les opérateurs de création (destruction) d'un photon micro-onde. Le Hamiltonien total du système s'écrit alors :

$$H_1 = \hbar\,\omega_0\,\hat{\sigma}_z + \hbar\,\omega\,\hat{b}^\dagger\hat{b} + \frac{\hbar\,\Omega_R^0}{2}\left(\hat{b}^\dagger + \hat{b}\right)(\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-) \tag{5.24}$$

avec $\hat{\sigma}_+ = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_x + i\hat{\sigma}_y)$ et $\hat{\sigma}_- = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_x - i\hat{\sigma}_y)$, de sorte que leur somme est bien $\hat{\sigma}_x$. En représentation d'interaction, $\hat{b}^\dagger = \tilde{b}^\dagger e^{i\omega t}$, et $\hat{\sigma}_+ = \tilde{\sigma}_+ e^{i\omega_0 t}$. Les termes du Hamiltonien oscillant rapidement à $\omega + \omega_0$ sont alors écartés car ils se moyennent sur des durées comparables à l'autre période caractéristique du système : $1/\Omega_R$. L'abandon de ces termes constitue l'approximation des champs tournants ou RWA (Rotating Wave Approximation) qui n'est bien sûr valide que si $\Omega_R \ll \omega_0, \omega$. Finalement, le Hamiltonien ramené en représentation de Schrödinger se réduit au Hamiltonien de Jaynes-Cummings :

$$H_1 = \hbar\,\omega_0\,\hat{\sigma}_z + \hbar\,\omega\,\hat{b}^\dagger\hat{b} + \frac{\hbar\,\Omega_R^0}{2}\left(\hat{b}^\dagger\hat{\sigma}_- + \hat{b}\hat{\sigma}_+\right) \tag{5.25}$$

Le Hamiltonien d'interaction couple donc uniquement les états $|0, N\rangle$ et $|1, N-1\rangle$ que l'on regroupera dans une **multiplicité** $\mathcal{E}_N = \{|1, N-1\rangle,\ |0, N\rangle\}$. Le Hamiltonien total est diagonal

par bloc, chaque bloc représentant sa restriction à une multiplicité $\mathcal{E}_N$:

$$H_1\Big|_{\mathcal{E}_N} = \hbar \begin{pmatrix} N\omega - \delta & \dfrac{\Omega_R^0\sqrt{N}}{2} \\ \dfrac{\Omega_R^0\sqrt{N}}{2} & N\omega \end{pmatrix} \tag{5.26}$$

avec le désaccord $\delta = \omega - \omega_0$ entre le champ micro-onde et le système à deux niveaux. Chaque bloc du Hamiltonien se diagonalise en donnant les états propres $|\pm N\rangle$ définis à partir des états non couplés $|1, N-1\rangle$ et $|0, N\rangle$, et de l'angle de mélange θ_N :

$$\begin{pmatrix} |+_N\rangle \\ |-_N\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta_N & -\sin\theta_N \\ \sin\theta_N & \cos\theta_N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |1, N-1\rangle \\ |0, N\rangle \end{pmatrix}, \tag{5.27}$$

où $\tan 2\,\theta_N = \dfrac{\Omega_R^0\sqrt{N}}{\delta}$. Les énergies propres associées sont :

$$E_{|\pm N\rangle}/\hbar = N\omega - \frac{\delta}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta^2 + N{\Omega_R^0}^2} = \omega_N \pm \frac{1}{2}\Delta_N. \tag{5.28}$$

On définit donc l'énergie moyenne $\hbar\,\omega_N$ de la multiplicité $\mathcal{E}_N$ et l'écart énergétique $\hbar\Delta_N$ entre ses deux états :

$$\omega_N = \left(N\omega - \frac{\delta}{2}\right), \qquad \Delta_N = \sqrt{\delta^2 + N{\Omega_R^0}^2}. \tag{5.29}$$

Enfin, notons que l'état micro-onde généré en pratique n'est pas un état de Fock mais un état cohérent $|\alpha\rangle \equiv e^{-|\alpha|^2/2}\sum_{n=0}^{\infty}\dfrac{\alpha^n}{\sqrt{n!}}|n\rangle$, caractérisé par un très grand nombre moyen de photons $\langle N\rangle = |\alpha|^2 \gg 1$ et un écart-type sur la statistique de ce nombre de $\sigma_N = \sqrt{\langle N\rangle}$. Les multiplicités concernées, centrées autour de celle d'ordre $\langle N\rangle$, ont alors presque le même écart en énergie $\hbar\,\Delta_N$, celui-ci ne variant typiquement que de $\hbar\,\Omega_R^0/2$ autour de la valeur moyenne de $\hbar\,\Delta_{\langle N\rangle} = \sqrt{\delta^2 + \langle N\rangle{\Omega_R^0}^2}$. On prendra alors pour définition de la pulsation de Rabi sa valeur moyenne :

$$\Omega_R \equiv \sqrt{\langle N\rangle}\,\Omega_R^0. \tag{5.30}$$

La Figure 5.19 présente le spectre du qubit habillé par un champ micro-onde portant toutes les notations introduites.

5.2.5 Protocoles de manipulation du spin

Les oscillations cohérentes de population du qubit de spin peuvent être utilisées pour préparer celui-ci dans un état superposé arbitraire. Pour cela, le Hamiltonien d'interaction $\hbar\Omega_R^0/2\left(\hat{b}^\dagger\hat{\sigma}_- + \hat{b}\hat{\sigma}_+\right)$ est appliqué pendant un temps déterminé : la manipulation de l'état de spin requiert donc la possibilité d'envoyer sur le qubit des impulsions de champ oscillant à la pulsation de résonance du qubit, c'est-à-dire dans le domaine des micro-ondes (2.87 GHz) dans le cas du centre NV.

Ces impulsions de champ oscillant sont produites par des impulsions de courant circulant dans la piste centrale du guide d'onde. Le courant oscillant est fourni par un générateur micro-onde Agilent SMBV100A (en orange, comme tout le circuit de manipulation micro-onde, sur la Figure 5.20) et amplifié de 30 dB (amplificateur Minicircuit ZHL 42/8MA). L'oscillation rapide est éteinte ou allumée à volonté par un *switch* (Minicircuits ZASWA 2 50DR+). Les impulsions sont envoyées dans la piste centrale du guide d'onde après passage dans un circulateur pour éviter les ondes stationnaires parasites dans le guide. Après passage dans toute la chaîne de préparation et le guide, ces impulsions sont retardées d'un peu moins que 26 ns, ce qui est plus

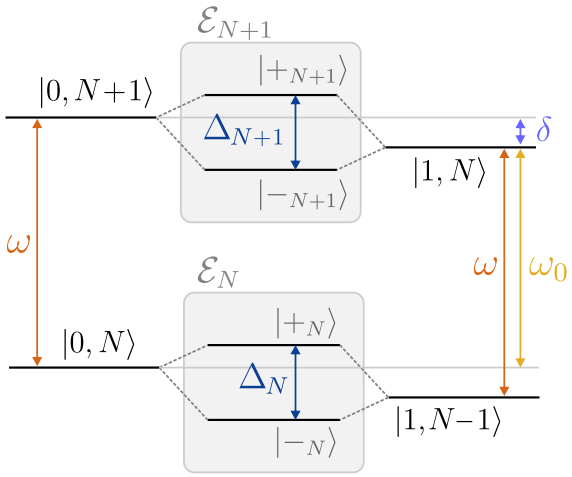


Figure 5.19 – Schéma de couplage des niveaux d'énergie par le Hamiltonien Jaynes-Cummings. Les transitions qui font gagner ou perdre un photon micro-onde sont indiquées en orange. Le couplage engendre des multiplicités d'états dont la séparation en énergie est $\hbar\Delta_N$, soit $\hbar\Omega_R$ la pulsation de Rabi si $\omega = \omega_0$ (et donc $\delta = 0$).

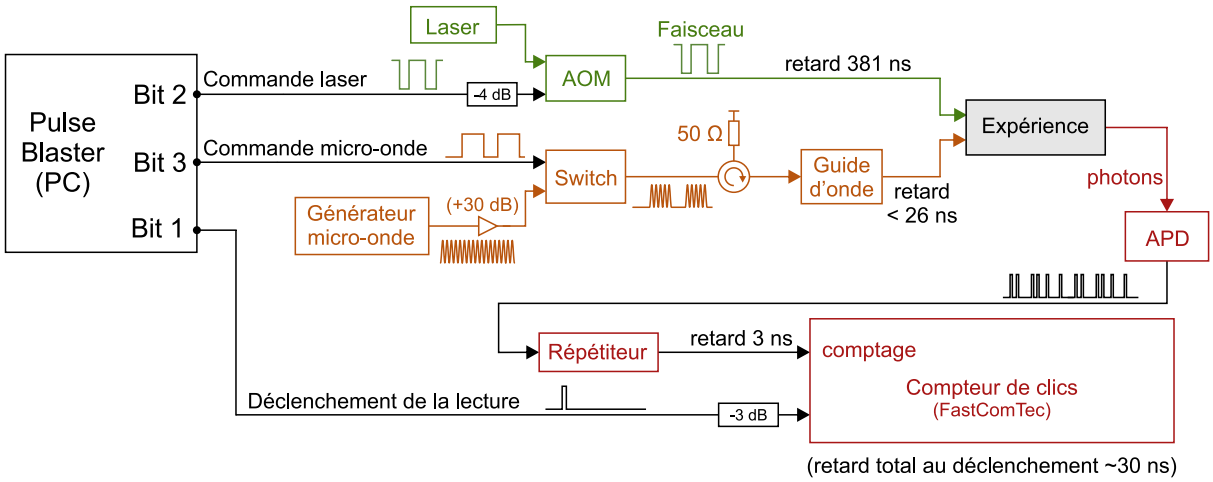


Figure 5.20 – Dispositif de mesure d'oscillations de Rabi. Vert : laser de lecture et de polarisation du centre NV dans son état fondamental. Orange : chaîne de manipulation micro-onde de l'état de spin du centre NV. Rouge : lecture de la fluorescence traduisant l'état de spin du centre NV.

long que la simple durée de propagation (la longueur totale du circuit avoisinant le mètre).

Pour mesurer l'évolution de la population de spin en présence de cette excitation, elle est appliquée sur des durées τ croissantes (voir Figure 5.21 un schéma de principe de la mesure d'oscillation de Rabi d'un centre NV) et les proportions des populations sont lues après chacun de ces intervalles grâce à une impulsion laser dans le vert (en vert sur le schéma du montage 5.20). Le principe de lecture est le même que celui utilisé en ODMR expliqué précédemment : le taux de fluorescence de l'état de spin $m_S = 1$ est moins élevé que celui de l'état $m_S = 0$. L'intégration de la fluorescence (en rouge sur le schéma 5.20) pendant les premières 300 ns suivant le début de l'éclairage laser permet donc de quantifier la proportion de chaque projection de spin dans l'état superposé du spin après application de l'impulsion micro-onde. L'impulsion laser se poursuit sur 7 μs après cela pour réinitialiser le spin en le polarisant dans son état $m_S = 0$ avant la prochaine impulsion micro-onde. Notons qu'une fois le centre NV polarisé dans l'état de spin 0, une durée de 300 ns est intercalée entre l'extinction du laser et le démarrage de l'impulsion micro-onde suivante pour s'assurer que le centre NV démarre bien la nouvelle étape du protocole dans son

état *fondamental* de spin $m_S = 0$ (l'excitation laser ayant disparu). Les impulsions laser sont déclenchées par un modulateur acousto-optique (AOM) dont le temps de montée avoisine 20 ns. Le retard de cette chaîne de contrôle est assez élevé : il a été calibré à 381 ns.

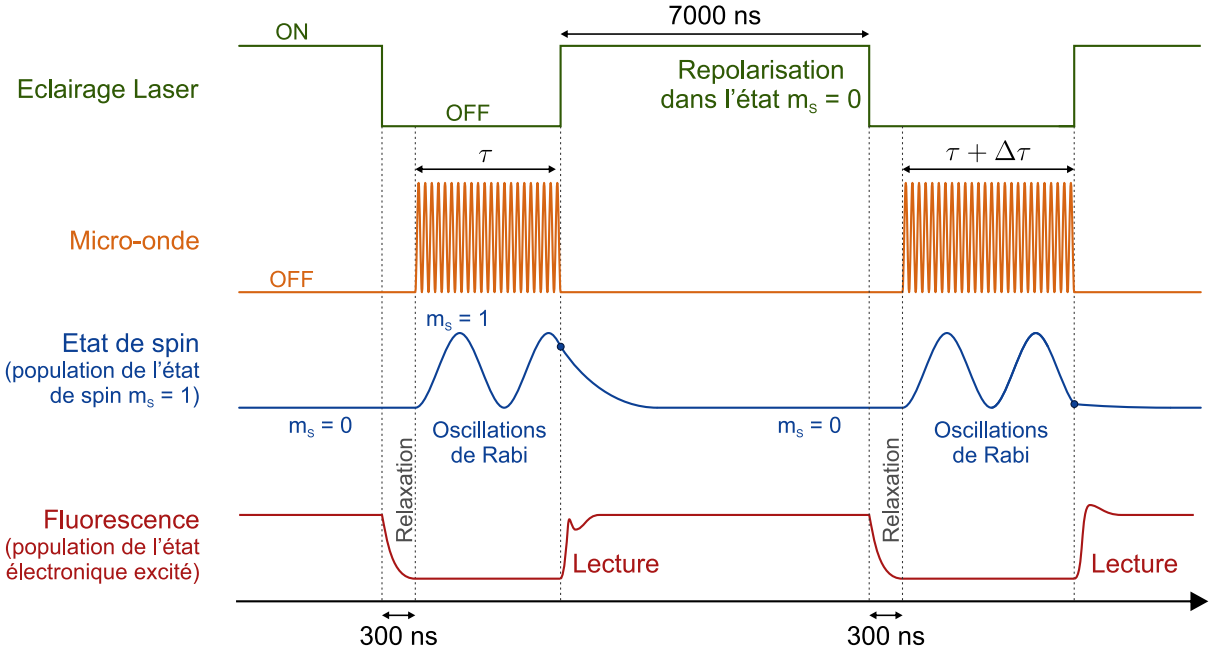


Figure 5.21 – Schéma d'un protocole de manipulation et de lecture des oscillations de Rabi d'un centre NV : enchaînement typique d'une séquence d'impulsion. Les couleurs sont cohérentes avec celles de la Figure 5.20. On a ajouté une représentation de la population de spin $\sigma_z(t) - \mathrm{Id}$ en bleu.

Les impulsions laser et micro-ondes, ainsi que la lecture de la fluorescence, sont synchronisées grâce une carte de contrôle rapide PulseBlasterESR-PRO de fréquence d'échantillonnage 500 MHz. Les trois sorties utilisées pour ces protocoles génèrent des impulsions envoyées respectivement au boîtier de commande de l'AOM, au *switch* micro-onde, et sur la voie *start* de la carte de comptage de la fluorescence FastComTec pour son déclenchement. Ainsi que nous l'avons évoqué, une séquence de manipulation (dont un extrait est schématiquement représenté en Figure 5.21) consiste donc en une suite d'impulsions micro-ondes de durées τ croissantes intercalées d'impulsions laser de 7 μs dont 300 ns sont utilisées pour la mesure de population, puis de temps d'attente de 300 ns de relaxation dans l'état fondamental. Une séquence complète fait typiquement varier τ de 0 à 10 μs par pas de 40 ns et dure finalement environ 3 μs. Au début d'une telle séquence, une courte impulsion de déclenchement (20 ns) est envoyée à la voie *start* de la carte FastComTec pour démarrer le comptage de photons dont le signal est envoyé sur la voie *stop*. Les temps d'arrivées de tous les photons reçus sur la voie *stop* pendant 3 μs, c'est-à-dire pendant toute la séquence de manipulation, sont enregistrés. On a rajouté un petit intervalle de temps mort à la fin de la séquence d'impulsion pour que la voie *start* de la carte de comptage soit réarmée et prête à être redémarrée avant la réinitialisation automatique de la séquence d'impulsion par la carte PulseBlaster. L'impulsion de déclenchement suivante relance le comptage, les acquisitions de temps d'arrivée des photons sur la carte FastComTec s'accumulent ainsi jusqu'à ce que la statistique soit suffisante pour déduire l'état du qubit après chaque durée d'exposition à la micro-onde à partir de l'intégration de la fluorescence sur les 300 premières nanosecondes de chaque créneau de lecture. On reconstruit ainsi l'évolution de l'état du qubit.

Les séquences d'impulsions sont engendrées et contrôlées avant lancement d'un protocole par un programme dédié en Python, permettant de programmer des boucles dans le langage

spécifique de la carte PulseBlaster. Ce programme prend en compte les délais calibrés d'application des impulsions. Chaque voie de contrôle ("Bit 1, 2 et 3" sur la Figure 5.20) est ainsi retardée d'un délai suffisant pour que le protocole se déroule normalement. Enfin le programme permet de contrôler la durée d'exposition de l'expérience au laser : en effet, la procédure d'asservissement bidimensionnel de la position nécessite un éclairage continu de l'expérience.

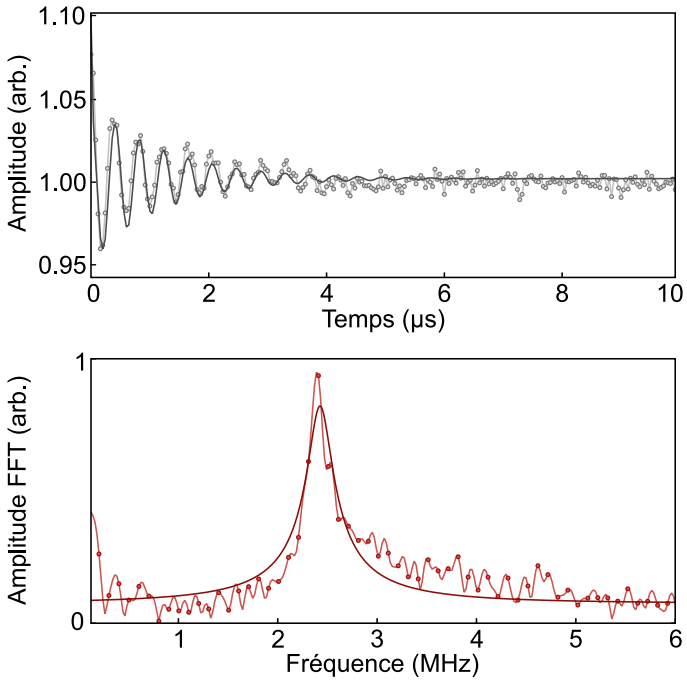


Figure 5.22 – Oscillation de Rabi (haut, points et trait plein gris) d'un spin de centre NV suspendu, moyennée pendant 53 heures, et module de sa transformée de Fourier rapide (FFT, bas, points rouges), pour une excitation micro-onde de puissance 25 dB. Un ajustement Lorentzien selon l'équation 5.31 de cette transformée de Fourier (trait plein rouge foncé) donne la fréquence de Rabi $\Omega_R/2\pi = 2.426$ MHz et la largeur spectrale $\Gamma_{\text{spin}}/2\pi = 805$ kHz, dont la transformée de Fourier inverse est reportée sur la courbe temporelle en trait plein noir. Le trait plein rouge clair sur le graphe du bas correspond au résultat de l'ajout volontaire et artificiel de points à la suite de la mesure temporelle sur 2.5 μs, qui a pour effet de sur-échantillonner la FFT. Cette trace sur-échantillonnée ne contient pas d'information supplémentaire mais la convolution par la fonction sinus-cardinal qui en résulte, (responsable, certes, des oscillations rapides entre les points de faible amplitude) lisse (cependant) les écarts entre points de grande amplitude de manière réaliste, étant donnée la ressemblance des fonctions Lorentzienne et sinus-cardinal, et donne ainsi une meilleure estimation visuelle de la position des pics.

La Figure 5.22 présente une oscillation de Rabi typique du qubit de spin d'un centre NV suspendu sur un nanofil, moyennée pendant 2 jours et 5 heures. La fluorescence intégrée dans chaque intervalle est normalisée à la fluorescence moyenne du centre NV (atteinte et donc mesurée à la fin de chaque intervalle de repolarisation laser). On a représenté le module de sa FFT en-dessous. Le pic à la fréquence de Rabi a été ajusté avec la fonction Lorentzienne :

$$|\hat{\sigma}_z[\Omega]| = \frac{A_0\,\Gamma_{\text{spin}}^2}{(\Omega - \Omega_R)^2 + \Gamma_{\text{spin}}^2}. \tag{5.31}$$

En pratique, les dérives de l'environnement magnétique (en particulier des structures de champ toutes proches) entraînent des fluctuations lentes de la fréquence de transition du qubit de spin (soumis au Hamiltonien Zeeman). Le protocole d'ODMR exposé dans la section 5.2.2 est donc relancé pendant 3 min toutes les 10 min et son résultat automatiquement analysé pour asservir la pulsation micro-onde sur la pulsation de transition. Cet asservissement permet de

compenser des dérives typiques de 700 kHz/h de la fréquence de transition, qui persistent malgré la stabilisation thermique de l'expérience, évitant ainsi l'élargissement artificiel des raies spectrales mesurées.

L'oscillation de la Figure 5.22 a été enregistrée pour une puissance d'excitation micro-onde de 25 dB typique dans nos expériences. La pulsation de Rabi est proportionnelle à la racine carrée de cette amplitude, selon sa définition 5.30, mais dépend également de la distance du centre NV à la piste du guide micro-onde qui génère le champ oscillant. La fréquence Rabi a été déterminée par l'ajustement du module de la FFT de l'oscillation (voir bas de la 5.22), à $\Omega_R/2\pi = 2.426\,\mathrm{MHz}$ dans cette configuration. La largeur spectrale est $\Gamma_{\mathrm{spin}}/2\pi = 805\,\mathrm{kHz}$, soit un temps de cohérence d'environ $1.3\,\mu$s. Ce temps de cohérence est typique pour des centres NV hébergé dans des nanocristaux. S'il est relativement faible par rapport au temps de cohérence habituels des centres NV du diamant massif, il s'agit déjà d'un temps remarquablement long rapporté à celui d'autres systèmes à deux niveaux tels que les boîtes quantiques.

5.3 Observations de triplets de Mollow

5.3.1 Double habillage d'un qubit de spin

On envisage maintenant le mouvement de l'oscillateur dans un champ magnétique inhomogène orienté selon l'axe du centre NV noté z, ce qui a pour effet de moduler l'énergie Zeeman des états $m_S = \pm 1$ du spin. La troncature du développement du Hamiltonien de couplage Zeeman au premier ordre en déplacement de l'oscillateur s'écrit :

$$H_{\mathrm{Zeeman}} = -g\mu_B\,\mathbf{B}(\mathbf{r}_0 + \delta\mathbf{r}(t))\cdot\hat{\boldsymbol{\sigma}} \simeq -g\mu_B\,\mathbf{B}(\mathbf{r}_0)\cdot\hat{\boldsymbol{\sigma}} \;-\; g\mu_B\,(\delta\mathbf{r}(t)\cdot\boldsymbol{\nabla})\,\mathbf{B}\cdot\hat{\boldsymbol{\sigma}}. \tag{5.32}$$

On voit que, quelque soit la direction d'oscillation, un gradient de B_z dans cette direction engendre un couplage de l'oscillation mécanique à $\hat{\sigma}_z$: $-g\,\mu_B\,\delta r_i\,(\partial_i B_z)\,\hat{\sigma}_z$, c'est-à-dire un **couplage paramétrique** entre le qubit de spin et l'oscillation mécanique. L'énergie $\hbar\,\omega_0$ de la transition $m_S = 0 \leftrightarrow m_S = 1$ est alors modulée avec l'amplitude que l'on notera $\delta\omega_0$.

Dans la suite, l'effet du terme statique de l'Hamiltonien Zeeman $-g\mu_B\,\mathbf{B}(\mathbf{r}_0)\cdot\hat{\boldsymbol{\sigma}}$ est considéré comme déjà intégré dans la définition de l'énergie de transition $\hbar\omega_0$. Le couplage paramétrique est écrit en termes des opérateurs de création $\hat{a}^\dagger$ (destruction $\hat{a}$) des phonons $\delta r_i \to x_{\mathrm{zpf}}(\hat{a}^\dagger + \hat{a})$, avec les fluctuations de point zéro :

$$x_{\mathrm{zpf}} \equiv \sqrt{\frac{\hbar}{2M\Omega_{\mathrm{m}}}}, \tag{5.33}$$

et on introduit la constante de couplage adaptée :

$$g_z \equiv -x_{\mathrm{zpf}}\frac{g\mu_B}{\hbar}\partial_i B_z \tag{5.34}$$

où i est la direction d'oscillation. On ajoute ainsi un terme d'interaction H_{int} au Hamiltonien précédemment diagonalisé 5.25 :

$$H_2 = H_1 + \hbar\,\Omega_{\mathrm{m}}\,\hat{a}^\dagger\hat{a} + \underbrace{\hbar\,g_z\left(\hat{a}^\dagger + \hat{a}\right)\hat{\sigma}_z}_{H_{\mathrm{int}}} \tag{5.35}$$

On note $M \equiv \langle\hat{a}^\dagger\hat{a}\rangle \gg 1$ le nombre de phonons moyen du champ oscillant à la pulsation mécanique Ω_{m}, soit $\hat{a}^\dagger \simeq \tilde{a}^\dagger e^{i\Omega_{\mathrm{m}}t}$. La constante de couplage g_z est donc reliée à la modulation en énergie $\delta\omega_0$ par :

$$\delta\omega_0 = 2g_z\sqrt{M}. \tag{5.36}$$

Le Hamiltonien H_1 qui a été calculé précédemment et la matrice $\hat{\sigma}_z$ s'écrivent dans la base $\{|+N\rangle, |-N\rangle\}_{N\in\mathbb{N}}$ comme des matrices diagonales par blocs, chaque bloc étant la restriction à la multiplicité $\mathcal{E}_N$:

$$\frac{H_1\big|_{\mathcal{E}_N}}{\hbar} = \begin{array}{c} \begin{array}{cc} |+_N\rangle & |-_N\rangle \end{array} \\ \begin{pmatrix} \omega_N + \frac{1}{2}\Delta_N & 0 \\ 0 & \omega_N - \frac{1}{2}\Delta_N \end{pmatrix} \end{array}; \qquad \hat{\sigma}_z\big|_{\mathcal{E}_N} = \begin{array}{c} \begin{array}{cc} |+_N\rangle & |-_N\rangle \end{array} \\ \begin{pmatrix} \cos^2\theta_N & \sin\theta_N\cos\theta_N \\ \sin\theta_N\cos\theta_N & \sin^2\theta_N \end{pmatrix} \end{array}. \tag{5.37}$$

Le Hamiltonien total est donc encore diagonal par blocs dans la base constituée des multiplicités $\mathcal{E}_N$. Le passage en représentation d'interaction se fait également à partir d'opérateur d'évolution restreints aux multiplicités [1] :

$$U\big|_{\mathcal{E}_N}(t) = e^{-i\,t\,H_1\big|_{\mathcal{E}_N}/\hbar} = \begin{pmatrix} e^{-i(\omega_N+\frac{1}{2}\Delta_N)t} & 0 \\ 0 & e^{-i(\omega_N-\frac{1}{2}\Delta_N)t} \end{pmatrix} \tag{5.38}$$

Le Hamiltonien de couplage paramétrique en représentation d'interaction restreint à la multiplicité $\mathcal{E}_N$, $H_{\text{int}}^{(N)I} = U^{(N)\dagger}(t)H_{\text{int}}^{(N)}U^{(N)}(t)$, est :

$$\frac{H_{\text{int}}^I\big|_{\mathcal{E}_N}}{\hbar} = g_z \begin{pmatrix} \cos^2\theta_N & \sin\theta_N\cos\theta_N\; e^{i\Delta_N t} \\ \sin\theta_N\cos\theta_N\; e^{-i\Delta_N t} & \sin^2\theta_N \end{pmatrix} \left(\tilde{a}^\dagger e^{i\Omega_{\text{m}}t} + \tilde{a}e^{-i\Omega_{\text{m}}t}\right) \tag{5.39}$$

Ce Hamiltonien contient donc des termes oscillant aux pulsations Ω_{m}, $\Omega_{\text{m}} + \Delta_N$ et $|\Omega_{\text{m}} - \Delta_N|$. L'approximation du champ tournant (RWA), légèrement plus compliquée dans le cas du deuxième habillage, consiste à négliger tous les termes oscillant aux fréquences Ω_{m} et $\Omega_{\text{m}} + \Delta_N$ pour ne garder que les termes oscillant à la fréquence basse $\Omega_{\text{m}} - \Delta_N$ (ce qui est valable dans l'hypothèse où $|\Omega_{\text{m}} - \Delta_N| \ll \Omega_{\text{m}}$, c'est-à-dire $|\Omega_{\text{m}} - \Omega_R| \ll \Omega_{\text{m}}$ et $|\delta| \ll \Omega_{\text{m}}$). Finalement, en représentation de Schrödinger :

$$\frac{H_{\text{int}}\big|_{\mathcal{E}_N}}{\hbar} \simeq g_z \sin\theta_N\cos\theta_N \begin{pmatrix} 0 & \hat{a} \\ \hat{a}^\dagger & 0 \end{pmatrix} = g_z \sin\theta_N\cos\theta_N \left(\hat{a}^\dagger\hat{\sigma}_-^{(N)} + \hat{a}\hat{\sigma}_+^{(N)}\right) \tag{5.40}$$

où les opérateurs $\hat{\sigma}_+^{(N)}$ et $\hat{\sigma}_-^{(N)}$ sont les opérateurs d'excitation et de désexcitation au sein de la multiplicité $\mathcal{E}_N$. L'abandon des termes à haute fréquence a donc encore une fois fait disparaître les termes qui ne conservaient pas le nombre d'excitations. Le deuxième habillage, bien qu'issu d'un couplage paramétrique, est alors **encore de la forme Jaynes-Cummings**. Il ne couple donc que les états dont le nombre de phonons M diffère exactement de 1 : $|+_N, M-1\rangle$ et $|-_N, M\rangle$, ce qui définit de nouvelles multiplicités $\mathcal{F}_{N,M}$. Le Hamiltonien total restreint à cette nouvelle multiplicité s'écrit alors :

$$\frac{H_2\big|_{\mathcal{F}_{N,M}}}{\hbar} = \left(N\omega + M\Omega_{\text{m}} - \frac{\delta}{2} - \frac{\Delta_N}{2}\right)\mathbb{I} + \begin{pmatrix} \Delta_N - \Omega_{\text{m}} & \frac{g_{N,M}}{2} \\ \frac{g_{N,M}}{2} & 0 \end{pmatrix} \tag{5.41}$$

avec $g_{N,M}$ l'intensité du couplage paramétrique du système habillé :

$$g_{N,M} \equiv 2\,g_z\sqrt{M}\sin\theta_N\cos\theta_N = \frac{\delta\omega_0/2\;\Omega_R}{\sqrt{\delta^2 + \Omega_R^2}}. \tag{5.42}$$

1. On considérera ici l'énergie du champ de phonon $\hbar\,\Omega_{\text{m}}\hat{a}^\dagger\hat{a}$ comme faisant partie du Hamiltonien dépendant du temps, l'inclusion du facteur d'évolution Hamiltonienne à Ω_{m} ne changeant rien aux calculs et à l'approximation du champ tournant ici.

Il apparaît donc que $\Omega_\mathrm{m} - \Delta_N$ joue dans cet habillage le même rôle que le désaccord $\delta = \omega - \omega_0$ dans l'habillage décrit précédemment par un champ micro-onde. Les nouvelles énergies propres sont :

$$\frac{E_{|\pm_{N,M}\rangle}}{\hbar} \equiv N\omega + \left(M - \frac{1}{2}\right)\Omega_\mathrm{m} - \frac{\delta}{2} \pm \frac{1}{2}\Delta_{N,M} \tag{5.43}$$

où

$$\Delta_{N,M} \equiv \sqrt{(\Omega_\mathrm{m} - \Delta_N)^2 + g_{N,M}^2} \quad \rightarrow \quad \Delta_{N,M} = \sqrt{(\Omega_\mathrm{m} - \Omega_R)^2 + \left(\frac{\delta\omega_0}{2}\right)^2} \text{ si } \delta = 0. \tag{5.44}$$

Enfin, les nouveaux états propres de la multiplicité $\mathcal{F}_{N,M}$ sont :

$$\begin{pmatrix} |+_{N,M}\rangle \\ |-_{N,M}\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta_{N,M} & -\sin\theta_{N,M} \\ \sin\theta_{N,M} & \cos\theta_{N,M} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |+_N, M-1\rangle \\ |-_N, M\rangle \end{pmatrix}, \tag{5.45}$$

avec $\tan 2\,\theta_{N,M} = \dfrac{g_{N,M}}{\Omega_\mathrm{m} - \Delta_N}$.

Dans les systèmes étudiés, la fréquence mécanique $\Omega_\mathrm{m}/2\pi$ appartient à la plage [1 kHz, 10 MHz] alors que les fréquences micro-ondes $\omega/2\pi$ sont choisies autour de $\omega_0/2\pi \simeq 3\,\mathrm{GHz}$: $\Omega_\mathrm{m} \ll \omega$. Ainsi, les premières transitions qui apparaissent sont les transitions entre multiplicités de nombre de phonons différents. On a représenté ces transitions pat des flèches vertes sur la Figure 5.23. Elles s'accompagnent d'un gain ou d'une perte d'énergie de $\hbar\Omega_\mathrm{m}$ pour le système couplé. Le spectre du spin ainsi habillé deux fois présente donc un pic à la fréquence mécanique, correspondant aux transitions $|+_{N,M}\rangle \leftrightarrow |+_{N,M-1}\rangle$ et $|-_{N,M}\rangle \leftrightarrow |-_{N,M-1}\rangle$. Les autres transitions possibles sont celles du type $|+_{N,M}\rangle \leftrightarrow |-_{N,M-1}\rangle$ à la pulsation de transition $\Omega_\mathrm{m} + \Delta_{N,M}$ et $|-_{N,M}\rangle \leftrightarrow |+_{N,M-1}\rangle$ à $\Omega_\mathrm{m} - \Delta_{N,M}$. Les résonances de l'évolution de la population du spin à ces trois pulsations, Ω_m, $\Omega_\mathrm{m} \pm \Delta_{N,M}$ constituent le **triplet de Mollow**. Comme en électrodynamique quantique, l'écart spectral entre les pics du triplet de Mollow est proportionnel à l'amplitude d'excitation (ici, mécanique). L'évolution des populations peut enfin comporter une oscillation à une quatrième pulsation $\Delta_{N,M}$, correspondant à la transition **intra-multiplicité** $|+_{N,M}\rangle \leftrightarrow |-_{N,M}\rangle$.

L'intensité de la fluorescence du centre NV est mesurée par l'opérateur $\hat{\sigma}_z$ qui n'agit que sur l'état de spin. Les amplitudes des pics du triplet de Mollow qui apparaissent à cause de transitions spontanées sont alors estimées à partir des élément de matrice de $\hat{\sigma}_z$ dans les bases correspondant aux multiplicités $\mathcal{F}_{N,M}$ [72], soit :

Transition	Pulsation	Amplitude
Pic principal	Ω_m	$A_0 = \dfrac{\Gamma_\mathrm{spin}}{4}\sin^2(2\theta_{N,M})\sin^2(2\theta_N)$
Bande latérale BF	$\Omega_\mathrm{m} - \Delta_{N,M}$	$A_- = \dfrac{\Gamma_\mathrm{spin}}{2}\cos^4(\theta_{N,M})\sin^2(2\theta_N)$
Bande latérale HF	$\Omega_\mathrm{m} + \Delta_{N,M}$	$A_+ = \dfrac{\Gamma_\mathrm{spin}}{2}\sin^4(\theta_{N,M})\sin^2(2\theta_N)$
Pic intra-multiplicité	$\Delta_{N,M}$	$A_\Delta = \dfrac{\Gamma_\mathrm{spin}}{2}\sin^2(2\theta_{N,M})\cos^2(2\theta_N)$

Dans la suite, on étudiera le cas où la pulsation mécanique est égale à la pulsation de Rabi $\Omega_\mathrm{m} = \Omega_R$ et où la pulsation micro-onde ω est égale à ω_0 celle de la transition du qubit, soit

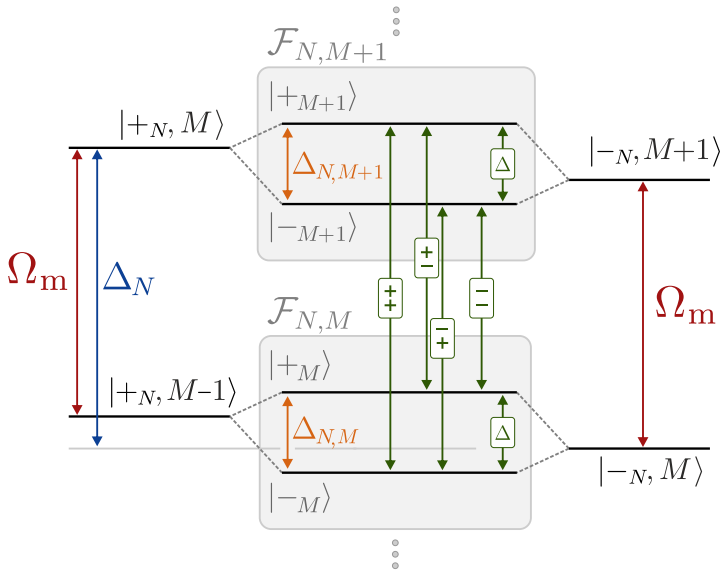


Figure 5.23 – Schéma des niveaux du système doublement habillé. Les états $|+_N, M\rangle, |-_N, M\rangle$ sont les états de la multiplicité E_N associés à M phonons. L'énergie $\hbar\Omega_\mathrm{m}$ associée au gain d'un phonon étant inférieure à l'énergie de transition intra-multiplicité $\hbar\omega_0$, les nouvelles multiplicités $\mathsf{F}_{N,M}$ sont principalement formées à partir de $|+_N, M\rangle$ et $|-_N, M+1\rangle$. On a donc représenté les états associés à un seul nombre de photons N, et simplifié la notation des états couplés de $|+_{N,M}\rangle$ en $|+_N\rangle$. 4 types de transition sont indiquées qui correspondent aux deux pics latéraux du triplet de Mollow ($++$ et $--$), au pic central ($+-$ et $-+$) et enfin à la transition intra-multiplicité Δ.

$\delta = 0$. Dans ces conditions :

$$\begin{cases} \Delta_{N,M} & \rightarrow \quad \delta\omega_0/2, \\ \theta_{N,M} & \rightarrow \quad \pi/4, \\ \theta_N & \rightarrow \quad \pi/4, \\ E_{|\pm_{N,M}\rangle}/\hbar & \rightarrow \quad N\omega + (M - 1/2)\,\Omega_\mathrm{m} \pm \delta\omega_0/2, \end{cases} \tag{5.46}$$

Les fréquences et les amplitudes des pics du triplet de Mollow, représentées sur le schéma de la Figure 5.24, deviennent :

Transition	Pulsation	Amplitude
Pic principal	Ω_m	$A_0 = \dfrac{\Gamma_\mathrm{spin}}{4}$
Bande latérale BF	$\Omega_\mathrm{m} - \dfrac{\delta\omega_0}{2}$	$A_- = \dfrac{\Gamma_\mathrm{spin}}{8}$
Bande latérale HF	$\Omega_\mathrm{m} + \dfrac{\delta\omega_0}{2}$	$A_+ = \dfrac{\Gamma_\mathrm{spin}}{8}$
Pic intra-multiplicité	$\dfrac{\delta\omega_0}{2}$	$A_\Delta = 0$

5.3.2 Triplet de Mollow phononique

Observations menées sur la nouvelle expérience

Ainsi qu'il vient d'être démontré, l'habillage du spin par un champ de phonon supplémentaire autorise de nouvelles transitions entre les multiplicités d'états créés à l'application d'un micro-onde oscillant. L'évolution de la population du qubit oscille alors à trois pulsations : Ω_m mais

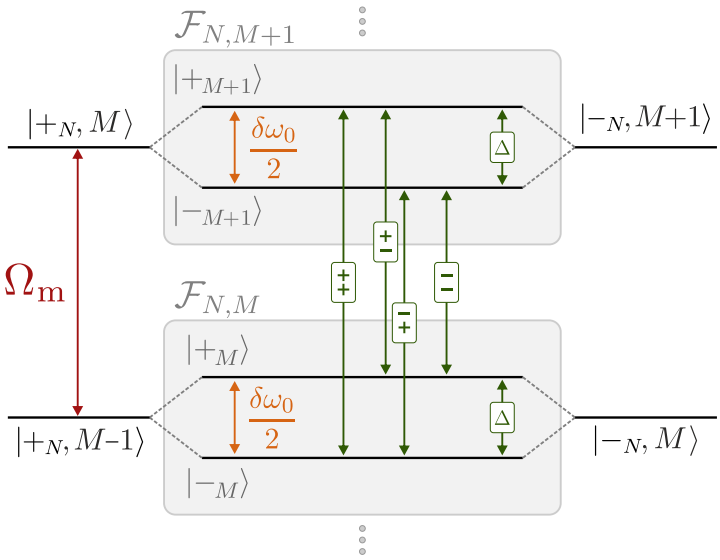


Figure 5.24 – Schéma de couplage dans les conditions $\Omega_\mathrm{m} = \Delta_N$ et $\delta = 0$ utilisées dans la suite sauf mention contraire.

aussi $\Omega_\mathrm{m} \pm \Delta$. L'apparition de l'oscillation à la fréquence mécanique plutôt qu'à la fréquence de Rabi traduit un phénomène de **synchronisation de la dynamique du qubit sur l'oscillation mécanique** assistée par la micro-onde [73]. Cette synchronisation est en outre à l'origine d'un affinement du pic central par rapport au pic Rabi en l'absence de couplage à une excitation mécanique.

La Figure 5.25 représente une mesure de triplet de Mollow phononique obtenue avec à la nouvelle expérience. Ce triplet de Mollow a été mesuré dans une corne latérale de fluorescence (voir section 5.2.3) où le gradient principal de champ magnétique B_z est selon x. L'excitation mécanique est réalisée en appliquant sur l'une des pistes latérales du guide d'onde une excitation d'amplitude 5 V (autour de la tension nulle) à $\Omega_R/2\pi = 2.421$ MHz, la fréquence Rabi mesurée au préalable dans cette configuration.

On voit apparaître le pic correspondant à la transition intra-multiplicité, qui est pourtant en théorie d'amplitude nulle. Cette transition peut être excitée dans les situations où l'alignement n'est pas parfait et où il existe un champ transverse résiduel B_x. L'excitation du type σ_z engendrée par le mouvement selon z produit ce pic intra-multiplicité. Le module de la FFT de l'évolution temporelle de la population du niveau fondamental du spin est alors ajusté par la fonction à 4 pics [72] :

$$|\sigma_z[\Omega]| = \left| \frac{A_0}{i(\Omega - \Omega_\mathrm{m}) + \Gamma_\mathrm{spin}} + \frac{A_-}{i(\Omega - \Omega_\mathrm{m} + \delta\omega_0/2) + \Gamma_\mathrm{coh}} + \frac{A_+}{i(\Omega - \Omega_\mathrm{m} - \delta\omega_0/2) + \Gamma_\mathrm{coh}} + \frac{A_\Delta}{i(\Omega - \delta\omega_0/2) + \Gamma_\mathrm{coh}} \right| \tag{5.47}$$

ce qui donne l'intensité du couplage $\delta\omega_0/2\pi = 1.164$ MHz, et la largeur spectrale centrale $\Gamma_\mathrm{spin}/2\pi = 218$ kHz (et les largeurs des pics latéraux $\Gamma_\mathrm{coh}/2\pi = 484$ kHz).

Il convient de vérifier si le triplet de Mollow observé correspond bien à l'habillage par le champ de phonons. Deux types de couplages à des champs oscillant à la pulsation Ω_m peuvent en effet produire la même signature : le couplage Zeeman à un champ magnétique ou le couplage dispersif du centre NV à un champ électrique.

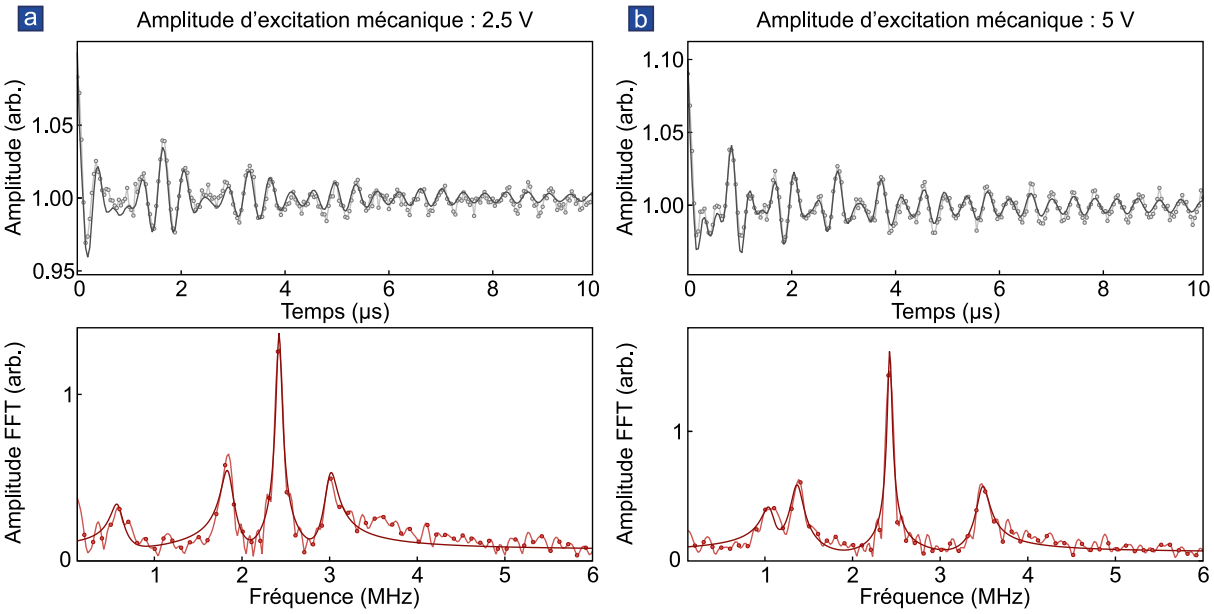


Figure 5.25 – Triplets de Mollow obtenus en appliquant une excitation électostatique à la fréquence Rabi préalablement mesurée $\Omega_{\mathrm{m}}/2\pi = \Omega_R/2\pi = 2.421\,\mathrm{MHz}$, d'amplitude 2.5 V (**a.**) et 5 V (**b.**)

- Pour une différence de potentiel de 5 V, en prenant pour séparation des objets la distance de 15 μm (très sous-évaluée car elle correspond à la distance approximative guide-fil alors que la distance pertinente dans l'approximation diélectrique est la distance guide-support de fil, soit 100 μm), la valeur du champ électrostatique peut être estimée à 3×10^5 V/m. La constante de couplage du centre NV aux champs électriques a été estimée à 0.17 Hz/(V/m) [178], de sorte que l'énergie du couplage aux champs électriques, exprimée en termes de fréquence, s'élève à environ 50 kHz. Pour comparaison, un déplacement typique de 100 nm dans un gradient de champ magnétique de 5000 T/m engendre un couplage de 14 MHz.

- Il peut exister un champ magnétique résonant si l'actionnement électrostatique produit un courant. Cependant, les pistes latérales du guide sont isolées de la piste centrale et débouchent sur un circuit ouvert. De plus, la piste centrale est dotée d'un filtre passe-haut à chaque extrémité (il s'agit du système de découplage capacitif des pistes). Les seules sources de courant possibles sont donc les fuites à travers le substrat des pistes latérales du guide ou le déplacement de charges dans celles-ci si elles possèdent impédance non-nulle. L'habillage sur la nouvelle expérience n'a cependant été réalisé qu'avec des tensions très limitées, inférieures ou égales à 5 V. Dans la première expérience ayant démontré le triplet de Mollow, celui-ci persistait pour cette raison hors de résonance, mais les tensions typiques appliquées étaient de l'ordre de 100 V, pour un guide de première génération, de moins bonne qualité. L'amplitude de l'habillage $\delta\omega_0$ par ce mécanisme était de 2 MHz, on peut s'attendre à une valeur au moins 20 fois inférieure sur la nouvelle expérience, soit 100 kHz : cette contribution reste donc également très limitée.

- L'amplitude de $\delta\omega_0$ mesurée est cohérente avec la variation de ω_0 en présence d'une tension statique mesurée par ESR, représentée sur la Figure 5.26.

L'habillage qui donne lieu au triplet de Mollow observé sur la nouvelle expérience est donc bien de nature phononique. Dans l'expérience plus ancienne, cela avait été vérifié directement en balayant la fréquence d'excitation à travers les fréquences mécaniques (voir paragraphe ultérieur sur la caractérisation de ce triplet de Mollow) .

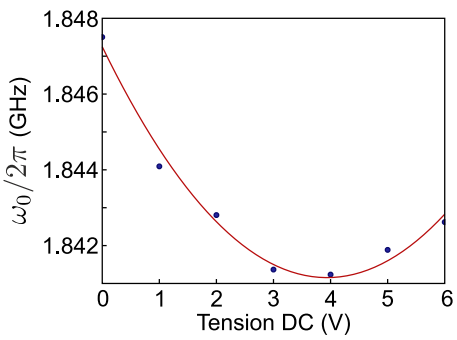


Figure 5.26 – Déplacement de la fréquence de résonance du qubit sous l'effet du déplacement statique du nanofil dans le champ magnétique.

Protection contre la décohérence inhomogène : On peut vérifier que la largeur spectrale du pic central habillé ($\Gamma_{\text{spin}}/2\pi = 484\,\text{kHz}$) est bien moins grande qu'en l'absence de couplage au champ de phonon ($\Gamma_{\text{spin}}/2\pi = 805\,\text{kHz}$). Cette réduction de la largeur s'apparente à une protection contre la décohérence inhomogène dans la situation couplée [73] : les fluctuations de la fréquence de transition du qubit de spin, dues aux variations de son environnement magnétique et de la puissance micro-onde utilisée, sont écrasées sous l'effet de la synchronisation de la précession du spin sur la fréquence mécanique. Ce mécanisme a été proposé par S. Rohr dans sa thèse [72] pour réduire de la même manière l'influence des fluctuations thermiques de position sur la décohérence du qubit lorsque celui-ci est plongé dans un gradient de champ magnétique. Ce mécanisme permet, à l'instar de la méthode de *spin-locking* en RMN classique [179], d'augmenter artificiellement les durées de vie des qubits utilisés dans des systèmes hybrides mécaniques et constitue donc un outil expérimental important.

Caractérisation du triplet de Mollow phononique

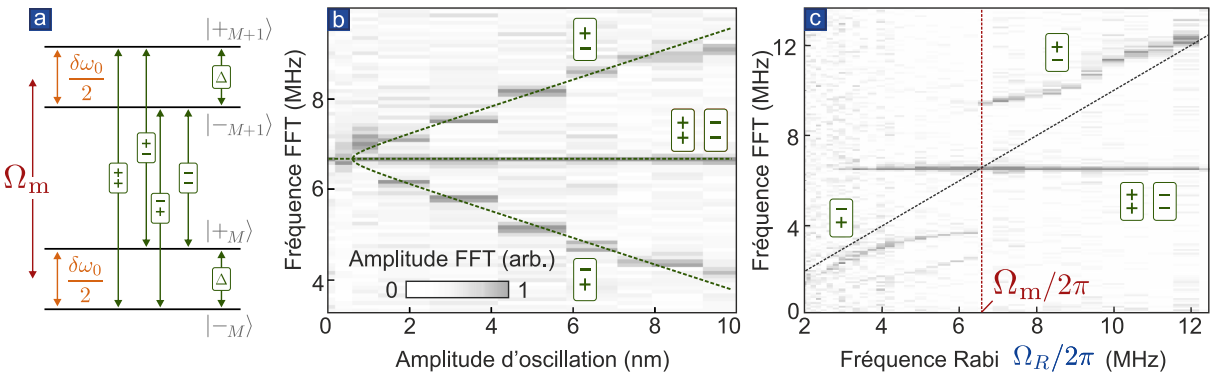


Figure 5.27 – **a.**Rappel du schéma des niveaux et des transitions du triplet et intra-multiplicité. **b.** Evolution du triplet de Mollow en fonction de l'amplitude d'oscillation. Les positions théoriques des fréquences du triplet sont indiquées en pointillés vert foncé et légendées avec les mêmes notations que le schéma des niveaux. **c.** Apparition et évolution du triplet de Mollow lorsque la fréquence Rabi (régie par la puissance d'excitation) est balayée à travers la fréquence mécanique indiquée en pointillés rouge foncé. La première bissectrice du plan Ω_R, Ω est indiquée en pointillés gris foncé.

Grâce à l'expérience plus ancienne, moins stable, mais plus aboutie, on a caractérisé un triplet de Mollow phononique plus en profondeur [74]. On a dans un premier temps étudié son évolution sous l'effet d'une augmentation de l'excitation mécanique et donc du paramètre $\delta\omega_0$ (voir Figure 5.27b) et dans le régime où $\Omega_R \neq \Omega_m$ (voir Figure 5.27c, où $\delta\omega_0 = 5.74\,\text{MHz}$). Sur cette dernière figure, on a fait varier (le long de l'axe horizontal) la puissance de l'excitation

micro-onde qui détermine la fréquence Rabi $\Omega_R/2\pi$. La fréquence d'oscillation des populations, dans le cas d'un qubit non paramétriquement couplé, est alors la fréquence Rabi qui est directement gouvernée par cette puissance : elle suit alors la première bissectrice du plan représentée en pointillés gris foncé sur cette figure. Cependant, on observe que les populations du qubit se retrouvent, même pour des pulsations Rabi relativement éloignées de la pulsation mécanique (dès $|\Omega_R - \Omega_\mathrm{m}|/\Omega_\mathrm{m} \simeq 50\%$), à osciller à la pulsation mécanique Ω_m et non à la pulsation Rabi imposée Ω_R. Cet effet particulièrement visible sur la 5.27c reflète le phénomène de synchronisation de la dynamique du spin sur la mécanique déjà évoqué.

Couplage à un déplacement bidimensionnel

Enfin, on a fait varier la fréquence d'excitation mécanique à travers les résonances du nanofil utilisé. L'évolution du triplet de Mollow est représentée sur la Figure 5.28a. On observe un triplet bien plus ouvert aux deux fréquences de résonance, ce qui a été reproduit grâce à l'intégration numérique par un algorithme Runge-Kutta d'ordre 4 des équations de Bloch régissant l'évolution des populations du qubit (voir Figure 5.28b). Les mesures du mouvement Brownien (Figure 5.28c) et des réponses mécaniques (non reproduites) permettent de confirmer la position des fréquences et l'orientation des modes (Figure 5.28d). On a alors reconstruit, comme expliqué dans le Chapitre 3, les trajectoires elliptiques suivies par le nanofil dans le plan en 2 dimensions (Figure 5.28e). Par projection de ces trajectoires sur la direction de couplage paramétrique, donnée par $\boldsymbol{\nabla} B_z$, il a ainsi été possible de retrouver quantitativement (voir Figure 5.28f) les amplitudes de modulation paramétriques $\delta\omega_0$ à chaque fréquence d'excitation $\Omega_d/2\pi$ étudiée.

Notons que le triplet de Mollow persiste en dehors des résonances, où $\delta\omega_0 \neq 0$. Cette contribution au couplage indépendante de l'amplitude de l'oscillation est attribuée à l'excitation résiduelle électromagnétique directe du qubit avec le guide d'onde qui ne comportait à l'époque qu'une seule piste dans laquelle passaient à la fois l'excitation micro-onde et l'excitation radio-fréquence d'actionnement.

5.3.3 Destruction de la cohérence par le bruit sur une bande latérale

Le pic central du triplet de Mollow est en principe protégé contre la décohérence inhomogène par le mécanisme de synchronisation. Il a en fait été montré au cours de la thèse de Sven Rohr que la largeur du pic central du triplet de Mollow est sensible au bruit de l'environnement aux fréquences des bandes latérales. Cet élargissement s'apparente à l'habillage du système doublement habillé par un troisième champ à ces fréquences.

Cet effet a été confirmé grâce au système-test construit au cours de la thèse de S. Rohr (voir Figure 5.29. La fréquence Rabi est $\Omega_R/2\pi = 6\,\mathrm{MHz}$, un ton monochromatique "de protection" (contre la décohérence) à cette fréquence ($\Omega_d/2\pi = 6\,\mathrm{MHz}$) est ajouté pour engendrer le triplet de Mollow. Une excitation radiofréquence est rajoutée pour mimer le bruit thermique d'un résonateur mécanique : son spectre reproduit celui d'un oscillateur mécanique à la fréquence $\Omega_\mathrm{m}/2\pi = 8\,\mathrm{MHz}$, de facteur de qualité $Q = 10$, dont l'effet paramétrique quadratique moyen sur la fréquence de transition du qubit est $\delta\omega_\mathrm{th}/2\pi = 1.04\,\mathrm{MHz}$. Cet effet correspond, pour un oscillateur de fréquence propre $\Omega_\mathrm{m}/2\pi = 8\,\mathrm{MHz}$ et de masse $1 \times 10^{-16}\,\mathrm{kg}$ dans un gradient de champ magnétique de $\boldsymbol{\nabla} B_z = 5000\,\mathrm{T/m}$, au mouvement Brownien à la température de $10^7\,\mathrm{K}$, cependant, pour un oscillateur plus typique résonant à $100\,\mathrm{kHz}$ et de masse $1 \times 10^{-15}\,\mathrm{kg}$, la température nécessaire pour produire ce couplage est seulement de $1600\,\mathrm{K}$. La séparation du triplet de Mollow $\delta\omega_0$ est progressivement augmentée le long de l'axe vertical via l'amplitude du ton RF cohérent. Lorsque la bande latérale de haute fréquence croise la fréquence "mécanique"

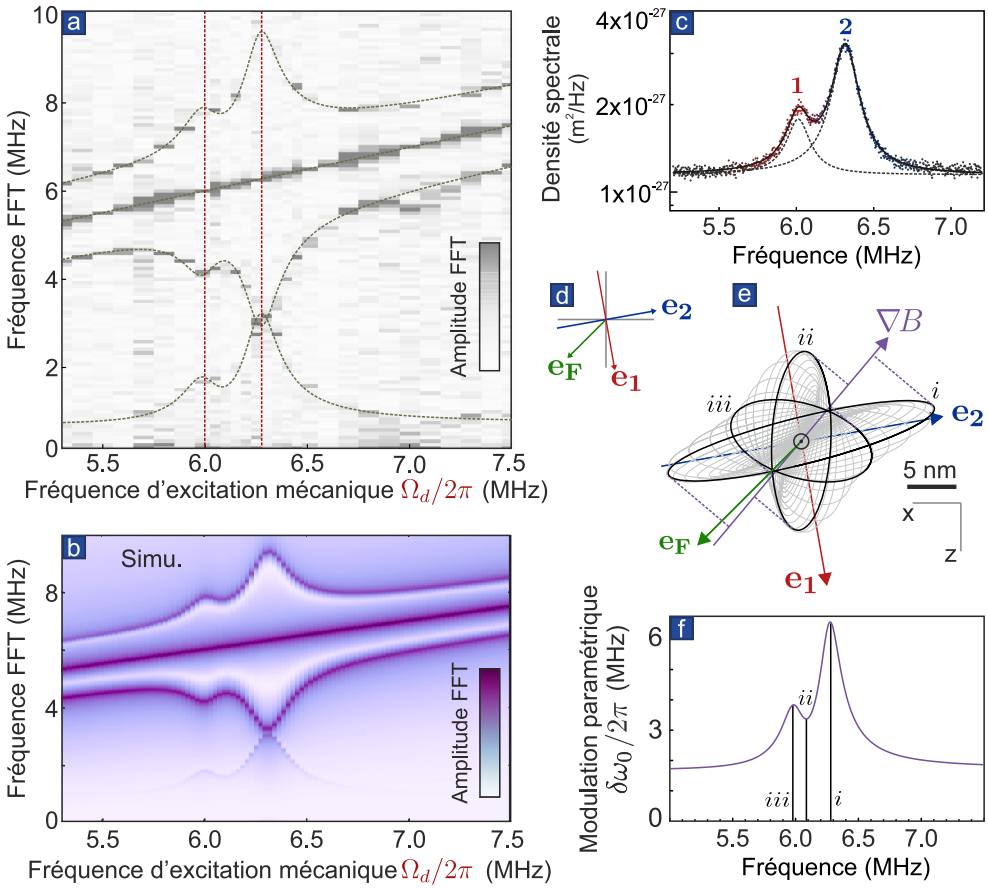


Figure 5.28 – Figures tirées de [74]. **a.** Evolution du triplet de Mollow lorsque la fréquence d'excitation mécanique est balayée à travers les deux fréquences mécaniques, à puissance d'excitation constante. Le triplet s'ouvre aux deux fréquences de résonance du nanofil. **b.** Simulations correspondantes (résolution numérique de l'équation de Bloch régissant la dynamique des populations du qubit par un algorithme de Runge-Kutta d'ordre 4). **c.** Mesure de mouvement Brownien du nanofil (sur la voie "différence" d'une QPD disposée en réflexion). **d.** Schéma d'orientation des modes mécaniques et de la direction de la force électrostatique déduite de mesures de réponses mécaniques. **e.** Trajectoires reconstruites du nanofil dans le plan (x,z). On a indiqué en rouge et en bleu les directions des modes, en vert la direction de la force électrostatique utilisée et en violet la direction du gradient de champ magnétique local. On a différencié trois trajectoires notées i, ii et iii. **f.** Amplitude de la modulation paramétrique $\delta\omega_0/2\pi$ obtenue en fonction de la fréquence d'excitation, obtenue en projetant les trajectoires sur la direction du gradient de champ. Les amplitudes des trajectoires particularisées i, ii et iii sont indiquées en traits verticaux noirs.

de 8 MHz, le pic central du triplet accuse un étalement caractéristique.

On a cherché à mesurer l'élargissement du pic central du triplet de Mollow causé par l'oscillation du nanofil dans le but de quantifier et contrôler cette décohérence Brownienne sur un vrai système hybride spin-mécanique. On a préféré, dans un premier temps, en raison de la difficulté de cette expérience, étudier le cas où l'une des bandes latérales sonde, non pas le mouvement Brownien naturel, mais un ton cohérent mécanique supplémentaire, ce qui rapproche encore plus cette expérience d'un troisième habillage. Cette expérience est plus facile à réaliser dans un premier temps puisque la fréquence et l'intensité du champ supplémentaire sont alors arbitraires.

Grâce à l'algorithme de Runge-Kutta d'ordre 4 évoqué dans la section précédente, on a mené des simulations dans cette situation expérimentale (voir Figure 5.30a). Les équations de Bloch en présence du ton supplémentaire sont moyennées sur 8 valeurs de la phase du ton de protection à $\Omega_R/2\pi$ par rapport au temps de démarrage du protocole Rabi. La Figure 5.30a montre

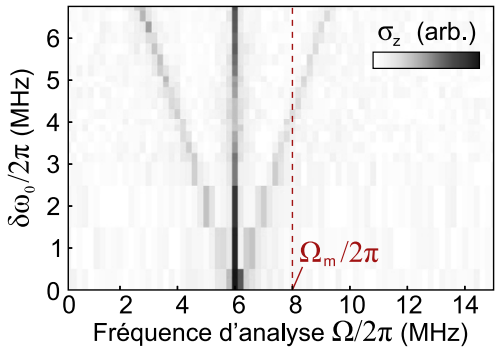


Figure 5.29 – Figure tirée de la thèse de S. Rohr [72] : vérification expérimentale sur le système-test sans élément mécanique de la prédiction théorique selon laquelle la largeur du pic central du triplet de Mollow serait sensible aux bruit *aux fréquences des bandes latérales.*

une démultiplication du triplet de Mollow lorsque lorsque la bande latérale traverse la fréquence $\Omega_d/2\pi$.

Pour observer cette signature, on a préparé le triplet de Mollow phononique en appliquant une tension d'excitation à la fréquence de Rabi préalablement calculée de $\Omega_\mathrm{m}/2\pi = 1.721\,\mathrm{MHz}$ sur une piste latérale du guide d'onde. Cette excitation est réalisée dans un premier temps avec une amplitude de 3 V et engendre des bandes latérales séparées de $\delta\omega_0/2\pi = 1.300\,\mathrm{MHz}$. Le pic central est affiné de $\Gamma_\mathrm{spin}/2\pi = 590\,\mathrm{kHz}$ à $\Gamma_\mathrm{spin}/2\pi = 250\,\mathrm{kHz}$. On a ensuite ajouté une excitation d'amplitude 800 mV, ce qui correspond à une amplitude de modulation de $\delta\omega_1/2\pi = 170\,\mathrm{kHz}$, à la fréquence $\Omega_\mathrm{d}/2\pi = 1.721 + 1.298/2 = 2.417\,\mathrm{MHz}$ sur la même piste latérale. Enfin, la séparation des bandes latérales $\delta\omega_0$ a été progressivement augmentée en balayant l'amplitude de l'excitation à $\Omega_\mathrm{m}/2\pi = 1.721\,\mathrm{MHz}$ qui engendre le triplet de Mollow de 2.0 V à 4.0 V, tout en enregistrant les oscillations de Rabi pour chaque point d'amplitude. Lors de ce balayage, la bande latérale de haute fréquence traverse la fréquence du ton supplémentaire $\Omega_d/2\pi$.

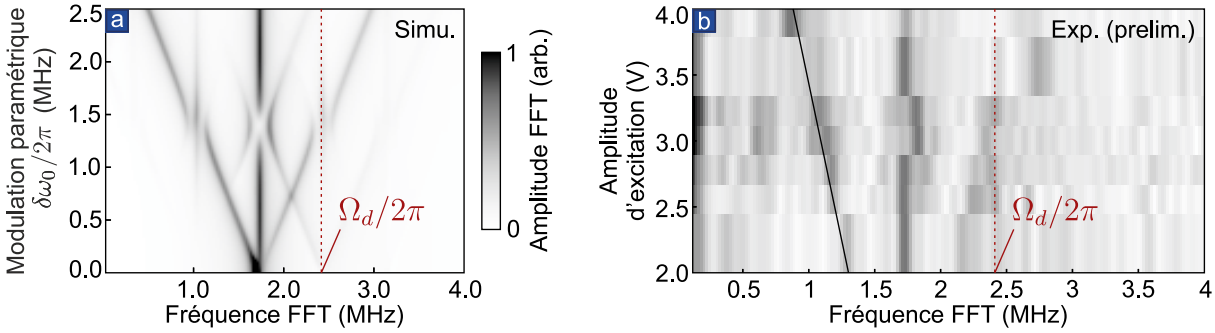


Figure 5.30 – Résultat des simulations (**a.**) et des expériences (**b.**) dans la situation $\Omega_\mathrm{m}/2\pi = \Omega_R/2\pi = 1.72\,\mathrm{MHz}$. Un ton radio-fréquence à la fréquence $\Omega_d/2\pi = 2.42\,\mathrm{MHz}$ est rajouté avec l'amplitude 800 mV qui correspond à $\delta\omega_1/2\pi = 0.17\,\mathrm{MHz}$.

Le résultat préliminaire de cette toute première expérience est représenté en Figure 5.30b, où on distingue (certes difficilement) l'effet du croisement de la bande latérale et du ton supplémentaire comme un léger brouillage du pic central du triplet de Mollow. La dissymétrie du pic central au croisement $\Omega_m + \delta\omega_0/2 = \Omega_d$ semble correspondre à celle donnée par la simulation.

Chaque ligne de la Figure 5.30b a nécessité entre deux et trois jours de moyennage étant donnés les faibles taux de fluorescence ($\sim 7000\,\mathrm{kcps}$) disponibles dans cette expérience. L'utilisation d'un centre NV plus brillant permettrait d'accélérer fortement l'acquisition et de compléter

cette étude de l'habillage multifréquence d'un qubit par des champs micro-onde et phononiques.

5.4 Conclusion

Ce chapitre s'est concentré sur la construction de l'expérience en raison du caractère préliminaire de ses résultats pour l'instant. La grande stabilité de ce nouveau montage, la fabrication de guides micro-onde incorporant les fonctionnalités d'excitation mécanique et d'établissement d'un gradient de champ magnétique, ainsi que l'intégration des techniques de manipulation du spin dans les programmes d'interfaçage faciliteront à l'avenir l'étude du système hybride présenté au début du chapitre. Le dernier résultat démontre cependant que cette nouvelle expérience permettra, avec un peu plus de travail, d'étudier des signatures originales de l'habillage mécanique multifréquence d'un spin unique.

Conclusion et perspectives

Les cinq chapitres de cette thèse ouvrent sur des perspectives différentes concernant plusieurs domaines physiques et se rejoignant parfois. Elles sont données à la suite des résultats principaux dans la liste thématique suivante.

Utilisation de nanofils pour la mesure de force

Dans cette thèse, on rapporte exclusivement l'utilisation de nanofils de carbure de silicium SiC développés en collaboration avec l'équipe PNEC de l'ILM de Lyon.

Les calibrations de mouvement Brownien des nanofils de SiC utilisés confirment toutes la valeur très faible de leur masse effective, de l'ordre de 10^{-15} kg. Ces masses correspondent à des sensibilités théoriques en force, dans une mesure de type pompe-sonde limitée par le mouvement Brownien :

$$\delta F_{\min} = \sqrt{\frac{2k_B T M_{\text{eff}} \Omega_m}{Q}}$$

de l'ordre de 20 aN pour un oscillateur peu favorable de fréquence 100 kHz et de facteur de qualité 1000 à température ambiante. En réalité, des facteurs de qualité de l'ordre de 10^5 ont été mesurés pour les mêmes nanofils portés à très basse température dans un cryostat optique à dilution par F. Fogliano et B. Besga, ce qui démontre la possibilité d'améliorer encore la résolution la sensibilité en force.

En outre, ces nanofils présentent des sections efficaces optiques exacerbées par l'existence de **résonances de Mie** qui facilitent la détection optique de leurs vibrations. A travers une rapide **étude colorimétrique** évoquée au Chapitre 1 basée sur le calcul de ces résonances de Mie, nous avons montré qu'il était possible de les déterminer à partir de deux clichés optiques en lumière blanche polarisée le diamètre et la densité de défauts de polytypes de ces nanofils.

Nous avons démontré la possibilité de **fonctionnaliser ces nanofils** avec un centre NV unique dans le Chapitre 4 par simple trempage dans un goutte de solution de nanocristaux de diamant. Une autre expérience de fonctionnalisation couronnée de succès a été menée par J. F. Motte sous FIB (*Focused Ion Beam*), par un effet de déposition induite par faisceau d'ion, et a permis d'attacher à un nanofil une unique sphère super-paramagnétique d'environ 250 nm de diamètre pour l'étude de champs de force magnétiques.

L'une des limitations de l'utilisation de ces fils est finalement la présence éventuelle (c'est-à-dire, non contrôlée) de charges piégées à la surface. Si cela n'a pas limité les mesures présentées dans cette thèse dans un premier temps, ces charges induisent cependant des forces difficiles à séparer dans les résultats de mesure des autres effets électrostatiques à courte portée (travaux de sortie inégaux, effets de patchs, etc.). Ainsi, l'équipe s'intéresse à l'emploi d'autre nanofils, et en particulier de nanofils métalliques qui permettraient d'évacuer les charges parasites, par

exemple pour la mesure de forces résiduelles au zéro électrostatique. L'utilisation de **nanofils d'argent** est l'une des voies explorées actuellement, leur montage sur des pointes de tungstène effilées ayant été récemment réussi dans l'équipe.

Mesure des vibrations d'un nanofil en deux dimensions

La symétrie élevée des nanofils leur confère des polarisations mécaniques propres presque dégénérées en fréquence. Ainsi le mouvement de l'extrémité libre d'un nanofil suspendu est-il véritablement bidimensionnel : deux directions orthogonales du plan de vibration sont explorées de manière équivalente.

Pour mesurer toutes les composantes du mouvement, on a alors développé une **technique optique de détection de la position en deux dimensions** en utilisant les deux voies d'acquisition "Somme" et "Différence" d'une photodiode à quadrants qui détecte la lumière réfléchie sur le nanofil. La distribution angulaire de cette lumière réfléchie dépend de la position du nanofil dans le faisceau sonde : ses fluctuations reflètent alors les fluctuations de position de l'oscillateur. Le principe de la mesure projective a été brièvement introduit au Chapitre 1 pour les besoins de la formalisation de la mesure du spectre des polarisations mécaniques, et approfondie au début du Chapitre 2 : la quantité mesurée sur chaque voie de la photodiode est la projection du déplacement de l'oscillateur sur un vecteur de mesure déterminé par l'agencement des éléments optiques, des détecteurs et de l'électronique d'amplification. Moyennant une calibration statique du vecteur de mesure, on a ainsi accès à une projection du mouvement. Le balayage de l'orientation du vecteur de mesure permet en principe de réaliser une **tomographie angulaire** du mouvement de l'oscillateur, ce qui a été détaillé dans le Chapitre 2. En pratique, deux orientations de mesure suffisent à mesurer tous les paramètres mécaniques. En ajustant la position de mesure dans le faisceau sonde, il est possible de trouver des points de fonctionnement pour lesquels les deux vecteurs de mesure sont presque orthogonaux : ces points de fonctionnement permettent donc d'extraire le maximum d'information des deux signaux mesurés.

Un **montage de mesure stabilisé** contre les dérives thermiques a été conçu au cours de la thèse. Il assure également un grand confort d'opération pour ce qui concerne la lecture du bruit de position. Ce dispositif est détaillé au Chapitre 2 mais il a aussi été utilisé pour les Chapitres 3 et 5. Une **suite d'interfaçage** des expériences a été développée dans leur sillage, incluant au fur et à mesure toutes les fonctionnalités nécessaires.

On a fait la démonstration dans le Chapitre 3 de l'existence d'un excès de bruit et d'une importante déformation des trajectoires suivies en champ de force non-conservatif. Nous avons alors montré que l'utilisation d'une mesure bidimensionnelle, de toutes les composantes du mouvement, était cruciale pour distinguer ces effets de la rotation des polarisations propres de vibration des nanofils. Ainsi cette technique est adaptée à l'étude de toutes les composantes des champ de force multidimensionnel.

La technique de mesure est maintenant implémentée dans un dispositif de mesure rapide impliquant **deux boucles à verrouillage de phase** qui vient remplacer la mesure lente de mouvement thermique pour accélérer les mesures de force et gagner en sensibilité. Enfin la mesure de **trajectoires bidimensionnelles en temps réel** à partir de ce principe est actuellement développée pour tester certaines prédictions issues de notre réflexion sur la thermodynamique du nanofil, et permettra d'apporter une conclusion expérimentale au travail initié dans la fin du Chapitre 3 (ce que nous résumerons plus en détail par la suite).

Habillage d'un oscillateur bidimensionnel par un champ de force

Les Chapitres 2 et 3 donnent une **formalisation complète de l'habillage** d'un oscillateur en deux dimensions par un champ de force inhomogène et instantanée exploré par l'oscillateur. En parallèle de ce cadre formel, ce travail s'est attaché à fournir des **interprétations phénoménologiques** des signatures de l'habillage mécanique d'un oscillateur bidimensionnel. On a notamment montré que cet habillage consistait en une modification des fréquences, mais aussi des orientations propres du mouvement de l'oscillateur. Aussi, la phénoménologie observée peut être vue comme la généralisation à deux dimensions du couplage entre deux oscillateurs.

Les quatre composantes du champ de force bidimensionnel donnent lieu à **quatre principales signatures phénoménologiques**. La divergence du champ est associée au déplacement en bloc des fréquences, à l'instar de l'habillage d'un oscillateur unidimensionnel par un gradient de force axial. La composante hyperbolique, que l'on pourrait appeler "de Poisson", modifie l'écart des fréquences. La composante cisaillante imprime une rotation à la base des modes propres de vibration. Enfin, la dernière composante, c'est-à-dire la composante rotationnelle, cisaille la base des modes propres (entre bien d'autres choses, et d'ailleurs nous reviendrons sur ce sujet). Sur ces quatre signatures, seule la première possède un analogue en dimension 1, les trois autres étant spécifiques des dimensions supérieures. Nous avons pu observer et étudier toutes ces signatures : les trois premières, dans le Chapitre 2 en étudiant un champ de force électrostatique, la dernière dans le Chapitre 3 dans un champ de force optique comprenant une composante non-conservative. Toutes les observations liées à cet habillage ont pu être décrites avec un très bon accord par notre formalisme.

Nous avons ainsi dégagé dans cette thèse de nombreuses signatures emblématiques des **systèmes multimodes**. L'interprétation de ces signatures est certainement facilitée pour les systèmes dont la multimodalité correspond à la multidimensionnalité géométrique plutôt qu'à celle d'un espace des paramètres abstrait, moins accessible à l'intuition du physicien. Cependant, ces résultats théoriques sont bien sûr directement généralisables à cette autre classe de systèmes. En particulier, le groupe de J. G. E Harris, a étudié un système de deux modes mécaniques d'une membrane en cavité, couplés entre eux de manière dissipative (mais symétrique) *via* leurs couplages respectifs au champ de la cavité. Ce système présente donc un autre type de couplage non-hermitien que celui que nous avons étudié au cours du Chapitre 3 de cette thèse, mais il est possible qu'il y ait de profondes ressemblances entre les phénoménologies observées, d'une part, dans l'espace géométrique de notre expérience, d'autre part, dans l'espace des modes normaux de cette autre expérience.

Par ailleurs, il n'existe pas, à notre connaissance, en dimension 3, de type de champ de force que nous n'ayions pas rencontré en dimension 2. Le cadre formel développé dans cette thèse pourrait donc être **généralisé pour décrire l'habillage d'oscillateurs en trois dimensions**, par exemple des sphères, des atomes, ou des ions piégés, qui pourraient servir à la mesure d'un champ de force tridimensionnel. Il s'agirait d'une perspective intéressante pour les systèmes de particules piégées, où les forces sont effectivement non-conservatives, au sens rotationnel.

Enfin, nous n'avons développé dans ce manuscrit que le formalisme associé aux champs de force donnant lieu à une **réponse instantanée**. Toutes les forces que nous avons mesurées présentent en effet des réponses non retardées aux échelles de temps mécaniques, ce qui a été vérifié grâce à la phase des réponses mécaniqes. Nous avons suggéré très brièvement au Chapitre 2 que les retards à la réponse pouvaient être pris en compte formellement par l'ajout d'une **composante imaginaire dans les gradients de forces**. En réalité, cet ajout représente un gain considérable de complexité et son étude correspondrait à un travail théorique et expérimental

conséquent mais certainement passionnant. Au premier ordre, ce retard serait responsable d'une modification des amortissements de l'oscillateur (voir la fin de la thèse d'A. GLOPPE). Une analyse spectrale complète serait alors requise pour déterminer les 8 composantes locales d'un champ de force bidimensionnel retardé.

Mesures de forces en balayage

A partir de la mesure bidimensionnelle des vibrations et de la formalisation de l'habillage mécanique, nous avons établi un **protocole universel de mesure de champs de force**, détaillé au Chapitre 2. Celui-ci s'appuie sur la mesure du mouvement Brownien de l'oscillateur et non sur un principe pompe-sonde, il est donc très peu perturbatif et permet de sonder des champs de force qu'il serait difficile de moduler, par exemple.

L'**automatisation de ce protocole** et sa synchronisation avec le **balayage d'un échantillon** permet de **cartographier** le champ de force produit par celle-ci. Ce principe a été testé sur la force électrostatique engendrée par une pointe métallique portée à un potentiel différent de celui du support du nanofil. Cette cartographie nous a en outre permis d'identifier quelques points phénoménologiques marquants, tels que la possibilité d'envisager l'habillage mécanique par un champ conservatif comme un **habillage progressif**, chaque supplément de force venant habiller un peu plus un oscillateur déjà habillé par le reste du champ de force.

Cette mesure constitue un outil important pour la compréhension des champs de force établis en EFM (*Electrostatic Force Measurement*). En effet, ces situations expérimentales en apparence relativement simples sont en fait très difficiles à simuler. La cartographie donne donc une idée de la **réponse électrostatique locale d'une pointe EFM**, qui est une pointe AFM métallisée et représente donc un objet standard du domaine des sondes locales. Ces données pourraient ainsi être utilisées pour déconvoluer des images de force obtenues en EFM. Nous proposons cependant un modèle analytique de force centrale qui reproduit qualitativement de manière acceptable nos résultats obtenus à des distances relativement élevées de l'échantillon ($> 100\,\mathrm{nm}$). L'universalité de la technique de mesure permet en outre de s'assurer de l'absence de termes non-conservatif dans le champ électrostatique.

Grâce aux développements théoriques additionnels du Chapitre 2, on a également montré que les gradients de force mesurés sont des projections du gradient linéique réparti le long du nanofil, sur le **carré du profil de mode**. Nous avons également rappelé qu'il s'agissait de gradients vis-à-vis de la position du nanofil et non vis-à-vis du laboratoire, ce que nous avons appelé **gradients lagrangiens**. Ces précisions concernent non seulement notre système de mesure, mais également tous les systèmes de mesure de gradient de force basés sur l'exploration d'un champ de force sous l'effet de vibration. Ainsi ces systèmes de mesure ne constituent pas une alternative mais un complément à la mesure de force de type pompe-sonde qui mesure directement la force et non ses gradients. L'étude expérimentale de cette différence est désormais envisagée, elle permettrait de préciser les quantités réellement mesurées par un AFM et par les sondes locales semblables. En supposant que cette différence pouvait être négligée pour notre système de mesure, nous avons développé une **technique d'intégration** des gradients mesurés, en collaboration avec B. CANALS de l'Institut Néel, pour reconstruire le champ de force.

Enfin la technique de mesure peut être adaptée à la mesure d'autres forces, comme les forces d'origine magnétique grâce à la fonctionnalisation du nanofil, ou les forces de proximité telles que la force de Casimir. Le groupe a entamé par exemple la mesure des forces engendrées par une structure métallique percée, un levier de sonde locale dans lequel des trous circulaires débouchants ont été creusés grâce à un FIB par J. F. MOTTE et G. JULIÉ. Selon plusieurs

études théoriques [93,180], il serait possible d'y observer une répulsion de Casimir dans le vide. L'étude des champs de force de proximité présente aussi un intérêt fondamental. Des mesures des forces électrostatiques engendrée par des disques de métal, et magnétiques engendrées par des vortex d'aimantation sont également en cours. La sensibilité démontrée dans le Chapitre 2 suggère également que ces nanofils sont adaptés à la mesure de forces dépendantes du spin dans un système hybride.

Enfin, la plupart des mesures réalisées dans cette thèse ont été effectuées en analysant le mouvement Brownien du nanofil. L'analyse de trajectoires contrôlées plutôt qu'aléatoires permet d'accélérer les temps de mesure. C'est dans cette optique que le groupe a récemment mis en œuvre une technique de mesure basée sur une double boucle à verrouillage de phase (PLL). Avec une telle approche, la diffusion de nos sondes de force vectorielles et ultrasensibles vers d'autres domaines de la physique et de la biologie semble tout à fait envisageable.

Mécanique en champ de force non-conservatif

Le groupe avait pu vérifier avant le début de cette thèse l'existence de forces rotationnelles dans les faisceaux optiques focalisés, pour avoir mis en évidence et décrit formellement les phénomènes de bifurcation et d'instabilité qui en sont spécifiques. Au cours de cette thèse, nous avons prolongé l'étude des phénomènes survenant en-dessous du seuil de bifurcation en adaptant les outils de mesure bidimensionnelle développés dans le Chapitre 2 aux champs de force optiques.

Grâce au caractère 2D de la mesure, nous avons ainsi mené diverses observations de l'évolution mécanique d'un nanofil en champ de force non-conservatif rapportées au Chapitre 3 : **cisaillement de la base des polarisations** mécaniques propres et donc brisure de son orthogonalité intrinsèque, **déformation et amplification des spectres** de bruit thermique, **violation de l'égalité du théorème fluctuation-dissipation**. Cette dernière observation a été réalisée en établissant un protocole adapté au caractère multidimensionnel du système. Ces signatures sont bien décrites par le modèle développé basé sur le développement modal dans la base des modes propres non-couplés, orthogonaux.

Ces observations valident ainsi ce modèle qui a ensuite été utilisé pour mettre en lumière le rôle central dans les phénomènes observés des **susceptibilités transverses**, qui quantifient la capacité de l'oscillateur à répondre à une force d'excitation dans les directions perpendiculaires à cette force. La déviation à la relation fluctuation-dissipation a en particulier pu être écrite en termes de ces susceptibilités transverses. Nous avons ainsi proposé un **terme correctif** à cette relation qui a cessé d'être valable telle quelle hors équilibre. L'objectif de ce développement rejoint celui du théorème Harada-Sasa qui connecte la violation de la relation fluctuation-dissipation au travail dissipé supplémentaire, mais apporte un nouvel éclairage spécifique aux systèmes multimodes couplés de manière non-réciproque. Enfin le terme correctif obtenu suggère une méthode de diagnostic pour vérifier si un oscillateur mécanique, par exemple intégré dans une expérience d'optomécanique, se retrouve dans un tel état stationnaire hors équilibre et s'il convient d'envisager une déviation au théorème fluctuation-dissipation. Elle consiste à **tester l'égalité des réponses transverses dans deux directions orthogonales**. Cette méthode est donc uniquement basée sur la mesure de réponse mécanique et ne requiert pas la mesure de spectres de vibration, de sorte qu'elle est également applicable aux systèmes dont le bruit thermique est trop faible pour être résolu.

Enfin la formulation des réponses en termes de susceptibilités axiales et transverses nous

ont permis de mieux comprendre les mécanismes d'excitation dans un tel système, dont les modes propres ne sont plus orthogonaux : nous avons en particulier démontré que la manière optimale d'exciter l'un de ces modes est **d'appliquer la force excitatrice dans la direction perpendiculaire à l'autre mode**. La réflexion sur la nature des projections pertinentes suggère que la théorie développée au Chapitre 3 peut être entièrement réécrite en termes de coordonnées covariantes et contravariantes, ce qui reste à entreprendre.

Thermodynamique hors équilibre dans un champ de force rotationnel

Nous avons proposé au Chapitre 3 un calcul du **taux de production d'entropie** et de la puissance dissipée par notre système, amené dans un état stationnaire hors équilibre par la force non-conservative. Le travail injecté par celle-ci est entièrement redistribué au bain thermique, mais la configuration des échanges thermiques est modifiée. Cette modification **ne peut pas être décrite par une température effective**, ainsi que nous l'avons montré. La mesure de trajectoires résolues en temps actuellement développée pourrait permettre la **vérification expérimentale du théorème de Harada et Sasa** dans notre système à partir du calcul direct du travail injecté par la force non-conservative :

$$\langle \dot{W} \rangle = \frac{\mathrm{rot}\mathbf{F}}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \delta\mathbf{r}(t) \times \delta\dot{\mathbf{r}}(t)\, dt,$$

cette vérification expérimentale n'ayant pour l'instant été réalisée que pour un système colloïde sur-amorti [113]. Plus généralement, ce système très simple représenterait une plateforme pour la vérification de théorèmes de fluctuation hors équilibre nécessitant généralement la mesure de trajectoires individuelles pour réaliser des moyennes exponentielles sur celles-ci. Par exemple, la vérification du théorème de Bochkov-Kuzovlev et sa version pour le travail injecté par la force non-conservative pourraient être envisagées :

$$\langle e^{-(W^{(nc)}+\Delta E_p^{\mathbf{F}})/k_BT} \rangle = 1, \qquad \langle e^{-W^{(nc)}/k_BT} \rangle = 1,$$

mais on pourrait également vérifier des théorèmes formalisant les changements d'états du système tels que la relation de Jarzynski, la relation de Crooks ou le théorème de Hatano-Sasa (voir [181] pour une revue de ces théorèmes). Nous avons également développé des outils de **simulation des trajectoires multidimensionnelles** à partir d'un algorithme de Itō - Taylor qui pourraient servir de support numérique à une telle étude. Un axe de recherche à plus long terme pourrait s'intéresser à **la distribution spatiale et spectrale des photons** diffusés sur le nanofil.

La fin du Chapitre 3 expose un travail théorique sur la **distribution de l'oscillateur dans l'espace des phases** à partir d'évaluations numériques des solutions analytiques de l'équation de Fokker-Planck et de simulations réalisées grâce à l'algorithme que nous venons d'évoquer. Il convient de souligner que le système qui présente cette compression possède un comportement purement linéaire. Nous avons démontré l'existence d'un **sens de circulation préférentiel** du nanofil en mouvement Brownien, qui rejoint les observations expérimentales des **vortex Browniens** menées dans le groupe de D. GRIER [99]. Cependant, notre étude s'est focalisée sur un autre phénomène : outre l'excès de bruit attendu, ce travail numérique prédit l'existence d'un phénomène de **compression du bruit thermique** qui survient simultanément en position et en vitesse. Nous avons montré dans la dernière section du Chapitre 3 que ce phénomène ne donnait pas lieu à un gain de sensibilité en force. La compression maximale des variances est limitée à la moitié de leur valeur : cette limite rappelle celle du phénomène de *squeezing* paramétrique. La relance en cours de l'expérience permettra de vérifier expérimentalement cette conjecture. Notons qu'un tel phénomène adviendrait également pour des systèmes mécaniques proches de leur état fondamental et qu'il serait alors à l'origine d'un état non-classique particulier de superposition quantique des directions d'oscillation.

Du côté théorique, un théorème fluctuation-dissipation alternatif exposé dans l'Annexe D suggère une **redéfinition de la quantité conjuguée pertinente** à la position r_β :

$$\tilde{p}_\beta = M_{\text{eff}} \left(v_\beta + \frac{g_{12} - g_{21}}{\Omega_{2||}^2 - \Omega_{1||}^2} v_\beta^\perp \right).$$

Ainsi que nous l'avons mentionné à la fin du Chapitre 3, cette redéfinition permettrait de résoudre le paradoxe posé par la compression simultanée de deux observables habituellement conjuguées. La forme de la quantité conjuguée que nous avons proposée appelle en outre une analogie avec le cas de l'électromagnétisme. Ce cas présente la différence fondamentale de ne pas dissiper d'énergie, mais l'expression de la variable conjuguée précédente est justement celle obtenue dans la limite très grands facteurs de qualité, soit $\Gamma/\Omega_m \to 0$, où la force non-conservative ne dissipe plus.

La suggestion d'expression de la variable conjuguée serait confortée par une **formulation Lagrangienne** de la situation physique, mais la définition d'un Lagrangien pour notre système où les forces ne dérivent pas d'un potentiel généralisé n'est pas un problème trivial. Si nous n'avons pas encore trouvé de formulation qui convienne, l'expression du travail de la force non-conservative, celle du théorème fluctuation-dissipation alternatif démontré en Annexe D, et le cas des très grands facteurs de qualité suggèrent des voies de recherche intéressantes. Un autre axe de réflexion est proposé par ce travail de J. Prost, J. F. Joanny et J. M. R. Parrondo [182] qui démontre la persistence d'un théorème fluctuation-dissipation écrit pour d'autres observables, par exemple, pour un moteur moléculaire, écrit dans le référentiel tournant à la vitesse moyenne du moteur.

Ce volet théorique du travail ouvre donc sur de nombreux développements et interprétations dont beaucoup peuvent être explorés à court terme. Finalement, notre ré-implémentation de la force optique a permis de pousser nos interprétations théoriques, qui vont désormais bien au-delà de la validation expérimentale de la mesure de force en champ non-conservatif : ce système simple constitue finalement un objet d'étude riche, intéressant pour lui-même et sera l'objet de nombreux développements théoriques et expérimentaux à l'avenir.

Corrélations spatio-temporelles d'intensité pour la mesure de position enr égime de comptage de photons

Dans le Chapitre 4, nous avons détaillé la construction d'une expérience analogue à l'expérience de laboratoire de 1956 de Hanbury Brown et Twiss [138]. Cette expérience proposait finalement l'étude du degré de corrélation spatiale d'une source à arc étendue. Dans notre expérience, la source un **émetteur de photons uniques mis en mouvement par un oscillateur**. Nous avons montré que les vibrations du nanofil se retrouvaient imprimées sur celles-ci et nous avons présenté des observations expérimentales de celles-ci pour différents agencements des détecteurs. Un **développement théorique** de la fonction d'autocorrélation a été calculé pour rendre compte de cet **encodage des fluctuations de position sur la fonction d'autocorrélation**. Ce modèle analytique a permis de décrire toutes les observations menées dans son domaine de convergence, et il a été supplémenté par des simulations numériques hors de ce domaine.

Le régime exploré est celui du pompage optique élargi et des nanofils portés à de très grandes températures (jusqu'à $5\,10^7$ K) par **exacerbation artificielle du mouvement Brownien**. Cependant, ce régime de vibration correspond précisément à celui des résonateurs carbonés utlra-légers tels que les nanotubes de carbone. La masse de ces résonateurs, de l'ordre de $10^{-21} - 10^{-20}$ kg, est 5 ordres de grandeurs en dessous de celle de nos nanofils et les fréquences

d'oscillations sont typiquement comparables, de sorte que l'extension des trajectoires thermiques est finalement comparable pour les nanofils artificiellement chauds et les nanotubes à température ambiante.

Nous avons alors développé une technique de mesure de position à très faible flux de photons, basée sur la mesure de la fonction d'autocorrélation de la lumière dont le support expérimental, un nanofil fonctionnalisé par un émetteur quantique, mime le comportement d'un nanotube léger interagissant très peu avec la lumière. Le résultat de cette mesure ne se moyenne pas de la même manière que celui d'une mesure de position linéaire traditionnelle car il s'agit d'une mesure quadratique, mais les estimations donnent une sensibilité en autocorrélation de position de l'oscillateur de :

$$C_\xi^{\min} \simeq (24\,\mathrm{nm})^2/\sqrt{\mathrm{Hz}}$$

pour un flux photonique inférieur à $5 \times 10^4\,\mathrm{Hz}$, ce qui est favorable pour la mesure du mouvement Brownien de **nanotubes de carbones, même à basse température** (4 K). Enfin, cette technique reste **applicable pour des flux de photons inférieurs au taux de décohérence mécanique**, ce qui n'est pas le cas de la mesure linéaire. Cette mesure pourrait ainsi être adaptée aux environnements limitant fortement les puissances otiques, comme les environnements cryogéniques.

Finalement, nous avons évoqué à la fin du Chapitre 4 la possibilité d'utiliser d'autres gradients de la fluorescence que les gradient spatiaux. Pour cela, on peut utiliser la dépendance de la fluorescence d'un centre NV à son état de spin qui peut être immergé dans un gradient de champ magnétique [159]. Le gradient de fluoresecence est alors gouverné par le gradient de champ magnétique qui ne connstitue qu'une limite technique. Une étude récente du groupe de M. POGGIO a également démontré la possibilité d'utiliser la modulation de la fréquence d'une boîte quantique, couplée par les contraintes du réseau à la vibration d'une structure en trompette dans laquelle elle est hébergée. La fréquence d'un laser de pompe sélectionne un état de contrainte et donc une configuration de vibration, et l'autocorrélation de l'intensité de l'émission renseigne ainsi sur les fluctuations de position [163]. Il est également possible de mesurer l'autocorrélation, non pas spatio-temporelle, mais dans un espace fréquence-temps, c'est-à-dire en filtrant les fréquences reçues sur chaque détecteur. Ce principe a permis d'imager la diffusion spectrale d'une boîte quantique [162].

Enfin, l'augmentation de la fréquence de vibration de l'oscillateur pour sonder les temps caractéristiques de la photophysique permettrait de sonder ce nouveau régime du couplage optomécanique [160].

Habillage d'un spin par la mécanique

Le Chapitre 5 de cette thèse présente deux expériences étudiant le même couplage hybride : la première a été menée par BENJAMIN PIGEAU et a conclu la thèse de SVEN ROHR, la seconde a été construite à la fin de la thèse, grâce aux outils expérimentaux développés tout au long de la thèse, mais n'a donné que des résultats préliminaires pour le moment. Les deux expériences sont basées sur le même principe : on souhaite implémenter un couplage hybride d'intensité ajustable, uniquement contrôlée par la valeur d'un gradient de champ magnétique. Pour cela, un centre NV doit être placé à proximité d'une structure produisant un fort gradient de champ : une microbille magnétique dans notre cas. Il faut également pouvoir lire l'état quantique du spin, ce qui est possible pour les centres NV à partir de l'intensité de leur fluorescence. L'excitation optique nécessaire fournit par ailleurs, dans le cas du centre NV, un moyen pratique de préparation de l'état fondamental. Les possibilités de manipulation du spin sont complétées par l'emploi d'un champ magnétique micro-onde engendré par le passage d'un courant alternatif

dans un guide à proximité du centre NV. Pour le développement de l'expérience, il convenait donc d'amener dans un voisinage très restreint (quelques microns cubes) : un centre NV attaché à un oscillateur, une bille magnétique, un guide d'onde et le *waist* laser.

Des **micro-guides d'onde** sur piédestal ont été développés et nanofabriqués, pour perturber le moins possible les faisceaux optiques focalisés et pour ne pas altérer l'efficacité de collection de la fluorescence. Ils ont été utilisés dans les deux expériences. La technique de fabrication développée au cours de la thèse est de mise en œuvre assez difficile puisqu'il s'agit d'un objet tridimensionnel mais elle a permis d'obtenir des guides à trois pistes : un guide micro-onde central et deux pistes latérales utilisées en circuit ouvert pour l'excitation électrostatique des nanofils. On a choisi de coller la microbille magnétique sur le guide d'onde. Ce guide a ensuite été monté à la place de l'échantillon dans l'expérience stabilisée développée au Chapitre 2, pour pouvoir être sondé avec le nanofil comme dans ce chapitre. La **technique de positionnement et d'orientation du centre NV** vis-à-vis de la bille magnétique a été approfondie grâce à l'utilisation d'un modèle de la fluorescence au voisinage d'un dipôle magnétique. Enfin, la construction de la nouvelle expérience a été complétée par l'implémentation de nouvelles fonctionnalités dans la suite d'interfaçage en Python utilisée tout au long de la thèse : **protocoles de manipulation cohérente** et **lecture optique** de l'état quantique du spin.

La construction de cette expérience stabilisée devrait en principe permettre l'étude du couplage hybride fort dans les régimes étudiés par S. Rohr au cours de sa thèse grâce à un système-test et un abondant travail théorique et numérique.

La première expérience a donné lieu à l'observation d'un **triplet de Mollow phononique** ainsi qu'à celle de la **synchronisation de la dynamique du spin sur celle de l'oscillateur**. L'observation de cette signature confirme la possibilité d'utiliser nos nanofils ultrasensibles comme élément mécanique d'un système hybride. En particulier la synchronisation de la précession du qubit de spin sur l'oscillation mécanique permet rendre mécaniquement résonante la force dépendante du spin. Enfin les techniques de mesure de champ de force développées au cours de la thèse permettront de développer de nouvelles approches pour mettre en évidence l'action du qubit de spin sur le nanofil, à travers des mesures de gradients de force.

Finalement, le caractère 2D du mouvement des nanofils ajoute des degrés de liberté à notre système hybride. La première expérience de mesure de triplet de Mollow a d'ailleurs permis d'identifier l'**aspect projectif** du couplage hybride qui donnait lieu à un triplet différent pour chaque polarisation mécanique du nanofil.

Annexes

Annexe A

Liste des notations

Symbole	Signification
A	Aire apparente d'un segment de nanofil $2hR$
$\mathbf{A}$	Matrice paramètre de la distribution de probabilité stationnaire (Chap. 3)
a_{r_i,r_j}, a_{r_i,v_j}, etc.	Coefficients de $\mathbf{A}$ (Chap. 3)
α	Efficacité de pompage (modèle à 3 niveaux, 4.2.1)
α_{ij}	Coefficients de la partie quadratique en tension des g_{ij}
$\mathbf{B}$	Champ magnétique
β	Angle générique entre le mode (1) et un vecteur de mesure
C	Contraste ESR (Chap. 5)
β_{ij}	Coefficients de la partie linéaire en tension des g_{ij}
$C_{F_{\text{th}}}(\tau)$	Auto-corrélation de la force de Langevin
$C_x(\tau), C_\xi(\tau)$	Auto-corrélation de la position
c	Vitesse de la lumière dans le vide : $2.998 \times 10^8\,\text{m.s}^{-1}$
$\mathbf{D}$	Matrice de diffusion (quadratique), Chap. 3
D	Effet Jahn-Teller dans le centre NV (Chap. 5)
d	Diamètre du nanofil 50 à 400 nm
$\Delta\Omega^2_{\|\|}$	$(\Omega_2^2 - g_{22}) - (\Omega_1^2 - g_{11})$
$\Delta\Omega^2_{\perp}$	$\Omega^2_{2\|\|} - \Omega^2_{-}$ ou $\Omega^2_{+} - \Omega^2_{1\|\|}$
Δr^2_{th}	Variance du bruit thermique de déplacement (2D) : 0.1 à 40 nm
Δr^2_{β}	Variance de la projection du bruit thermique de déplacement sur l'axe d'orientation β
Δv^2_{β}	Variance de la projection du bruit thermique de vitesse sur l'axe d'orientation β
Δx^2_{th}	Variance du bruit thermique de déplacement (1D)
$\Delta\tilde{x}_{\text{th}}$	Bruit thermique de déplacement normalisé $\Delta x_{\text{th}}/w_0$
δ	Décalage des détecteurs (Chap. 4), Désaccord micro-onde/qubit (Chap. 5)
$\tilde{\delta}$	Décalage des détecteurs normalisé δ/w_0
$\delta^\star$	Décalage optimal des détecteurs (Chap. 4)

Symbole	Signification
$\delta\mathbf{F}$	Amplitude de la force d'excitation
$\delta\mathbf{F}_{\text{th}}$	Force de Langevin
$\delta F_{i,\text{th}}$	Force de Langevin dans la direction i
δx	Bruit de position d'un oscillateur 1D
$\delta\mathbf{r}$	Bruit de position d'un oscillateur 2D
E	Module d'Young du SiC : 450×10^9 Pa (Champ de contrainte dans les centres NV, Chap 5)
$\mathbf{E}_i$	Champ électrique incident (résonances de Mie, 1.2.3)
$\mathbf{E}_s$	Champ électrique diffusé (résonances de Mie, 1.2.3)
$\mathbf{e}_1$, $\mathbf{e}_2$	Directions des modes propres mécaniques non couplés
$\mathbf{e}_-$, $\mathbf{e}_+$	Directions des modes propres mécaniques couplés
$\mathbf{e}_F$	Direction de la force d'excitation
$\mathbf{e}_\beta$	Direction de mesure générique
$\mathbf{e}_\ominus$, $\mathbf{e}_\oplus$	Directions de mesure des voies Diff./Somme de la QPD
$\mathbf{e}_r$, $\mathbf{e}_\phi$	Vecteurs de la base polaire (résonances de Mie, 1.2.3)
ε_0	Permittivité diélectrique du vide : 8.85×10^{-12} F.m^{-1}
$\mathbf{F}_{\text{diss}}$	Force d'amortissement $-M\Gamma\dot{\mathbf{r}}$
$\mathbf{F}_{\text{ext}}$ ou $\mathbf{F}$	Force extérieure générique appliquée sur le nanofil
$\mathbf{F}_{\text{el}}$	Force électrostatique
$\mathbf{F}_{\text{opt}}$	Force optique
$f(y,t)$	Force linéique appliquée à l'altitude y sur le nanofil
$\tilde{f}(y,t)$	Profil adimensionné de la force linéique $f(y,t)$
$\nabla_x f(y)$	Gradient transversal linéique de force appliqué en y
Φ	Flux de photons
Φ_0	Flux de photons maximal : 10 à 200 kcps
ϕ	Angle polaire (résonances de Mie, 1.2.3)
ϕ_0, ϕ_1	Taux de fluorescence effectifs des niveaux de spin $m_S = 0, 1$ (Chap. 5)
ϕ_c	Angle de collection (résonances de Mie, 1.2.3)
$G[\langle y, y'\rangle, \Omega]$	Fonction de Green mécanique adimensionnée
g	Facteur de Landé électronique : 2
$\mathrm{g}^{(2)}(\tau, x_1, x_2)$	Corrélation spatio-temporelle d'intensité
$\mathrm{G}^{(2)}(\tau, x_1, x_2)$	Corrélation spatio-temporelle d'intensité non normalisée
g_{ij}	Gradients de force réduits $\frac{1}{M_{\text{eff}}}\partial_i F_j$
g_{ij}^0	Gradients réduits de forces non électrostatiques
$g_{ij}^{0,\text{eff}}$	Gradients réduits de force résiduels effectifs
Γ	Taux de dissipation mécanique générique ou commun

Symbole	Signification
Γ_0	Taux de transition $\|e\rangle \to \|g\rangle$ (modèle à 3 niveaux, 4.2.1)
Γ_1, Γ_2	Taux de dissipation mécaniques des modes (1) et (2) : $2\pi\times$ [0.1 – 100 kHz]
Γ_{eff}	Largeur spectrale effective des transitions du qubit (Chap. 5)
γ	Chap. 3 : Coefficient devant la puissance P dans les g_{ij} optiques. Chap. 4 : Taux de transition $\|e\rangle \to \|m\rangle$ (modèle à 3 niveaux, 4.2.1)
γ_0	Taux de transition $\|m\rangle \to \|g\rangle$ (modèle à 3 niveaux, 4.2.1)
γ_{ij}	Coefficients devant la puissance P dans les g_{ij} optiques
γ_g	Grandissement du montage (Chap. 4)
$\mathbf{H}_i$	Excitation magnétique incidente (résonances de Mie, 1.2.3)
$\mathbf{H}_s$	Excitation magnétique incidente diffusée (résonances de Mie, 1.2.3)
$H_n^{(1)}$	Fonction de Hankel de première espèce d'ordre n
$H_n^{(2)}$	Fonction de Hankel de deuxième espèce d'ordre n
h	Hauteur d'un élément de nanofil
$\tilde{h}(y)$	Profil adimensionné de mesure à l'altitude y
$\hbar$	Constante de Planck réduite : 1.055×10^{-34} J.s
J_n	Fonction de Bessel de première espèce d'ordre n
k	Nombre d'onde de déflexion mécanique $k^2 = \Omega\sqrt{\rho S/EI}$. Vecteur d'onde $2\pi/\lambda$ (résonances de Mie, 1.2.3).
k_{ij}	Taux de transitions dans le système à 7 niveaux (5.2.3).
k_n	Nombre d'onde des modes propres de déflexion
k_B	Constante de Boltzmann : 1.381×10^{-23} J.K^{-1}
$\boldsymbol{\chi}[\Omega]$	Susceptibilité mécanique matricielle
$\boldsymbol{\chi}_{\text{diag}}[\Omega]$	Version diagonalisée de la susceptibilité matricielle
$\chi_-[\Omega]$, $\chi_+[\Omega]$	Susceptibilités mécaniques axiales dans les directions des modes propres $\chi_-[\Omega] = \chi_{--}[\Omega] = \chi_-^{\|\|}[\Omega]$ (resp. +)
$\chi_{ij}[\Omega]$	Susceptibilité tensorielle dans la direction i à une force appliquée dans la direction j ($\chi_{ij} = \mathbf{e}_i \cdot \boldsymbol{\chi} \cdot \mathbf{e}_j$)
$\chi_i^{\|\|}[\Omega]$	Susceptibilité axiale dans la direction i : $\chi_i^{\|\|}[\Omega] = \chi_{ii}[\Omega]$
$\chi_i^{\perp}[\Omega]$	Susceptibilité transverse dans la direction i (réponse dans la direction i à une force appliquée perpendiculairement) $\chi_i^{\perp}[\Omega] = \chi_{ii^\perp}[\Omega]$
$\chi_n[\Omega]$	Susceptibilité du n-ième mode de déflexion
I	Chapitres 1, 2, 3 : Moment d'inertie quadratique transversal du nanofil $\iint_S dxdyx^2 = \frac{\pi d^4}{64}$, Chapitre 4 : Intensité optique d'excitation : 0.1 à 3 mW
L	Longueur du nanofil : 5 à 300 μm
λ	Longueur d'onde optique
M	Masse physique du nanofil (Chap. 3 : masse effective) : 10^{-16} à 10^{-14} kg

Symbole	Signification
M_{eff}	Masse effective du nanofil (du 1er mode de déflexion) : 10^{-16} à 10^{-14} kg
$M_{\text{eff},n}$	Masse effective du $n^{\text{ième}}$ mode de déflexion du nanofil
M_n	Masse dynamique du n-ième mode de déflexion
m_S	Projection du spin
$\boldsymbol{\mu}$	Vecteur de dérive (Chap. 3)
μ_B	Magnéton de Bohr : 9.27×10^{-24} J.T^{-1}
NA	Ouverture numérique (*Numerical Aperture*) : 0.75
n	Indice optique (résonances de Mie, 1.2.3)
$\mathbf{\Omega}$	Matrice diagonale des pulsations Ω_1, Ω_2
$\Omega_{\text{c}}/2\pi$	Fréquence de résonance corrigée $\sqrt{\Omega_{\text{m}}^2 - \Gamma^2/4}$
$\Omega_{\text{d}}/2\pi$	Fréquence d'excitation (Chapitre 5)
$\Omega_n/2\pi$	Fréquences du n-ième mode de déflexion
$\Omega_{\text{m}}/2\pi$	Fréquence mécanique (générique)
$\Omega_1/2\pi$, $\Omega_2/2\pi$	Fréquences propres mécaniques non couplées (basse, haute) : $[1\,\text{kHz}, 10\,\text{MHz}]$
$\Omega_{1\|\|}^2$, $\Omega_{2\|\|}^2$	$\Omega_1^2 - g_{11}$, $\Omega_2^2 - g_{22}$
$\Omega_-/2\pi$, $\Omega_+/2\pi$	Fréquences propres mécaniques couplées (basse, haute)
P	Chapitre 4 : Puissance optique. Chapitre 1 : pression du gaz.
P_{inst}	Puissance optique au seuil d'instabilité
P_i	Puissance électromagnétique incidente sur un segment de nanofil (résonances de Mie, 1.2.3)
P_m	Puissance optique utilisée comme métrique à la place de P_{thres} en l'absence de bifurcation (3.5.2)
P_s	Puissance électromagnétique diffusée par un segment de nanofil (résonances de Mie, 1.2.3)
P_{thres}	Puissance optique au seuil de bifurcation
$\Pi_1(x), \Pi_2(x)$	Profils de collection des deux détecteurs au Chap. 4
$p(\mathbf{x}, t)$	Distribution dans l'espace des phases
$p_{\text{st}}(\mathbf{x})$	Distribution dans l'espace des phases de l'état stationnaire
Q	Facteur de qualité des oscillateurs Ω_{m}/Γ : air $[1, 10^2]$, vide à 300 K : $[10^2, 10^4]$
R	Rayon du nanofil : 25 à 200 nm
$\mathbf{R}_s$	Vecteur de Poyting "diffusé" (résonances de Mie, 1.2.3).
$\mathbf{R}$	Vecteur de Poyting "total" (résonances de Mie, 1.2.3), Matrice de passage de la base non-couplée à la base couplée (Chap. 3)
RBW	*Resolution BandWidth* : Résolution spectrale

Symbole	Signification
r	Coordonnée radiale (résonances de Mie, 1.2.3)
$\mathbf{r}(t)$	Position 2D de l'extrémité du nanofil
$\mathbf{r}_0$	Position 2D d'équilibre de l'extrémité du nanofil
$\mathbf{r}'_0$	Position statique 2D de l'extrémité du nanofil déplacée par une force : 1 à 100 nm
r_1, r_2	Coordonnées de phase : positions dans les directions des modes non-couplés (1) et (2)
ρ ou ρ_{SiC}	Masse volumique du SiC : 3210 kg.m^{-3}
$\rho_0^{\mathrm{st}}, \rho_1^{\mathrm{st}}$	Populations effectives stationnaires des niveaux de spin $m_S = 0, 1$ (Chap.5)
S	Section transverse du nanofil : 10^{-15} à 10^{-13} m^2
$S_{F_{\mathrm{th}}}[\Omega]$	Densité spectrale de force de Langevin
$S_{\delta r_\beta}[\Omega]$	Densité spectrale de bruit thermique de déplacement du nanofil dans la direction β
$S_{ij}[\Omega]$	Corrélation des projections dans les directions i et j du bruit thermique de déplacement ($S_{\beta\beta}[\Omega] = S_{\delta r_\beta}[\Omega]$)
S_τ	Entropie produite pendant la durée τ par la force non-conservative
$\boldsymbol{\sigma}$	Matrice de diffusion (Chap. 3)
$\sigma_g, \sigma_e, \sigma_m$	Populations normalisées de l'état fondamental, excité, métastable, du modèle à 3 niveaux du centre NV
$\sigma_s^{\parallel}, \sigma_s^{\perp}$	Sections efficaces de diffusion (résonances de Mie, 1.2.3) pour les polarisations parallèle et perpendiculaire au nanofil
$\mathbf{T}$	Tenseur de Maxwell
T	Température (300 K) (ou durée d'acquisition, Chapitre 4)
T_{eff}	Température effective
τ	Délai
$\theta_-(\theta_+)$	Angle entre la direction du mode couplé ($-$) et celle du mode non couplé (1) (resp. ($+$) et (1))
θ_0	Angle entre l'axe x et la direction du mode (1)
θ_F	Angle entre la direction de la force excitatrice et celle du mode (1)
$u(y,t)$	Déplacement transversal du nanofil
$u_n(y)$	Profils normalisés des modes propres de déflexion
V	Différence de potentiel entre le nanofil et une contre-électrode
V_0	Zéro électrostatique : -1 V à 1 V
$V_0^{\mathrm{eff}}(\mathbf{r})$	Zéro électrostatique effectif local
$V_{\mathrm{DC/HF}}^{\ominus/\oplus}$	Tensions mesurées sur les voies DC/HF Différence/Somme de la QPD
v_1, v_2	Coordonnées de phase : vitesses dans les directions des modes non-couplés (1) et (2)

Symbole	Signification
$W_\tau^{(\mathrm{nc})}$	Travail donné pendant la durée τ par la force non-conservative au nanofil
$\langle \dot{W}^{(\mathrm{nc})} \rangle$	Puissance moyenne donnée par la force non-conservative au nanofil
X,Y,Z	Coordonnées du nanofil vis-à-vis du laser. Z est l'axe optique, Y l'axe du nanofil qui pointe vers le bas
x_0	Position d'équilibre d'un oscillateur 1D
x_0'	Position statique d'un oscillateur 1D déplacé par une force
x_1, x_2	Positions centrales des deux détecteurs au Chapitre 4
x, y, z	Coordonnées de l'"échantillon" (pointe EFM, laser, guide micro-onde) vis-à-vis du nanofil
$\Xi[\Omega]$	Déterminant réduit de la matrice inverse de la susceptibilité $\Xi[\Omega] = M_{\mathrm{eff}} \left(\det \boldsymbol{\chi}[\Omega]\right)^{-1}$
$\xi(t)$	position du nanofil dans le Chapitre 4
Y_n	Fonction de Bessel de deuxième espèce d'ordre n
y	Altitude d'un point du nanofil ($y = 0$ étant l'encastrement)
w_0	Taille transversale du *waist* du faisceau optique

Définitions et conventions

Vecteurs unitaires	$\mathbf{e}_{\ldots}$
Directions perpendiculaires	$\mathbf{e}_\beta^\perp$ perpendiculaire à $\mathbf{e}_\beta$, $\mathbf{e}_\beta^{\perp\perp} = -\mathbf{e}_\beta$
Opérateur nabla	$\boldsymbol{\nabla} A = \partial_x A\, \mathbf{e}_x + \partial_y A\, \mathbf{e}_y + \partial_z A\, \mathbf{e}_z$
Produit scalaire euclidien	$\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j$
Eléments de tenseurs	$A_{ij} = \mathbf{e}_i \cdot A \cdot \mathbf{e}_j$: La transposition des vecteurs à gauche dans les produits scalaires et matriciels est toujours implicite
Transformée de Fourier	$A[\Omega] = \int_{-\infty}^{\infty} dt\, e^{i\Omega t} A(t)$ et $A(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi}\, e^{-i\Omega t} A[\Omega]$ temporelle uniquement : $u[y,\Omega] = \int_{-\infty}^{\infty} dt\, e^{i\Omega t} u(y,t)$

Moyenne d'ensemble	$\langle A \rangle$ (moyenne de A sur les réalisations de bruit)
Moyenne temporelle	$\langle A \rangle_T$ sur une durée T (ou $\overline{A}$ sur une durée infinie)
Densité spectrale	$S_x[\Omega]$ tel que $2\pi\delta(\Omega + \Omega')S_x[\Omega] = \langle \delta x[\Omega]\delta x[\Omega'] \rangle$
Produit scalaire sur l'espace des déflexions	$\langle u, v \rangle = \int_0^L \frac{dy}{L}\, u(y)\, v(y)$
Grandeurs adimensionnées	$\tilde{f}(y), \tilde{h}(y)$

Annexe B

Colorimétrie

Cette section explique la technique utilisée de reconstruction d'une couleur à partir d'un spectre. Le codage "RGB" (red green blue) a été développé pour permettre une gestion des couleurs parallèles à celle de l'œil humain qui ne perçoit les spectres lumineux qu'intégrés sur ses trois types de cônes récepteurs bleu, vert et rouge. Il a donc été utilisé ici pour encoder les couleurs perçues à partir des spectres des résonances de Mie.

Il s'agit alors d'intégrer les spectres correctement pour les réduire à des triplets de valeurs RGB comparables pour l'être humain ou les détecteurs qu'il a développé (caméra, etc) à des couleurs perçues.

En colorimétrie, on suppose que les couleurs (au sens des couleurs perçues) sont l'association d'une **chromaticité**, et d'une **luminosité**. Ici, on assimilera seulement les couleurs à leur chromaticité, sans considération de luminosité.

Plan xy

Un premier codage de la couleur, développé initialement en 1931 par la *Society of Motion Picture & Television Engineers* (SMPTE), est tout d'abord utilisé, celui dit en coordonnées "xyz".

Toutes les chromaticités, c'est-à-dire les couleurs sans considération de luminosité, sont réparties sur un plan (xy) ($z = 1 - x - y$ n'étant pas linéairement indépendant de x et y, on se sert généralement uniquement de x et y). Notamment, on représente les couleurs correspondant à des longueurs d'ondes pures. L'axe y a été construit pour représenter la **luminance** d'une couleur, c'est-à-dire l'apparence claire ou non qu'elle prend à nos yeux (à l'œil humain standard). Le bleu et le rouge, moins bien perçus, sont situés du côté des basses luminances, et à l'inverse le jaune et le vert du côté des grandes luminances. Les couleurs pures sont alors réparties sur une courbe dessinant une sorte de langue convexe dans l'espace xy, dessinée sur la Figure B.1.

L'intérêt de ce plan est qu'il a été construit pour qu'il soit possible de sommer vectoriellement deux positions A et B pour aboutir à une troisième C qui représente bien la couleur perçue par un œil recevant simultanément les deux couleurs correspondant à A et B. Toutes les couleurs se retrouvent donc à l'intérieur de la forme de langue puisque leurs positions correspondent à des combinaisons linéaires pondérées (par des poids positifs) des positions des longueurs d'ondes pures. Un spectre $S(\lambda)$ s'intègre ainsi en un seul point de l'espace xy, en pondérant les positions $\overline{x}(\lambda), \overline{y}(\lambda), \overline{z}(\lambda)$ correspondant aux longueurs d'ondes pures par les amplitudes du spectre :

$$\begin{cases} X = \int S(\lambda)\overline{x}(\lambda)d\lambda \\ Y = \int S(\lambda)\overline{y}(\lambda)d\lambda \\ Z = \int S(\lambda)\overline{z}(\lambda)d\lambda \end{cases}, \quad \rightarrow \quad \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \frac{1}{X+Y+Z}\begin{pmatrix} X \\ Y \\ Z \end{pmatrix} \tag{B.1}$$

Les positions des longueurs d'ondes pures $\overline{x}(\lambda), \overline{y}(\lambda)$ sont données par un standard édité par la Commission Internationale de l'Eclairage (CIE).

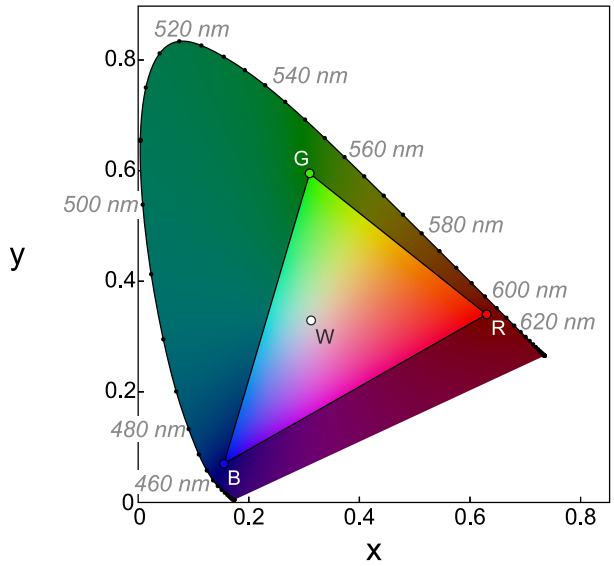


Figure B.1 – Plan xy : espace des chromaticités. On a positionné les points correspondant aux longueurs d'ondes pures le long du trait plein noir. On a également représenté trois points R, G, et B correspondant aux chromaticités des diodes rouges, vertes et bleues dans les standard SMPTE 1931, et un point W blanc appelé "Illuminant D65".

Conversion en triplet RGB

L'espace (xy) permet également de représenter trois points R, G, B dont les coordonnées sont données par un second standard, correspondant aux spectres intégrés des diodes rouge, verte et bleue d'un écran. Cela délimite le triangle des chromaticités que l'écran peut reproduire, appelé **gamut**, visible sur la Figure B.1. Le standard pertinent dépend donc de l'écran, ici nous nous sommes contentés d'utiliser le standard CIE. La conversion des positions (x, y) en triplet RGB est alors un passage des coordonnées cartésiennes aux coordonnées barycentriques.

Désaturation

La dernière opération peut engendrer des valeurs de R, G ou B négatives si un point se retrouve hors du gamut et n'est donc pas représentable par l'écran.

Pour respecter du mieux possible sa teinte, la couleur est alors ramenée sur le bord du gamut en suivant la direction du point blanc, ce qui correspond à une désaturation.

Annexe C

Algorithme d'automatisation du traitement des spectres pour la mesure de cartes de gradients de forces

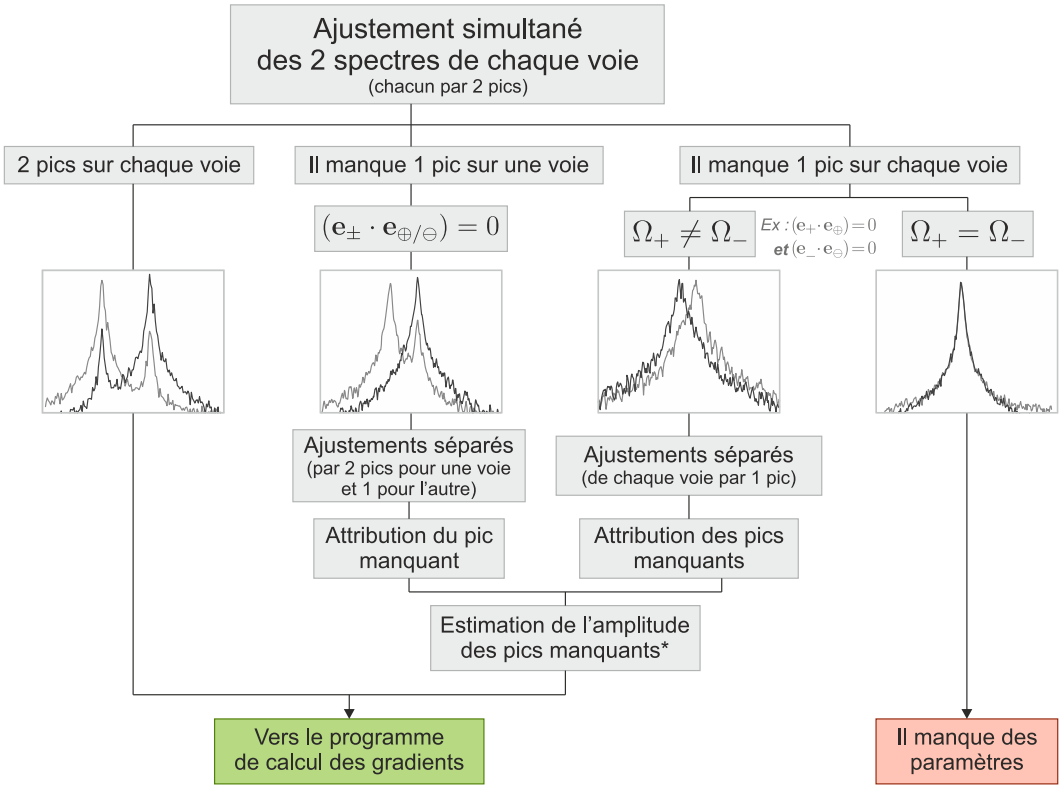


FIGURE C.1 – Algorithme de traitement des spectres calibrés. *L'amplitude des pics manquants, quand il est possible de l'estimer, est arbitrairement fixée à la valeur maximale possible, c'est-à-dire l'amplitude de bruit mesurée à la fréquence du pic manquant (connue grâce à l'ajustement du signal de l'autre voie). Cette approximation est bien sûr d'autant moins précise que les fréquences sont rapprochées.

Annexe D

Une démonstration du théorème fluctuation-dissipation et son extension hors équilibre

Forme temporelle du théorème fluctuation-dissipation

La démonstration suivante est adaptée du travail d'Agarwal en 1972 [107]. L'**équation de Fokker-Planck** régit l'évolution de la densité de probabilité $p(\mathbf{x}, t)$ dans l'espace des phases dont les coordonnées $\mathbf{x} = \{r_1, r_2, v_1, v_2\}$ représentent aussi bien des vitesses que des positions :

$$\partial_t p(\mathbf{x}, t) = -B_{ik}\, \partial_{x_i}\Big(x_k\, p(\mathbf{x}, t)\Big) + \frac{D_{ij}}{2}\partial^2_{x_i x_j}\Big(p(\mathbf{x}, t)\Big), \tag{D.1}$$

où on a utilisé la convention de sommation des indices répétés d'Einstein. A titre d'illustration, dans le formalisme employé jusqu'ici, le vecteur de dérive C et la matrice de diffusion D sont :

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ -\Omega^2_{1||} & g_{21} & -\Gamma & 0 \\ g_{12} & -\Omega^2_{2||} & 0 & -\Gamma \end{pmatrix}, \qquad \mathbf{D} = \frac{2\Gamma k_B T}{M_{\text{eff}}} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{D.2}$$

On introduit l'opérateur Liouvillien $\mathscr{L}^0$ correspondant :

$$\mathscr{L}^0(\mathbf{x}) \equiv -\,\partial_{x_i}\Big(B_{ik} x_k \bullet\Big) + \frac{1}{2}\partial^2_{x_i x_j}\Big(D_{ij} \bullet\Big) \qquad \rightarrow \qquad \partial_t p = \mathscr{L}^0\, p. \tag{D.3}$$

S'il existe un état stationnaire, alors par définition sa distribution de probabilité p_{st} vérifie :

$$\mathscr{L}^0(\mathbf{x})\, p_{\text{st}}(\mathbf{x}) = 0. \tag{D.4}$$

On s'intéresse maintenant à la réponse linéaire d'une observable $A(\mathbf{x}, t)$ à une petite force-test $\delta F_i(t)$ appliquée dans la direction i (branchée adiabatiquement sur le système initialement à l'état stationnaire) :

$$R_{A,F_i}(t_2 - t_1) \equiv \frac{\delta\langle A(t_2)\rangle}{\delta F_i(t_1)}, \;\; \text{pour } t_2 > t_1. \tag{D.5}$$

L'équation de Fokker-Planck est modifiée, ainsi que l'opérateur Liouvillien :

$$\mathscr{L}(\mathbf{x}, t) = \mathscr{L}^0(\mathbf{x}) + \mathscr{L}^1(\mathbf{x}, t), \qquad \mathscr{L}^1(\mathbf{x}, t) \equiv \frac{\delta F_i(t)}{M}\partial_{v_i(t)} \bullet. \tag{D.6}$$

La perturbation au premier ordre en $\mathscr{L}^1$ de la distribution $p(\mathbf{x}, t)$ est :

$$p(\mathbf{x}, t) = p_{\text{st}}(\mathbf{x}) + \int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{\mathscr{L}^0(\mathbf{x})\,(t-t')}\mathscr{L}^1(\mathbf{x}, t')\, p_{\text{st}}(\mathbf{x}) \tag{D.7}$$

L'espérance de l'observable A est :

$$\begin{aligned}\langle A(t_2)\rangle &= \int d\mathbf{x}\; A(\mathbf{x},t_2)\; p(\mathbf{x},t_2) \\ &= \langle A\rangle_{\rm st} + \int d\mathbf{x} \int_{-\infty}^{t_2} dt'\; A(\mathbf{x},t_2)\, e^{\mathscr{L}^0(\mathbf{x})\,(t_2-t')}\mathscr{L}^1(\mathbf{x},t')p_{\rm st}(\mathbf{x}) \end{aligned} \tag{D.8}$$

Or, si l'état stationnaire correspondant à la densité de probabilité $p_{\rm st}$ est en fait un état d'*équilibre thermodynamique*, alors celle-ci peut s'écrire sous la forme $p_{\rm st}(\mathbf{x}) = \dfrac{e^{-E(\mathbf{x})/k_BT}}{Z}$ où Z est la fonction de partition et $E(\mathbf{x})$ l'énergie du système dans l'état de phase $\mathbf{x}$. En faisant agir les opérateurs $\mathscr{L}^1$ (D.6) et $e^{\mathscr{L}^0 t}$ (dont l'action est triviale à cause de l'équation D.4), l'espérance de A se réécrit :

$$\langle A(t_2)\rangle = \langle A\rangle_{\rm st} - \int d\mathbf{x} \int_{-\infty}^{t_2} dt'\; p_{\rm st}(\mathbf{x})\; A(\mathbf{x},t_2)\, \frac{\delta F_i(t')}{Mk_BT}\left(\partial_{v_i(t')}E(\mathbf{x})\right) \tag{D.9}$$

Finalement, en opérant la dérivation fonctionnelle par rapport à $\delta F_i(t_1)$ de la définition de la réponse linéaire D.5 (pour $t_1 < t_2$) :

$$R_{A,F_i}(t_2-t_1) = -\int d\mathbf{x}\; p_{\rm st}(\mathbf{x})\; A(\mathbf{x},t_2)\; \frac{\partial_{v_i(t_1)}E(\mathbf{x})}{Mk_BT} \tag{D.10}$$

La réponse se relie donc à la corrélation :

$$R_{A,F_i}(t_2-t_1) = -\left\langle A(\mathbf{x},t_2)\, \frac{\partial_{v_i(t_1)}E(\mathbf{x})}{Mk_BT}\right\rangle \tag{D.11}$$

entre la variable A et une quantité **conjuguée à la perturbation vis-à-vis de l'énergie** (plus précisément, conjuguée au déplacement r_i dans la direction d'application de la force), ce qui constitue le théorème fluctuation-dissipation général sous une forme temporelle, valable à l'équilibre thermodynamique. En prenant $A = r_j$, c'est-à-dire en calculant la réponse **en déplacement** R_{ji} dans la direction j à une force de direction i, et en donnant à l'énergie l'expression habituelle de l'énergie cinétique :

$$R_{ji}(t_2-t_1) = \frac{1}{k_BT}\left\langle r_j(t_2)v_i(t_1)\right\rangle \tag{D.12}$$

soit, en invoquant la stationnarité des processus de déplacement :

$$R_{ij}(\tau) = -\frac{1}{k_BT}\,\frac{d}{d\tau}\left\langle r_i(\tau)r_j(0)\right\rangle, \quad \text{pour } \tau \geq 0. \tag{D.13}$$

Pour respecter l'hypothèse de causalité, on impose la convention $R_{ij}(\tau) = 0$ pour $\tau < 0$ [1].

Forme fréquentielle du théorème fluctuation-dissipation

On note $S_{ij}[\Omega]$ la transformée de Fourier de la fonction de corrélation croisée :

$$S_{ij}[\Omega] \equiv \int_{-\infty}^{\infty} d\tau\, \left\langle r_i(\tau)r_j(0)\right\rangle e^{i\Omega\tau}. \tag{D.14}$$

On a donc :

$$S_{ij}[\Omega] = \frac{i}{\Omega}\int_{-\infty}^{\infty} d\tau\, \frac{d}{d\tau}\left\langle r_i(\tau)r_j(0)\right\rangle e^{i\Omega\tau}. \tag{D.15}$$

1. On aurait pu introduire une fonction de Heaviside $\Theta(t_2-t_1)$ à la différentiation fonctionnelle D.10, puisque celle-ci donne un résultat nul si l'instant t_1 d'évaluation de la force $\delta F_i(t_1)$ n'est pas compris dans la plage d'intégration $]-\infty, t_2]$. On a fait ici le choix de ne pas le faire pour alléger les équations.

Les hypothèses de micro-réversibilité : $\langle r_i(\tau) r_j(0)\rangle = \langle r_i(0) r_j(\tau)\rangle$ et de stationnarité $\langle r_i(\tau) r_j(0)\rangle = \langle r_i(0) r_j(-\tau)\rangle$ entraînent la parité de la corrélation : $\langle r_i(\tau) r_j(0)\rangle = \langle r_i(-\tau) r_j(0)\rangle$. Sa dérivée est donc impaire, soit :

$$S_{ij}[\Omega] = -\frac{2}{\Omega}\,\mathrm{Im}\left[\int_0^\infty d\tau\,\frac{d}{d\tau}\Big\langle r_i(\tau) r_j(0)\Big\rangle\, e^{i\Omega\tau}\right]. \tag{D.16}$$

En utilisant maintenant la forme temporelle du théorème fluctuation-dissiparion D.13, on obtient :

$$S_{ij}[\Omega] = \frac{2k_BT}{\Omega}\,\mathrm{Im}\left[\int_0^\infty d\tau\; R_{ij}(\tau)\; e^{i\Omega\tau}\right], \tag{D.17}$$

où l'on identifie la susceptibilité croisée $\chi_{ij}[\Omega] \equiv \int_{-\infty}^{\infty} d\tau\; R_{ij}(\tau)\; e^{i\Omega\tau} = \int_0^\infty d\tau\; R_{ij}(\tau)\; e^{i\Omega\tau}$ (à cause de la nullité de $R_{ij}(t)$ pour $t < 0$) :

$$S_{ij}[\Omega] = \frac{2k_BT}{\Omega}\mathrm{Im}\,\chi_{ij}[\Omega]. \tag{D.18}$$

Une extension formelle du théorème fluctuation-dissipation hors-équilibre

Cette démonstration peut être détournée [107] pour trouver d'autres formulations du théorème fluctuation-dissipation étendues aux états stationnaires hors équilibre. Il existe de nombreuses écritures de la réponse *à une force non-conservative* sous la forme d'un corrélateur [127, 183], mais nous nous intéressons ici à un état stationnaire amené hors équilibre par une force statique non-conservative d'intensité arbitraire et sondé par une *autre* force, dépendante du temps et de faible amplitude.

L'équation D.8, valide également hors équilibre, peut être réécrite en utilisant le fait que l'opérateur $\mathscr{L}^1$ n'est rien d'autre qu'un opérateur de dérivation, et qu'ainsi :

$$\mathscr{L}^1 p_{\mathrm{st}} = p_{\mathrm{st}}\,\mathscr{L}^1 \ln p_{\mathrm{st}}. \tag{D.19}$$

La quantité qui apparaît est l'**entropie stochastique** [111] ou entropie par trajectoire, encore appelée **potentiel d'information** [183] :

$$s(t) \equiv -k_B \ln p(\mathbf{x}(t), t), \tag{D.20}$$

qui représente effectivement l'entropie à attribuer à une trajectoire pour que la combinaison pondérée de toutes les trajectoires possibles donne l'entropie totale du système. L'équation D.8 se réécrit donc :

$$p(\mathbf{x}, t) = p_{\mathrm{st}}(\mathbf{x}) - \int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{\mathscr{L}^0(\mathbf{x})\,(t-t')} p_{\mathrm{st}}(\mathbf{x}) \mathscr{L}^1(\mathbf{x}, t') \frac{s(t')}{k_B} \tag{D.21}$$

où s est à prendre dans l'état stationnaire. Finalement, le théorème fluctuation-dissipation se réécrit formellement :

$$R_{A,F_i}(t_2 - t_1) = \left\langle A(\mathbf{x}, t_2)\,\frac{\partial_{v_i(t_1)} s(t_1)}{M k_B}\right\rangle = \left\langle A(\mathbf{x}, t_2)\,\frac{\partial_{v_i(t_1)} \ln p_{\mathrm{st}}(\mathbf{x}(t_1))}{M}\right\rangle \tag{D.22}$$

Ce théorème valable hors d'équilibre remplace le théorème fluctuation-dissipation à l'équilibre D.11 : la réponse d'une observable s'écrit toujours comme la corrélation de cette observable avec la quantité conjuguée à la perturbation, mais au lieu de la quantité conjuguée **vis-à-vis de l'énergie**, c'est la quantité conjuguée **vis-à-vis de l'entropie stochastique** qui apparaît [127].

Annexe E

Calcul de l'intégrale du travail de la force non-conservative et d'autres intégrales du même type

On calcule explicitement dans cette section annexe le taux de travail injecté dans un nanofil en évolution Brownienne par une force non-conservative. Celui-ci est donné par l'équation 3.58 établie dans la section 3.4.4 du Chapitre 3 :

$$\begin{aligned}\langle \dot{W}^{(\mathrm{nc})} \rangle &= 2k_BT\ \mathrm{rot}^2(\mathbf{F}) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi}\ \frac{(\Gamma\Omega)^2}{|\Xi[\Omega]|^2} \\ &= 2k_BT\ (g_{12}-g_{21})^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi}\ \frac{(\Gamma\Omega)^2}{\left((\Omega_-^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)\left((\Omega_+^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)}\end{aligned}$$

car on rappelle que

$$\Xi[\Omega] \equiv M\ (\chi_{+||}[\Omega]\chi_{-||}[\Omega])^{-1}\ = M\left(\Omega_-^2-\Omega^2-i\Gamma\Omega\right)\ \left(\Omega_+^2-\Omega^2-i\Gamma\Omega\right).$$

Une intégrale utile : Ce type d'intégrale apparaît dans plusieurs calculs, on donne donc d'abord une expression de l'intégrale générique :

$$I[f] = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \frac{f(\Omega)}{\left((\Omega_-^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)\left((\Omega_+^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)} \tag{E.1}$$

où f est une fonction supposée vérifier $f(-\Omega^*) = f^*(\Omega)$ (car toutes les intégrales que l'on a eu besoin de calculer sont des fonctions polynômiales réelles de Ω^2).

L'intégrande possède 8 pôles $\pm\Omega_{p\pm}$ et $\pm\Omega_{p\pm}^*$, qui dérivent tous de $\Omega_{p\pm}$:

$$\begin{cases} \Omega_{p-} &\equiv \sqrt{\Omega_-^2-\dfrac{\Gamma^2}{4}}+i\dfrac{\Gamma}{2} \\ \Omega_{p+} &\equiv \sqrt{\Omega_+^2-\dfrac{\Gamma^2}{4}}+i\dfrac{\Gamma}{2} \end{cases}, \tag{E.2}$$

L'intégrale vaut alors :

$$I[f] = \frac{2\pi i}{2\pi} \times \sum_p \mathrm{Res}_{\,\Omega_p} \tag{E.3}$$

où p parcourt les 4 pôles de partie imaginaire positive qui sont $\Omega_{p\pm}$ et $-\Omega_{p\pm}^*$ (voir Figure E.1). L'expression des résidus est :

$$\mathrm{Res}_{\,\Omega_p} = \lim_{\Omega\to\Omega_p} \frac{(\Omega-\Omega_p)f(\Omega)}{\left((\Omega_-^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)\left((\Omega_+^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)}. \tag{E.4}$$

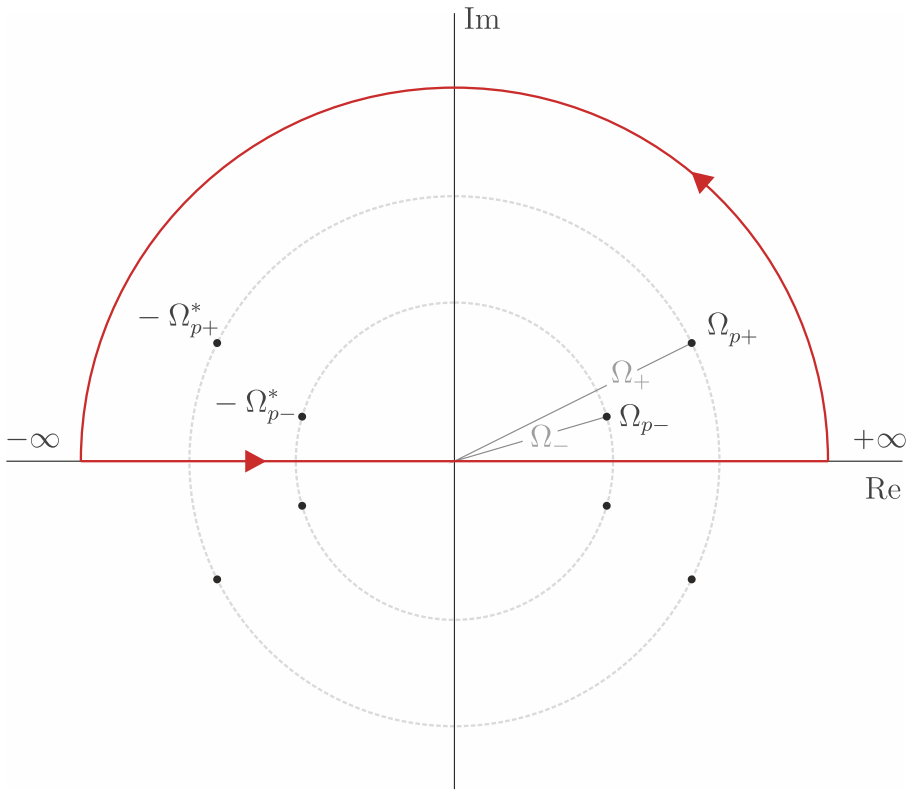


Figure E.1 – Représentation des pôles et d'un domaine d'intégration dans le plan complexe.

D'après cette expression et l'hypothèse que l'on a faite sur f, les résidus vérifient $\mathrm{Res}_{-\Omega^*_p} = -(\mathrm{Res}_{\Omega_p})^*$. Ainsi la somme sur les 4 résidus se réduit à :

$$I[f] = -2\Big(\mathrm{Im}\left(\mathrm{Res}_{\Omega_{p-}}\right) + \mathrm{Im}\left(\mathrm{Res}_{\Omega_{p+}}\right)\Big) \tag{E.5}$$

Enfin, on peut expliciter les deux résidus qui restent à calculer :

$$\mathrm{Res}_{\Omega_{p-}} = \frac{f(\Omega_{p-})}{2\Omega_{p-}\, 2i\mathrm{Im}(\Omega_{p-})2\mathrm{Re}(\Omega_{p-})\Big((\Omega_+^2 - \Omega_{p-}^2)^2 + \Gamma^2\Omega_{p-}^2\Big)}, \tag{E.6}$$

soit, puisque $2\mathrm{Im}(\Omega_{p\pm}) = \Gamma$ et $|\Omega_{p\pm}|^2 = \Omega_\pm^2$:

$$\mathrm{Res}_{\Omega_{p-}} = \frac{-i}{4\Gamma\Big(\Omega_+^2 - \Omega_-^2\Big)}\,\frac{f(\Omega_{p-})\,\Omega^*_{p-}\Big(\Omega_+^2 - \Omega_-^2 + \Gamma^2 - 2i\Gamma\mathrm{Re}(\Omega_{p-})\Big)}{\Omega_-^2\mathrm{Re}(\Omega_{p-})\Big(\left(\Omega_+^2 - \Omega_-^2\right)^2 + 2\Gamma^2(\Omega_+^2 + \Omega_-^2)\Big)}. \tag{E.7}$$

Le résidu associé à l'autre pôle est obtenu en échangeant $+$ et $-$, ce qui change notamment le signe du premier facteur $\Big(\Omega_+^2 - \Omega_-^2\Big)$. Ainsi,

$$\begin{aligned} I[f] = {} & \frac{1}{2\Gamma(\Omega_+^2 - \Omega_-^2)\Big(\left(\Omega_+^2 - \Omega_-^2\right)^2 + 2\Gamma^2(\Omega_+^2 + \Omega_-^2)\Big)} \\ & \times\left(\frac{\mathrm{Re}\left[f(\Omega_{p-})\Omega^*_{p-}\left(\Omega_+^2 - \Omega_-^2 + \Gamma^2 - 2i\Gamma\mathrm{Re}(\Omega_{p-})\right)\right]}{\Omega_-^2\mathrm{Re}(\Omega_{p-})} - \frac{\mathrm{Re}\left[f(\Omega_{p+})\Omega^*_{p+}\left(\Omega_-^2 - \Omega_+^2 + \Gamma^2 - 2i\Gamma\mathrm{Re}(\Omega_{p+})\right)\right]}{\Omega_+^2\mathrm{Re}(\Omega_{p+})}\right) \end{aligned} \tag{E.8}$$

Le numérateur de chaque terme se décompose en :

$$\mathrm{Re}\,[f(\Omega_{p-})]\,\mathrm{Re}\,(\Omega_{p-})\,(\Omega_+^2-\Omega_-^2)\;+\;\mathrm{Im}\,[f(\Omega_{p-})]\,\frac{\Gamma(\Omega_+^2+3\Omega_-^2)}{2} \tag{E.9}$$

Finalement :

$$I[f]=\frac{1}{2\Gamma\Big(\left(\Omega_+^2-\Omega_-^2\right)^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)\Big)}\left(\frac{\mathrm{Re}\,[f(\Omega_{p-})]}{\Omega_-^2}+\frac{\mathrm{Im}\,[f(\Omega_{p-})]\,\Gamma(\Omega_+^2+3\Omega_-^2)}{2\Omega_-^2\sqrt{\Omega_-^2-\Gamma/4}(\Omega_+^2-\Omega_-^2)}\right.$$
$$\left.+\frac{\mathrm{Re}\,[f(\Omega_{p+})]}{\Omega_+^2}+\frac{\mathrm{Im}\,[f(\Omega_{p+})]\,\Gamma(\Omega_-^2+3\Omega_+^2)}{2\Omega_+^2\sqrt{\Omega_+^2-\Gamma/4}(\Omega_-^2-\Omega_+^2)}\right) \tag{E.10}$$

Retour au calcul du travail : Le taux de travail de la force non-conservative est :

$$\langle\dot{W}^{(\mathrm{nc})}\rangle=2k_BT\,(g_{12}-g_{21})\,I[f] \tag{E.11}$$

avec $f(\Omega)=\Gamma^2\Omega^2$ qui vérifie bien la condition $f(-\Omega^*)=f^*(\Omega)$. On calcule $\mathrm{Re}[f(\Omega_{p\pm})]=\Gamma^2(\Omega_\pm^2-\Gamma^2/2)$ et $\mathrm{Im}[f(\Omega_{p\pm})]=\Gamma^3\sqrt{\Omega_\pm^2-\Gamma^2/4}$. D'après l'équation E.10, le taux de travail s'écrit alors explicitement :

$$\boxed{\langle\dot{W}^{(\mathrm{nc})}\rangle=\frac{\Gamma k_BT\,(g_{12}-g_{21})^2}{\Big(\left(\Omega_+^2-\Omega_-^2\right)^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)\Big)}\left(2-\frac{\Gamma^2}{2(\Omega_-^2+\Omega_+^2)}+\frac{\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}{2\Omega_+^2\Omega_-^2}\right).} \tag{E.12}$$

Calcul des variances de la distribution de probabilité

Dans le paragraphe 3.5.1, on souhaite calculer les variances en position et en vitesse :

$$\Delta r_\beta^2=\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,S_{\delta r_\beta}[\Omega]=\cos^2\beta\,\Delta r_{cc}^2+\sin^2\beta\,\Delta r_{ss}^2+2\cos\beta\sin\beta\,\Delta r_{cs}^2 \tag{E.13}$$

et

$$\Delta v_\beta^2=\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,\Omega^2S_{\delta r_\beta}[\Omega]=\cos^2\beta\,\Delta v_{cc}^2+\sin^2\beta\,\Delta v_{ss}^2+2\cos\beta\sin\beta\,\Delta v_{cs}^2. \tag{E.14}$$

Il s'agit donc de calculer les coefficients $\Delta r_\#^2$ et $\Delta v_\#^2$ indépendants de β. D'après le développement modal, les coefficients en question sont :

$$\Delta r_\#^2=\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,\frac{f_\#(\Omega)}{\left((\Omega_-^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)\left((\Omega_+^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)}, \tag{E.15}$$

et pour les variances en vitesse :

$$\Delta v_\#^2=\int_{-\infty}^{\infty}\frac{d\Omega}{2\pi}\,\frac{\Omega^2f_\#(\Omega)}{\left((\Omega_-^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)\left((\Omega_+^2-\Omega^2)^2+\Gamma^2\Omega^2\right)} \tag{E.16}$$

avec

$$\begin{cases} f_{cc}(\Omega) &= \frac{2\Gamma k_BT}{M}\Big((\Omega_{2||}^2-\Omega^2)^2+\Omega^2\Gamma^2+g_{21}^2\Big)\\ f_{ss}(\Omega) &= \frac{2\Gamma k_BT}{M}\Big((\Omega_{1||}^2-\Omega^2)^2+\Omega^2\Gamma^2+g_{12}^2\Big)\\ f_{cs}(\Omega) &= \frac{2\Gamma k_BT}{M}\Big(g_{12}(\Omega_{2||}^2-\Omega^2)+g_{21}(\Omega_{1||}^2-\Omega^2)\Big). \end{cases} \tag{E.17}$$

Ces intégrales sont du même type que celle du travail de la force non-conservative. Après calculs, en utilisant l'expression E.10, on obtient les coefficients suivant :

$$\begin{cases} \Delta r_{cc}^2 &= \dfrac{k_BT/M}{\Omega_+^2-\Omega_-^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\dfrac{\left(\Omega_{2||}^4+\Omega_+^2\Omega_-^2+g_{21}^2\right)\left(\Omega_+^2+\Omega_-^2+2\Gamma^2\right)-4\Omega_{2||}^2\Omega_+^2\Omega_-^2}{\Omega_+^2\Omega_-^2} \\ \Delta r_{ss}^2 &= \dfrac{k_BT/M}{\Omega_+^2-\Omega_-^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\dfrac{\left(\Omega_{1||}^4+\Omega_+^2\Omega_-^2+g_{12}^2\right)\left(\Omega_+^2+\Omega_-^2+2\Gamma^2\right)-4\Omega_{1||}^2\Omega_+^2\Omega_-^2}{\Omega_+^2\Omega_-^2} \\ \Delta r_{cs}^2 &= \dfrac{k_BT/M}{\Omega_+^2-\Omega_-^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\dfrac{\left(g_{12}\Omega_{2||}^2+g_{21}\Omega_{1||}^2\right)\left(\Omega_+^2+\Omega_-^2+2\Gamma^2\right)-2\Omega_+^2\Omega_-^2(g_{12}+g_{21})}{\Omega_+^2\Omega_-^2} \end{cases} \tag{E.18}$$

et

$$\begin{cases} \Delta v_{cc}^2 &= \dfrac{k_BT}{M}\left(1-\dfrac{2g_{21}(g_{12}-g_{21})}{\Omega_+^2-\Omega_-^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\right) \\ \Delta v_{ss}^2 &= \dfrac{k_BT}{M}\left(1+\dfrac{2g_{12}(g_{12}-g_{21})}{\Omega_+^2-\Omega_-^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}\right) \\ \Delta v_{cs}^2 &= \dfrac{k_BT}{M}\dfrac{(g_{12}-g_{21}\left(\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2\right)}{\Omega_+^2-\Omega_-^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)}. \end{cases} \tag{E.19}$$

Les variances sont extrémales pour certaines valeurs des angles $\beta_{r,\text{extr}}$ et $\beta_{v,\text{extr}}$ dont on peut montrer qu'elles vérifient :

$$\tan 2\beta_{r,\text{extr}} = \frac{2\Delta r_{cs}^2}{\Delta r_{cc}^2-\Delta r_{ss}^2}, \qquad \tan 2\beta_{v,\text{extr}} = \frac{2\Delta v_{cs}^2}{\Delta v_{cc}^2-\Delta v_{ss}^2}, \tag{E.20}$$

soit :

$$\tan 2\beta_{r,\text{extr}} = 2\frac{\left((\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)\right)+(g_{12}-g_{21})\left((\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2-2\Gamma^2)\Omega_{1||}^2-2g_{12}g_{21}\right)}{(\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2)\left((\Omega_+^2-\Omega_-^2)^2+2\Gamma^2(\Omega_+^2+\Omega_-^2)\right)-(g_{12}-g_{21})(g_{12}+g_{21})(\Omega_+^2+\Omega_-^2+2\Gamma^2)} \tag{E.21}$$

et

$$\tan 2\beta_{v,\text{extr}} = -\frac{\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2}{g_{12}+g_{21}}. \tag{E.22}$$

Notons qu'en champ de force conservatif $g_{12}=g_{21}$, la première expression se réduit à :

$$\tan 2\beta_{r,\text{extr}} = \frac{2g_{12}}{\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2} = \tan 2\theta_-, \tag{E.23}$$

c'est-à-dire que les directions extrémales sont alignées avec les modes propres. On retrouve donc la distribution conventionnelle en position dont l'isotropie n'est que légèrement brisée par la différence des fréquences entre modes propres, qui rend la variance thermique du mode basse fréquence $\frac{k_BT}{M_{\text{eff}}\Omega_-^2}$ plus élevée que celle du mode haute fréquence $\frac{k_BT}{M_{\text{eff}}\Omega_+^2}$).

Annexe F

Solution explicite de l'équation de Fokker-Planck

On donne ici l'expression complète de la solution de l'équation de Fokker-Planck stationnaire posée dans la section 3.5.1 du Chapitre 3 :

$$-B_{ik}\,\partial_{x_i}\Big(x_k\,p_{\rm st}(\mathbf{x},t)\Big)+\frac{D_{ij}}{2}\,\partial^2_{x_ix_j}p_{\rm st}(\mathbf{x},t)=0. \tag{F.1}$$

avec les définitions suivantes :

$$\mathbf{B}=\begin{pmatrix}0&0&1&0\\0&0&0&1\\-\Omega^2_{1||}&g_{21}&-\Gamma&0\\g_{12}&-\Omega^2_{2||}&0&-\Gamma\end{pmatrix}\quad\text{et}\quad\mathbf{D}=\frac{2\Gamma k_BT}{M_{\rm eff}}\begin{pmatrix}0&0&0&0\\0&0&0&0\\0&0&1&0\\0&0&0&1\end{pmatrix}. \tag{F.2}$$

La solution est gaussienne de la forme :

$$p_{\rm st}(\mathbf{x})\propto\exp\Big[-\sum_{i,j}A_{ij}\,x_i\,x_j\Big],\quad\mathbf{A}\equiv\frac{1}{2}\begin{pmatrix}2a_{r_1r_1}&a_{r_1r_2}&a_{r_1v_1}&a_{r_1v_2}\\a_{r_1r_2}&2a_{r_2r_2}&a_{r_2v_1}&a_{r_2v_2}\\a_{r_1v_1}&a_{r_2v_1}&2a_{v_1v_1}&a_{v_1v_2}\\a_{r_1v_2}&a_{r_2v_2}&a_{v_1v_2}&2a_{v_2v_2}\end{pmatrix} \tag{F.3}$$

avec les coefficients suivants :

$$\begin{aligned}a_{r_1r_1}\;=\;&K\Bigg\{\Omega^2_{1||}\left[2\Gamma^2\left(\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)^2\right]^2-\Gamma^2\,(g_{12}+g_{21})\,(g_{12}-g_{21})^3\\&-\tfrac{1}{2}\left(g_{12}^2-g_{21}^2\right)\left(2\Gamma^2+\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)\left[2\Gamma^2\left(\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)^2\right]\\&+\tfrac{1}{2}\,(g_{12}-g_{21})^2\Bigg[4\Gamma^4\left(\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)+4\Gamma^2\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)^2\\&\qquad+(g_{12}+g_{21})^2\left(4\Gamma^2-\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)-\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)^3\Bigg]\Bigg\}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}a_{r_1r_2}\;=\;&K\Bigg\{-(g_{12}+g_{21})\left[2\Gamma^2\left(\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)^2\right]^2\\&-2\Gamma^2\,(g_{12}-g_{21})^3\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)+(g_{12}+g_{21})\,(g_{12}-g_{21})^2\left[(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)^2\right]\\&-(g_{12}-g_{21})\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)\left(2\Gamma^2+\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)\\&\qquad\times\left[2\Gamma^2\left(\Omega^2_{1||}+\Omega^2_{2||}\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega^2_{1||}-\Omega^2_{2||}\right)^2\right]\Bigg\}\end{aligned}$$

$$
\begin{aligned}
a_{v_1v_1} &= K\Bigg\{ \left[2\Gamma^2\left(\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)^2\right]^2 \\
&\quad -\left(g_{12}^2-g_{21}^2\right)\left[2\Gamma^2\left(\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)^2\right] \\
&\quad +2\Gamma^2(g_{12}-g_{21})^2\left(2\Gamma^2-\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)\Bigg\} \\
a_{v_1v_2} &= K\Bigg\{2(g_{12}-g_{21})\Bigg[2\Gamma^2\left(g_{12}^2-g_{21}^2\right) \\
&\quad +\left(\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2\right)\left[2\Gamma^2\left(\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)^2\right]\Bigg]\Bigg\} \\
a_{r_1v_1} &= K\Bigg\{4\Gamma(g_{12}-g_{21})\left[2\Gamma^2\left(g_{12}\Omega_{1||}^2+g_{21}\Omega_{2||}^2\right)+g_{21}(g_{12}+g_{21})^2\right]\Bigg\} \\
a_{r_1v_2} &= K\Bigg\{4\Gamma(g_{12}-g_{21})\Omega_{1||}^2\left[2\Gamma^2\left(\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)^2\right] \\
&\quad -8\Gamma^2 g_{21}(g_{12}-g_{21})^2\Bigg\}.
\end{aligned}
$$

avec $K \equiv \dfrac{M_{\text{eff}}/2k_BT}{4\Gamma^4(g_{12}-g_{21})^2+\left[2\Gamma^2\left(\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)+(g_{12}+g_{21})^2+\left(\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)^2\right]^2}$.

Les quatre derniers coefficients ($a_{r_2r_2}$, $a_{v_2v_2}$, $a_{r_2v_2}$ et $a_{r_2v_1}$) sont obtenus en échangeant 1 et 2 dans les expressions données.

Cas des grands facteurs de qualité : Dans le cas d'un grand facteur de qualité, la matrice est diagonale par blocs (voir équation 3.74) et les coefficients restants sont relativement simples :

$$
\begin{cases}
a_{r_1r_1} = K\left[\left(\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)g_{21}^2+g_{12}g_{21}\left(3\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)+\left(\Omega_{1||}^3-\Omega_{1||}\Omega_{2||}^2\right)^2\right] \\
a_{r_2r_2} = K\left[\left(\Omega_{1||}^2+\Omega_{2||}^2\right)g_{12}^2+g_{12}g_{21}\left(3\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2\right)+\left(\Omega_{2||}^3-\Omega_{1||}^2\Omega_{2||}\right)^2\right] \\
a_{r_1r_2} = K\left[-2g_{21}\Omega_{2||}^4-2g_{12}\Omega_{1||}^4+2(g_{12}+g_{21})\Omega_{1||}^2\Omega_{2||}^2-4g_{12}g_{21}(g_{12}+g_{21})\right] \\
a_{v_1v_1} = K\left[\left(\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)^2+2g_{21}(g_{12}+g_{21})\right] \\
a_{v_2v_2} = K\left[\left(\Omega_{1||}^2-\Omega_{2||}^2\right)^2+2g_{12}(g_{12}+g_{21})\right] \\
a_{v_1v_2} = K\left[2(g_{12}-g_{21})\left(\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2\right)\right]
\end{cases}
\tag{F.4}
$$

avec $K \equiv \dfrac{M_{\text{eff}}/2k_BT}{(g_{12}+g_{21})^2+(\Omega_{2||}^2-\Omega_{1||}^2)^2}$.

Annexe G

Algorithme de Itō-Taylor d'ordre fort 1.5 pour les processus stochastiques à dissipation constante

Il s'agit de simuler des trajectoires gouvernées par l'équation d'évolution :

$$d\mathbf{X}_t = \boldsymbol{\mu}(\mathbf{X}, t)dt + \boldsymbol{\sigma} \cdot d\mathbf{W}_t \tag{G.1}$$

où $d\mathbf{W}_t$ est un incrément du processus de Wiener multidimensionnel $\mathbf{W}(t)$. L'approximation suivante est obtenue en tronquant un développement en série de Itō-Taylor :

$$\begin{aligned}\mathbf{x}(t+\Delta t) \simeq\ & \mathbf{x}(t) + \boldsymbol{\mu}\big(\mathbf{x}(t), t\big)\Delta t + \boldsymbol{\sigma} \cdot \Big(\mathbf{W}(t+\Delta t) - \mathbf{W}(t)\Big) \\ & + \frac{(\Delta t)^2}{2}\left[\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial t}\big(\mathbf{x}(t), t\big) + \sum_i \mu_i\big(\mathbf{x}(t), t\big)\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial x_i}\big(\mathbf{x}(t), t\big) + \frac{1}{2}\sum_{i,j}\frac{\partial^2 \boldsymbol{\mu}}{\partial x_i \partial x_j}\big(\mathbf{x}(t), t\big)\big(\boldsymbol{\sigma} \cdot {}^t\boldsymbol{\sigma}\big)_{ij}\right] \\ & + \sum_{i,j}\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial x_i}\big(\mathbf{x}(t), t\big)\sigma_{ij}\int_t^{t+\Delta t}\Big[W_j(\tau) - W_j(t)\Big]d\tau.\end{aligned} \tag{G.2}$$

Un algorithme de Runge-Kutta dérivé, de même ordre fort, est souvent préféré à celui-ci [184] car il ne nécessite pas le calcul des dérivées de la fonction de dérive $\boldsymbol{\mu}$. Dans notre cas cependant, la dérive est constante vis-à-vis du temps et linéaire vis-à-vis de la position, ses dérivées sont donc très faciles à calculer. L'incrément stochastique $\Big(\mathbf{W}(t+\Delta t) - \mathbf{W}(t)\Big)$ et son intégrale $\int_t^{t+\Delta t}\Big[\mathbf{W}(\tau) - \mathbf{W}(t)\Big]d\tau$ sont des processus stochastiques gaussiens et corrélés dont la distribution de probabilité jointe est connue [184]. Elles sont simulées par des tableaux de tirages de variables aléatoires suivant cette loi de probabilité :

$$\begin{pmatrix}\Delta W_i[n] \\ \Delta \xi_i[n]\end{pmatrix} = \mathcal{N}\left(0, \begin{pmatrix}\Delta t & (\Delta t)^2/2 \\ (\Delta t)^2/2 & (\Delta t)^3/3\end{pmatrix}\right), \tag{G.3}$$

pour chaque dimension i, où $\Delta W_i[n]$ représente les tirages de l'incrément et $\Delta\xi_i[n]$ les tirages de son intégrale. Une itération aux temps $t_n = n\,\Delta t$ d'une version algorithmique du développement de Itō-Taylor précédent, à partir d'une position $\mathbf{x}[0] = \mathbf{x}_0$ donnée, approche donc une trajectoire avec une convergence forte d'ordre 1.5 :

$$\begin{aligned}\mathbf{x}[n+1] =\ & \mathbf{x}[n] + \boldsymbol{\mu}(x[n], t_n)\Delta t + \boldsymbol{\sigma} \cdot \Delta\mathbf{W}[n] \\ & + \frac{(\Delta t)^2}{2}\left[\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial t}(x[n], t_n) + \sum_i \mu_i\big(x[n], t_n\big)\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial x_i}(x[n], t_n) + \frac{1}{2}\sum_{i,j}\big(\boldsymbol{\sigma} \cdot {}^t\boldsymbol{\sigma}\big)_{ij}\frac{\partial^2 \boldsymbol{\mu}}{\partial x_i \partial x_j}(x[n], t_n)\right] \\ & + \sum_{i,j}\frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial x_i}(x[n], t_n)\,\sigma_{ij}\,\Delta\xi_j[n].\end{aligned} \tag{G.4}$$

Notons que l'avant-dernier terme est nul dans le cas d'une dérive linéaire.

Bibliographie

[1] C.-A. Coulomb, "Premier Mémoire sur l'électricité et le magnétisme", *Histoire de l'Académie Royale des Sciences* 569–577 (1788). (page 14)

[2] H. Cavendish, "Experiments to Determine the Density of the Earth. By Henry Cavendish, Esq. F. R. S. and A. S.", *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* **88**, 469–526 (1798). (page 14)

[3] R. v. Eötvös, D. Pekár, E. Fekete, "Beiträge zum Gesetze der Proportionalität von Trägheit und Gravität", *Annalen der Physik (Leipzig)* **68**, 11–66 (1922). (page 15)

[4] E. F. Nichols, G. F. Hull, "A preliminary communication on the pressure of heat and light radiation", *Physical Review (Series I)* **13**, 307–320 (1901). (page 15)

[5] G. Binnig, C. Quate, C. Gerber, "Atomic Force Microscope", *Physical Review Letters* **56**, 930–933 (1986). (pages 15 et 16)

[6] L. Gross, F. Mohn, N. Moll, P. Liljeroth, G. Meyer, "The Chemical Structure of a Molecule Resolved by Atomic Force Microscopy", *Science* **325**, 1110–1114 (2009). (page 16)

[7] S. Carpentier, M. S. Rodrigues, M. V. Vitorino, L. Costa, E. Charlaix, J. Chevrier, "Out of equilibrium anomalous elastic response of a water nano-meniscus", *Applied Physics Letters* **107**, 204101 (2015). (page 16)

[8] D. Rugar, R. Budakian, H. J. Mamin, B. W. Chui, "Single spin detection by magnetic resonance force microscopy", *Nature* **430**, 329–332 (2004). (pages 16 et 28)

[9] J. A. Sidles, "Folded Stern-Gerlach experiment as a means for detecting nuclear magnetic resonance in individual nuclei", *Physical Review Letters* **68**, 1124–1127 (1992). (page 16)

[10] H. G. Craighead, "Nanoelectromechanical systems", *Science* **290**, 1532–1535 (2000). (page 17)

[11] Y. T. Yang, K. L. Ekinci, X. M. H. Huang, L. M. Schiavone, M. L. Roukes, C. A. Zorman, M. Mehregany, "Monocrystalline silicon carbide nanoelectromechanical systems", *Applied Physics Letters* **78**, 162–164 (2001). (page 17)

[12] M. D. LaHaye, O. Buu, B. Camarota, K. C. Schwab, "Approaching the Quantum Limit of a Nanomechanical Resonator", *Science* **304**, 74–77 (2004). (page 17)

[13] P. S. Waggoner, H. G. Craighead, "Micro- and nanomechanical sensors for environmental, chemical, and biological detection", *Lab on a Chip* **7**, 1238–1255 (2007). (page 17)

[14] A. K. Naik, M. S. Hanay, W. K. Hiebert, X. L. Feng, M. L. Roukes, "Towards single-molecule nanomechanical mass spectrometry.", *Nature nanotechnology* **4**, 445–450 (2009). (page 17)

[15] J. Chaste, A. Eichler, J. Moser, G. Ceballos, R. Rurali, A. Bachtold, "A nanomechanical mass sensor with yoctogram resolution", *Nature Nanotechnology* **7**, 301–304 (2012). (page 17)

[16] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes* (EDP Sciences - CNRS Editions, 2001), Paris. (page 17)

[17] H. B. Callen, T. A. Welton, "Irreversibility and generalized noise", *Physical Review* **83**, 34–40 (1951). (pages 19 et 123)

[18] M. C. Wang, G. E. Uhlenbeck, "On the Theory of the Brownian Motion II", *Reviews of Modern Physics* **17**, 323–342 (1945). (pages 19, 137, et 184)

[19] C. M. Caves, "Quantum-Mechanical Radiation-Pressure Fluctuations in an Interferometer", *Physical Review Letters* **45**, 75 (1980). (page 20)

[20] A. Naik, O. Buu, M. D. LaHaye, A. D. Armour, A. A. Clerk, M. P. Blencowe, K. C. Schwab, "Cooling a nanomechanical resonator with quantum back-action.", *Nature* **443**, 193–196 (2006). (page 21)

[21] O. Arcizet, P.-F. Cohadon, T. Briant, M. Pinard, A. Heidmann, "Radiation-pressure cooling and optomechanical instability of a micromirror.", *Nature* **444**, 71–74 (2006). (page 21)

[22] A. Schliesser, R. Rivière, G. Anetsberger, O. Arcizet, T. J. Kippenberg, "Resolved-sideband cooling of a micromechanical oscillator", *Nature Physics* **4**, 415–420 (2008). (page 21)

[23] P. F. Cohadon, A. Heidmann, M. Pinard, "Cooling of a mirror by radiation pressure", *Physical Review Letters* **83**, 3174–3177 (1999). (page 20)

[24] J. M. Courty, A. Heidmann, M. Pinard, "Quantum limits of cold damping with optomechanical coupling", *European Physical Journal D* **17**, 399–408 (2001). (page 21)

[25] C. H. Metzger, K. Karrai, "Cavity cooling of a microlever.", *Nature* **432**, 1002–1005 (2004). (page 21)

[26] S. Gigan, H. R. Böhm, M. Paternostro, F. Blaser, G. Langer, J. B. Hertzberg, K. Schwab, D. Bäuerle, M. Aspelmeyer, A. Zeilinger, "Self-cooling of a micro-mirror by radiation pressure", *Nature* **444**, 67–70 (2006). (page 21)

[27] R. W. Peterson, T. P. Purdy, N. S. Kampel, R. W. Andrews, P. L. Yu, K. W. Lehnert, C. A. Regal, "Laser Cooling of a Micromechanical Membrane to the Quantum Backaction Limit", *Physical Review Letters* **116**, 063601 (2016). (page 21)

[28] T. P. Purdy, R. W. Peterson, C. A. Regal, "Observation of Radiation Pressure Shot Noise on a Macroscopic Object", *Science* **339**, 801–804 (2013). (page 22)

[29] V. B. Braginsky, A. Manukin, D. H. E. Douglass, *Measurement of weak forces in Physics experiments* (University of Chicago, Chicago, 1977). (page 22)

[30] A. D. O'Connell, M. Hofheinz, M. Ansmann, R. C. Bialczak, M. Lenander, E. Lucero, M. Neeley, D. Sank, H. Wang, M. Weides, J. Wenner, J. M. Martinis, A. N. Cleland, "Quantum ground state and single-phonon control of a mechanical resonator.", *Nature* **464**, 697–703 (2010). (pages 22, 23, 153, et 187)

[31] J. D. Teufel, T. Donner, D. Li, J. W. Harlow, M. S. Allman, K. Cicak, A. J. Sirois, J. D. Whittaker, K. W. Lehnert, R. W. Simmonds, "Sideband cooling of micromechanical motion to the quantum ground state.", *Nature* **475**, 359–363 (2011). (page 22)

[32] J. Chan, T. P. M. Alegre, A. H. Safavi-Naeini, J. T. Hill, A. Krause, S. Groeblacher, M. Aspelmeyer, O. Painter, "Laser cooling of a nanomechanical oscillator into its quantum ground state", *Nature* **478**, 89–92 (2011). (page 22)

[33] R. Rivière, S. Deléglise, S. Weis, E. Gavartin, O. Arcizet, A. Schliesser, T. J. Kippenberg, "Optomechanical sideband cooling of a micromechanical oscillator close to the quantum ground state", *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **83**, 063835 (2011). (page 22)

[34] J. M. Pirkkalainen, E. Damskägg, M. Brandt, F. Massel, M. A. Sillanpää, "Squeezing of Quantum Noise of Motion in a Micromechanical Resonator", *Physical Review Letters* **115**, 243601 (2015). (pages 23 et 148)

[35] F. Lecocq, J. D. Teufel, J. Aumentado, R. W. Simmonds, "Resolving the vacuum fluctuations of an optomechanical system using an artificial atom", *Nature Physics* **11**, 635–639 (2015). (pages 23 et 148)

[36] E. E. Wollman, C. U. Lei, A. J. Weinstein, J. Suh, A. Kronwald, F. Marquardt, A. A. Clerk, K. C. Schwab, "Quantum squeezing of motion in a mechanical resonator", *Science* **349**, 952–955 (2015). (pages 23 et 148)

[37] B. P. Abbott, *et al.*, "Observation of gravitational waves from a binary black hole merger", *Physical Review Letters* **116**, 061102 (2016). (pages 23 et 24)

[38] J. Aasi, *et al.*, "Enhanced sensitivity of the LIGO gravitational wave detector by using squeezed states of light", *Nature Photonics* **7**, 613–619 (2013). (page 24)

[39] S. Chelkowski, H. Vahlbruch, B. Hage, A. Franzen, N. Lastzka, K. Danzmann, R. Schnabel, "Experimental characterization of frequency-dependent squeezed light", *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **71**, 013806 (2005). (page 24)

[40] S. Hembacher, "Force Microscopy with Light-Atom Probes", *Science* **305**, 380–383 (2004). (page 24)

[41] R. Garcia, E. T. Herruzo, "The emergence of multifrequency force microscopy", *Nature Nanotechnology* **7**, 217–226 (2012). (page 25)

[42] E. Gil-Santos, D. Ramos, J. Martínez, M. Fernández-Regúlez, R. García, A. San Paulo, M. Calleja, J. Tamayo, "Nanomechanical mass sensing and stiffness spectrometry based on two-dimensional vibrations of resonant nanowires.", *Nature Nanotechnology* **5**, 641–645 (2010). (page 25)

[43] T. Antoni, K. Makles, R. Braive, T. Briant, P.-F. Cohadon, I. Sagnes, I. Robert-Philip, A. Heidmann, "Nonlinear mechanics with suspended nanomembranes", *EPL (Europhysics Letters)* **100**, 68005 (2012). (page 25)

[44] W. G. Conley, A. Raman, C. M. Krousgrill, S. Mohammadi, "Nonlinear and nonplanar dynamics of suspended nanotube and nanowire resonators", *Nano Letters* **8**, 1590–1595 (2008). (page 25)

[45] A. Eichler, M. Del Alamo Ruiz, J. A. Plaza, A. Bachtold, "Strong coupling between mechanical modes in a nanotube resonator", *Physical Review Letters* **109**, 025503 (2012). (page 25)

[46] H. J. R. Westra, M. Poot, H. S. J. Van Der Zant, W. J. Venstra, "Nonlinear modal interactions in clamped-clamped mechanical resonators", *Physical Review Letters* **105**, 117205 (2010). (page 25)

[47] I. Mahboob, K. Nishiguchi, H. Okamoto, H. Yamaguchi, "Phonon-cavity electromechanics", *Nature Physics* **8**, 387–392 (2012). (page 25)

[48] M. H. Matheny, L. G. Villanueva, R. B. Karabalin, J. E. Sader, M. L. Roukes, "Nonlinear mode-coupling in nanomechanical systems", *Nano Letters* **13**, 1622–1626 (2013). (page 25)

[49] Y. Zhang, M. I. Dykman, "Spectral effects of dispersive mode coupling in driven mesoscopic systems", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **92**, 165419 (2015). (page 25)

[50] P. N. Kambali, A. K. Pandey, "Nonlinear coupling of transverse modes of a fixed-fixed microbeam under direct and parametric excitation", *Nonlinear Dynamics* **87**, 1271–1294 (2017). (page 25)

[51] D. Cadeddu, F. R. Braakman, G. Tütüncüoglu, F. Matteini, D. Rüffer, A. Fontcuberta I Morral, M. Poggio, "Time-Resolved Nonlinear Coupling between Orthogonal Flexural Modes of a Pristine GaAs Nanowire", *Nano Letters* **16**, 926–931 (2016). (page 25)

[52] T. Faust, J. Rieger, M. J. Seitner, J. P. Kotthaus, E. M. Weig, "Coherent control of a classical nanomechanical two-level system", *Nature Physics* **9**, 485–488 (2013). (pages 25 et 86)

[53] A. Gloppe, P. Verlot, E. Dupont-Ferrier, A. G. Kuhn, A. Siria, P. Poncharal, G. Bachelier, P. Vincent, O. Arcizet, "Bidimensional nano-optomechanics and topological backaction in a non-conservative radiation force field", *Nature Nanotechnology* **9**, 73–74 (2014). (pages 25, 29, 104, et 106)

[54] N. Rossi, F. R. Braakman, D. Cadeddu, D. Vasyukov, G. Tütüncüoglu, A. Fontcuberta i Morral, M. Poggio, "Vectorial scanning force microscopy using a nanowire sensor", *Nature Nanotechnology* **12**, 150–155 (2017). (pages 25 et 26)

[55] T. Faust, J. Rieger, M. J. Seitner, P. Krenn, J. P. Kotthaus, E. M. Weig, "Nonadiabatic dynamics of two strongly coupled nanomechanical resonator modes", *Physical Review Letters* **109**, 037205 (2012). (pages 25 et 86)

[56] M. J. Seitner, H. Ribeiro, J. Kölbl, T. Faust, J. P. Kotthaus, E. M. Weig, "Classical Stückelberg interferometry of a nanomechanical two-mode system at room temperature", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **94**, 245406 (2016). (pages 25 et 86)

[57] Q. Lin, J. Rosenberg, D. Chang, R. Camacho, M. Eichenfield, K. J. Vahala, O. Painter, "Coherent mixing of mechanical excitations in nano-optomechanical structures", *Nature Photonics* **4**, 236–242 (2010). (page 26)

[58] C. Schwarz, B. Pigeau, L. Mercier de Lépinay, A. Kuhn, D. Kalita, N. Bendiab, L. Marty, V. Bouchiat, O. Arcizet, "Deviation from the normal mode expansion in a coupled graphene-nanomechanical system", *Physical Review Applied* **6**, 064021 (2016). (pages 26 et 118)

[59] A. B. Shkarin, N. E. Flowers-Jacobs, S. W. Hoch, A. D. Kashkanova, C. Deutsch, J. Reichel, J. G. E. Harris, "Optically mediated hybridization between two mechanical modes", *Physical Review Letters* **112**, 013602 (2014). (pages 26 et 104)

[60] M. Zhang, G. S. Wiederhecker, S. Manipatruni, A. Barnard, P. McEuen, M. Lipson, "Synchronization of micromechanical oscillators using light", *Physical Review Letters* **109**, 233906 (2012). (page 26)

[61] I. Mahboob, H. Okamoto, H. Yamaguchi, "Two-mode squeezing in an electromechanical resonator", *Physical Review Letters* **113**, 167203 (2014). (pages 27 et 148)

[62] F. Massel, S. U. Cho, J.-M. Pirkkalainen, P. J. Hakonen, T. T. Heikkilä, M. A. Sillanpää, "Multimode circuit optomechanics near the quantum limit", *Nature Communications* **3**, 987 (2012). (page 27)

[63] H. Xu, D. Mason, L. Jiang, J. G. E. Harris, "Topological energy transfer in an optomechanical system with exceptional points", *Nature* **537**, 80–83 (2016). (pages 27 et 104)

[64] K. Fang, J. Luo, A. Metelmann, M. H. Matheny, F. Marquardt, A. A. Clerk, O. Painter, "Generalized nonreciprocity in an optomechanical circuit via synthetic magnetism and reservoir engineering", *Nature Physics* **13**, 465–471 (2017). (page 27)

[65] T. Caniard, *Couplage optomécanique, action en retour et limites quantiques dans les mesures ultrasensibles*, Thèse de doctorat (2007). (page 27)

[66] A. Szorkovszky, A. A. Clerk, A. C. Doherty, W. P. Bowen, "Mechanical entanglement via detuned parametric amplification", *New Journal of Physics* **16**, 063043 (2014). (page 27)

[67] A. Pontin, M. Bonaldi, A. Borrielli, L. Marconi, F. Marino, G. Pandraud, G. A. Prodi, P. M. Sarro, E. Serra, F. Marin, "Dynamical Two-Mode Squeezing of Thermal Fluctuations in a Cavity Optomechanical System", *Physical Review Letters* **116**, 103601 (2016). (pages 27 et 148)

[68] M. Bechelany, *Nouveau procédé de croissance de nanofils de à base de SiC et de nanotubes de BN, Etude des propriétés physiques d'un nanofil individuel à base de SiC*, Thèse de doctorat (2006). (pages 28 et 30)

[69] V. Cimalla, J. Pezoldt, O. Ambacher, "Group III nitride and SiC based MEMS and NEMS : materials properties, technology and applications", *Journal of Physics D: Applied Physics* **40**, 6386–6434 (2007). (page 28)

[70] S. Perisanu, V. Gouttenoire, P. Vincent, A. Ayari, M. Choueib, M. Bechelany, D. Cornu, S. T. Purcell, "Mechanical properties of SiC nanowires determined by scanning electron and field emission microscopies", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **77**, 165434 (2008). (page 28)

[71] O. Arcizet, V. Jacques, a. Siria, P. Poncharal, P. Vincent, S. Seidelin, "A single nitrogen-vacancy defect coupled to a nanomechanical oscillator", *Nature Physics* **7**, 879–883 (2011). (pages 28, 154, 188, et 190)

[72] S. Rohr, *Hybrid spin-nanomechanical systems in parametric interaction*, Thèse de doctorat (2014). (pages 28, 188, 190, 199, 201, 215, 217, 219, et 222)

[73] S. Rohr, E. Dupont-Ferrier, B. Pigeau, P. Verlot, V. Jacques, O. Arcizet, "Synchronizing the dynamics of a single nitrogen vacancy spin qubit on a parametrically coupled radio-

frequency field through microwave dressing", *Physical Review Letters* **112**, 010502 (2014). (pages 28, 189, 190, 217, et 219)

[74] B. Pigeau, S. Rohr, L. Mercier de Lépinay, A. Gloppe, V. Jacques, O. Arcizet, "Observation of a phononic Mollow triplet in a hybrid spin-nanomechanical system", *Nature Communications* **6**, 8603 (2015). (pages 28, 185, 190, 193, 201, 202, 207, 208, 219, et 221)

[75] A. Gloppe, *Nano-optomécanique au coeur d'un faisceau laser focalisé : cartographie du champ de force optique et action en retour bidimensionnelle*, Thèse de doctorat (2014). (pages 29, 31, 61, 64, et 104)

[76] T. Barois, *Résonateurs nanomécaniques auto-oscillants*, Thèse de doctorat (2012). (pages 30, 52, et 76)

[77] M. Bechelany, A. Brioude, D. Cornu, G. Ferro, P. Miele, "A Raman spectroscopy study of individual SiC nanowires", *Advanced Functional Materials* **17**, 939–943 (2007). (page 30)

[78] C. F. Bohren, D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles* (Wiley Interscience, New York, 1998). (pages 31, 32, et 105)

[79] J. E. Sader, "Frequency response of cantilever beams immersed in viscous fluids with applications to the atomic force microscope", *Journal of Applied Physics* **84**, 64–76 (1998). (page 42)

[80] M. Pinard, Y. Hadjar, A. Heidmann, "Effective mass in quantum effects of radiation pressure", *European Physical Journal D* **7**, 107–116 (1999). (pages 44 et 45)

[81] M. J. Martin, B. H. Houston, "Gas damping of carbon nanotube oscillators", *Applied Physics Letters* **91**, 103116 (2007). (page 46)

[82] E. C. Bullard, J. Li, C. R. Lilley, P. Mulvaney, M. L. Roukes, J. E. Sader, "Dynamic similarity of oscillatory flows induced by nanomechanical resonators", *Physical Review Letters* **112**, 015501 (2014). (page 46)

[83] G. E. Cook, "The Aerodynamic Drag of Near Earth Satellites", Rapport technique ARC/CP-523 (1960). (page 46)

[84] G. J. Maslach, S. A. Schaaf, "Cylinder drag in the transition from continuum to free molecule flow", Rapport technique (1962). (page 46)

[85] L. Costa, M. S. Rodrigues, S. Carpentier, P. J. van Zwol, J. Chevrier, F. Comin, "Comparison between Atomic Force Microscopy and Force Feedback Microscopy static force curves", *arXiv* 5 (2013). (page 53)

[86] M. Choueib, A. Ayari, P. Vincent, S. Perisanu, S. T. Purcell, "Evidence for Poole-Frenkel conduction in individual SiC nanowires by field emission transport measurements", *Journal of Applied Physics* **109**, 073709 (2011). (page 76)

[87] M. Choueib, *Etude des propriétés physiques de nanofils individuels de Carbure de Silicium par émission de champ*, Thèse de doctorat (2009). (page 78)

[88] R. O. Behunin, F. Intravaia, D. A. R. Dalvit, P. A. M. Neto, S. Reynaud, "Modeling electrostatic patch effects in Casimir force measurements", *Physical Review A* **85**, 012504 (2012). (page 79)

[89] R. S. Decca, D. López, E. Fischbach, G. L. Klimchitskaya, D. E. Krause, V. M. Mostepanenko, "Tests of new physics from precise measurements of the Casimir pressure between two gold-coated plates", *Physical Review D - Particles, Fields, Gravitation and Cosmology* **75**, 077101 (2007). (page 79)

[90] A. O. Sushkov, W. J. Kim, D. A. R. Dalvit, S. K. Lamoreaux, "Observation of the thermal Casimir force", *Nature Physics* **7**, 230–233 (2011). (page 79)

[91] M. J. Seitner, K. Gajo, E. M. Weig, M. J. Seitner, K. Gajo, E. M. Weig, "Damping of metallized bilayer nanomechanical resonators at room temperature", *Applied Physics Letters* **105**, 213101 (2014). (page 90)

[92] J. Laurent, A. Mosset, O. Arcizet, J. Chevrier, S. Huant, H. Sellier, ""Negative" backaction noise in interferometric detection of a microlever", *Physical Review Letters* **107**, 050801 (2011). (page 94)

[93] K. A. Milton, E. K. Abalo, P. Parashar, N. Pourtolami, I. Brevik, S. A. Ellingsen, "Casimir-Polder repulsion near edges : Wedge apex and a screen with an aperture", *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **83**, 062507 (2011). (pages 97 et 229)

[94] R. Messina, P. A. Maia Neto, B. Guizal, M. Antezza, "Casimir interaction between a sphere and a grating", *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **92**, 062504 (2015). (page 97)

[95] A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. Bjorkholm, S. Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles", *Optics Letters* **11**, 288–290 (1986). (page 102)

[96] A. Ashkin, "Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime", *Biophysical Journal* **61**, 569–582 (1992). (page 102)

[97] Y. Roichman, B. Sun, A. Stolarski, D. G. Grier, "Influence of nonconservative optical forces on the dynamics of optically trapped colloidal spheres : The fountain of probability", *Physical Review Letters* **101**, 128301 (2008). (pages 102, 105, et 131)

[98] G. Pesce, G. Volpe, A. C. De Luca, G. Rusciano, G. Volpe, "Quantitative assessment of non-conservative radiation forces in an optical trap", *EPL (Europhysics Letters)* **86**, 38002 (2009). (pages 103 et 105)

[99] B. Sun, J. Lin, E. Darby, A. Y. Grosberg, D. G. Grier, "Brownian vortexes", *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* **80**, 010401(R) (2009). (pages 103, 131, 142, et 230)

[100] D. B. Ruffner, D. G. Grier, "Optical forces and torques in nonuniform beams of light", *Physical Review Letters* **108**, 173602 (2012). (page 103)

[101] P. Wu, R. Huang, C. Tischer, A. Jonas, E. L. Florin, "Direct measurement of the nonconservative force field generated by optical tweezers", *Physical Review Letters* **103**, 108101 (2009). (pages 103 et 131)

[102] G. Pesce, G. Volpe, A. Imparato, G. Rusciano, A. Sasso, "Influence of rotational force fields on the determination of the work done on a driven Brownian particle", *Journal of Optics* **13**, 044006 (2011). (page 103)

[103] I. Iglesias, J. J. Sáenz, "Scattering forces in the focal volume of high numerical aperture microscope objectives", *Optics Communications* **284**, 2430–2436 (2011). (pages 103 et 105)

[104] Z. Bomzon, M. Gu, J. Shamir, "Angular momentum and geometrical phases in tight-focused circularly polarized plane waves", *Applied Physics Letters* **89**, 241104 (2006). (page 103)

[105] S. Albaladejo, M. I. Marqués, M. Laroche, J. J. Sáenz, "Scattering forces from the curl of the spin angular momentum of a light field", *Physical Review Letters* **102**, 113602 (2009). (page 103)

[106] P. C. Chaumet, M. Nieto-Vesperinas, "Time-averaged total force on a dipolar sphere in an electromagnetic field", *Optics Letters* **25**, 1065–1067 (2000). (page 104)

[107] G. S. Agarwal, "Fluctuation-Dissipation Theorems for Systems in Non-Thermal Equilibrium", *Zeitschrift für Physik* **252**, 25–38 (1972). (pages 123, 245, et 247)

[108] G. Micchi, R. Avriller, F. Pistolesi, "Electromechanical transition in quantum dots", *Physical Review B* **94**, 125417 (2016). (page 126)

[109] T. Harada, S. I. Sasa, "Energy dissipation and violation of the fluctuation-response relation in nonequilibrium Langevin systems", *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* **73**, 026131 (2006). (pages 131, 135, et 136)

[110] F. Zamponi, F. Bonetto, L. F. Cugliandolo, J. Kurchan, "A fluctuation theorem for non-equilibrium relaxational systems driven by external forces", *Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment* P09013 (2005). (pages 132, 133, et 151)

[111] U. Seifert, "Entropy production along a stochastic trajectory and an integral fluctuation theorem", *Physical Review Letters* **95**, 040602 (2005). (pages 133, 149, 151, et 247)

[112] T. Harada, S.-i. Sasa, "Equality connecting energy dissipation with a violation of the fluctuation-response relation.", *Physical Review Letters* **95**, 130602 (2005). (page 135)

[113] S. Toyabe, H. R. Jiang, T. Nakamura, Y. Murayama, M. Sano, "Experimental test of a new equality : Measuring heat dissipation in an optically driven colloidal system", *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* **75**, 011122 (2007). (pages 136 et 230)

[114] S. Toyabe, M. Sano, "Energy dissipation of a Brownian particle in a viscoelastic fluid", *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* **77**, 041403 (2008). (page 136)

[115] B. Lander, J. Mehl, V. Blickle, C. Bechinger, U. Seifert, "Noninvasive measurement of dissipation in colloidal systems", *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* **86**, 030401 (2012). (page 136)

[116] É. Fodor, W. W. Ahmed, M. Almonacid, M. Bussonnier, N. S. Gov, M.-H. Verlhac, T. Betz, P. Visco, F. van Wijland, "Nonequilibrium dissipation in living oocytes", *Europhysics Letters* **116**, 3008 (2016). (page 136)

[117] S. Toyabe, T. Okamoto, T. Watanabe-Nakayama, H. Taketani, S. Kudo, E. Muneyuki, "Nonequilibrium energetics of a single F1-ATPase molecule", *Physical Review Letters* **104**, 198103 (2010). (page 136)

[118] P. E. Kloeden, E. Platen, H. Schurz, *Numerical Solution of SDE Through Computer Experiments* (Springer-Verlag, Berlin, 1994). (page 140)

[119] T. Briant, P. F. Cohadon, A. Heidmann, M. Pinard, "Optical phase-space reconstruction of mirror motion at the attometer level", *European Physical Journal D* **22**, 131–140 (2003). (page 148)

[120] D. Rugar, P. Grütter, "Mechanical Parametric Amplification and Thermomechanical Noise Squeezing", *Physical Review Letters* **67**, 699–702 (1991). (page 148)

[121] E. Collin, Y. M. Bunkov, H. Godfrin, "Addressing geometric nonlinearities with cantilever microelectromechanical systems : Beyond the Duffing model", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **82**, 235416 (2010). (page 148)

[122] A. Pontin, M. Bonaldi, A. Borrielli, F. S. Cataliotti, F. Marino, G. A. Prodi, E. Serra, F. Marin, "Squeezing a thermal mechanical oscillator by stabilized parametric effect on the optical spring", *Physical Review Letters* **112**, 023601 (2014). (page 148)

[123] C. Eichler, D. Bozyigit, C. Lang, M. Baur, L. Steffen, J. M. Fink, S. Filipp, A. Wallraff, "Observation of two-mode squeezing in the microwave frequency domain", *Physical Review Letters* **107**, 113601 (2011). (page 148)

[124] B. Julsgaard, A. Kozhekin, E. S. Polzik, "Experimental long-lived entanglement of two macroscopic objects", *Nature* **413**, 400–403 (2001). (page 148)

[125] Y. S. Patil, S. Chakram, L. Chang, M. Vengalattore, "Thermomechanical Two-Mode Squeezing in an Ultrahigh- Q Membrane Resonator", *Physical Review Letters* **115**, 017202 (2015). (page 148)

[126] C. F. Ockeloen-Korppi, E. Damskägg, J. M. Pirkkalainen, A. A. Clerk, M. J. Woolley, M. A. Sillanpää, "Quantum Backaction Evading Measurement of Collective Mechanical Modes", *Physical Review Letters* **117**, 140401 (2016). (page 148)

[127] U. Seifert, T. Speck, "Fluctuation-dissipation theorem in nonequilibrium steady states", *Europhysics Letters* **89**, 10007 (2010). (pages 149, 151, et 247)

[128] B. Lassagne, Y. Tarakanov, J. Kinaret, D. Garcia-Sanchez, A. Bachtold, "Coupling Mechanics to Charge Transport in Carbon Nanotube Mechancial Resonators", *Science* **325**, 1107–1110 (2009). (pages 153 et 188)

[129] P. Rabl, P. Cappellaro, M. V. G. Dutt, L. Jiang, J. R. Maze, M. D. Lukin, "Strong magnetic coupling between an electronic spin qubit and a mechanical resonator", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **79**, 041302(R) (2009). (page 153)

[130] G. A. Steele, A. K. Hüttel, B. Witkamp, M. Poot, H. B. Meerwaldt, L. P. Kouwenhoven, H. S. J. van der Zant, "Strong coupling between single-electron tunneling and nanomechanical motion.", *Science* **325**, 1103–1107 (2009). (pages 153 et 188)

[131] M. D. LaHaye, J. Suh, P. M. Echternach, K. C. Schwab, M. L. Roukes, "Nanomechanical measurements of a superconducting qubit.", *Nature* **459**, 960–4 (2009). (pages 153 et 188)

[132] D. Hunger, S. Camerer, T. W. Hänsch, D. König, J. P. Kotthaus, J. Reichel, P. Treutlein, "Resonant coupling of a bose-einstein condensate to a micromechanical oscillator", *Physical Review Letters* **104**, 143002 (2010). (page 153)

[133] S. Kolkowitz, A. C. B. Jayich, Q. P. Unterreithmeier, S. D. Bennett, P. Rabl, J. G. E. Harris, M. D. Lukin, "Coherent sensing of a mechanical resonator with a single-spin qubit.", *Science* **335**, 1603–6 (2012). (page 153)

[134] S. K. Hong, M. S. Grinolds, P. Maletinsky, R. L. Walsworth, M. D. Lukin, A. Yacoby, "Coherent, mechanical control of a single electronic spin.", *Nano letters* **12**, 3920–4 (2012). (page 153)

[135] J.-M. Pirkkalainen, S. U. Cho, J. Li, G. S. Paraoanu, P. J. Hakonen, M. a. Sillanpää, "Hybrid circuit cavity quantum electrodynamics with a micromechanical resonator", *Nature* **494**, 211–5 (2013). (page 153)

[136] M. Ganzhorn, S. Klyatskaya, M. Ruben, W. Wernsdorfer, "Strong spin-phonon coupling between a single-molecule magnet and a carbon nanotube nanoelectromechanical system.", *Nature Nanotechnology* **8**, 165–9 (2013). (pages 153 et 188)

[137] A. Barfuss, J. Teissier, E. Neu, A. Nunnenkamp, P. Maletinsky, "Strong mechanical driving of a single electron spin", *Nat. Phys.* **11**, 820–824 (2015). (pages 153 et 188)

[138] R. Hanbury Brown, R. Q. Twiss, "Correlation between photons in two coherent beams of light", *Nature* **177**, 27–29 (1956). (pages 154, 155, 180, et 231)

[139] R. Hanbury Brown, R. Q. Twiss, "A Test of a New Type of Stellar Interferometer on Sirius", *Nature* **178**, 1046–1048 (1956). (page 154)

[140] P. Kervella, F. Thévenin, P. Morel, P. Bordé, E. Di Folco, "The interferometric diameter and internal structure of Sirius A", *Astronomy & Astrophysics* **408**, 681–688 (2003). (page 154)

[141] R. Hanbury Brown, R. C. Jennison, M. K. Das Gupta, "Apparent angular sizes of discrete radio sources", *Nature* **170**, 1061–1063 (1952). (page 155)

[142] R. Hanbury Brown, R. Q. Twiss, "LXXIV . A new type of interferometer for use in radio astronomy", *Philosophical Magazine Series 7* **45**, 663–682 (1954). (page 155)

[143] R. J. Glauber, "Photon Correlations", *Physical Review Letters* **10**, 84–86 (1963). (page 155)

[144] T. Jeltes, J. M. McNamara, W. Hogervorst, W. Vassen, V. Krachmalnicoff, M. Schellekens, A. Perrin, H. Chang, D. Boiron, A. Aspect, C. I. Westbrook, "Comparison of the Hanbury Brown-Twiss effect for bosons and fermions.", *Nature* **445**, 402–405 (2007). (pages 155 et 156)

[145] L. Mandel, E. Wolf, "Correlation in the fluctuating outputs from two square-law detectors illuminated by light of any state of coherence and polarization", *Physical Review* **124**, 1696–1702 (1961). (pages 155 et 156)

[146] V. Jacques, *Source de photons uniques et interférences à un seul photon. De l'expérience des fentes d'Young au choix retardé*, Thèse de doctorat (2007). (page 156)

[147] H. Paul, "Photon antibunching", *Reviews of Modern Physics* **54**, 1061–1102 (1982). (page 156)

[148] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light* (Oxford University Press, New York, 1973). (page 156)

[149] B. L. Morgan, L. Mandel, "Measurement of Photon Bunching in a Thermal Light Beam", *Physical Review Letters* **16**, 1012–1015 (1966). (page 157)

[150] F. Boitier, A. Godard, J. Bonnet, E. Rosencher, C. Fabre, "Measuring photon bunching at ultrashort timescale by two-photon absorption in semiconductors", *Nature Physics* **5**, 267–270 (2009). (page 157)

[151] H. J. Kimble, M. Dagenais, L. Mandel, "Photon antibunching in resonance fluorescence", *Physical Review Letters* **39**, 691–695 (1977). (pages 158 et 159)

[152] A. Beveratos, *Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés dans le diamant : application à la cryptographie quantique*, Thèse de doctorat (2002). (pages 159 et 162)

[153] G. Davies, M. F. Hamer, "Optical Studies of the 1.945 eV Vibronic Band in Diamond", *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **348**, 285–298 (1976). (page 161)

[154] A. Beveratos, S. Kühn, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, P. Grangier, "Room temperature stable single-photon source", *European Physical Journal D* **18**, 191–196 (2002). (page 161)

[155] L. Rondin, *Réalisation d'un magnétomètre à centre coloré NV du diamant*, Thèse de doctorat (2012). (page 161)

[156] T. Hainschwang, *Diamants de type Ib : Relations entre les propriétés physiques et gemmologiques des diamants contenant de l'azote isolé*, Thèse de doctorat (2014). (page 162)

[157] J. Wrachtrup, F. Jelezko, "Processing quantum information in diamond", *Journal of Physics: Condensed Matter* **18**, S807–S824 (2006). (page 162)

[158] Claude Fabre, "Atomes et Lumière - Interaction matière rayonnement", (2006). (page 162)

[159] E. Rittweger, K. Y. Han, S. E. Irvine, C. Eggeling, S. W. Hell, "STED microscopy reveals crystal colour centres with nanometric resolution", *Nature Photonics* **3**, 144–147 (2009). (pages 179, 185, et 232)

[160] V. Puller, B. Lounis, F. Pistolesi, "Single molecule detection of nanomechanical motion", *Physical Review Letters* **110**, 125501 (2013). (pages 181 et 232)

[161] I. Yeo, P.-L. de Assis, A. Gloppe, E. Dupont-Ferrier, P. Verlot, N. S. Malik, E. Dupuy, J. Claudon, J.-M. Gérard, A. Auffèves, G. Nogues, S. Seidelin, J.-P. Poizat, O. Arcizet, M. Richard, "Strain-mediated coupling in a quantum dot-mechanical oscillator hybrid system.", *Nature Nanotechnology* **9**, 106–10 (2014). (pages 185 et 188)

[162] G. Sallen, A. Tribu, T. Aichele, R. André, L. Besombes, C. Bougerol, M. Richard, S. Tatarenko, K. Kheng, J.-P. Poizat, "Subnanosecond spectral diffusion measurement using photon correlation", *Nature Photonics* **4**, 696–699 (2010). (pages 185 et 232)

[163] M. Munsch, A. V. Kuhlmann, D. Cadeddu, J.-M. Gérard, J. Claudon, M. Poggio, R. J. Warburton, "Resonant driving of a single photon emitter embedded in a mechanical oscillator", *ArXiv* 1–12 (2016). (pages 185 et 232)

[164] A. Jöckel, A. Faber, T. Kampschulte, M. Korppi, M. T. Rakher, P. Treutlein, "Sympathetic cooling of a membrane oscillator in a hybrid mechanical–atomic system", *Nature Nanotechnology* **10**, 55–59 (2015). (page 188)

[165] K. W. Lee, D. Lee, P. Ovartchaiyapong, J. Minguzzi, J. R. Maze, A. C. Bleszynski Jayich, "Strain Coupling of a Mechanical Resonator to a Single Quantum Emitter in Diamond", *Physical Review Applied* **6**, 034005 (2016). (page 188)

[166] B. Mollow, "Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems", *Physical Review* **188**, 1969–1975 (1969). (page 190)

[167] N. B. Manson, J. P. Harrison, M. J. Sellars, "Nitrogen-vacancy center in diamond : Model of the electronic structure and associated dynamics", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **74**, 104303 (2006). (pages 190, 191, et 198)

[168] M. L. Goldman, A. Sipahigil, M. W. Doherty, N. Y. Yao, S. D. Bennett, M. Markham, D. J. Twitchen, N. B. Manson, A. Kubanek, M. D. Lukin, "Phonon-induced population dynamics and intersystem crossing in nitrogen-vacancy centers", *Physical Review Letters* **114**, 145502 (2015). (pages 190 et 191)

[169] M. L. Goldman, M. W. Doherty, A. Sipahigil, N. Y. Yao, S. D. Bennett, N. B. Manson, A. Kubanek, M. D. Lukin, "State-selective intersystem crossing in nitrogen-vacancy centers", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **91**, 165201 (2015). (page 191)

[170] P. Neumann, R. Kolesov, V. Jacques, J. Beck, J. Tisler, A. Batalov, L. Rogers, N. B. Manson, G. Balasubramanian, F. Jelezko, J. Wrachtrup, "Excited-state spectroscopy of single NV defects in diamond using optically detected magnetic resonance", *New Journal of Physics* **11**, 013017 (2009). (pages 192 et 203)

[171] J. M. Nichol, E. R. Hemesath, L. J. Lauhon, R. Budakian, "Nanomechanical detection of nuclear magnetic resonance using a silicon nanowire oscillator", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **85**, 054414 (2012). (page 193)

[172] G. K. Mayer, "Fabrication of Non-Underetched Convex Corners in Anisotropic Etching of (100)-Silicon in Aqueous KOH with Respect to Novel Micromechanic Elements", *Journal of The Electrochemical Society* **137**, 3947 (1990). (page 197)

[173] H. Schröder, E. Obermeier, A. Horn, G. K. M. Wachutka, "Convex corner undercutting of {100} silicon in anisotropic KOH etching : The new step-flow model of 3-D structuring and first simulation results", *Journal of Microelectromechanical Systems* **10**, 88–97 (2001). (page 197)

[174] P. Pal, K. Sato, "A comprehensive review on convex and concave corners in silicon bulk micromachining based on anisotropic wet chemical etching", *Micro and Nano Systems Letters* **3**, 1–42 (2015). (page 197)

[175] A. Dréau, M. Lesik, L. Rondin, P. Spinicelli, O. Arcizet, J. F. Roch, V. Jacques, "Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced dc magnetic field sensitivity", *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **84**, 195204 (2011). (page 199)

[176] V. Jacques, P. Neumann, J. Beck, M. Markham, D. Twitchen, J. Meijer, F. Kaiser, G. Balasubramanian, F. Jelezko, J. Wrachtrup, "Dynamic polarization of single nuclear spins by optical pumping of nitrogen-vacancy color centers in diamond at room temperature", *Physical Review Letters* **102**, 057403 (2009). (page 201)

[177] B. Smeltzer, J. McIntyre, L. Childress, "Robust control of individual nuclear spins in diamond", *Physical Review A* **80**, 050302(R) (2009). (page 201)

[178] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup, L. C. L. Hollenberg, "The nitrogen-vacancy colour centre in diamond", *Physics Reports* **528**, 1–45 (2013). (page 218)

[179] C. P. Slichter, *Principles of Magnetic Resonance* (Springer-Verlag, Berlin, 1978). (page 219)

[180] M. Levin, A. P. McCauley, A. W. Rodriguez, M. T. H. Reid, S. G. Johnson, "Casimir repulsion between metallic objects in vacuum", *Physical Review Letters* **105**, 090403 (2010). (page 229)

[181] U. Seifert, "Stochastic thermodynamics, fluctuation theorems and molecular machines.", *Reports on Progress in Physics* **75**, 126001 (2012). (page 230)

[182] J. Prost, J. F. Joanny, J. M. R. Parrondo, "Generalized fluctuation-dissipation theorem for steady-state systems", *Physical Review Letters* **103**, 090601 (2009). (page 231)

[183] M. Baiesi, C. Maes, "An update on the nonequilibrium linear response", *New Journal of Physics* **15**, 013004 (2013). (page 247)

[184] C. Chang, "Numerical Solution of Stochastic Differential Equations with Constant Diffusion Coefficients", *Mathematics of Computation* **49**, 523–542 (1987). (page 254)

Résumé

Les expériences de couplage hybride mécanique, où un résonateur mécanique est couplé à un degré de liberté quantique, requièrent de très grandes sensibilités en force. Il s'agit de l'une des motivations du développement récent de nano-oscillateurs ultra-légers, et qui constituent donc des sondes de force ultra-sensibles opérant désormais au niveau de l'attoNewton.

Le premier volet de ce travail traite de l'habillage mécanique d'un nanofil suspendu de carbure de silicium, qui oscille dans deux directions transverses. Son évolution Brownienne ou excitée dans un champ de force modifie ses propriétés mécaniques : fréquences et directions d'oscillation. Une technique de mesure optique des vibrations du nanofil en deux dimensions a été développée. Cette technique a permis, dans un premier temps, de cartographier une force électrostatique, révélant une phénoménologie de l'habillage spécifique des dimensions supérieures à un. En particulier, les composantes cisaillantes du champ sont responsables d'une rotation des directions propres de vibration. Dans un deuxième temps, la technique de mesure a été testée dans un champ de force optique, produit par un laser focalisé sur le nanofil, et qui contient des composantes rotationnelles, non conservatives, absentes du champ de force électrostatique. Diverses observations expérimentales sont rapportées : brisure de l'orthogonalité des modes propres, distorsion et amplification des spectres de mouvement Brownien, toutes en accord avec le modèle décrivant l'habillage mécanique. A partir d'un protocole adapté à la multi-dimensionnalité du système, une déviation à la relation fluctuation-dissipation a également été observée : il s'agit d'une conséquence de la sortie de l'équilibre du système induite par la force optique non-conservative. L'étude des propriétés thermodynamiques du système suggère des corrections à la relation fluctuation-dissipation et prédit enfin un phénomène de compression du bruit thermique de l'oscillateur en champ de force rotationnel.

Le deuxième volet de la thèse concerne le système hybride constitué d'un nanofil et d'un qubit de spin, un centre coloré NV du diamant attaché à son extrémité. Les propriétés optiques de cette source de photons uniques oscillante sont caractérisées à partir de la mesure de corrélations spatio-temporelles de la fluorescence du centre NV sur lesquelles les vibrations de l'oscillateur se retrouvent encodées. Nous avons ainsi développé un système de mesure du mouvement compatible avec de très faibles flux de photons, inférieurs en particulier au taux de décohérence mécanique. La dernière partie de ce manuscrit présente une étude préliminaire du couplage du spin-mécanique. Après l'observation d'un triplet de Mollow phononique, les développements expérimentaux de la première partie de la thèse ont été intégrés à une expérience hybride de seconde génération stabilisée amenant la mesure de force ultra-sensible à la portée du système hybride.