Lévitation d'une nanoparticule de diamant dans le vide

François Riviere

▶ **To cite this version:**

François Riviere. Lévitation d'une nanoparticule de diamant dans le vide. Autre [cond-mat.other]. Université Paris-Saclay, 2021. Français. NNT : 2021UPASP102 . tel-03586339

HAL Id: tel-03586339
https://theses.hal.science/tel-03586339

Submitted on 23 Feb 2022

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

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

Thèse de doctorat

NNT : 2021UPASP102

université PARIS-SACLAY

Lévitation d'une nanoparticule de diamant dans le vide

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay

École doctorale n° 572, Ondes et Matière, EDOM
Spécialité de doctorat : Physique
Unité de recherche : LuMIn (Université Paris-Saclay, ENS Paris-Saclay, CNRS)
Référent : : ENS Paris-Saclay

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le Lundi 8 novembre 2021, par

François RIVIERE

Composition du jury :

Jean-Jacques Greffet Professeur des universités, Université Paris-Saclay (Institut d'Optique)n	Président
Jochen Fick Chargé de recherche, CNRS (Institut Néel)	Rapporteur
Cyriaque Genet Directeur de recherche, Université de Strasbourg (Institut de Science et d'Ingénierie Supramoléculaires)	Rapporteur
Helena Knowles University Lecturer, Université de Cambridge (Cavendish Laboratory)	Examinatrice
Jean-François Roch Professeur des Universités, ENS Paris-Saclay	Directeur
Loïc Rondin Maître de Conférences, Université Paris-Saclay	Coencadrant

Remeciements

C'est avec joie et une pointe de regret que se finit cette aventure qu'était la thèse. Après plus de trois longues années à Orsay, vient l'heure de remercier un bon nombre de personnes qui ont participé de près ou de loin à la réussite de ce projet.

Je tiens tout d'abord à remercier mon jury de thèse qui a évalué mon travail. Tel le grand fan de musique que je suis, je peux me réjouir d'avoir des grands noms dans mon jury, à commencer par JJG (ou plus exactement le professeur Jean-Jacques Greffet) ou encore Héléna Knowles (qui n'a pas pu assister à la soutenance). Je tiens également à remercier sincèrement les rapporteurs, les docteurs J. Fick et C. Genet, pour avoir eu la patience de lire mon manuscrit ainsi que pour leurs remarques avisées et pertinentes sur mon travail.

Trois ans, ça fait du monde à remercier, je tiens donc à m'excuser auprès de tous ceux que j'aurais oubliés et/ou qui se sentiraient oublié. Je commencerais par les membres de mon équipe qui ont rendu mon travail moins pénibles au quotidien et qui m'ont fait grandir aussi bien scientifiquement que socialement. Je débuterais par celui avec qui tout a commencé à savoir Loïc. Il m'a « recueilli » dès mon stage de M1 pour ne plus me quitter par la suite. Cela m'a permis d'apprendre à le connaître et surtout à l'estimer. Il a été d'une patience et d'une bienveillance à toutes épreuves. En plus de ses qualités de pédagogues ainsi que scientifiques, Loïc m'a transmis sa passion pour les sciences, mais aussi pour le pain, la levure... Il a su appréhender ma façon de travailler et me rassurer durant toutes ses longues années. J'espère pouvoir le garder dans mes amis proches. Un autre élément important au bon déroulement de ma thèse se nomme Timothée de Guillebon (je ne sais plus si tu veux une majuscule à ta particule ou pas de toute façon tu me feras une remarque). Avec lui, j'ai pu partager de nombreuses choses, (surtout ?) sur le plan intellectuel. Je fais notamment mention de nos conversations passionnées au CESFO dont la plupart des autres doctorants n'arrivaient pas toujours à suivre... Notre histoire a com-

mencé très tôt avec l'encadrement remarquable d'un TP de l'ENS. Il a également réussi à me soutenir moralement durant ces trois ans et je lui en suis infiniment reconnaissant. On a quand même partagé pas mal de bières durant ces trois ans à l'urban et j'espère avoir l'occasion d'en partager d'autres (peut-être pas à l'urban mais sait-on jamais...). Je remercie également mon directeur de thèse Jean-François qui a cru en notre projet. Même si la distance géographique a espacé nos rencontres, j'ai apprécié les discussions scientifiques que nous avons pu avoir. Je remercie également Jean-Sébastien pour ses apports scientifiques à ma thèse et ses conseils avisés. Même si il a un projet légèrement différent du mien, Damien m'a aidé pendant plusieurs mois. Je lui souhaite à mon tour le meilleur pour ta thèse ainsi que de toujours avoir d'aussi passionnantes discussions, le but étant, si j'ai bien compris, d'avoir un débat :). Je remercie ensuite toutes les personnes qui ont pu travailler avec moi de près ou de loin à ma thèse. Je commence par Clarisse qui a été l'une de mes premières partenaires de manip. Je te souhaite de réussir ta thèse. J'ai beaucoup apprécié travailler avec Antoine à qui je souhaite tout le meilleur dans le milieu de la recherche. Je pense également à Perrine, Aida qui ont pu participer à ce projet à travers différents stages. Je souhaite bon courage à Léo qui a partagé la dernière ligne droite avec moi. J'espère que tu porteras fièrement et de la plus belle des manières le projet que j'ai commencé avec Loïc.

Plus globalement, le travail au laboratoire a été intense en partie à cause de l'équipe de basket-boulettes. J'ai une pensée émue pour notre président de fédération Paul qui a troqué sa place à côté de « Pascal » pour se retrouver dans notre bureau. Même si tu étais toujours surbooké, tu avais toujours le temps pour une « petite » partie de basket-boulettes ou de baby. S'en suit le deuxième larron de l'équipe, mon partenaire de baby, Gabriel. Avec toi, on ne se laissait pas faire par les « coups-sur-coups » de Paul pour leur mettre la pâté au baby. Le dernier compère de l'équipe était bien entendu Timothée, le chef. Même si je cherche encore de quoi ou de qui... Je remercie la team Urban. Bien entendu pas pour jouer au foot mais bien pour boire des coups. Fériel et Florian (et encore Timothée) m'ont permis de passer d'agréables moments au coin des terrains de foot. A remettre prochainement. J'ai une pensée pour tous les autres doctorants (ou assimilés) que ce soit au LAC comme Thomas H., Lucile, Baptiste, Ferdinand ou bien à l'ISMO, Thomas L., Thomas C., Chrsitine, Hugo, Joanna, Maxime. J'ai une pensée pour toutes les équipes techniques, administratives des différents laboratoires que j'ai pu côtoyés. Je remercie le département de physique de l'ENS avec qui j'ai pu réaliser mes missions d'enseignement. Arnaud et Jean-Baptiste qui m'ont permis de me préparer au

mieux à mon poste actuel en prépa. J'ai une pensée pour Christian et Simon qui m'ont vu roder quelque fois au département et qui m'ont bien dépanné. Je remercie sincèrement les autres chercheurs du laboratoire qui ont rendu mes années moins monotones. François M. va se souvenir longtemps de l'accent Ch'ti (promis je ne parle pas comme ça au quotidien). Merci à Fabien avec qui j'ai pu réaliser mes TDs d'optique et Lasers. Je remercie le laboratoire LUMIN qui m'a permis de travailler dans les meilleures conditions possibles.

Ma vie en thèse ne se résumait pas qu'au travail, j'ai pu avoir le soutien de nombreuses personnes. Je commencerais par ma famille qui a su m'aider en toutes circonstances. Un énorme merci à mes parents qui ont cru et croient encore en moi. Je voudrais à travers ces remerciements vous exprimer l'amour que je vous porte. Sans vous, je ne serais pas la personne que je suis actuellement et je vous dois énormément. Ce travail est donc en grande partie le votre et n'aurait pu aboutir sans votre présence. Je vais remercier mes frères et sœurs qui ont su me remonter le moral lorsque ça se passait moins bien même lorsque eux-même se trouvaient à l'autre bout de la terre. Un énorme merci à Sarah, Antoine et Adèle qui forment une superbe famille en attendant le petit dernier. Avec toi, Antoine, j'ai pu profiter de la joie de Can Mines et jouer la CUP (les gens du labo s'en souviennent encore). Merci également à Sandra et Louis. J'espère avoir l'occasion de vous voir prochainement pour accueillir comme il se doit la petite Emy. Je te remercie (et pas que moi...) pour le vin de paille que tu ramènes à chaque fois. Merci à Lucie, John et Lilia. Même à l'autre bout de la terre vous avez réussi à être derrière moi et à me remonter le moral. Je vous remercie sincèrement pour les attentions que vous avez eu lorsque j'étais en train d'écrire. I wish you all the best for the future and hope to see you soon. Merci à mes petites sœurs jumelles Jeanne et Zélie qui vont commencer leurs années universitaires. Je leur souhaite le meilleur pour la suite et surtout de vous épanouir. J'ai une pensée pour tous mes grands-parents et mes cousins. Merci notamment au cousinade parisienne avec Simon, Lola, Ed-x, Lise et Thomas. Merci également à ma marraine Carole qui j'espère sera très fière de moi et à mon parrain Marc. Je remercie également chaleureusement Nathalie et Marie-Anne qui se sont déplacées pour ma soutenance de thèse et qui m'ont accueilli dans leur famille comme l'un des leurs.

Même si la famille compte beaucoup pour moi, il n'y a pas que ça dans la vie. Il y a également mes amis. Je pense à tous ceux de Cachan : P-E qui s'est essayé tant bien que mal au foot... Ça n'a peut être pas été ta meilleure réussite mais ça nous fait de bons souvenirs ! Lucky qui a rejoint la Caisse pour le meilleur et pour le pire. Tu trouveras

d'autres excuses que les pots de thèse pour rater des matchs... Cyril qui est parti s'isoler à Toulouse. Yassin qui a été mon collègue d'agreg et pas que ! On pourra dire qu'on s'est tué à la tâche pour l'avoir. Lothy qui est le premier marié de la bande à qui je souhaite le meilleur pour son aventure américaine avec Emilie. Le suivant sera très certainement Benoit avec qui j'ai partagé la même date de soutenance de thèse ! Quecle qui va j'espère devenir le meilleur dresseur... Hugo qui a partagé la joie de faire une thèse sur le plateau de Saclay. Et Mathieu qui s'est lui exilé à Lyon, la ville des lumières. Ainsi que Thomas, Gaspard (le meilleur joueur de volley), Victor, Yann... Mais aussi à tous ceux qui portent la maillot bleu et blanc de la Caisse, avec entre autres, Théo, Léo, Joseph... Merci pour ces escapades footballistiques. Je remercie également de plus anciennes connaissances que j'ai eues l'occasion de retrouver à Paris, Gustave, Victor... et tout ceux que j'ai pu oublier.

Je terminerais ces remerciements par remercier du fond du cœur Tamara. C'est elle qui m'a permis d'embellir ma vie et qui m'a soutenu ces dernières années dans mon travail ou dans ma vie personnelle. Ce travail n'aurait pas été le même sans ta présence au quotidien, ta bienveillance, ton sourire et ton amour. Merci pour tout, et pour tout ce que l'avenir nous réserve.

Table des matières

Tables des matières **7**

Introduction **11**

1 Lévitation optique d'une particule dans le vide **15**

1.1 Introduction 15

1.2 Forces optiques appliquées à une nanoparticule 16

1.2.1 Approximation dipolaire 16

1.2.2 Mise en évidence des forces optiques dans les pinces optiques . . . 17

1.2.3 Évaluation des forces optiques dans l'approximation d'un faisceau gaussien 22

1.2.4 Stabilité d'une particule dans le piège optique. 28

1.3 Dynamique d'une particule en lévitation 32

1.3.1 Équation du mouvement de la particule 32

1.3.2 Densité Spectrale de Puissance 34

1.4 Montage expérimental 35

1.4.1 Le piège optique 35

1.4.2 Le système à vide 37

1.4.3 Piégeage de particules 38

1.5 Mesure de la position de la particule 38

1.5.1 Introduction 38

1.5.2 Champ diffusé par la particule 39

1.5.3 Détection de la particule 41

1.6 Mesures expérimentales de la dynamique 44

1.6.1 Trace temporelle et DSP 44

1.6.2 Raideur du piège 45

1.6.3 Coefficient d'amortissement 46

1.6.4 Détermination du rayon hydrodynamique de la particule 46
1.6.5 Étalonnage de la détection 47
1.7 Conclusion 48

2 Thermométrie de centres NV du diamant en lévitation 51
2.1 Introduction 52
2.2 Centre NV du diamant 52
2.2.1 Centres colorés du diamant et propriétés optiques du centre NV . 52
2.2.2 Résonance magnétique détectée optiquement 55
2.2.3 Hamiltonien du système centre NV dans un nanodiamant 58
2.2.4 Fabrication de nanodiamants riches en centres NV 61
2.3 Dispositif expérimental de piégeage d'un nanodiamant dans le vide . . . 62
2.4 Effet du laser de piégeage infrarouge sur la photophysique du centre NV . 64
2.5 Thermométrie d'un nanodiamant dans le vide 67
2.5.1 Modèle théorique 68
2.5.2 Échanges thermiques d'une particule en lévitation 69
2.5.3 Équilibre thermodynamique 72
2.5.4 Étalonnage de la mesure de température interne d'un nanodiamant 74
2.5.5 Mesures expérimentales de la température interne d'un nanodiamant en lévitation 76
2.5.6 Statistique sur le processus d'absorption 77
2.6 Conclusion 81

3 Dynamique d'une nanoparticule de diamant chaud 89
3.1 Introduction 90
3.2 Position du problème et modèle à deux bains 90
3.2.1 Température effective du centre de masse 90
3.2.2 Modèle à deux bains 91
3.3 Dynamique du diamant chaud 93
3.3.1 Détermination de la température de centre de masse 93
3.3.2 Détermination de la température interne 97
3.3.3 Détermination du coefficient d'accommodation 98
3.3.4 Impact de la forme de la particule sur la dynamique du diamant chaud 100
3.4 Sur-échauffement de la température de centre de masse 102

3.5 Conclusion 104

4 Couplage spin-mécanique pour un nanodiamant en lévitation 107

4.1 Introduction 108

4.2 Mouvement librationnel de la particule dans le piège 109

4.2.1 Mouvement librationel : état de l'art 109

4.2.2 Potentiel énergétique du mouvement librationnel 111

4.2.3 Équation du mouvement du mouvement librationnel 114

4.2.4 Observation du mouvement librationnel 115

4.3 Couplage spin-optomécanique 118

4.3.1 Hamiltonien d'un centre NV unique sous champ magnétique . . . 118

4.3.2 Effet d'un ensemble de centres NV sous champ magnétique 120

4.3.3 Piégeage de centre NV unique sous champ magnétique 124

4.4 Conclusion et perspectives 125

Conclusion et perspectives 128

A Mesure des forces optiques 133

A.1 Simplification de l'expression des forces optiques en fonction du champ électrique 133

A.2 Calcul des expressions analytiques des forces de gradient et de diffusion . 134

B Profil de la température interne d'une sphère chauffée 137

B.1 Équation de la chaleur 137

B.2 Les différents types de variation que l'on étudiera 139

B.2.1 Température de surface imposée : bain homogène 139

B.2.2 Absorption locale 140

B.2.3 Flux surfacique imposée ou échange convectif imposé 140

B.3 Résultats à partir de la simulation numérique 142

Bibliographie 145

Introduction

Malgré le succès incontestable de la mécanique quantique depuis presque 100 ans, le débat reste ouvert quant à son universalité. Elle a permis d'expliquer les premières incohérences de la mécanique classique [1, 2, 3] et a prédit des phénomènes contre-intuitifs qui n'ont pu être démontrés pendant des décennies [4]. De plus, avec l'apparition de techniques appropriées comme le laser [5], des expériences ont pu tester ces prédictions [6] et la poursuite des expériences quantiques a permis de sonder des systèmes atomiques interagissant avec de la lumière [7, 8]. Depuis, l'application de cette théorie à des objets macroscopiques s'est posée [9]. Même si les théories sur la décohérence peuvent expliquer l'émergence de la mécanique classique [10], une question fondamentale demeure à savoir si les principes de bases de la mécanique quantique sont universellement valides, comme le principe de superposition d'états [11].

Ainsi, de plus en plus d'expériences démontrent que les phénomènes quantiques s'appliquent à des systèmes de plus en plus imposants : l'intrication quantique d'oscillateurs mécaniques éloignés [12, 13], l'interférence de condensats de Bose-Einstein [14] ou de molécules massives [15, 16]. C'est dans ce contexte d'extension de la limite entre mécanique classique et quantique que le domaine des nanotechnologies s'impose [17, 18]. En effet, les systèmes à l'échelle nanométrique forment l'interface actuelle entre le monde microscopique formé par les atomes et les molécules et le monde macroscopique gouverné par la mécanique classique. Ces systèmes, dits mésoscopiques, permettent d'explorer la transition entre les deux régimes [9]. Néanmoins, pour arriver à obtenir un système mésoscopique dans le régime quantique, il est nécessaire de réduire l'énergie des modes d'oscillations proche de leur état fondamental [19], et a pu récemment être atteint [20]. En plus de permettre de sonder cette limite, les oscillateurs nanomécaniques présentent l'avantage d'avoir des fréquences de résonance élevées et des facteurs de qualité importants comparés aux systèmes électriques [21], permettant d'en faire un système idéal pour réaliser notamment des capteurs de forces [22, 23, 24].

Le développement des systèmes nanomécaniques a explosé ces dernières années et la lévitation optique de nanoparticules a pris une part non négligeable dans ce domaine. Elle présente l'avantage de pouvoir atteindre des facteurs de qualité très importants [25, 26, 27]. La lévitation de particules peut être faite à partir de différentes techniques, utilisation du principe de la pince optique [28, 26], pièges quasi-électrostatiques pour ions [29, 30], potentiels magnéto-gravitationnels [31].

La lévitation optique consistant à focaliser fortement un laser [32, 33] a été retenue pour ma thèse. De nombreuses avancées expérimentales, comme le refroidissement de particules dans le régime quantique [34, 35, 36], la mesure précise de forces ou de couples [37, 38, 39], le refroidissement d'autres modes de liberté sur des systèmes asphériques [40], ouvrent la porte vers des expériences d'interférence quantique pour des particules mésoscopiques. En parallèle, la possibilité de réaliser un système hybride basé sur l'ajout d'un système à deux niveaux a été exploré dans de nombreux domaines, circuits supraconducteurs [41, 42], atomes froids [43, 44], boîtes quantiques [45], spins et défauts à l'état solide [46, 47, 48]. Les systèmes hybrides impliquant des défauts dans la maille cristalline permettent de réaliser un couplage du mouvement de la particule avec un degré de liberté de spin ou orbital.

Ainsi, le spin électronique du centre azote-lacune (NV) du diamant est un bon candidat pour la réalisation d'un couplage de type spin-optomécanique dans le vide à température ambiante puisque c'est un système que l'on peut facilement polariser optiquement et lire son état de spin électronique dans ces conditions [49]. La plupart des propositions initialement développées pour des oscillateurs fixés contenant des centres NV [50, 51] peuvent être transposées pour des diamants en lévitation [52]. Des ensembles de centres NV couplés aux oscillateurs mécaniques permettent également d'étudier des transitions de phase magnétique en utilisant les propriétés liées au long temps de vie et au contrôle des spins dans la particule piégée [53, 54].

Récemment, la possibilité de réaliser un refroidissement de spin dans un piège de Paul [55] ouvre de nouvelles perspectives pour l'appliquer sur des pinces optiques. En effet, l'utilisation de la lévitation optique permet d'offrir d'autres pistes de recherche en présentant des avantages en terme de dynamique de piégeage où les fréquences misent en jeu sont plus élevées [56]. Mais, l'absorption par le laser de piégeage demeure un problème

majeur puisqu'il chauffe le diamant et le rend instable à pression modérée [57, 58].

Ma thèse s'inscrit dans le développement d'un système de spin-optomécanique utilisant des centres NV dans des nanodiamants en lévitation. Comme nous l'avons évoqué précédemment, l'effet du laser de piégeage peut avoir un effet négatif sur la photophysique du centre NV et du nanodiamant, notamment un échauffement de la particule. Nous avons ainsi au cours de ma thèse adressé ces différents enjeux techniques, avant de mettre en évidence les premières expériences de spin-optomécanique avec un nanodiamant en lévitation optique.

Dans le premier chapitre, nous introduirons les bases de la théorie de la lévitation optique en exposant les forces optiques permettant le piégeage. Nous présenterons également le dispositif expérimental associé à ce piège, ainsi que la méthode de détection du mouvement de la particule.

Dans le deuxième chapitre, nous présenterons les propriétés du centre NV du diamant et la possibilité de réaliser des expériences de couplage spin-mécanique. Nous démontrerons aussi qu'il constitue un excellent capteur de température. Puis, nous discuterons de l'effet du laser de piégeage sur la photophysique du centre NV ainsi que sur l'échauffement d'un nanodiamant en lévitation. Enfin, nous proposerons des éléments permettant de déterminer les causes de l'absorption des nanodiamants utilisés, et l'impact de ce phénomène sur la perte des nanodiamants vers 10 mbar.

Dans le troisième chapitre, nous nous appuierons sur les résultats de thermométrie développés dans le chapitre 2 pour discuter de l'effet du chauffage du nanodiamant sur son mouvement. Nous validerons en particulier une technique permettant de mesurer la température interne d'une nanoparticule de diamant à partir de la mesure de son mouvement. Puis, nous mettrons en évidence l'existence de processus impactant la dynamique des nanodiamants, pouvant affecter leur stabilité dans le piège optique.

Dans le quatrième et dernier chapitre, nous présenterons la détection et l'observation du mode de libration des nanoparticules dans le piège optique où nous discuterons de leur perspective et de leurs intérêts dans les expériences d'optomécanique de spin. Pour finir, nous montrerons que l'application d'un champ magnétique sur notre système permet d'atteindre un premier couplage spin-optomécanique.

Chapitre 1

Lévitation optique d'une particule dans le vide

1.1 Introduction

La mise en évidence des forces optiques appliquées à une particule diélectrique a été faites par A. Ashkin en 1970 [32]. Quelques années après, il démontre le concept de pince optique ainsi que la possibilité de piéger des particules micrométriques dans un vide poussé [33, 59]. Les premières applications de cette technique sont situées dans le domaine de la biologie [60], applications reconnues par l'attribution d'un prix Nobel de physique à A. Ashkin en 2018. En parallèle, la possibilité de confiner optiquement des particules et de refroidir des atomes offrent de belles perspectives dans le domaine de l'optique quantique [61, 62] où un autre prix Nobel de physique a été attribué, en 1997, à S. Chu, C. Cohen-Tannoudji et W. D. Phillips pour leurs expériences liées aux atomes froids [63]. Depuis 2010, la possibilité de piéger de façon stable et contrôlée optiquement des nano et micro particules dans le vide a ouvert de nouvelles perspectives. Cette approche souvent désignée sous le terme de lévitation optique aboutit à de nombreuses applications comme la détection de forces de faibles amplitudes [64, 65] ou la réalisation d'expériences d'optomécanique quantique [66, 67] visant par exemple à refroidir la dynamique de la particule pour atteindre des états quantiques sur des systèmes mésoscopiques [68] ou de tester les modèles de décohérence quantique [69]. Dans ce contexte, l'observation récente d'une nanoparticule en lévitation optique dans son état fondamental est particulièrement encourageante [68, 34, 35, 70].

Dans ce chapitre, nous développerons les bases de la lévitation optique pour com-

prendre comment piéger une particule dans le vide en commençant par décrire les forces optiques s'appliquant sur une particule diélectrique soumise à un champ électromagnétique focalisé. Nous développerons ensuite la dynamique de la particule dans un piège optique en présentant les techniques permettant de déduire les grandeurs physiques liées à sa dynamique. Nous décrirons ensuite le dispositif expérimental utilisé durant nos travaux ainsi que la technique de mesure de la position de la particule dans le piège. Pour finir, les premiers résultats expérimentaux utiles à la caractérisation de notre piège seront introduits.

1.2 Forces optiques appliquées à une nanoparticule

1.2.1 Approximation dipolaire

Une particule diélectrique dans le vide est soumise à de nombreuses forces : force de gravité, collisions avec les molécules de gaz résiduelles, ou encore des forces électrostatiques. Si on souhaite avoir une particule stable localisée en une position de l'espace, ces forces doivent être contre-balancées. Dans le cas de la lévitation optique, cela est rendu possible grâce aux forces optiques résultant d'un faisceau laser fortement focalisé.

Nous nous intéresserons dans ce paragraphe à décrire sommairement les forces optiques subies par une particule diélectrique dans un champ monochromatique dont la taille caractéristique a est beaucoup plus petite que la longueur d'onde λ du laser de piégeage afin de comprendre comment obtenir un piège optique susceptible de contre-balancer les autre forces.
Sous ces conditions, l'interaction entre la particule et le laser peut être décrite dans le cadre de l'approximation de Rayleigh. Cette approximation est vérifiée pour des particules suffisamment petites c'est-à-dire pour $a \ll \lambda$. Expérimentalement, nous utiliserons un laser à une longueur d'onde $\lambda = 1,55$ μm et des particules de rayon inférieur à 100 nm. L'approximation est alors justifiée pour notre système. On peut alors considérer la phase du champ optique constante sur tout le volume de la particule. La particule est alors assimilée à un simple dipôle électrique associé au moment dipolaire $\vec{p}$ [71] :

$$\vec{p} = \alpha(\omega)\vec{E}(\vec{r}), \tag{1.1}$$

où $\vec{E}(\vec{r})$ est le champ électrique pris à la position de la particule noté $\vec{r}$ et $\alpha(\omega) =$

$\alpha'(\omega)+i\alpha''(\omega)$ la polarisabilité complexe à la pulsation de l'onde électromagnétique notée ω.

La polarisabilité s'écrit pour une particule de volume V avec l'équation de Lorentz-Lorenz [72] :

$$\alpha_{dp}(\omega) = 3V\epsilon_0 \frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_m(\omega)}{\epsilon(\omega) + 2\epsilon_m(\omega)}, \tag{1.2}$$

où $\epsilon(\omega)$ est la constante diélectrique complexe de la particule à la pulsation d'excitation dans un milieu de constante diélectrique ϵ_m. Dans notre expérience, le milieu extérieur est assimilé au vide ayant une constante diélectrique égale à 1. Nous prendrons pour la suite $\epsilon_m = 1$.

Si l'on tient compte des pertes par radiation, la polarisabilité doit être corrigée par une polarisabilité effective [71] :

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha_{dp}}{1 - i\frac{k^3}{6\pi\epsilon_0}\alpha_{dp}} \approx \alpha_{dp} + i\frac{k^3}{6\pi\epsilon_0}\alpha_{dp}^2, \tag{1.3}$$

où $k = 2\pi/\lambda$ est la norme du vecteur d'onde. On remarque que cette polarisabilité effective a une partie imaginaire même si le matériau n'est pas absorbant. Cette propriété a des impacts sur les forces optiques, en particulier on verra toujours apparaître un terme lié à une pression de radiation quelque soit les propriétés d'absorption de la particule piégée. On peut également écrire la polarisabilité en fonction de l'indice de réfraction n plutôt qu'avec la constante diélectrique en utilisant la relation $\epsilon = n^2$.

Dans ce paragraphe, nous avons modélisé notre particule par un dipôle de polarisabilité complexe. Nous allons à présent utiliser cette modélisation pour calculer les forces optiques s'appliquant sur la particule en présence d'un faisceau gaussien monochromatique.

1.2.2 Mise en évidence des forces optiques dans les pinces optiques

La force optique s'appliquant sur un dipôle $\vec{p}$ s'écrit [71] :

$$\vec{F} = (\vec{p} \cdot \nabla)\vec{E} + \dot{\vec{p}} \times \vec{B} + \dot{\vec{r}} \times (\vec{p} \cdot \nabla)\vec{B}, \tag{1.4}$$

où l'on a omis les arguments $(\vec{r}, t)$ pour plus de clarté*. Cette équation est clef car elle rend compte des forces optiques responsables de la lévitation optique. Si l'on rentre un peu plus en détail, on observe trois termes distincts venant de l'équation 1.4. Le premier terme rend compte des inhomogénéités du champ électrique, le second terme est due à la force de Lorentz et le troisième terme est induit par les inhomogénéités du champ magnétique. Généralement le troisième terme est négligeable car la vitesse de déplacement du centre de masse de notre système reste négligeable devant la célérité de la lumière c (hypothèse non relativiste). On omettra ce terme dans la discussion qui suit.
L'expression de la force optique se réécrit alors :

$$\vec{F} = (\vec{p} \cdot \nabla)\vec{E} + \dot{\vec{p}} \times \vec{B}. \tag{1.5}$$

Il est intéressant de noter que les champs apparaissant dans l'équation 1.5 correspondent au champ d'excitation. Cela diffère du formalisme général basé sur les tenseurs de Maxwell où les champs auto-consistant sont pris en compte [71].
Pour poursuivre le calcul, nous allons simplifier le second terme de l'expression 1.5 :

$$\dot{\vec{p}} \times \vec{B} = -\vec{p} \times \frac{d\vec{B}}{dt} + \frac{d}{dt}(\vec{p} \times \vec{B}), \tag{1.6}$$

en faisant l'approximation $\frac{d\vec{B}}{dt} \approx \frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$ car la vitesse du centre de masse est petite devant la célérité de la lumière c.
En utilisant l'équation de Maxwell-Faraday $\nabla \times \vec{E} = -\frac{d\vec{B}}{dt}$, on obtient la force qui s'applique sur la particule sous la forme condensée suivante :

$$\vec{F} = (\vec{p} \cdot \nabla)\vec{E} + \vec{p} \times (\nabla \times \vec{E}) + \frac{d}{dt}(\vec{p} \times \vec{B}), \tag{1.7}$$

En injectant l'expression du moment dipolaire introduit dans l'équation 1.1, on obtient la force optique sous la forme :

$$\vec{F} = \alpha(\vec{E} \cdot \nabla)\vec{E} + \alpha\vec{E} \times (\nabla \times \vec{E}) + \alpha\frac{d}{dt}(\vec{E} \times \vec{B}). \tag{1.8}$$

On introduit la notation complexe pour pouvoir donner une expression de la force dans le cas de la moyenne temporelle. Les notations utilisées pour les vecteurs complexes des grandeurs associées sont notées avec des tildes de sorte que : $\vec{E}(\vec{r}, t) = \mathrm{Re}\{\tilde{\vec{E}}(\vec{r})e^{-i\omega t}\}$,

*. L'opérateur $\vec{p} \cdot \nabla = (p_x, p_y, p_z) \cdot (\delta/\delta x, \delta/\delta y, \delta/\delta z)$ est une notation condensée, elle doit être calculée avant d'opérer sur les vecteurs $\vec{E}$ ou $\vec{B}$.

$\vec{B}(\vec{r},t) = \mathrm{Re}\{\vec{\tilde{B}}(\vec{r})e^{-i\omega t}\}$ où ω représente la pulsation propre de l'onde excitatrice monochromatique.

En pratique, les fréquences optiques misent en jeu (typiquement 200 THz pour le laser de piégeage à $\lambda = 1550$ nm) étant plusieurs ordres de grandeurs supérieures au fréquence de réponse de la particule à un changement de polarisation, cette dernière sera sensible au champ de force optique moyenné. Le dernier terme de l'expression représente la dérivée temporelle du vecteur de Poynting. Comme dans notre cas, nous faisons l'hypothèse d'un champ moyenné, nous pouvons également faire l'hypothèse que le vecteur de Poynting mesuré est également un vecteur moyenné ce qui permet d'annuler le dernier terme de l'équation [73, 74], pour obtenir l'expression de la force optique :

$$\langle\vec{F}\rangle = \frac{1}{2}\mathrm{Re}\{\alpha(\frac{1}{2}(\vec{\tilde{E}}\cdot\nabla)\vec{\tilde{E}}^* + \vec{\tilde{E}}\times(\nabla\times\vec{\tilde{E}}^*))\}. \tag{1.9}$$

On peut écrire l'équation précédente en utilisant des identités vectorielles dont le calcul est réalisé en annexe A.1 :

$$\langle\vec{F}\rangle = \frac{\alpha'}{4}\nabla|\vec{\tilde{E}}|^2 - \frac{\alpha''}{2}\mathrm{Im}\{\vec{\tilde{E}}\times(\nabla\times\vec{\tilde{E}}^*)\} - \frac{i}{4}\alpha''\nabla\times(\vec{\tilde{E}}\times\vec{\tilde{E}}^*). \tag{1.10}$$

En utilisant l'équation de Maxwell-Faraday, $\nabla\times\vec{\tilde{E}} = i\omega\vec{\tilde{B}}$, on arrive à [74, 71] :

$$\langle\vec{F}\rangle = \frac{\alpha'}{4}\nabla|\vec{\tilde{E}}|^2 + \frac{\sigma_{\mathrm{diff}}}{c}\langle\vec{S}\rangle - \frac{\sigma_{\mathrm{diff}}c}{2}\nabla\times\langle\vec{L}\rangle \tag{1.11}$$

en introduisant la section efficace de diffusion $\sigma_{\mathrm{diff}} = k_0\alpha''/\epsilon_0$, le vecteur de Poynting en moyenne temporelle $\langle\vec{S}\rangle = \frac{1}{2\mu}\mathrm{Re}\{\vec{\tilde{E}}\times\vec{\tilde{B}}^*\}$ et la densité de spin en moyenne temporelle $\langle\vec{L}\rangle = i\frac{\epsilon_0}{2\omega}\vec{\tilde{E}}\times\vec{\tilde{E}}^*$.

Cette équation fait apparaître trois termes qu'on se propose de commenter. Pour cela, il est commode de représenter l'amplitude du champ complexe par un terme d'amplitude réel E_0 et une phase ϕ, de sorte que :

$$\vec{\tilde{E}}(\vec{r}) = E_0(\vec{r})e^{i\phi(\vec{r})}\vec{n_E}. \tag{1.12}$$

avec $\vec{n_E}$ le vecteur unitaire de la direction de polarisation du champ.

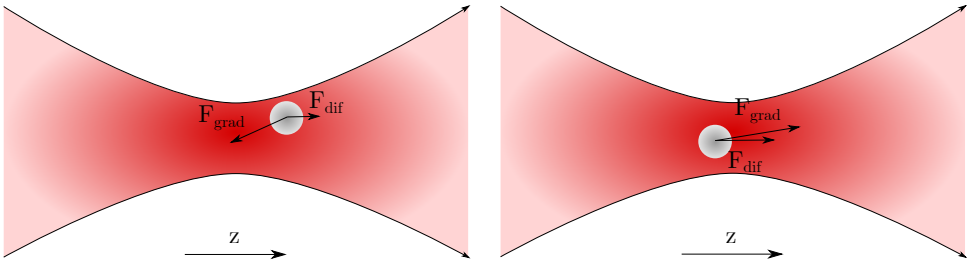

Figure 1.1 – **Forces optiques s'appliquant sur la particule**. On observe deux forces principales s'appliquant sur la particule : une force de gradient dirigée vers les plus hautes intensités et une force de diffusion dirigée dans le sens de propagation du faisceau tendant à pousser la particule hors du piège optique. Les deux graphiques montrent schématiquement la direction des forces optiques en fonction de la position de la particule dans le piège. La force de diffusion est directement proportionnelle à l'intensité du faisceau de piégeage. Elle sera donc accrue lorsqu'on se rapproche du centre de convergence du faisceau. En revanche, la force de diffusion est proportionnelle au gradient d'intensité et sera dirigée vers le centre de convergence du faisceau.

La force de gradient

On peut à présent étudier physiquement les forces qui entrent en jeu et notamment le premier terme de l'équation 1.11 appelé force de gradient. En effet, elle peut s'écrire en fonction d'un terme correspondant au gradient d'intensité :

$$\langle \vec{F}_{\text{grad}} \rangle = \frac{\alpha'}{4} \nabla |\vec{\tilde{E}}|^2 = \frac{\alpha'}{2c\epsilon_0} \nabla I \tag{1.13}$$

en posant l'intensité du faisceau de piégeage $I(\vec{r}) = \frac{1}{2} c\epsilon_0 |\vec{\tilde{E}}|^2$, où ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide. Si on étudie cette force, on observe que pour une polarisabilité réelle positive (cela correspond à des particules avec un indice de réfraction supérieur à celui du milieu, ce qui est toujours vérifié dans notre cas), la particule est attirée vers les intensités maximales. C'est pourquoi, cette force est responsable du confinement de la particule dans les pinces optiques et permet le piégeage des particules dans certaines conditions que nous introduirons progressivement. Cette force est conservative, c'est à dire que le travail produit par la particule d'un point A vers un point B est indépendant du chemin suivi pour cette force. Remarquons également que la force de gradient dépend linéairement de la polarisabilité réelle de la particule donc du volume de la particule. Dans le régime de Rayleigh, on a la propriété suivante : **la force de gradient est proportionnelle au volume de la particule et dirigée vers les maxima d'intensité**.

La force de diffusion

Le deuxième terme de l'équation 1.11 est appelé force de diffusion, elle s'écrit :

$$\langle \vec{F}_{\text{dif}} \rangle = \frac{\sigma_{\text{dif}}}{c} \langle \vec{S} \rangle. \tag{1.14}$$

Comme notre faisceau incident de piégeage est un laser polarisé linéairement dans le plan transverse à l'axe optique. On peut écrire la force de diffusion en fonction de l'intensité de piégeage I et de la section efficace de diffusion $\sigma_{\text{dif}} = \alpha'' \frac{k}{\epsilon_0} \approx \frac{\alpha'^2 k^4}{6\pi\epsilon_0^2} \approx \frac{24\pi^3 V^2}{\lambda^4} |\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}|^2$ pour une nanoparticule non absorbante [†] et du gradient de phase $\nabla\phi$ [71] :

$$\langle \vec{F}_{\text{dif}} \rangle = \frac{24\pi^3 V^2}{c\lambda^4} |\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}|^2 I \nabla\phi, \tag{1.15}$$

avec V le volume de la particule, ϵ la constante diélectrique de la particule.
C'est une force non conservative due au fait qu'il y ait un transfert de moment du champ vers la particule. De plus, cette force est dirigée dans la direction du vecteur de Poynting, soit dans celle de la propagation du champ. On peut ainsi comparer cette force à une pression de radiation qui pousse la particule dans la direction de propagation du faisceau. Cette force est proportionnelle à la partie imaginaire de la polarisabilité de la particule. Or, on a vu que la partie imaginaire de la polarisabilité était proportionnelle à la partie réelle de la polarisabilité au carré (équation 1.3). On obtient donc **une force qui est proportionnelle au volume au carré et dirigé dans le sens de propagation du faisceau de piégeage** [‡].

C'est pourquoi lorsqu'on piège de plus grosses particules, cette force devient prépondérante et doit être compensée pour espérer pouvoir conserver un confinement optique. Les expériences se faisant avec des particules micrométriques utilisent soit la gravité [33], soit deux faisceaux de piégeage contre-propageant [32] afin de contrer, voir d'annihiler la force de diffusion. Au contraire, dans le cas de piégeage de nanoparticules, cette force devient négligeable, comme nous le mettrons en évidence ultérieurement.

†. Nous montrerons dans le chapitre 2 que les nanodiamants utilisés au cours de cette thèse présentent une absorption importante, de sorte que $\alpha'' \approx 3V\epsilon_0 \frac{\epsilon''}{(\epsilon' + 2)^2}$.

‡. En effet, on peut écrire la phase ϕ en terme du vecteur d'onde $\vec{k}$ comme $\phi = \vec{k} \cdot \vec{r}$ soit $\nabla\phi = \vec{k}$ est indépendant de la taille de la particule.

La force de boucle de spin

La dernière force est liée à la densité de spin et s'écrit :

$$\langle \vec{F}_{\text{b.s.}} \rangle = -\frac{\sigma_{\text{dif}} c}{2} \nabla \times \langle \vec{L} \rangle. \tag{1.16}$$

Cette force provient des gradients de polarisation du champ électromagnétique, elle est non conservative. Dans notre cas, nous utilisons un laser polarisé linéairement, cela permet de négliger cette force. En effet, pour une polarisation linéaire, le calcul montre que cette force est strictement nulle. Les forces non conservatives se limitent uniquement à celles de diffusion. On peut noter que cette force mène à une physique riche [75, 76].

Récapitulatif des forces optiques liées au piégeage optique

De ces forces optiques, nous ne conservons que la force de gradient et la force de diffusion. On a montré que la force de diffusion est proportionnelle au volume de la particule et est responsable du confinement de la particule. Pour pouvoir piéger une particule, on en déduit qu'il faut une taille minimum pour que cette force devienne non négligeable et puisse contre balancer les autres forces qui s'appliquent sur cette particule. En revanche, la force de diffusion va tendre à pousser la particule hors du piège dans la direction de propagation du faisceau en suivant une loi d'échelle en volume de la particule au carré. De ce fait, si la particule devient trop grande, cette force devient non négligeable et va éjecter la particule hors du piège. Physiquement, on observe un encadrement de la taille de la particule que l'on peut piéger.

On se propose dans la suite de quantifier ces forces optiques et de leur donner un ordre de grandeur pour estimer un encadrement des tailles des particules susceptibles d'être piégées.

1.2.3 Évaluation des forces optiques dans l'approximation d'un faisceau gaussien

Dans le paragraphe précédent nous nous sommes intéressés aux différentes forces optiques s'appliquant sur une particule diélectrique dans le régime de Rayleigh. Nous avons déduit de cette étude que pour avoir un potentiel permettant de piéger une particule en lévitation, il fallait créer un gradient d'intensité. En résumer, il faut focaliser fortement un faisceau optique afin d'avoir un fort gradient et un potentiel susceptible de piéger

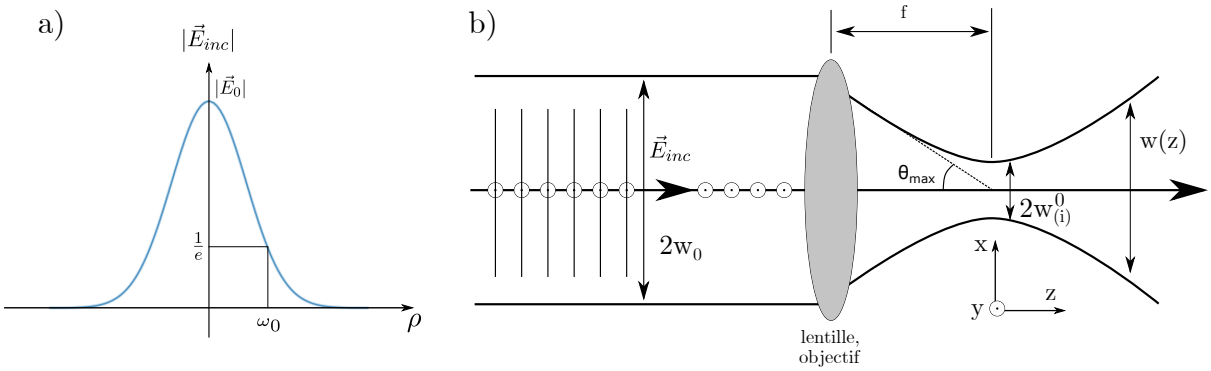

Figure 1.2 – **Profil gaussien de l'intensité et schématisation de la taille du faisceau gaussien** a) profil de l'intensité d'un faisceau gaussien. b) Schématisation de la taille du faisceau gaussien lors de sa focalisation. La polarisation de l'amplitude du champ est dirigé suivant l'axe y.

optiquement une particule. Cela permet de s'opposer à le force de diffusion.

Afin de pouvoir calculer le champ électrique focalisé par un objectif de grande ouverture numérique, une approche consiste à utiliser une décomposition du champ en ondes planes et de calculer l'intégrale de Debye [71, 77] en se plaçant dans la situation représentée sur la figure 1.2(b) où le champ incident a une amplitude notée E_{inc} passant à travers un élément réfractant (dans notre cas un objectif) de focale f :

$$\vec{E}(\rho,\psi,z) = \frac{ikfe^{-ikf}}{2\pi}\int_0^{\theta_{\max}} d\theta \int_0^{2\pi} d\phi E_{\text{inc}}(\theta,\phi) e^{ikz\cos\theta} e^{ik\rho\cos(\theta-\psi)}\sin\theta. \tag{1.17}$$

avec $\theta_{\max}$ l'angle maximal des faisceaux qu l'on a représenté sur la figure 1.2(b). Il dépend de l'ouverture numérique de la lentille notée O.N. avec O.N. $= n\sin(\theta_{\max})$ où n représente l'indice de réfraction du milieu entourant la lentille.
Cependant, afin de pouvoir traiter au moins partiellement le calcul de la force optique analytiquement, il peut être intéressant de modéliser le champ électrique au focus de l'objectif comme un faisceau gaussien du type :

$$\vec{E}(x,y,z) = \frac{E_0}{(1+(\frac{z}{z_0}^2))^{\frac{1}{2}}} e^{-\frac{x^2}{w_x^2(z)}-\frac{y^2}{w_y^2(z)}+i\phi(\rho,z)}\vec{n_y}, \tag{1.18}$$

avec $\vec{n_y}$ la direction de polarisation du faisceau incident, $w_{(i)}$ représente la taille du faisceau dans une direction où l'indice (i) désigne un axe avec $w_{(i)}(z) = w^0_{(i)}\sqrt{1+\frac{z^2}{z_0^2}}$, où $w^0_{(i)}$ représente la taille du faisceau minimale au point de convergence. La phase du faisceau

ϕ peut s'écrire :

$$\phi(x,y,z) = kz - \eta(z) + \frac{k(x^2+y^2)}{2R(z)}, \tag{1.19}$$

en désignant $\eta(z) = \arctan(z/z_0)$ la phase de Gouy et $R(z) = z(1 + z_0^2/z^2)$ le rayon de courbure du faisceau. z_0 désigne la longueur de Rayleigh selon l'axe optique. Pour un objectif de faible ouverture numérique, la taille du faisceau au centre de convergence s'écrit : $w_0' = w_x^0 = w_y^0 = \frac{2}{k\text{O.N.}}$ et $z_0 = kw_0'^2/2$.
De l'expression du champ focalisé obtenue dans l'approximation du faisceau gaussien fortement focalisé, on en déduit l'intensité I :

$$I(\vec{r}) = \frac{1}{2}c\epsilon_0|\vec{E}(\vec{r})|^2 = \frac{1}{2}c\epsilon_0\frac{E_0^2}{1+(\frac{z}{z_0}^2)}e^{-2(\frac{x^2}{\omega_x^2(z)}+\frac{y^2}{\omega_y^2(z)})}. \tag{1.20}$$

Afin d'obtenir une description physique plus appropriée dans notre cas (utilisation d'un objectif à forte ouverture numérique), nous comparons l'intensité du faisceau mesurée à partir du modèle gaussien à celle obtenue par un calcul exact en utilisant l'intégrale de Debye (l'équation 1.17). La figure 1.3 présente un ajustement des calculs exacts par le modèle gaussien, permettant à la fois de mettre en évidence l'erreur commise, et d'estimer les valeurs les plus appropriées de w_x^0, w_y^0 et z_0. Si l'on compare l'erreur commise par l'ajustement, on observe une très bonne concordance aux centres du piège. Néanmoins, sur les axes x et y, on voit apparaître des oscillations de l'intensité au niveau des ailettes présentes pour le calcul exact mais qui ne sont pas présentes dans l'approximation gaussienne. Dans le calcul exact, la dimension finie de la lentille de focalisation (ici l'objectif de microscope) est prise en compte. Au contraire, dans l'approximation gaussienne, on intègre sur tout l'espace.

Dans les conditions expérimentales utilisées (objectif de microscope d'ouverture numérique O.N. = 0,85 de focale $f_{\text{obj}} = 2,6$ mm, rayon de la taille du faisceau supposé gaussien incident $w_0 = 5$ mm et la longueur d'onde du laser de piégeage polarisé suivant l'axe y $\lambda = 1550$ nm), on détermine les valeurs de w_x^0, w_y^0 et z_0 :

$$w_x^0 = 950 \text{ nm} \tag{1.21}$$

$$w_y^0 = 800 \text{ nm} \tag{1.22}$$

$$z_0 = 1980 \text{ nm} \tag{1.23}$$

On remarque que la polarisation du laser induit une asymétrie dans le piège donnant des

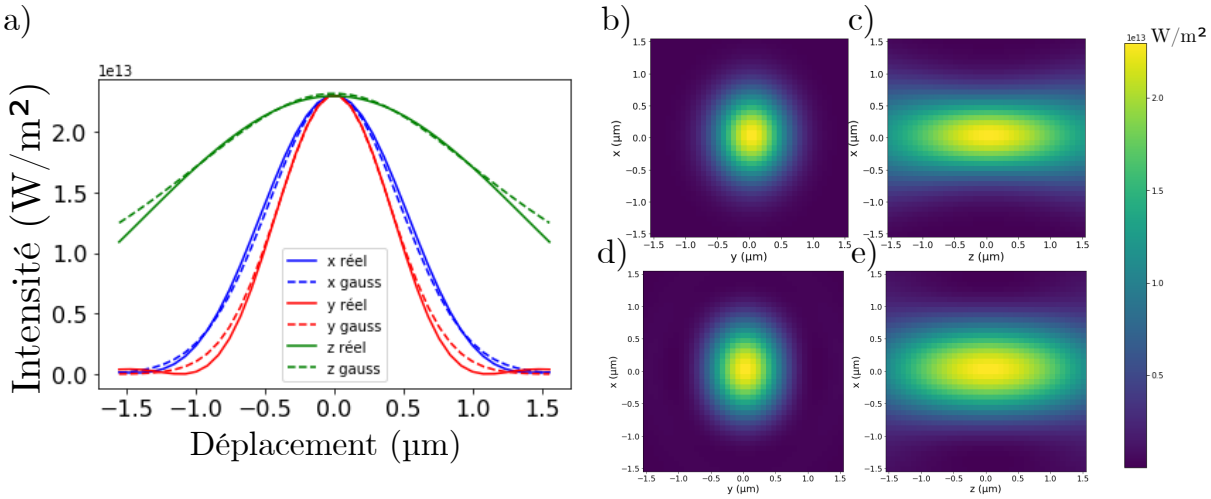

Figure 1.3 – **Intensité du faisceau focalisé.** a) Profil de l'intensité du laser de piégeage à la focalisation suivant les trois axes simulé en utilisant l'expression non approchée du champ électrique (traits pointillés), équation 1.17, et en utilisant l'expression dans l'approximation gaussienne (traits pleins), équation 1.18, en fonction de la position de la particule suivant chaque axe. Profil de l'intensité centré sur le centre de convergence en utilisant l'expression de l'intensité du champ non approchée suivant b) le plan transverse à la propagation c) suivant le plan (xz). Profil de l'intensité centré sur le centre de convergence en utilisant l'expression de l'intensité dans l'approximation gaussienne suivant d) le plan transverse à la propagation e) suivant le plan (xz).

tailles de faisceau dans les directions x et y différentes [§].

Mesure des forces optiques

Pour le calcul des forces optiques, on se placera dans l'approximation d'un champ laser de piégeage gaussien très focalisé. Le champ électrique au focus étant connu, on peut calculer les forces optiques associées. Le calcul est effectué en annexe A.2. Les expressions des forces optiques deviennent au premier ordre en déplacement :

$$\langle \vec{F}_{\text{grad}} \rangle (\vec{r}) \approx - \begin{pmatrix} k_x x (1 - \frac{2x^2}{(w_x^0)^2} - \frac{2y^2}{(w_y^0)^2} - \frac{2z^2}{z_0^2}) \\ k_y y (1 - \frac{2x^2}{(w_x^0)^2} - \frac{2y^2}{(w_y^0)^2} - \frac{2z^2}{z_0^2}) \\ k_z z (1 - \frac{4x^2}{(w_x^0)^2} - \frac{4y^2}{(w_y^0)^2} - \frac{2z^2}{z_0^2}) \end{pmatrix} \tag{1.24}$$

§. Notons que l'asymétrie n'est présente que pour l'amplitude du champ mais n'est pas prise en compte dans la phase.

$$\langle \vec{F}_{\text{dif}} \rangle (\vec{r}) = \frac{\alpha''}{\alpha'} k_z \begin{pmatrix} kxz \\ kyz \\ \gamma_0 + \gamma_x x^2 + \gamma_y y^2 + \gamma_z z^2 \end{pmatrix} \tag{1.25}$$

où les constantes de raideur pour les axes transverses et longitudinal sont données par les expressions suivantes :

$$k_x = \frac{\alpha' E_0^2}{(w_x^0)^2},\ k_y = \frac{\alpha' E_0^2}{(w_y^0)^2} \text{ et } k_z = \frac{\alpha' E_0^2}{2 z_0^2}, \tag{1.26}$$

et les constantes γ_0, γ_x, γ_y et γ_z sont données par les expressions : $\gamma_0 = z_0(z_0 k - 1), \gamma_z = (2 - z_0 k)/z_0, \gamma_x = (k/2 - 2(z_0 - k z_0^2)/\omega_{0x})$ et $\gamma_y = (k/2 - 2(z_0 - k z_0^2)/w_y^0)$.
De tous ces calculs, on remarque que dans le cas de petits déplacements, les forces optiques s'assimilent à un oscillateur harmonique dont les constantes de raideur augmentent avec la polarisation du milieu, la puissance du laser et la taille du faisceau. On retrouve des résultats assez logiques :

- plus on injecte de puissance plus la raideur du piège sera importante.
- plus la polarisabilité réelle de la particule est importante plus la raideur sera grande.
- plus le confinement (focalisation) est importante plus la raideur est grande. Lorsqu'on focalise de manière plus importante, cela se traduit par une baisse des tailles de convergence $w_{x,y}^0$ et z_0 donc des raideurs $k_{x,y,z}$.

Dans nos expériences, on considérera notre piège comme harmonique en négligeant les termes non linéaires.

Modélisation des forces optiques dans le piège

On simule sur la figure 1.4 les forces de gradient et de diffusion dans l'approximation gaussienne suivant les trois axes pour des rayons de convergence déterminés précédemment : $w_x^0 = 950$ nm, $w_y^0 = 800$ nm et $z_0 = 1980$ nm. On remarque directement que la force de diffusion est deux ordres de grandeur plus faible que la force de gradient pour les axes x et y. C'est pourquoi suivant ces axes, l'approximation consistant à négliger la force de diffusion est justifiée. Suivant l'axe z, on observe qu'il y a un ordre de grandeur de différence entre les deux forces optiques. L'approximation consistant à négliger la force de diffusion est plus ardue. On verra dans la prochaine section que la force de diffusion

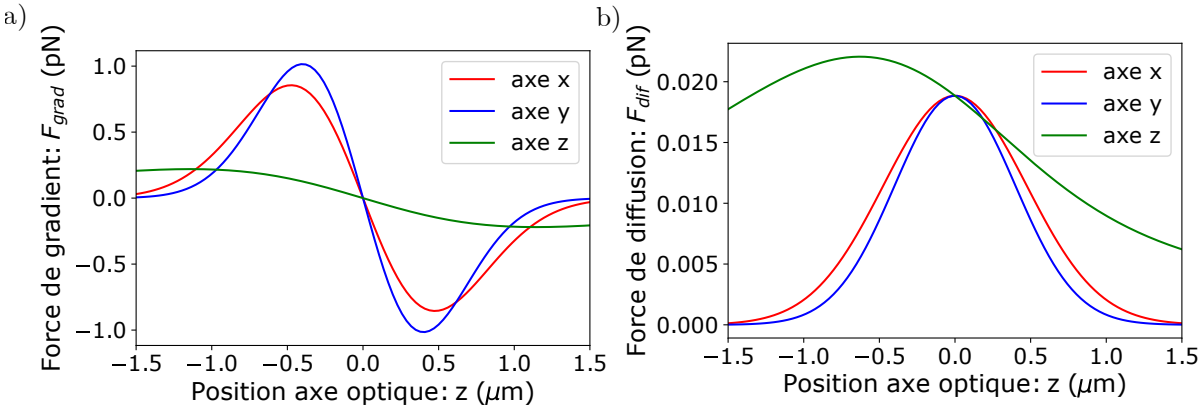

Figure 1.4 – **Simulation des forces optiques de gradient et de diffusion dans l'approximation gaussienne** a) des forces de gradient et b) des forces de diffusion suivant les trois axes mesurées pour les conditions expérimentales de notre expérience : objectif de microscope d'ouverture numérique O.N. = 0,85 de focale $f_{\text{obj}} = 2,6$ mm, rayon de la taille du faisceau supposé gaussien incident $w_0 = 5$ mm et la longueur d'onde du laser de piégeage polarisé suivant l'axe y $\lambda = 1550$ nm.

n'a pour effet que de déplacer le centre du piège optique suivant l'axe optique z.

Sur cette simulation, on remarque également que la force de gradient s'étale sur une taille de l'ordre de λ. La détection de la particule n'est pas aisée puisqu'elle est confinée dans un espace de l'ordre de 1 μm^3. Nous verrons par la suite comment réaliser la détection de la particule dans le piège.

Effet de la force de diffusion sur la position d'équilibre

On a vu qu'au premier ordre sur les forces optiques, on pouvait considérer le piège comme harmonique. Néanmoins, la force de diffusion, principalement orientée vers l'axe de propagation du faisceau z, entraîne un déplacement du centre de l'équilibre de la particule avec la présence du terme en γ_0 dans l'équation 1.25. La position d'équilibre de la particule n'est pas le centre de convergence du faisceau mais se situera sur l'axe optique. Pour déterminer cette position, il faut résoudre l'équation :

$$\vec{F}^z_{\text{grad}}(z_{eq}) + \vec{F}^z_{\text{dif}}(z_{eq}) = 0. \tag{1.27}$$

Soit, en ne gardant que l'ordre le plus bas, on obtient :

$$z_{eq} \approx \frac{\alpha''}{\alpha'} z_0(z_0 k - 1) \tag{1.28}$$

En considérant une particule non absorbante et sphérique, on peut simplifier l'expression par :

$$z_{eq} \approx 16/3\pi^3 \frac{r^3}{\lambda^3} z_0 (z_0 2\pi/\lambda - 1) \left(\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}\right) \tag{1.29}$$

avec $\lambda = 1,55$ μm la longueur d'onde de piégeage et z_0 la taille de convergence du faisceau dans la direction de propagation z mesurée dans le paragraphe précédent à l'équation 1.23. Pour une particule de rayon de l'ordre de 50 nm, ce qui correspond à la taille des particules que l'on piège, on obtient un ordre de grandeur pour la position d'équilibre de : $z_{eq} \approx 50$ nm.
Ainsi, on pourra considérer à partir de la nouvelle position d'équilibre la force de diffusion $\vec{F}_{\text{dif}}$ comme négligeable.

1.2.4 Stabilité d'une particule dans le piège optique.

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que la force de diffusion était négligeable devant la force de gradient pour des particules dont le rayon est de l'ordre de 100 nm ou moins. Dans ce cas, les forces optiques s'appliquant à la particule sont dominées par la force de gradient. Or, celle-ci est une force conservative. Une des propriétés des forces conservatives est que la force dérive d'un potentiel. On va introduire cette notion dans ce paragraphe. On pourra ainsi estimer la borne inférieure de la taille de la particule pour avoir un piège stable.

De l'expression de la force de gradient (équation 1.13) on arrive directement à l'expression du potentiel optique $U = -\frac{\alpha'}{4} I(\vec{r})$. Le confinement des particules se traduit donc par un puits de potentiel de profondeur ΔU représenté sur la figure 1.5 s'exprimant en fonction de la puissance totale du faisceau incident P_{las} et les tailles de faisceau au point de convergence $w_{x,y}$ respectivement selon les axes x et y comme :

$$\Delta U = -\frac{\alpha'}{\pi c \epsilon_0 w_x w_y} P_{\text{las}}. \tag{1.30}$$

On peut alors exprimer la barrière de potentiel pour une puissance optique de piégeage P_{las}, avec les valeurs numériques des paramètres de convergence $w_{x,y}$ calculés préalablement par les équations 1.21 et 1.22 et en rappelant que $\alpha' = 3V\epsilon_0 \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}$ pour une particule sphérique non absorbante :

$$\Delta U = -\frac{4r^3}{3c\omega_x\omega_y} \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} P. \tag{1.31}$$

Une simulation de cette barrière de potentiel est tracée sur la figure 1.5 en fonction du rayon de la particule, en prenant un indice de réfraction réel $n = 2,4$ pour le diamant.

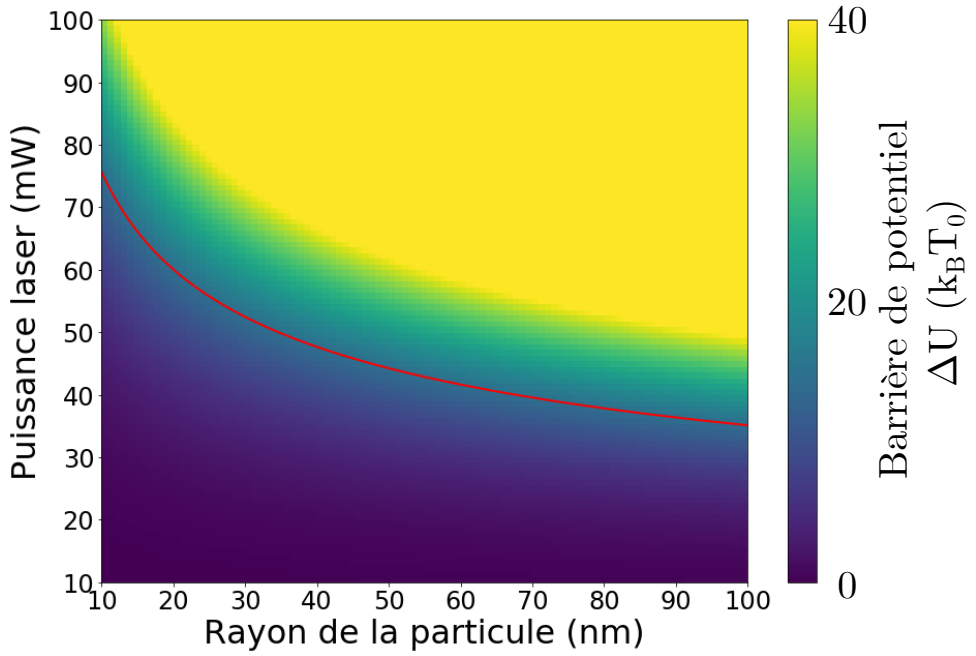

Figure 1.5 – **Barrière de potentiel ΔU.** Simulation de la barrière de potentiel crée par notre piège optique en fonction de la taille de la particule. On fait apparaître en rouge la valeur de la barrière égale à $15k_BT_0$ correspondant à notre critère de limite de stabilité de la particule dans notre piège. Ainsi, on voit apparaître la borne inférieure pour le rayon de la particule pour qu'elle puisse être piéger en fonction de la puissance laser correspondant à la courbe rouge.

Pour estimer la barrière de potentiel nécessaire pour avoir une particule stable dans le piège, il faut avoir une idée du temps moyen de piégeage de la particule. Pour cela, on compare la barrière du puits de potentiel crée avec l'énergie thermique environnante à la particule. L'énergie d'un bain thermique suit la distribution de Maxwell-Boltzmann avec une énergie moyenne égale à $E_0 = k_BT_0$ où T_0 représente la température du bain soit 294 K dans notre expérience. Même si cette distribution n'est pas bornée en énergie et peut atteindre des hautes énergies, un critère pour que la particule soit stable dans le piège est $\Delta U \gg E_0$ que l'on formalisera par $\Delta U > 15E_0$.
Essayons de mettre un ordre de grandeur sur le temps que la particule met à s'échapper du piège. Si l'on considère le système schématisé sur la figure 1.6 constitué d'un puits de potentiel harmonique de fréquence propre ω_0 et d'une barrière de potentiel infinie d'un côté et de hauteur finie de l'autre, la barrière de potentiel ainsi créé est notée ΔU. Le taux de perte de la particule R, c'est à dire le taux pour que la particule franchisse la

barrière de potentiel s'écrit [78] :

$$R = R_0 e^{-\frac{\Delta U}{k_B T_0}}, \tag{1.32}$$

avec R_0 un taux de perte caractéristique. On cherche ici le temps de sortie typique de la particule $\tau_{\text{sortie}} = 1/R$. Le but est de trouver un ordre de grandeur à R_0 pour obtenir ce temps de sortie.

Une estimation naturelle de R_0 est alors :

ΔU ($k_B T_0$)	τ_{sortie} (secondes)	τ_{sortie} (heures)	τ_{sortie} (jours)	τ_{sortie} (années)
10	0,2	6,1e^{-5}	2,6e^{-6}	7,0e^{-9}
15	32	9,1e^{-3}	3,8e^{-4}	1,0e^{-6}
20	4,8e^{3}	1,3	5,6e^{-2}	1,5e^{-4}
25	7,2e^{5}	2,0e^{2}	8,3	2,2e^{-2}
30	1,1e^{8}	3,0e^{4}	1,2e^{3}	3,4
35	1,6e^{10}	4,4e^{6}	1,8e^{5}	5,0e^{2}
40	2,4e^{12}	6,5e^{8}	2,8e^{7}	7,5e^{4}

Table 1.1 – Estimation du temps de perte de la particule dans le piège optique noté τ_{sortie} en fonction de la barrière de potentiel appliquée ΔU en unité de $k_B T_0$.

$$R_0 \sim \frac{\omega_0}{2\pi}. \tag{1.33}$$

En effet, cela correspond à la fréquence d'oscillation de la particule dans le piège. Notons que la détermination exacte de R_0 nécessite de connaître la forme tridimensionnelle du potentiel [79], et dépend du régime d'amortissement [80]. Néanmoins, le choix simple effectué ici fourni une bonne idée du temps de sortie attendu :

$$\tau_{\text{sortie}} \approx \tau_{\text{osc}} e^{\frac{\Delta U}{k_B T_0}}. \tag{1.34}$$

Dans les paragraphes suivants, nous verrons que l'ordre de grandeur des fréquences d'oscillations de la particule dans le piège est $f_{\text{osc}} \sim 100$ kHz. On en déduit le temps pendant lequel la particule reste dans le piège (tableau 1.1). Une grandeur intéressante est celle pour laquelle $\Delta U = 15\ k_B T_0$. Le temps de perte est de 30 secondes ce qui correspond bien à une limite de stabilité dans notre cas. Lorsque la barrière de potentiel augmente à $\Delta U = 30\ k_B T_0$, la particule est piégée pendant quelques années !

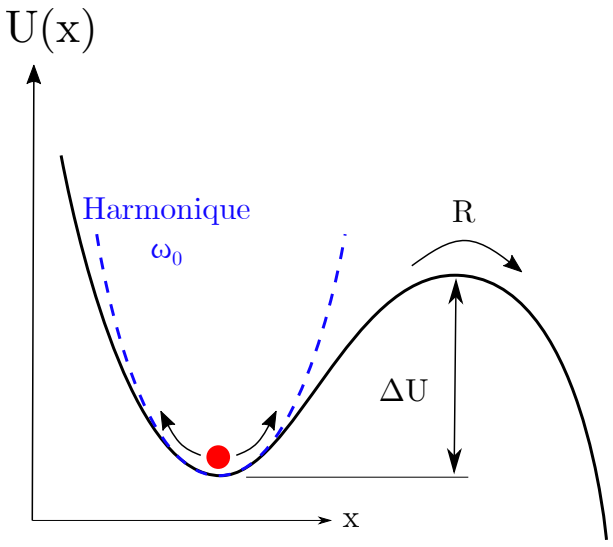

Figure 1.6 – **Schématisation de la perte de la particule.** Schéma représentant la barrière de potentiel suivant un axe où la particule est soumise à un potentiel U que l'on suppose harmonique de pulsation propre ω_0. La perte de la particule est définit par un taux noté R mesurable.

Pour estimer la barrière de potentiel dans notre expérience, nous avons mesuré la puissance à laquelle nous perdons la particule. Lorsque la particule s'échappe, on le modélise par le critère suivant : $\Delta U(P_{\text{perte}}) \approx 15\ k_B T_0$. Même si dans nos expériences, la puissance optique sera amenée à être variable, à la puissance de fonctionnement usuelle ($P_{\text{las}} = 100$ mW), nous pouvons écrire $\Delta U(P_{\text{usuel}}) \approx 15\ k_B T_0 \dfrac{P_{\text{usuel}}}{P_{\text{perte}}} \approx 40\ k_B T_0$. Sur nos temps d'expériences, typiquement quelques jours, la particule est stable dans le piège à ce potentiel puisque le temps de perte est estimée à plusieurs années.

Dans cette section, nous avons décrit les forces optiques s'appliquant sur une particule diélectrique. On a pu simuler le faisceau optique responsable du piège par une approximation gaussienne qui nous permet de déterminer les paramètres expérimentaux de la convergence du faisceau. De plus, nous avons modélisé la force optique responsable du piège par un potentiel harmonique dans le cas des petits déplacements. Le premier ordre non linéaire a été calculé et représente ce qu'on appelle la correction de Duffing [77]. Elle sera négligée dans la suite de notre travail. La barrière de potentiel créée permet d'obtenir des particules stables pendant des temps très longs par rapport aux temps expérimentaux caractéristiques. Nous allons maintenant nous intéresser à la dynamique de la particule dans le piège.

1.3 Dynamique d'une particule en lévitation

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré qu'avec un laser à 1.55 μm avec une puissance de 100 mW, nous obtenons un piège stable pour des particules nanométriques. Nous allons à présent décrire le mouvement de la particule dans un tel piège. En effet, la particule n'est pas seulement soumise aux forces optiques mais aussi à d'autres interactions. Dans ce paragraphe nous prendrons en compte ces autres forces permettant de décrire la dynamique de la particule dans le piège.

1.3.1 Équation du mouvement de la particule

La prise en compte de toutes les interactions extérieures avec la particule de masse m soumise à un faisceau fortement focalisé permet d'écrire à partir de l'équation du mouvement :

$$m\ddot{\vec{r}}(t) = \sum \vec{F} \tag{1.35}$$

$$m\ddot{\vec{r}}(t) = \vec{F}_{\text{opt}}(t) + \vec{F}_{\text{fluc}}(t) + \vec{F}_{\text{autres}}(t) + \vec{F}_{\text{amor}}(t) \tag{1.36}$$

où les forces $\vec{F}_{\text{opt}}$ représentent les forces optiques s'appliquant sur la nanoparticule décrites précédemment. Comme discuté dans la section 1.2.2, nous approximerons l'effet des forces optiques par un oscillateur harmonique 3D. Ainsi, selon une direction $q \in \{x, y, z\}$, on peut écrire la force optique comme $F_{\text{opt}} \approx -m\omega_q^2 q$ avec $\omega_q = \sqrt{\frac{k_q}{m}}$ représentant la fréquence propre de l'oscillateur harmonique et où k_q représente la raideur de l'oscillateur. La raideur est définit par les équations 1.26. Dans la suite de notre description, nous ferons une description unidimensionnelle en supposant qu'il n'y ait pas d'interactions entre les différents axes.
Ce passage en une dimension permet d'écrire la force dite d'amortissement comme $F_{\text{amor}} = -m\gamma\dot{q}$ où γ représente le coefficient d'amortissement ¶. La force de fluctuation $\vec{F}_{\text{fluc}}$ permet de modéliser l'interaction de la particule piégée avec son environnement. Elle décrit les collisions aléatoires de cette particule avec les molécules du gaz environnantes, qui induisent des modifications stochastiques de la trajectoire de la particule piégée. L'idée d'ajouter un terme stochastique dans la dynamique d'une particule pour décrire son mouvement Brownien a été introduite par A. Einstein en 1905 [81], puis formalisée par Callen

¶. Dans notre description unidimensionnelle ce coefficient est un scalaire. Si l'on passe à une description 3D, il faut prendre en compte les interactions entre les différents axes et ce coefficient peut prendre la forme d'un tenseur tridimensionnel. Pour une particule sphérique, ce coefficient reste scalaire.

et Welton en 1951 [82]. Cette force de fluctuations stochastiques a une valeur moyenne nulle :

$$\langle \vec{F}_{\text{fluc}} \rangle = \vec{0}. \tag{1.37}$$

D'autre part, sa fonction d'autocorrélation est liée à l'amortissement γ par le théorème de fluctuation-dissipation [83], tel que :

$$\langle \vec{F}_{\text{fluc}}(t)\vec{F}_{\text{fluc}}(t+\tau) \rangle = 2m\gamma k_B T_0 \delta(\tau) \tag{1.38}$$

où k_B représente la constante de Boltzmann, T_0 la température du système[‖] et δ la distribution de Dirac. Dans l'équation 1.36, l'écriture $\vec{F}_{\text{autres}}$ permet de tenir compte de toutes les autres forces qui pourraient agir sur la particule. On peut penser à des forces de type : force de gravité, forces électrostatiques... Néanmoins, nous avons fait l'hypothèse de négliger ces forces dans la suite de ce chapitre. Au final, l'équation du mouvement de la particule dans le piège peut s'écrire pour une dimension :

$$\ddot{q} + \gamma\dot{q} + \omega_q^2 q = \frac{F^q_{\text{fluc}}}{m}. \tag{1.39}$$

Coefficient d'amortissement

Le coefficient d'amortissement γ, présent à la fois dans le terme lié à la force d'amortissement et dans le terme de la force de fluctuations à travers le théorème de fluctuation-dissipation, est caractéristique des interactions entre la particule et les molécules de gaz environnantes. Il peut être quantifié à partir de la théorie de la cinétique des gaz. Le coefficient γ peut alors s'écrire pour une particule sphérique de rayon a [84] :

$$\gamma = \frac{6\pi\eta a}{m}\frac{0,619}{0,619+\text{Kn}}(1+c_K) \tag{1.40}$$

où η représente le coefficient de viscosité de l'air $\eta = 18,27\times10^{-6}$ Pa.s [85], Kn représente le nombre de Knudsen $\text{Kn} = l/a$ qui compare le libre parcours moyen des molécules de gaz l avec la taille de la particule et un coefficient c_k de formule : $c_K = 0,31\text{Kn}/(0,785 + 1,1252\text{Kn} + \text{Kn}^2)$. Le libre parcours moyen des molécules de gaz est donné par [84] :

$$l = \frac{\eta}{p_{\text{gaz}}}\sqrt{\frac{\pi N_A k_B T}{2M}}, \tag{1.41}$$

‖. Notons que cette formule est valide pour un système à l'équilibre. Dans le chapitre 2, où je présenterai des résultats pour un système hors équilibre, j'en proposerai une version modifiée

avec la masse molaire de l'air $M = 28,97 \times 10^{-3}$ kg/mol [85], N_A la constante d'Avogadro et p_{gaz} la pression.
Le libre parcours moyen des molécules d'air à pression ambiante est : $l \approx 100$ nm, ce qui est de l'ordre de grandeur du rayon de la particule piégée. Le libre parcours moyen étant inversement proportionnel à la pression du gaz, on aura dans le vide $\text{Kn} \gg 1$. Dans ce cas, le coefficient d'amortissement se réécrit sous la forme [86] :

$$\gamma \approx \frac{6\pi\eta a}{m}\frac{0,619}{\text{Kn}} \propto \frac{p_{\text{gaz}}}{a}. \tag{1.42}$$

On retiendra que le coefficient d'amortissement est proportionnel à la pression. C'est un avantage des particules en lévitation, où le couplage à l'environnement peut en principe être rendu arbitrairement petit en diminuant la pression dans la chambre à vide. Notons aussi que la dépendance en $\frac{1}{a}$ permet comme on le verra dans la suite d'estimer la taille de la particule considérée.

1.3.2 Densité Spectrale de Puissance

Pour étudier l'équation du mouvement 1.39, il est commode de la traiter dans le domaine fréquentiel. Pour cela, on s'intéresse au calcul de la Densité Spectral de Puissance, qu'on notera par la suite DSP, définie comme [86] :

$$S_{qq}(\omega) = 2\pi \lim_{T\to+\infty} \frac{1}{T}|\tilde{q}(\omega)|^2, \tag{1.43}$$

qui représente l'amplitude du mouvement à la pulsation ω où l'on a introduit la notation $\tilde{f}$ représentant la transformée de Fourier d'une fonction f **.
En vertu du théorème de Wiener-Khintchine, cette DSP peut aussi s'écrire [87] :

$$S_{qq}(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \langle q(t)q(t+\tau)\rangle e^{i\omega\tau}. \tag{1.44}$$

Pour exprimer la DSP, il faut calculer la transformée de Fourier de la position de la particule ††. Pour se faire, on applique la transformée de Fourier à l'équation du mouvement 1.39 :

$$\tilde{q}(\omega)\left[-m\omega^2 - im\gamma\omega + m\omega_0^2\right] = \tilde{F}^q_{\text{fluc}}(\omega), \tag{1.45}$$

**. On définit la transformée de Fourier $\tilde{f}$ de la fonction f par $f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt\tilde{f}(\omega)e^{i\omega t}$ et la transformée de Fourier inverse par $\tilde{f}(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega f(t)e^{i\omega t}$

††. Lorsqu'on applique la transformée de Fourier à une dérivée temporelle de la position, cela revient à multiplier par $-i\omega$

$$\tilde{q}(\omega) = \frac{\tilde{F}^q_{\text{fluc}}(\omega)}{(-m\omega^2 - im\gamma\omega + m\omega_0^2)}. \tag{1.46}$$

On arrive à simplifier l'équation 1.43, en utilisant l'équation 1.46 et le fait que $\int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i\omega\tau} = 2\pi\delta(\omega)$:

$$S_{qq}(\omega) = \frac{k_B T_0 \gamma}{\pi m((\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2)}, \tag{1.47}$$

En utilisant la transformée Fourier inverse de l'équation 1.44, on aboutit à l'équation :

$$\langle q^2(t)\rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega S_{qq}(\omega) = \frac{k_B T_0}{m\omega_0^2}. \tag{1.48}$$

On introduit un coefficient A tel que $A = \dfrac{k_B T_0}{m\omega_0^2}$. On peut alors écrire l'équation 1.47 comme :

$$S_{qq}(\omega) = \frac{A}{\pi} \frac{\gamma\omega_0^2}{(\omega_0^2 + \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2}, \tag{1.49}$$

équation que l'on utilisera par la suite pour étudier la dynamique de la particule.
On retrouve à partir de ces équations l'équipartition de l'énergie. En effet, l'énergie potentiel du mouvement de la particule selon un axe est liée à la température du bain extérieur par l'expression : $\langle E_{\text{pot}}\rangle = \frac{1}{2} m\omega_0^2 \langle q^2(t)\rangle = \frac{1}{2} k_B T_0$. La température de centre de masse selon un axe peut s'exprimer : $k_B T_0 = \langle E_{\text{tot}}\rangle = \langle E_{\text{pot}}\rangle + \langle E_{\text{cin}}\rangle$. Théoriquement, on peut déterminer la valeur de cette énergie soit par une mesure directe de la moyenne des positions au carrée $\langle q^2(t)\rangle$ soit par un ajustement de la DSP qui fournit le coefficient A directement lié à $\langle q^2(t)\rangle$ puisque $A = \langle q^2(t)\rangle$.
Nous avons présenté les équations permettant de comprendre la dynamique de la particule dans le piège. À présent nous allons décrire le montage expérimental permettant de piéger les nanoparticules de diamant et d'étudier cette dynamique.

1.4 Montage expérimental

1.4.1 Le piège optique

Le schéma expérimental est présenté sur la figure 1.7. Le montage expérimental est constitué d'une partie liée à la pince optique où l'on retrouve dans l'ordre de propagation du faisceau :

— un laser continu infrarouge ‡‡ pouvant atteindre 1 W de puissance et émettant à

‡‡. Le laser utilisé est un laser Kheopsys CEFL-kilo (*Continuous Erbium-doped fiber amplifier*). C'est un laser continu fabriqué pour une utilisation à 1,55 μm

une longueur d'onde $\lambda = 1{,}55$ μm. Il est associé à un contrôleur de puissance utilisant un modulateur acousto-optique permettant de faire varier la puissance de piégeage.

— un système permettant de contrôler la polarisation du faisceau utilisant un polarisateur, une lame demi-onde et une lame quart d'onde, le tout adapté au laser infrarouge utilisé. Ils seront notés respectivement Pol, $\lambda/2$ et $\lambda/4$ sur la figure 1.7.

— un ensemble de miroirs permettant de contrôler la trajectoire du faisceau laser.

— un objectif de microscope[§§] permettant de focaliser la lumière sur une surface limitée par la diffraction créant les forces optiques responsables du piégeage. Ces forces sont décrites dans les paragraphes précédents.

— une lentille de collection permettant de collecter la lumière diffusée par la particule afin de mesurer son mouvement dans le piège comme nous le verrons dans la section 1.5.

Même si l'objectif de microscope n'est pas adapté à la longueur d'onde de piégeage[¶¶], une mesure de la transmittance T à travers nos optiques donne pour la longueur d'onde de piégeage à 1,55 μm, $T(1{,}55\ \mu\text{m}) \approx 30$ %. C'est une valeur acceptable car elle permet d'atteindre des puissances supérieures à 100 mW nécessaires pour piéger facilement des nanoparticules. Nous n'avons pas utilisé de lentille asphérique optimisée à 1,55 μm car nous verrons dans la suite que l'on utilise également cet objectif afin de collecter et de focaliser de la lumière visible. Pour finir, la polarisation du laser de piégeage est contrôlée par un système constitué d'un cube polariseur et de lames retards.

Une autre partie du montage expérimental permet de détecter et mesurer la position de la particule. Elle est représentée sur le schéma de la figure 1.7 par une flèche après la lentille de collection. Elle sera détaillée dans un paragraphe ultérieur. Un deuxième laser vert émettant à 532 nm est adapté au montage. Il permet l'excitation optique des diamants piégés, comme nous le verrons dans le chapitre 2.
Pour finir, une enceinte à vide est installée à notre système afin de contrôler les conditions de pression de notre système.

§§. L'objectif utilisé dans notre expérience est l'objectif Olympus LCPLN100XIR d'ouverture numérique ON = 0,85 adapté pour des longueurs d'onde dans le proche infrarouge.

¶¶. Un compromis a dû être trouvé pour, à la fois transmettre la longueur d'onde du laser de piégeage et à la fois transmettre la lumière visible rétro-diffusée par photoluminescence des centres NV du diamant (cf chapitre 2)

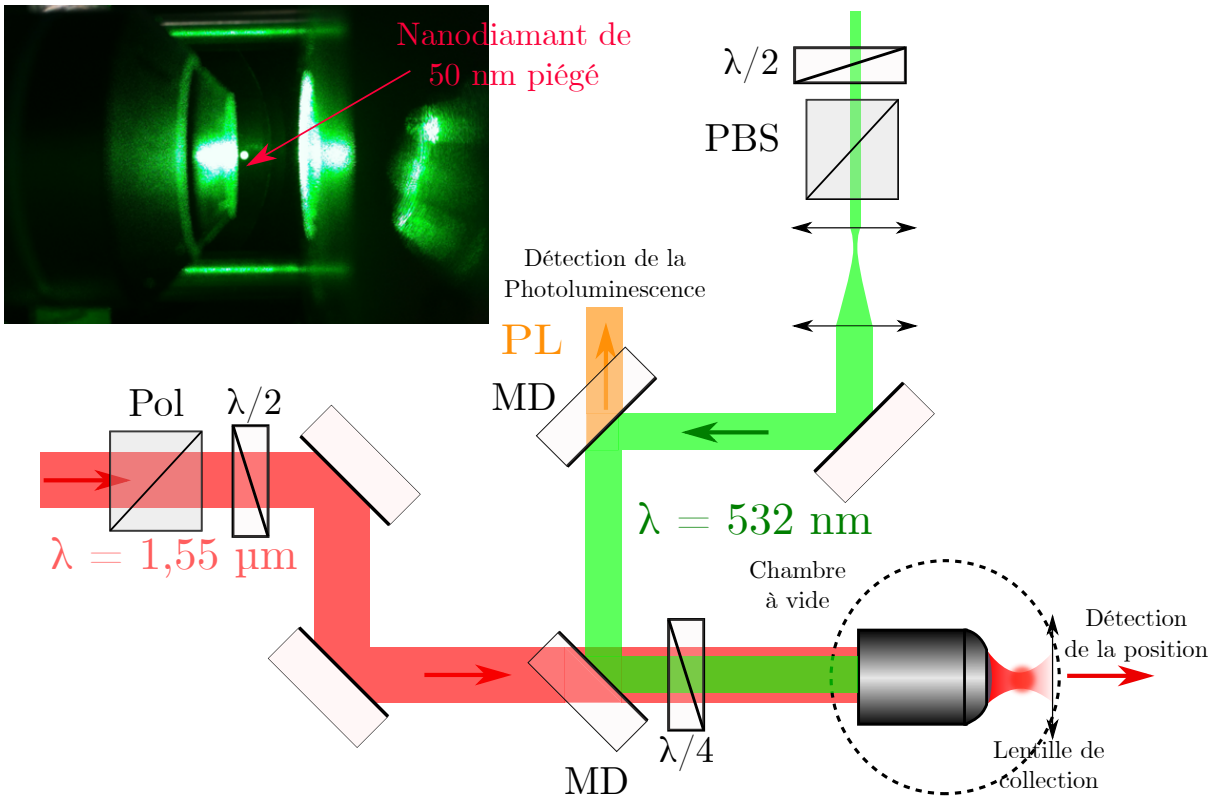

Figure 1.7 – **Schéma du dispositif expérimental.** Le système expérimental est composé d'un piège optique réalisé à partir d'un laser à 1,55 μm permettant de créer une barrière de potentiel susceptible de piéger une particule. Sur la photo en insert, on observe un nanodiamant d'environ 50 nm piégé optiquement. La diffusion de la lumière visible à 532 nm permet de l'observer directement à l'œil nu. Deux parties distinctes seront traitées par la suite avec la détection de la position de la particule et la détection de la photoluminescence. Sur le schéma, le cube noté Pol représente un cube polariseur permettant de polariser linéairement la lumière. Les notations $\lambda/2$ et $\lambda/4$ représentent les lames retards contrôlant la polarisation du laser de piégeage. Les miroirs notés MD sont des miroirs dichroïques permettant de séparer différentes longueurs d'onde.

1.4.2 Le système à vide

Nous avons décidé d'adapter une chambre à vide permettant de contrôler la pression afin d'isoler la particule piégée de l'environnement. En effet, lorsqu'on réduit la pression, on limite les interactions avec l'environnement permettant d'atteindre des régimes où notre système se comporte comme un oscillateur de très grand facteur de qualité [88]. Notre système expérimental est constitué d'une chambre à vide permettant de réduire la pression jusqu'à 10^{-5} mbar. Pour diminuer davantage la pression dans l'enceinte, il faudrait optimiser la chambre à vide, ce qui est envisageable. Néanmoins, nous verrons dans la partie suivante qu'il n'est actuellement pas nécessaire, dans notre cas, d'atteindre à un vide poussé. La chambre à vide comporte plusieurs fenêtres traitées pour laisser

passer les faisceaux lasers et permettent d'adapter une caméra pour visualiser la diffusion de la particule sur une caméra.
Pour mesurer la pression dans l'enceinte, nous utilisons une jauge à membrane pour réaliser des mesures précises entre 10 mbar et 1 bar (précision de 0,2%) combinée à une jauge Pirani adaptée à la mesure de pression de 10^{-9} mbar à 10 mbar (précision de 30%).

1.4.3 Piégeage de particules

Pour piéger des nanoparticules, nous pulvérisons des gouttelettes d'une solution d'éthanol pure contenant des nanoparticules de diamant à proximité du piège optique à l'aide d'un nébuliseur [77]. Cette méthode n'est pas sélective, c'est-à-dire que l'on ne sait pas quelle particule nous allons piéger. Lorsqu'une nanoparticule de diamant est piégée, un point lumineux caractéristique de la diffusion de la particule apparaît qui est visible à l'œil nu (pour une lumière diffusée dans le domaine du visible), comme nous pouvons le voir sur la photo en insert de la figure 1.7. La solution utilisée permet d'avoir en moyenne moins d'un nanodiamant par gouttelette pulvérisée, ce qui évite de piéger un agrégat de nanodiamants.
L'équipe envisage dans le futur de réaliser un dispositif qui permettrait de contrôler le piégeage, c'est-à-dire créer un piège capable de sélectionner une particule pour l'étudier.

1.5 Mesure de la position de la particule

1.5.1 Introduction

Dans cette partie, nous allons étudier la mesure de la dynamique de la particule pour en comprendre son processus. Pour cela, on utilise des détecteurs balancés à semi conducteur InGaAs. À partir d'une mesure interférométrique à chemin commun [77], on mesure la dynamique de la particule selon une direction. La figure 1.9 présente un schéma de principe de cette détection. Lorsque la particule est piégée dans la pince optique, elle va se déplacer dans le puits de potentiel et diffuser la lumière. La phase de l'onde diffusée va alors dépendre de la position de la particule dans le piège (cf figure 1.8). Ainsi, le signal issu de la superposition de cette onde diffusée et du faisceau de référence transmis à travers la chambre à vide, de phase fixe, contient une information sur la position de la particule. En particulier, en enregistrant la différence d'intensité entre le haut et le bas [respectivement gauche et droite] du faisceau à la sortie de la chambre, les détecteurs

enregistrent un signal qui est, au premier ordre, proportionnel au déplacement selon l'axe y vertical [respectivement x horizontal]. L'intégration de l'intensité sur toute la surface du faisceau donnera un signal proportionnel au déplacement selon l'axe optique z. Pour quantifier plus précisément ces signaux, nous nous intéressons maintenant à la description physique du champ diffusé par la particule.

1.5.2 Champ diffusé par la particule

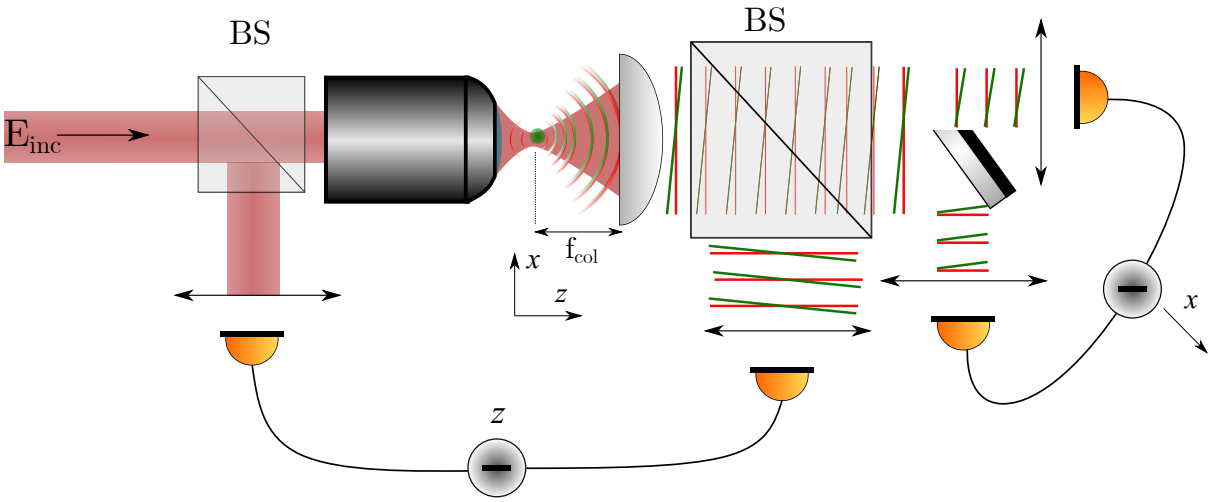

Figure 1.8 – **Schématisation de l'onde diffusée par la particule.** Le champ diffusé par la particule peut être vu comme une onde sphérique, centrée sur la particule, représentée par les fronts d'onde vert. La lentille de collection transforme cette onde sphérique en une onde plane, dont les fronts d'onde seront inclinés d'un angle proportionnel au déplacement latéral de la particule. Le champ associé au laser de piégeage, simplement transmis à travers la chambre (front d'onde rouge), est quant à lui indépendant de la position de la particule. L'interférence de ces deux champs produit un signal dont on peut déduire la position de la particule.

On rappelle que dans le régime de Rayleigh le moment dipolaire induit par le champ $\vec{E}$ est donné par [71] :

$$\vec{p} = \alpha \vec{E}(\vec{q}) \tag{1.50}$$

Si on considère que la polarisation du laser est linéaire est suivant l'axe y, alors les champs locaux sont aussi principalement polarisés suivant cet axe. Cela permet de justifier le fait que le moment dipolaire est aligné suivant cet axe y : $\vec{p} = p\vec{u_y}$ avec $\vec{u_y}$ le vecteur unitaire de l'axe y.
Le champ émis par le dipôle induit pour un observateur à la position $\vec{r} = (x, y, z)$ est

décrit par [71] :

$$\vec{E}_{\mathrm{dp}}(\vec{r}) = \omega^2 \mu_0 \vec{G}(\vec{r}, \vec{q})\vec{p} \tag{1.51}$$

avec la fonction de Green $\vec{G}$ dans l'espace libre pour un champ lointain donnée par [71] :

$$\vec{G}(\vec{r}, \vec{q}) = \frac{e^{ik\vec{R}}}{4\pi R}[\vec{I} - \frac{\vec{R}\vec{R}}{R^2}] \tag{1.52}$$

avec $\vec{R} = \vec{r} - \vec{q} = (R_x, R_y, R_z)$, $R = |\vec{r} - \vec{q}|$ et $\vec{I}$ la matrice identité.
On en déduit le champ dipolaire émis par la particule :

$$\vec{E}_{\mathrm{dp}}(\vec{r}) = k^2 \frac{e^{ik\vec{R}}}{4\pi\epsilon_0 R} p[\vec{n_y} - \frac{R_y \vec{R}}{R^2}] \tag{1.53}$$

Dans le cas d'une observation aux petits angles $\frac{R_y}{R} \ll 1$, le second terme de l'équation $\frac{R_y \vec{R}}{R^2}$ peut être négligé. On obtient donc l'expression d'une onde sphérique. Pour les petits déplacements $\vec{q}$ par rapport au centre de focalisation du laser, on fait l'approximation pour la phase, $R = \sqrt{|\vec{r}|^2 + |\vec{q}|^2 - 2\vec{r}.\vec{q}} \approx |\vec{r}| - \frac{\vec{r}.\vec{q}}{|\vec{r}|}$ et pour le terme en amplitude, $R \approx |\vec{r}|$. C'est ce qu'on appelle couramment l'approximation de Fraunhofer. Pour finir, on a l'expression du champ dipolaire dans cette approximation :

$$\vec{E}_{\mathrm{dp}}(\vec{r}) \approx \frac{k^2 p}{4\pi\epsilon_0 |\vec{r}|} e^{i(k|\vec{r}| - k\frac{\vec{r}.\vec{q}}{|\vec{r}|})} \vec{n_y}. \tag{1.54}$$

La lumière est ensuite collectée par une lentille de focale f_{col} placée de telle sorte que la particule piégée est sur la plan focal objet. Ainsi, la lentille va transformer cette onde sphérique en une onde plane [71] se propageant suivant l'axe z avec un déphasage kf_{col}. Le champ collimaté, diffusé par la particule à la position $r' = (x, y, z')$ où z' est la coordonnée longitudinale après la lentille de collection, s'écrit alors :

$$\vec{E'}_{\mathrm{dp}}(\vec{r'}) = \vec{E}_{\mathrm{dp}}(\vec{r}_{\mathrm{ref}}) e^{-ikf_{\mathrm{col}}} e^{ikz'} \tag{1.55}$$

avec $\vec{E}_{dp}(\vec{r_{ref}})$ le champ dipolaire rayonné pris sur la sphère de rayon $|r_{\mathrm{ref}}| = f_{\mathrm{col}}$ et de coordonnées $\vec{r}_{\mathrm{ref}} = (x, y, z_{\mathrm{ref}})$. On en déduit :

$$\vec{E'}_{\mathrm{dp}}(\vec{r'}) \approx \frac{k^2 p}{4\pi\epsilon_0 f_{\mathrm{col}}} e^{i(kf_{\mathrm{col}} - k\frac{\vec{r}_{ref}.\vec{q}}{f_{\mathrm{col}}})} \vec{n_y} e^{-ikf_{\mathrm{col}}} e^{ikz'} \tag{1.56}$$

On utilise le fait que $z_{\text{ref}} = \sqrt{f_{\text{col}}^2 - x^2 - y^2} \approx f_{\text{col}} - \frac{\rho^2}{2f_{\text{col}}^2}$ où $\rho = x^2 + y^2$:

$$\vec{E'}_{\text{dp}}(\vec{r'}) \approx \frac{k^2 p}{4\pi\epsilon_0 f_{\text{col}}} e^{ik(z' - \frac{q_x}{f_{\text{col}}}x - \frac{q_y}{f_{\text{col}}}y)} e^{-ikq_z(1-\frac{\rho^2}{2f_{\text{col}}^2})} \vec{n_y} \tag{1.57}$$

Ainsi, la première exponentielle décrit le fait que l'onde plane est inclinée d'un angle déterminé par le déplacement $q_{x,y}$ de la particule dans le plan orthogonal à la propagation de la lumière. Chose remarquable, la phase dans ce plan dépend linéairement de la position de la particule. La seconde exponentielle décrit la dépendance de la phase suivant le déplacement de la particule dans le sens de propagation de la lumière z. Ce déplacement longitudinal entraîne également un déplacement de la phase de façon linéaire.

1.5.3 Détection de la particule

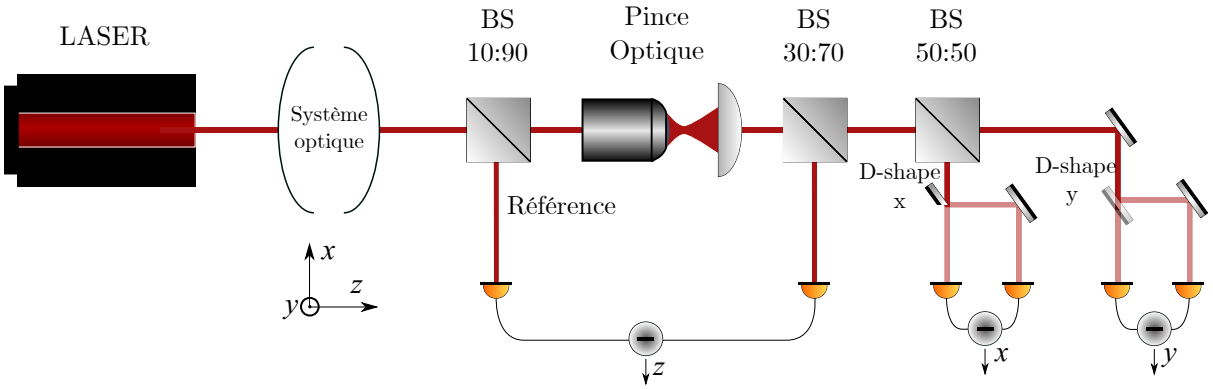

Figure 1.9 – **Schématisation de la détection balancée du mouvement de la particule.** Pour réaliser la détection balancée, on collimate la lumière à la sortie du piège à l'aide d'une lentille de collection. Ensuite, le faisceau est séparé en plusieurs faisceaux à l'aide de séparateurs de faisceaux (BS pour *Beam Splitter*). La proportion d'intensité réfléchie est notée en premier dans la notation BS x :y et correspond au pourcentage d'intensité du faisceau en sortie (la transmission correspond donc au deuxième nombre.). Des miroirs demi-lune (*D-shape*) sont utilisés pour la détection des axes transversaux à la propagation x et y. Pour l'axe de propagation, une référence est prise avant la piège. Pour obtenir le signal correspondant à la dynamique de la particule, on soustrait les deux signaux dans le détecteur balancé. Le système optique avant le piège correspond à diverses optiques qui ont été décrites sur la figure 1.7.

Afin de détecter la particule, il faut faire interférer le champ diffusé avec une référence. Dans notre cas, le faisceau laser incident de piégeage fera office de référence. L'intensité mesurée après la lentille de collection fait apparaître un terme d'interférence :

$$I(\vec{r'}, \vec{q}) = \frac{c_0\epsilon_0}{2} |\vec{E}(\vec{r'}) + \vec{E}_{\text{dp}}(\vec{r'}, \vec{q})|^2 \tag{1.58}$$

$$I(\vec{r'},\vec{q}) = \frac{c_0\epsilon_0}{2}(|\vec{E}|^2 + 2\mathrm{Re}[\vec{E}\ \cdot\ \vec{E}^*_{\mathrm{dp}}] + |\vec{E}_{\mathrm{dp}}(\vec{r'},\vec{q})|^2) \tag{1.59}$$

On obtient ainsi un premier terme indépendant de la position de la particule, $I_0 = \frac{c_0\epsilon_0}{2}|\vec{E}|^2$, un terme d'interférence $I_{\mathrm{int}} = c_0\epsilon_0\mathrm{Re}\left[\vec{E}\ \cdot\ \vec{E}^*_{\mathrm{dp}}\right]$ et un troisième terme pouvant être négligé par rapport aux deux autres termes de l'équation ***. En considérant que le champ de référence est gaussien (équation 1.18) et en considérant que le mouvement de la particule est très petit par rapport à la taille du faisceau de piégeage, w_x^0, w_y^0, z_0, c'est-à-dire que $|\vec{q}| \ll w_x^0$, w_y^0, z_0, on trouve que :

$$\vec{E}_{\mathrm{dp}}(\vec{r'}) = \frac{k^2\alpha E_0}{4\pi\epsilon_0 f_{\mathrm{col}}} e^{i(kq_z - \frac{q_z}{z_0})} e^{ik(z' - \frac{q_x}{f_{\mathrm{col}}}x - \frac{q_y}{f_{\mathrm{col}}}y)} e^{-ikq_z(1-\frac{\rho^2}{2f_{\mathrm{col}}^2})} \vec{n_y}. \tag{1.60}$$

Cette fois ci, le champ de référence doit être évalué à la position : $\vec{r}_{\mathrm{ref}}$. Si on considère $f_{\mathrm{col}} \gg z_0$ et que la lentille de collection est parfaite, le champ de référence s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r'}) \approx \frac{z_0}{f_{\mathrm{col}}} E_0 e^{ikz' - \frac{\pi}{2}} \vec{n_y}. \tag{1.61}$$

L'intensité liée au terme d'interférence s'écrit :

$$I_{\mathrm{int}}(\vec{r'},\vec{q}) = |E_0|^2 \frac{\alpha k^2 c_0 z_0}{4\pi f_{\mathrm{col}}^2} \cos\left[\frac{kq_x x}{f_{\mathrm{col}}} + \frac{kq_y y}{f_{\mathrm{col}}} + q_z[\frac{1}{z_0} - \frac{k\rho^2}{2f_{\mathrm{col}}^2}] - \frac{\pi}{2}\right]. \tag{1.62}$$

Soit, en utilisant une formule de trigonométrie :

$$I_{\mathrm{int}}(\vec{r'},\vec{q}) = |E_0|^2 \frac{\alpha k^2 c_0 z_0}{4\pi f_{\mathrm{col}}^2} \sin\left[\frac{kq_x x}{f_{\mathrm{col}}} + \frac{kq_y y}{f_{\mathrm{col}}} + q_z\left[\frac{1}{z_0} - \frac{k\rho^2}{2f_{\mathrm{col}}^2}\right]\right]. \tag{1.63}$$

On va alors utiliser l'équation du terme d'interférence pour pouvoir mesurer le déplacement de la particule. Expérimentalement, on mesure le signal d'interférence en utilisant une lentille de collection permettant d'observer sur des photodétecteurs balancés le terme d'interférence.

Pour mesurer selon l'axe longitudinal, il faut intégrer le signal d'interférence sur toute la surface telle que $\rho < \rho_{\mathrm{max}}$, donnée par les rayons collectés par la lentille de collection. L'angle maximum sur lequel on observe le signal d'interférence θ_{max} est défini par $\tan(\theta_{\mathrm{max}}) = \frac{\rho_{\mathrm{max}}}{f_{\mathrm{col}}}$ avec $\rho_{\mathrm{max}} = 0,65$ cm qui correspond au rayon de notre lentille de collection. Pour éliminer le premier terme contenu dans le cosinus, on prend une référence du signal en amont du piégeage (cf figure 1.9) que l'on balance sur le détecteur pour

***. Le champ diffusé par la particule est considéré comme petit par rapport au champ de référence, soit $|\vec{E}_{\mathrm{dp}}| < |\vec{E}|$

permettre d'éliminer le terme d'intensité sans interférence I_0. La puissance mesurée sur nos détecteurs s'écrit en passant en coordonnées cylindriques :

$$\Delta P_z = \int_0^{\rho_{\max}} d\rho \int_0^{2\pi} d\phi |E_0|^2 \frac{\alpha k^2 c_0 z_0}{4\pi f_{\text{col}}^2} \sin\left[k\rho(\frac{q_x\cos(\phi)}{f_{\text{col}}} + \frac{q_y\sin(\phi)}{f_{\text{col}}}) + q_z\left[\frac{1}{z_0} - \frac{k\rho^2}{2f_{\text{col}}^2}\right]\right], \tag{1.64}$$

où ΔP_z désigne la différence de puissances mesurée par les détecteurs suivant l'axe z. Si on considère des petits déplacements de position de la particule soit : $\frac{kq_i^2}{f_{\text{col}}} \ll 1$ en notant q_i la position de la particule dans le piège suivant un axe où i désigne un axe x, y ou z. Cela correspond à des déplacements $q_i \ll 500$ nm. On a :

$$\Delta P_z = \int_0^{\rho_{\max}} d\rho \int_0^{2\pi} d\phi |E_0|^2 \frac{\alpha k^2 c_0 z_0}{4\pi f_{\text{col}}^2} \left[\frac{kq_x\rho\cos(\phi)}{f_{\text{col}}} + \frac{kq_y\rho\sin(\phi)}{f_{\text{col}}} + q_z\left[\frac{1}{z_0} - \frac{k\rho^2}{2f_{\text{col}}^2}\right]\right], \tag{1.65}$$

qui se simplifie en intégrant ϕ sur $[0, 2\pi]$ par :

$$\Delta P_z = q_z \int_0^{\rho_{\max}} d\rho 2\pi |E_0|^2 \frac{\alpha k^2 c_0 z_0}{4\pi f_{\text{col}}^2} [\frac{1}{z_0} - \frac{k\rho^2}{2f_{\text{col}}^2}]. \tag{1.66}$$

Ainsi, on remarque que la différence d'intensité mesurée ΔP_z est proportionnelle au déplacement de la particule suivant l'axe longitudinal. On a montré que $\Delta P_z \propto q_z$, pour des petits déplacements.

Pour les axes transversaux, à l'aide de miroir en miroir de lune, on scinde notre faisceau en deux. Puis, à l'aide de détecteurs, on mesure la soustraction des intensités mesurées de ces deux faisceaux. On a toujours avec la lentille de collection $\rho < \rho_{max}$. On obtient, pour les petits déplacements :

$$\Delta P_x = \int_0^{\rho_{\max}} d\rho \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} d\phi I_{\text{int}}(\rho, \phi, \vec{q}) - \int_0^{\rho_{\max}} d\rho \int_{\frac{3\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} d\phi I_{\text{int}}(\rho, \phi, \vec{q}) \tag{1.67}$$

$$\Delta P_x = q_x \int_0^{\rho_{\max}} d\rho |E_0|^2 \frac{\alpha k^2 c_0 z_0}{4\pi f_{\text{col}}^2} 4\frac{k\rho}{f_{\text{col}}} \tag{1.68}$$

De même pour l'axe y, l'intégration sur ϕ est décalé de $\pi/2$. On retrouve pour les axes transversaux une dépendance linéaire de la détection avec la position de la particule dans le cas de petits déplacements.

Pour conclure, la détection se traduit par le fait que les détecteurs mesurent une différence de puissance proportionnelle aux déplacements de la particule dans le piège

que l'on peut noter : $\Delta P_q = c_q q$ avec ΔP_q la différence de puissance entre les détecteurs selon un axe lorsque la balance est réalisée (annulation du terme de référence), q le déplacement selon un axe et c_q le coefficient d'étalonnage qui permet de passer du signal obtenu en volt à un signal désignant la position de la particule.
On proposera une méthode pour mesurer le coefficient d'étalonnage suivant un axe à partir des résultats expérimentaux.

1.6 Mesures expérimentales de la dynamique

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les résultats expérimentaux liés à la dynamique de la particule. On commencera par présenter un exemple de trace temporelle suivant un axe et les DSP associés aux traces temporelles mesurées. L'analyse des DSP s'obtient à partir des résultats présentés préalablement dans le chapitre. Puis, nous nous intéresserons à la dépendance de la raideur du piège avec la puissance optique de piégeage, la dépendance linéaire du coefficient d'amortissement avec la pression du gaz et les mesures du coefficient d'étalonnage suivant le type de particules piégées.

1.6.1 Trace temporelle et DSP

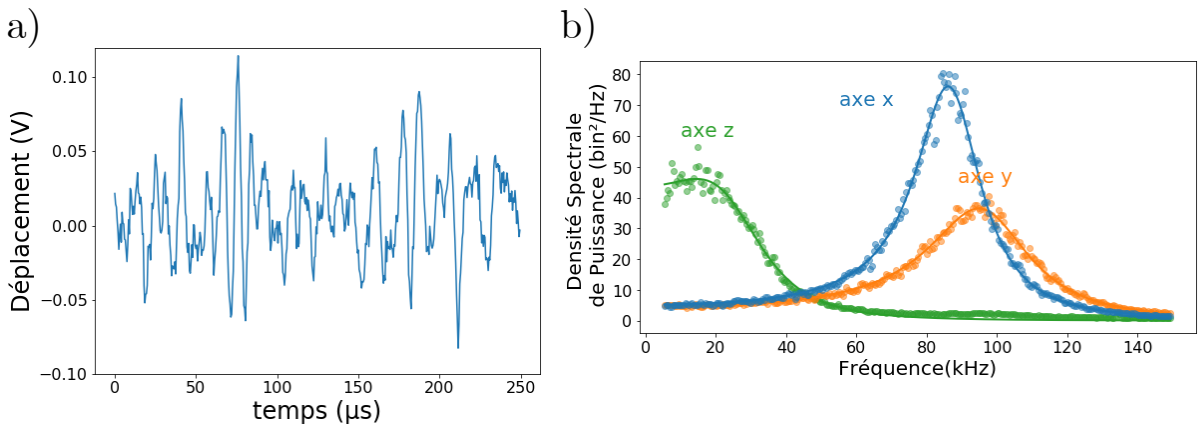

Figure 1.10 – **Trace temporelle et sa Densité Spectrale de Puissance.** a) Trace temporelle prise à partir de la détection sur l'axe y de notre système à une pression de 55 mbar et une puissance laser de 88 mW au focus. En utilisant le coefficient de calibration obtenu, on peut mesurer la position de la particule à quelques nm près. b) Densité Spectrale de Puissance des trois axes avec leur ajustement à partir de l'équation 1.49 en traits pleins. La pression dans l'enceinte est de 55 mbar et la puissance du laser de 88 mW.

Sur la figure 1.10(a), on a tracé la trace temporelle d'une particule de diamant en

lévitation à la pression $p_{\text{gaz}} = 55$ mbar et une puissance de piégeage au focus de 88 mW suivant l'axe y. Simultanément, nous pouvons mesurer les traces temporelles suivant les autres axes. Pour étudier la dynamique de la particule, nous avons vu qu'il était utile de s'intéresser au domaine fréquentiel et plus particulièrement à la DSP. Le traitement des DSP est présenté sur la figure 1.10(b) où l'on a ajusté les courbes obtenues par l'équation 1.49. Ces ajustements sont représentées par les courbes en traits pleins sur la figure 1.10(b). De cet ajustement, on peut en déduire plusieurs paramètres importants dans le traitement des données comme le coefficient d'amortissement γ, la fréquence propre du piège ω_q suivant chaque direction q ou l'aire intégrée sous la courbe de DSP A_{fit} liée à l'énergie de notre système.

1.6.2 Raideur du piège

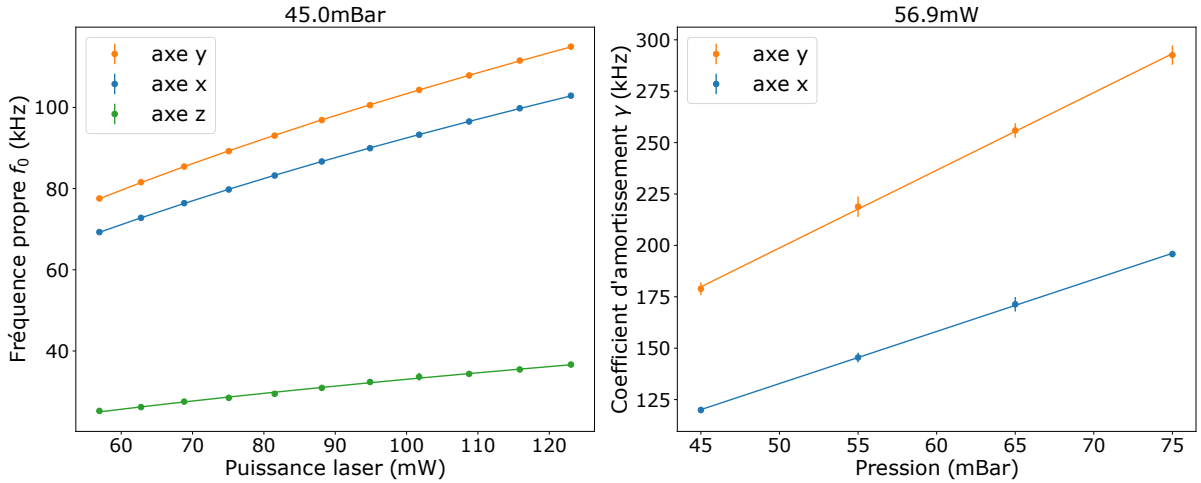

Figure 1.11 – **Fréquence propre et coefficient d'amortissement du système** a) Fréquence propre ω_q mesurée à partir de l'ajustement de la DSP du signal pour chaque axe en fonction de la puissance du laser de piégeage pour une nanoparticule de diamant piégé à 55 mbar. Les traits pleins représentent les ajustements des points de mesures par une fonction racine carré. b) Coefficient d'amortissement γ en fonction de la pression pour une puissance de piégeage de 88 mW. Les traits pleins correspondent à des ajustements linéaires.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons à la raideur du piège en fonction de la puissance laser. De par l'ajustement réalisé sur les DSP, nous pouvons en déduire la fréquence propre du piège suivant chaque axe q que l'on note : ω_q. Celle-ci est directement reliée à la raideur du piège par la formule : $\omega_q = \sqrt{k_q/m}$. Or, nous avec montré que la constante de raideur est reliée à la puissance laser par l'équation 1.26. On peut simplifier

cette équation par le fait que $k_q \propto P_{\text{las}}/w_q$.
Sur la figure 1.11(a), nous avons tracé la fréquence propre du piège en fonction de la puissance du laser. Si on ajuste la courbe représentant la fréquence propre par une fonction racine carrée de la puissance laser, on observe une très bonne concordance des résultats. Cela permet de montrer que l'on contrôle précisément la raideur de notre piège.

1.6.3 Coefficient d'amortissement

À présent, nous nous intéressons au coefficient d'amortissement en fonction de la pression du gaz. Dans les paragraphes précédents, pour le régime où le libre parcours moyen des molécules de gaz est considéré comme très grand devant la taille de la particule, la théorie prédit une dépendance linéaire du coefficient d'amortissement γ avec la pression (cf équation 1.42). La figure 1.11(b) représente le coefficient d'amortissement en fonction de la pression du gaz à puissance laser fixe. On remarque que le coefficient dépend bien linéairement de la pression dans l'enceinte de la chambre à vide dans notre régime. De plus, expérimentalement, on montre que le coefficient d'amortissement est indépendant de la puissance du laser de piégeage.

1.6.4 Détermination du rayon hydrodynamique de la particule

Le rayon hydrodynamique de la particule constitue une autre grandeur déterminante à la caractérisation de notre système. Il peut être mesuré en utilisant les paramètres mesurés à partir de la DSP, notamment à partir du coefficient d'amortissement. En effet, on ne parle pas de rayon de la particule car la mesure se base sur le coefficient d'amortissement. Pour déterminer le rayon hydrodynamique de la particule noté a, on utilise l'équation 1.42 et l'expression du libre parcours moyen des molécules de gaz donnée par l'équation 1.41. En supposant la particule sphérique, on obtient :

$$a = 0,619 \frac{9}{\sqrt{2\pi}\rho_{\text{diam}}} \sqrt{\frac{M}{N_A k_B T}} \frac{p_{\text{gaz}}}{\gamma} \tag{1.69}$$

où M est la masse molaire du gaz environnant.

1.6.5 Étalonnage de la détection

L'étalonnage de notre système de détection consiste à mesurer expérimentalement le coefficient dit d'étalonnage c_i introduit dans la section 1.5.3. Pour cela, on utilise l'équipartition de l'énergie qui lie l'aire intégrée A_{fit} au coefficient d'étalonnage et autres constantes de notre système. En effet, la DSP introduite à la section 1.3.2 a pour dimension des m^2/Hz mais notre système mesure le signal en Volt. Pour convertir les Volts en mètres, on utilise le coefficient d'étalonnage qui permet de lier l'aire intégré sous la courbe mesurée expérimentalement A_{fit} aux paramètres physiques de notre système :

$$A_{\text{fit}} = c_q^2 A = c_q^2 \frac{k_B T_0}{m\omega_q^2}. \tag{1.70}$$

On en déduit le coefficient d'étalonnage à partir de l'ajustement de la DSP.
Notons que pour la mesure de l'énergie du système, une connaissance précise de la masse n'est pas nécessaire. Par contre, pour les mesures de distance, c'est une source d'erreurs [86]. C'est pourquoi, pour des particules de silice, c'est une technique pratique et usuelle pour déterminer la position de la particule dans la piège puisque ce sont des particules de taille et de forme très contrôlées. On verra dans le chapitre 3 que pour nos nanodiamants, cette approche ne permet pas une estimation précise.

1.7 Conclusion

Dans cette partie nous avons décrit les forces optiques résultant d'une forte focalisation d'un faisceau laser sur une particule diélectrique. Nous avons montré qu'il était possible de piéger une nanoparticule en décrivant les conditions expérimentales nécessaires pour le faire. Nous avons ensuite présenté le mouvement de la particule dans le piège afin d'en décrire sa dynamique à partir d'un traitement fréquentiel. Puis, le dispositif expérimental a été introduit afin de présenter les différents éléments dans notre montage. Une partie sur la mesure de la position de la particule a permis de comprendre les enjeux de ce type de mesure interférométrique. Pour finir, nous avons décrit les premiers résultats expérimentaux liés à la détection de la particule dans le piège.

Chapitre 2

Thermométrie de centres NV du diamant en lévitation

2.1 Introduction

Dans le chapitre 1, nous avons présenté les propriétés optiques permettant de piéger une nanoparticule à partir d'un laser fortement focalisé. De nombreuses études ont déjà été réalisées sur le sujet en développant la technique et permettent notamment d'amener ces particules dans le régime quantique [68, 34, 35, 70]. Ces avancées dans le domaine sont considérables. Néanmoins, la possibilité de rajouter un degré de liberté interne au système pourrait accroître le contrôle sur les objets en lévitation, et apporter, par exemple, les non-linéarités nécessaires à la création d'états non-classiques [89]. Parmi les systèmes possibles, le centre colorés NV du diamant est un excellent candidat, puisque c'est un système bien connu, avec un comportement proche d'un système atomique à l'état solide, pouvant facilement être intégré dans un nanodiamant en lévitation.

Dans ce chapitre, nous présenterons les propriétés optiques et de spin de ces centres colorés du diamant et discuterons des enjeux expérimentaux pour les utiliser dans des expériences de spin-optomécanique. Nous introduirons l'utilisation ce degré de liberté supplémentaire afin de réaliser des mesures de la température interne des nanodiamants en lévitation, de façon à caractériser les processus menant à leur échauffement.

2.2 Centre NV du diamant

2.2.1 Centres colorés du diamant et propriétés optiques du centre NV

Le diamant est un cristal covalent constitué d'un assemblage d'atomes de carbone reliés à chacun de leurs 4 voisins par une simple liaison covalente. La structure cristalline est de type Cubiques Faces Centrées (CFC) comme indiquée sur la figure 2.1(c). Néanmoins, il existe des défauts dans la maille cristalline qui peuvent être présents naturellement, être directement introduits durant la croissance du diamant, ou ajouter postérieurement par implantation et/ou irradiation.
Le diamant est notamment connu pour ses propriétés de semi conducteur à grand gap ($\sim$ 5,5 eV). C'est de fait un matériau transparent aux longueurs d'onde optique (de 1

Propriétés mécaniques	
Densité	3,515
Paramètre de maille	3,567 Å
Module d'Young	1050 GPa
Dureté	100 GPa
Propriétés thermodynamiques	
Capacité thermique massique	$\approx$ 500 J/kg/K
Masse volumique	3515 kg/m^3
Conductivité thermique	$\approx$ 2500 W/m/K [90]
Diffusivité thermique	$\approx$ 300 mm^2/s [90]
Propriétés optiques	
Indice de réfraction	2,386 (@ 1550 nm)
Écart du gap énergétique	5,47 eV (227 nm)
Décalage Raman	1332 cm^{-1}

Table 2.1 – Quelques propriétés mécaniques, thermiques et optiques du diamant, adapté de *Element Six Diamond Handbook* [91]. Les propriétés thermiques dépendent de la taille de la particule et de la température. Ce sont donc des ordres de grandeur que nous utiliserons dans la suite. Leur dépendance est brièvement traitée dans l'article [90]

à 3 eV) et dans le proche infrarouge. Cependant, la présence des défauts introduit des niveaux discrets à l'intérieur du gap qui rend le diamant optiquement actif. En fonction de l'importance du dopage (degré de pureté du diamant), on observe des diamants colorés à l'œil nu. Cette coloration dépend du type de défaut comme le montre la figure 2.1(a).

Si de nombreux défauts ont été répertoriés [94], un défaut nous intéressera plus particulièrement à savoir le centre NV (*nitrogen-vacancy* ou azote-lacune en français). Ce défaut correspond à la substitution de deux atomes de carbone adjacents de la maille cristalline par respectivement un atome d'azote (N) et une lacune (V) (cf. figure 2.1(c)). Suivant l'environnement local de la lacune, il existe principalement deux états de charge du centre NV [95] : un état neutre NV^0 et un état chargé négativement NV$^-$. La forme intéressante pour les expériences décrites dans ce manuscrit est l'état chargé négativement comportant deux électrons non appariés [96]. Dans la suite, sauf mention contraire, la dénomination centre NV renvoie à l'état de charge NV$^-$ *.

Les niveaux énergétiques créés par le défaut sont séparés par une énergie de 1,945 eV correspondant à une longueur d'onde de 637 nm et sont schématisés sur la figure 2.1(d)

∗. Une étude sera menée plus tard dans le chapitre sur leur proportion respective en fonction de la puissance de laser infra rouge.

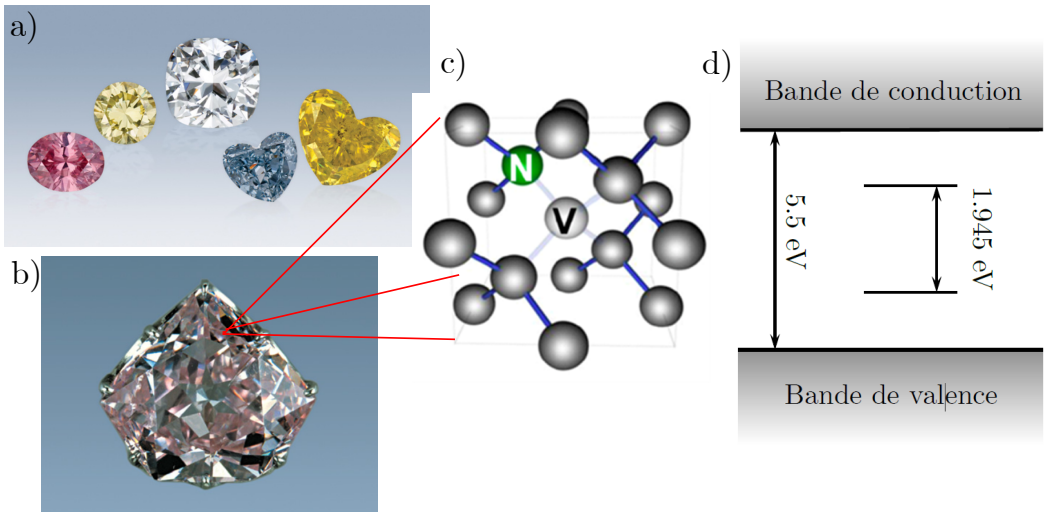

Figure 2.1 – **Centres colorés du diamant** a) Assortiment de diamants colorés par la présence de défauts dans la maille cristalline du diamant (photo de R. Weldon and K. Schumacher [92]). Leur couleur dépend du type de défaut et de leur concentration. (b) Diamant rose appelé "Hortensia". Il est conservé au musée du Louvre. Sa teinte rosâtre vient de la présence du défaut type centres NV (photo de *Art Resource* [93]). (c) Structure cristalline du diamant (Cubique Faces Centrés) contenant un défaut de type centre NV. Le défaut se compose de la substitution de deux atomes de carbone adjacents par respectivement un azote (N) et une lacune électronique (V). (d) Schématisation de la structure de bande énergétique du diamant. Il s'agit d'un semi conducteur à grand gap ($\sim$ 5,5 eV) qui contient deux niveaux discrets correspondant aux états fondamentaux et excités du centre NV.

). Ceux-ci étant éloignés des niveaux énergétiques des bandes de valence et de conduction, on peut modéliser le centre NV comme un atome artificiel dans la maille cristalline du diamant. La transition se faisant dans le domaine optique, on peut exciter le défaut avec un laser et collecter sa photoluminescence. Un schéma de la structure électronique simplifiée du centre NV est représenté sur la figure 2.2(a). Suite à l'excitation par un laser vert, le défaut excité relaxe vers son état fondamental en émettant un signal de fluorescence dans le rouge. On observe un fort élargissement des raies d'absorption et d'émission ($\sim$ 100 nm) sur la figure 2.2(b) dû au couplage avec les phonons du cristal. L'absorption est ainsi centrée vers 570 nm et l'émission vers 680 nm. La raie zéro phonon (*Zero Phonon Line*, ZPL) se situe à 637 nm et correspond à l'écart énergétique entre le niveau fondamental et le premier niveau excité.

Dans notre expérience, l'excitation des centres NV se fait par un laser à la longueur d'onde $\lambda_{exc} = 532$ nm. La photoluminescence est collecté en utilisant un filtre passe haut

de longueur d'onde de coupure λ_c =635 nm.

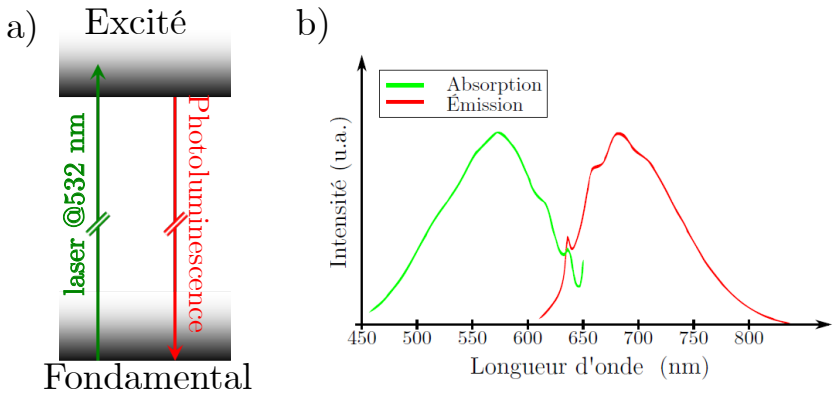

Figure 2.2 – **Propriétés optiques du diamant** a) Schéma des niveaux excité et fondamental du centre NV. Lorsque le défaut est excité à 532 nm, on observe une photoluminescence dans le domaine visible rouge. b) Représentation du spectre typique de photoluminescence ainsi que de l'absorption d'un centre NV.

Il existe d'autres propriétés optiques remarquables du centre NV qui justifie le choix d'étudier ce type de défaut. En premier lieu, contrairement à d'autres émetteurs uniques tels que les boites quantiques ou les molécules de colorant, le centre NV possède une excellente photo-stabilité qui permet de s'affranchir des problèmes de clignotement (disparition ponctuelle de photoluminescence) et de blanchiment (disparition définitive de la photoluminescence) [97, 98]. D'autre part, ces propriétés optiques sont couplées à des propriétés de spin qui font du centre NV un système unique. En particulier, en 2004, F. Jelezko *et al.* ont démontré la possibilité de manipuler de manière cohérente le spin électronique du centre NV et de le lire optiquement à température ambiante [99].

2.2.2 Résonance magnétique détectée optiquement

Le centre NV possédant deux électrons non appariés, son état de spin peut être soit un état singulet soit un état triplet. Il a été montré que les états excité et fondamental sont des états triplets [100], de nombre quantique de spin $S = 1$. Les sous-niveaux de ces triplets sont décrits par le nombre quantique m_S qui est la projection du spin sur l'axe de quantification du centre NV. Cet axe correspond à l'axe lacune-azote. Il est noté $\vec{u}_{NV}$ comme indiqué sur la figure 2.3(b). Par l'interaction spin-spin, une levée de dégénérescence entre les niveaux $m_S = \pm 1$ (notés $|\pm 1\rangle$) et $m_S = 0$ (noté $|0\rangle$) apparaît à la fois dans le niveau excité et fondamental. L'écart énergétique à température ambiante entre les états $|\pm 1\rangle$ et $|0\rangle$ est de $D \approx 2,87$ GHz pour le niveau fondamental et 1,42 GHz

pour le niveau excité. Les règles de sélection imposent des transitions optiques vérifiant $\Delta m_S = 0$ comme le montre la figure 2.3(a). C'est-à-dire que les transitions optiques de type absorption ne peuvent se faire qu'entre état de même nombre quantique. D'autre part, il existe des états singulets d'énergie intermédiaire que nous modéliserons simplement par un état unique métastable. Il est considéré comme métastable car son temps de vie est important ($\sim$ 200 ns) devant celui de l'état excité ($\sim$ 12 ns [101]). Une description détaillée est disponible dans la revue de Doherty *et al.* [49].

Sous illumination optique, le centre NV peut relaxer de son état excité suivant deux voies différentes. La première voie est celle qui respecte la règle de sélection $\Delta m_S = 0$. L'autre passe par l'état métastable. Lorsque la relaxation passe par l'état métastable, il n'y a pas conservation du nombre quantique de spin m_S contrairement au cycle optique direct. De plus, comme indiqué sur le schéma de la figure 2.3(a), la probabilité de transition vers l'état métastable dépend du nombre quantique m_S. Le taux de désexcitation pour l'état $|0\rangle$ est beaucoup plus faible que celui des états $|\pm1\rangle$. Le déséquilibre dans les transitions optiques a donc deux conséquences immédiates :

— après quelques cycles optiques, le centre NV est polarisé dans l'état $|0\rangle$. En effet, si on imagine partir de l'état $|0\rangle$, il perdurera dans cet état ne subissant que les transitions radiatives du cycle optique direct tout en conservant son état de spin. En revanche, si l'on part d'un état $|\pm1\rangle$, il aura la possibilité de passer par l'état métastable et de changer son nombre quantique de spin, la relaxation de l'état métastable n'étant pas dépendante de l'état de spin. De ce fait, à chaque cycle, il y a une probabilité non nulle de se retrouver dans l'état $|0\rangle$ en partant d'un état $|\pm1\rangle$. On a donc **polarisé le spin du centre NV dans l'état** $|0\rangle$.

— la transition par l'état métastable étant non radiative, un centre NV dans les états $|\pm1\rangle$ émettra moins de photons visibles de photoluminescence (environ 50 % dans le cas d'un diamant massif) que lorsqu'il est dans un état $|0\rangle$. Cette propriété permet de déterminer l'état de spin du centre NV optiquement par observation de la photoluminescence. On va donc distinguer **l'état** $|0\rangle$ **comme étant un état brillant et les états** $|\pm1\rangle$ **comme étant sombres**.

C'est à partir de ces propriétés que l'on fait des expériences de résonance magnétique détectée optiquement (*Optical Detection of Magnetic Resonance* en anglais, soit ODMR). Cette expérience repose sur la propriété de polarisation du système dans l'état $|0\rangle$. En effet, en excitant le centre NV à l'aide d'un laser à 532 nm, on polarise les centres NV

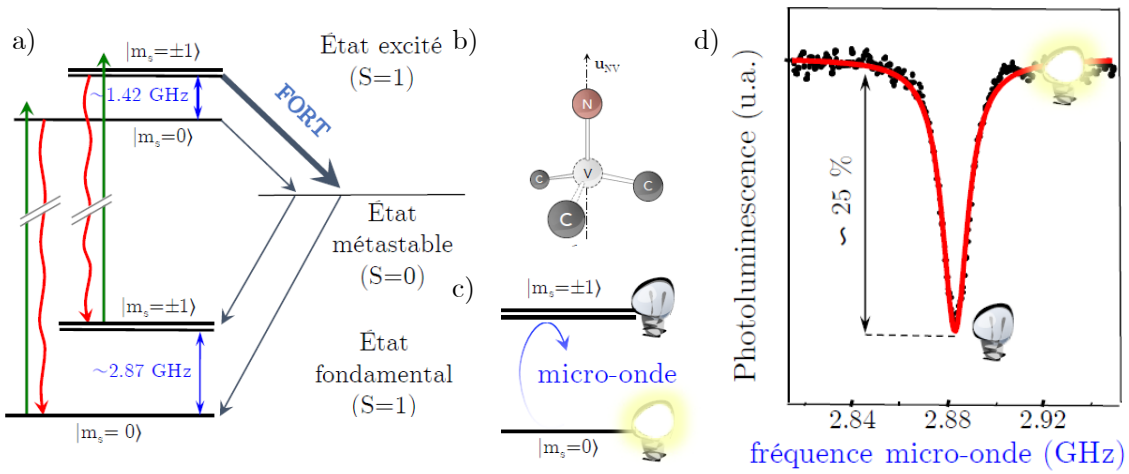

Figure 2.3 – **Résonance magnétique détectée optiquement** a) Niveaux énergétiques de la structure fine du centre NV. Les états $m_S = 0$ et $m_S = \pm 1$ correspondent à des moments de spin S égaux à 1. L'état métastable est simplifié dans la discussion de la thèse à un seul niveau de moment de spin S égale à 0. L'excitation par un laser vert est représenté par les flèches vertes. Il y a plusieurs voies de désexcitation. La voie directe qui entraîne une photoluminescence représentée par les flèches rouges et une voie non radiative, passant par l'état métastable, dont le taux de désexcitation dépend de l'état quantique. Cette différence permet d'obtenir des propriétés de polarisation de spin du centre NV et de lire son état. b) Disposition schématique du centre NV avec les atomes de carbones voisins. Son axe de quantification noté $\vec{u}_{\mathrm{NV}}$ correspond à celui reliant la lacune et l'azote. c) Structure de l'état fondamental permettant d'appréhender l'expérience de résonance magnétique détectée optiquement (ODMR). On peut simplifier la compréhension de l'expérience en considérant l'état $|0\rangle$ comme étant brillant du point de vue de l'excitation optique avec un laser vert conduisant à une photoluminescence et les états $|\pm 1\rangle$ comme sombres. L'écart énergétique entre ces états est de l'ordre de 2,87 GHz correspondant à des micro-ondes. d) Résultat d'une expérience d'ODMR, dans le cas d'un centre NV unique dans un diamant massif, permettant de déterminer l'écart énergétique entre $|0\rangle$ et $|\pm 1\rangle$ marqué par la chute de la photoluminescence.

dans l'état $|0\rangle$. Simultanément, on soumet le diamant à une excitation micro-ondes de l'ordre de la fréquence de résonance qui correspond à l'écart énergétique entre les états $|0\rangle$ et $|\pm 1\rangle$ qui est de 2,87 GHz. Lorsque la fréquence micro-onde rentre en résonance avec la transition entre les états $|0\rangle$ et$|\pm 1\rangle$, on observe un transfert de la population de l'état $|0\rangle$ vers les états $|\pm 1\rangle$ qui entraîne une chute de la photoluminescence. Sur la figure 2.3(d), on présente un spectre résultant de ce principe pour un diamant massif. Le contraste varie d'environ 20-25 % pour les diamants massifs et une largeur de raie qui dépend fortement du matériau utilisé et de la puissance optique et micro-onde [102] de l'ordre de quelques MHz caractérisent le spectre.

2.2.3 Hamiltonien du système centre NV dans un nanodiamant

L'hamiltonien qui nous intéresse est celui lié à la structure de l'état fondamental afin de comprendre comment utiliser les centres NV dans les expériences de spin-optomécanique mais aussi comme capteur de température. Tout d'abord, l'écriture de l'hamiltonien de spin de l'état fondamental [103, 104] est donnée, en négligeant l'interaction hyperfine, par :

$$H = D(T)S_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2) + H_B \tag{2.1}$$

où z est l'axe de quantification correspondant à l'axe lacune-azote décrite par le vecteur $\vec{u}_{NV}$ indiqué sur la figure 2.3(b). $D \approx 2,87$ GHz est le paramètre de séparation en champ nul entre les niveaux $|0\rangle$ et $|\pm 1\rangle$. L'origine de ce terme provient de l'interaction spin-spin entre les électrons non appariés du défaut, et est impacté par les contraintes mécaniques dans le nanodiamant mais surtout plus fortement par la température [105]. Nous verrons dans la suite que cette propriété est particulièrement intéressante pour réaliser des expériences de nanothermométrie. E est un paramètre décrivant l'action d'une contrainte mécanique ou d'un champ électrique transverse [106, 107]. Il varie de quelques centaines de kHz pour des centres NV dans du diamant massif, à quelques MHz pour des nanodiamants où les contraintes mécaniques sont plus importantes. On observe alors une levée de dégénérescence entre les états $|\pm 1\rangle$ à hauteur de $2E$.

Enfin, $H_B = g\mu_B \vec{B} \cdot \vec{S}$ avec $g = 2$ le facteur de Landé, mu_b le magnéton de Bohr, $\vec{B}$ le champ magnétique et $\vec{S}$ le vecteur de Pauli dont la base est considérée est associée au centre NV. Il décrit l'effet sur le centre NV d'un champ magnétique, traduisant le couplage par effet Zeeman sur lequel repose de nombreuses applications en particulier pour la magnétométrie [108, 109]. C'est la propriété que nous utiliserons pour réaliser des expériences de spin-optomécanique dans le chapitre 4.

Effet du champ magnétique

Afin de déterminer exactement l'effet du champ magnétique B, il est nécessaire de chercher les valeurs propres du Hamiltonien. Ces calculs seront discutés en détail dans le chapitre 4. Sans chercher à donner une description aussi fine ici, notons qu'en première approximation, la levée de dégénérescence entre les états de spin $|\pm 1\rangle$ est proportionnelle à la projection du champ magnétique selon l'axe du centre NV (cf figure 2.4). Ainsi, lorsque que l'on modifie, soit l'amplitude B_0 du champ magnétique soit l'angle θ qu'il fait

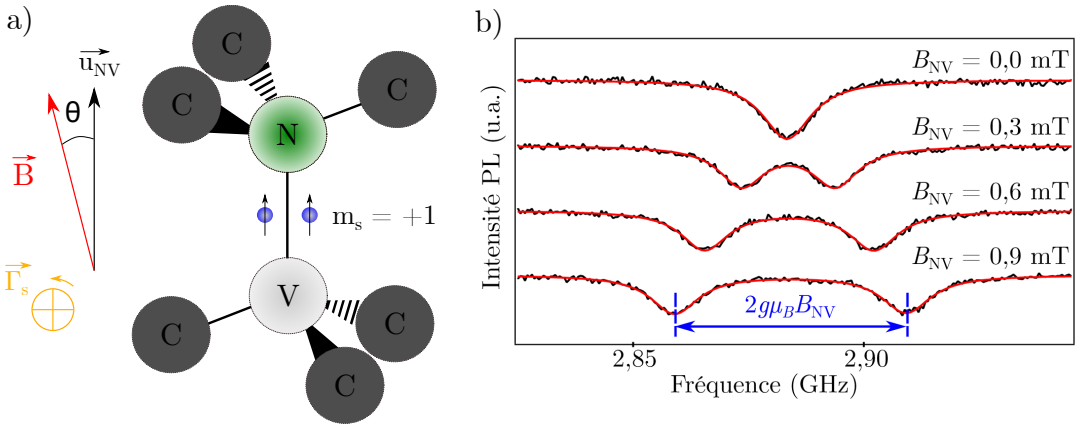

Figure 2.4 – **Schématisation d'un centre NV sous champ magnétique** a) Schéma d'un centre NV soumis à l'action d'un champ magnétique statique d'amplitude B_0 et faisant un angle θ avec l'axe du centre NV noté $\vec{u}_{NV}$. b) Détection optique du signal de résonance de spin d'un centre NV unique dans un diamant massif en fonction du champ magnétique appliqué. La levée de dégénérescence entre les états de spin $|\pm 1\rangle$ est proportionnelle au première ordre à $B_{NV} = B_0 \cos\theta$. Le facteur de proportionnalité vaut $g\mu_B = 28$ MHz/mT, avec $g = 2$ le facteur de Landé et μ_B le magnéton de Bohr.

avec l'axe du centre NV, on modifie le spectre de résonance du centre NV. C'est ce phénomène que l'on peut utiliser pour coupler le mouvement du nanodiamant en lévitation avec le spin des centres NV qu'il contient †. Si initialement, il a été proposé d'utiliser un gradient de champ magnétique pour coupler le spin au mouvement de centre de masse du diamant [47, 51], cette approche nécessite de très forts gradients de champ magnétique, difficile à réaliser expérimentalement. Une approche alternative, que nous détaillerons dans le chapitre 4, est d'utiliser un champ statique qui permet de coupler le spin au mouvement de libration du diamant [111, 53].

Ainsi la possibilité de facilement contrôler et lire, à température ambiante, le spin du centre NV en fait un candidat particulièrement intéressant pour les expériences de spin-optomécanique envisagées dans le cadre de ma thèse.

Effet de la température

Si le couplage magnétique est le couplage qui nous intéresse en premier lieu pour les expériences de spin-optomécanique, le centre NV se révèle un capteur bien plus polyvalent, permettant d'accéder à la mesure de nombreux paramètres physiques à l'échelle nanométrique. En particulier, nous verrons dans la suite de ce chapitre que ces propriétés

†. Une description complète de ces couplages est proposée dans l'article de revue [110]

de thermométrie peuvent s'avérer particulièrement intéressante. Ces propriétés émanent du fait que le paramètre de séparation axial à champ nul D est très sensible à la température interne du cristal [105]. Ainsi, lorsque la température du cristal de diamant augmente, nous allons observer une réduction du paramètre D, qui va induire un décalage vers les basses fréquences des spectres de résonance magnétique du centre NV considéré (comme représenté schématiquement sur la figure 2.5(a)). La figure 2.5(b) représente deux spectres ODMR, celui d'un diamant massif à température ambiante (en bleu) et celui d'un nanodiamant "chaud" en lévitation (en rouge) montrant le décalage du paramètre D en fonction de la température. Notons le dédoublement de la raie de résonance due à la présence de fortes contraintes dans le nanodiamant. Nous verrons dans le paragraphe 2.5.4, comment cette propriété pourra être mise à profit pour étudier les processus de chauffage de nanodiamants en lévitation.

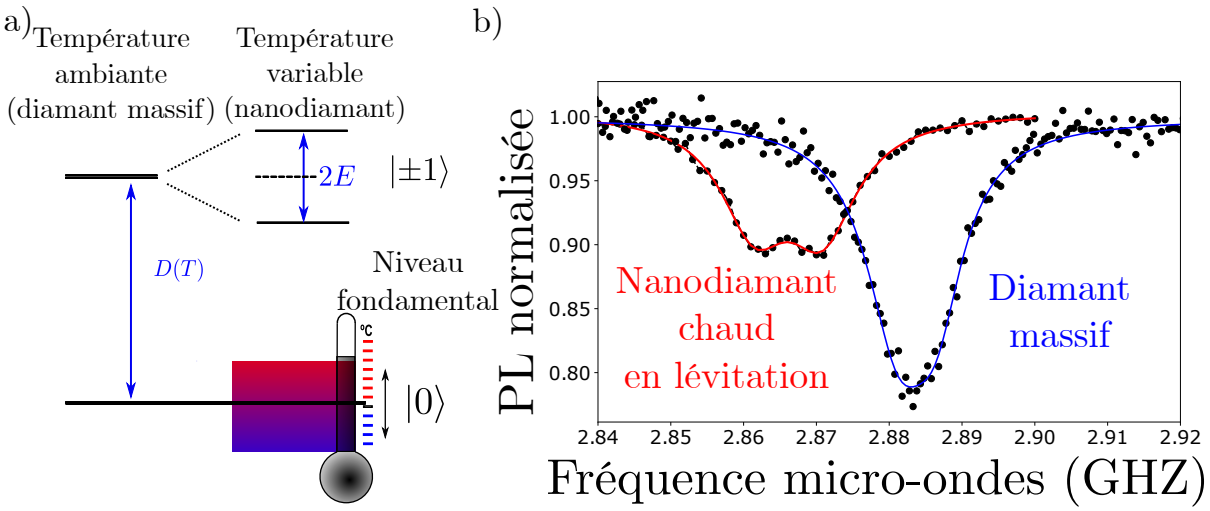

Figure 2.5 – **Utilisation du centre NV comme capteur de température** a) Schématisation des états $|0\rangle$ et $|\pm1\rangle$ pour un diamant massif (à gauche) sans contrainte et à température ambiante. L'écart énergétique entre les niveaux est $D \approx 2,87$ GHz dans ce cas. Pour un nanodiamant (à droite), la contrainte propre liée à la dimension du diamant entraîne une levée de dégénérescence des états $|\pm1\rangle$ et un déplacement du niveau $|0\rangle$ en fonction de la température. Ce dernier phénomène est également présent pour un diamant massif mais n'est pas représenté sur le schéma. b) ODMR d'un diamant massif comme décrit sur la figure 2.3(d) et d'un nanodiamant en lévitation "chaud" où l'on voit apparaître la levée de dégénérescence liée à la contrainte interne plus importante due à la petite taille du diamant, avec $E \approx 10$ MHz. On voit également apparaître le décalage en fréquence liée à la température interne de la particule en lévitation plus importante que le diamant massif.

2.2.4 Fabrication de nanodiamants riches en centres NV

Les diamants utilisés aujourd'hui dans les activités de recherche sont toujours d'origine artificielle. Ils peuvent être préparés principalement selon trois voies de synthèse :

— Les diamants dits "HPHT" (haute pression, haute température). Dans ce cas, un précurseur de carbone est amené sous des conditions de pression (typiquement >5 GPa) et de température (T∼2000 °C) assez importante [112] pour favoriser la création du diamant. Si cette approche est connue depuis les années 50, le contrôle des impuretés dans le diamant n'est pas aisé, et souvent les diamants produits sont riches en azote, typiquement de l'ordre de 200 ppm.

— Les diamants dits CVD (*Chemical Vapour Deposition*). Un réacteur permet de faire un dépôt couche à couche de diamant sur un substrat. Il est alors possible de contrôler finement les impuretés présentes dans le diamant ce qui en fait la méthode de références pour créer de tels diamants. Ces impuretés peuvent être de différentes formes : azote, silicium, carbone 13...

— Les diamants dits de détonation. Ils sont obtenus par réaction explosive à partie d'un précurseur de carbone. Cette approche permet de fournir des diamants de très petites tailles, typiquement <10 nm, souvent fortement graphitisés. Pour les applications visées dans le cadre de cette thèse, les nanodiamants produits par cette approche sont à la fois trop petits et trop absorbants pour pouvoir être piégés optiquement.

Pour obtenir des nanodiamants, la stratégie est donc en général de partir d'un diamant massif, qui est ensuite broyé et trié par taille. Dans le cas de diamants HPHT riches en azote, une irradiation par des électrons ou des particules alpha, suivi d'un recuit permettra de créer des centres NV stables dans les nanodiamants. La dose d'irradiation impose alors le nombre de centres NV par nanodiamant. Celui-ci est limité par la taille du nanodiamant. Pour des nanodimants de taille 100 nm, il est possible d'obtenir entre un et quelques milliers de centres NV. Pour des nanodiamants CVD très pures, la quantité d'azote n'est pas suffisante pour utiliser ce même procédé. Il faut alors implanter l'azote, qui lors d'un recuit sera converti en centres NV, avec un rendement de quelques pourcents.

Dans la suite de cette thèse, nous utiliserons des nanodiamants commercialisés par l'équipe du Dr. H.-C. Chang *FNDbiotech* [113]. Leur taille moyenne spécifiée est de 100 nm (cf figure 2.6(b)) et contiennent ≈ 1000 centres NV [114]. Ces diamants sont dits ultra-dopés car ils contiennent de nombreux défauts.

Notons enfin que des travaux récents ont mis en évidence la production de nanodiamants par voie HPHT comme par voie CVD qui promettent d'accroître le contrôle et la qualité de tel matériau.

2.3 Dispositif expérimental de piégeage d'un nanodiamant dans le vide

Les premières expériences de piégeage optique de nanodiamants utilisant un laser proche infrarouge ont mis en évidence un effet délétère important du laser de piégeage sur la photophysique des centres NV [115, 116, 117]. L'utilisation d'un laser de piégeage à $\lambda = 1064$ nm n'est donc pas le choix optimal pour réaliser des expériences sur le spin des centres NV. Notre premier choix de laser de piégeage a été de tester un laser à 532 nm qui permettrait à la fois d'exciter les centres NV et de piéger la particule. Cependant, les premiers tests n'ont pas été concluants puisqu'un bruit permanent brouillé toute détection de la photoluminescence. Dans l'optique de vouloir contrôler la photophysique des centres NV, ce choix de laser s'est vite trouvé incompatible.

En parallèle de nos premières expériences, d'autres groupes de recherche travaillant sur le piégeage de nanodiamants ont démontré que l'utilisation d'un laser de piégeage à la longueur d'onde λ =1550 nm permettait de conserver les propriétés photophysiques du centre NV, bien mieux qu'en utilisant un laser à la longueur d'onde $\lambda = 1064$ nm [58]. En particulier, l'observation de la résonance de spin des centres NV reste bien plus contrastée. Nous nous sommes donc orientés vers ce choix de laser. Nous décrirons plus précisément les effets sur la photophysique des centres NV dans le paragraphe 2.5.4.

Dans le chapitre 1, nous avons décrit, sur la figure 1.7, le montage expérimental utilisé pour piéger des nanodiamants sans décrire la partie permettant de collecter la photoluminescence issue des centres NV. C'est ce que nous allons faire à présent.

Tout d'abord, il s'agit de pouvoir contrôler le spin des centres NV. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2.2.2, la résonance de spin correspond à une fréquence de l'ordre de 2,87 GHz ce qui correspond au domaine des micro-ondes. Pour pouvoir injecter ces ondes, nous avons adapté une antenne entourant la particule piégée afin de pouvoir

envoyer des micro-ondes et de réaliser un balayage en fréquence pour réaliser les expériences de résonance de spin (cf figure 2.5(b)). La collection de la photoluminescence se fait grâce à un montage de microscopie confocal qui permet de filtrer toutes les sources de bruit possibles et de collecter uniquement la photoluminescence issue des centres NV.

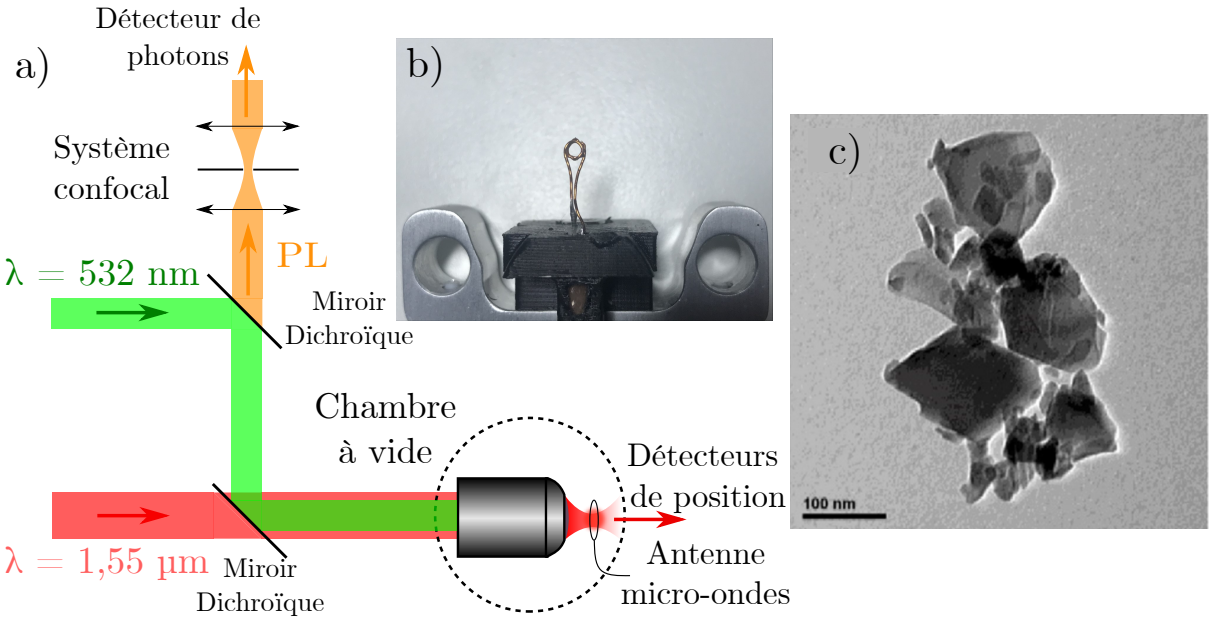

Figure 2.6 – **Dispositif expérimental pour la détection de la photoluminescence.** a) Dispositif expérimental adapté à la détection de la photoluminescence de centres NV auquel on a ajouté b) une antenne micro-ondes permettant de scanner la résonance de spin. La photoluminescence est filtrée à partir d'un système de microscopie confocal permettant de détecter uniquement la photoluminescence provenant des centres NV. c) Image de microscopie à transmission d'électrons des nanodiamants utilisés durant nos expériences adaptée de [118].

À l'aide de ce dispositif expérimental nous avons pu piéger stablement (pendant plusieurs jours) des nanodiamants jusqu'à des pressions de 10 mbar. Nous avons alors pu détecter la photoluminescence des centres NV contenus dans les particules et enregistrer des spectres d'ODMR typiques comme celui représenté sur la figure 2.5(b). Lorsque la pression est abaissée en dessous d'une pression critique comprise entre 1 mbar et 10 mbar, nous observons une perte du nanodiamant piégé. Cet effet est commun à l'ensemble des dispositifs de lévitation optique de nanodiamants dans le vide, que le laser utilisé soit à la longueur d'onde de 1064 nm [57, 117, 119] ou à 1550 nm [58]. Jusqu'à présent, seuls des pièges électrodynamiques ($P_{\text{gaz}}^{\text{lim}} \sim 10^{-4}$ mbar [120, 121]) ou magnétogravitationnelle ($P_{\text{gaz}}^{\text{lim}} \sim 10^{-7}$ mbar [122]) ont pu atteindre des pressions plus faibles, offrant un découplage à l'environnement suffisant pour profiter pleinement des opportunités qu'ouvrent la

lévitation. La compréhension des phénomènes de perte du nanodiamant constitue donc un enjeu important de la lévitation de nanodiamants.

Au-delà de cette question, la comparaison entre les deux spectres d'ODMR de la figure 2.5(b) permet de mettre en évidence certaines particularités de la lévitation de nanodiamants. En premier lieu, le contraste de la résonance est plus faible pour le diamant en lévitation. Cet effet peut s'expliquer par un échauffement du nanodiamant [105], ainsi que par l'illumination du nanodiamant par un faisceau infrarouge, comme observé das le cas d'un laser à 1064 nm. Il est donc intéressant d'étudier la photophysique du centre NV sous un flux élevé à 1550 nm.

Ensuite, on observe un décalage de la fréquence micro-ondes de résonance pour le nanodiamant en lévitation ‡ démontrant un échauffement de la particule. En effet, cet échauffement de la particule est observé dans la littérature [58, 57]. Non seulement, le chauffage de la particule est un problème car il peut impacter la photophysique des centres NV et limiter les applications physiques du système. Mais surtout, il peut engendrer la destruction du nanodiamant par graphitisation. La perte systématique des nanodiamants en lévitation à des pressions de l'ordre de 1 mbar à 10 mbar a d'ailleurs parfois été attribuée à ce changement d'état du cristal [57].

Si l'on souhaite effectuer un contrôle du spin des centres NV, il faut réussir à descendre la pression où la particule est stable pour atteindre des régimes intéressants pour réaliser des études de couplage spin-optomécanique. C'est pourquoi, nous nous intéresserons dans la suite du projet à la thermométrie des centres NV.

2.4 Effet du laser de piégeage infrarouge sur la photophysique du centre NV

Comme évoqué en introduction, les premières expériences de piégeage optique de nanodiamants ont été réalisées en utilisant des lasers infrarouges à la longueur d'onde $\lambda = 1064$ nm, aussi bien dans l'eau [115, 123], que dans le vide [117]. Cependant, l'utilisation de cette longueur d'onde affecte énormément la photophysique du centre NV

‡. Notons aussi que le paramètre E est plus grand dans les nanodiamants en raison des contraintes internes. Cette propriété n'est pas propre à la lévitation, et ne présente que peu d'intérêt physique ici.

dont l'intensité de luminescence et le contraste de sa résonance de spin sont fortement réduits [124]. Pour les expériences dans le vide, il est alors préférable d'utiliser des nanodiamants enrobés de silice, et de moduler le laser infrarouge [117]. Même dans ces conditions, le contraste de la résonance de spin reste modéré.

Afin de minimiser ces effets, nous avons choisi de travailler avec un laser à la longueur d'onde $\lambda = 1550$ nm. Il a donc été nécessaire dans un premier temps d'étudier l'effet de ce laser sur nos nanodiamants en lévitation. Pour cela, nous avons enregistré des spectres d'ODMR à plusieurs pression et puissance laser. La figure 2.7(a) présente les spectres d'ODMR d'un nanodiamant piégé à pression fixe de 45 mbar à plusieurs puissances du laser de piégeage. On remarque que la photoluminescence globale du signal d'ODMR diminue avec la puissance laser (cf figure 2.7(b)) et que le contraste globale des raies de résonance diminuent également (cf figure 2.7(c)). Ces résultats sont semblables à ce qui a pu être remarqués pour une expérience analogue réalisée par l'équipe de T. Li aux États Unis [58] et sont plus prometteurs que pour le piégeage à $\lambda = 1064$ nm [117]. Même si la perte de contraste et la diminution de photoluminescence est toujours présente, nous ne connaissons pas l'effet exact du laser infrarouge à $\lambda = 1550$ nm sur les propriétés de spin du centre NV par rapport aux effets thermiques qui influent sur la baisse du contraste de l'ODMR et la chute de photoluminescence.

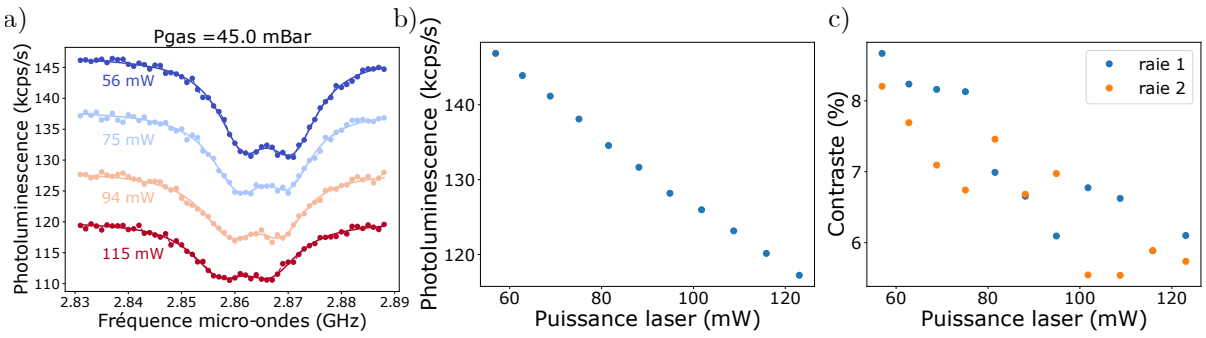

Figure 2.7 – **Influence de la puissance du laser de piégeage à λ =1550 nm sur la photophysique des centres NV.** a) ODMR d'un nanodiamant en lévitation à pression fixée pour différentes puissances du laser infrarouge. Les courbes en traits pleins représentent l'ajustement par une double lorentzienne de la photoluminescence permettant de déterminer les paramètres D et E. b) Photoluminescence collectée et c) contraste de l'ODMR des deux raies de résonance de l'ODMR en fonction de la puissance laser.

Afin d'étudier exclusivement les effets du laser et limiter les effets thermiques, nous

avons soumis un échantillon de diamant massif fortement dopé en centres NV à une excitation infrarouge à la longueur d'onde $\lambda = 1550$ nm. La figure 2.8(a) montre l'effet de la puissance laser sur le spectre de photoluminescence d'un diamant massif à excitation laser vert à λ =532 nm fixe. On remarque que la proportion de centres NV dans leur état de charge neutre NV^0, caractérisée par un spectre décalé dans le bleu, et une raie zéro phonon à 575 nm, voie leur proportion diminuer par rapport au nombre de centres dans leur état de charge négatif NV^-,dont la raie zéro phonon est à 638 nm. De plus, cette étude a été réalisée pour des puissances laser infrarouge à λ =1550 nm variables, comme le met en évidence la figure 2.8(b). Cette étude, nous a permis de mettre en évidence l'effet du laser infrarouge, à la fois sur la proportion des centres NV^0 (cf figure 2.8(c)) que sur le gain de photoluminescence (cf figure 2.8(d)).

Les propriétés liées à l'excitation par un laser à λ =1550 nm vont donc dans le sens d'une utilisation efficace pour utiliser les propriétés optiques décrites précédemment. En effet, on observe une augmentation de la photoluminescence globale et une augmentation de centres NV chargés négativement. On note alors qu'aux puissances utilisées pour le piégeage optique ($P_{\text{las}} \approx 100$ mW), les effets du laser infrarouge sur le centre NV dans le diamant massif sont plutôt bénéfiques. En effet, les expériences faisant appel à des centres NV pour l'information quantique, la magnétométrie, ou l'optomécanique de spin, cherchent à avoir le signal le plus important et à ce prémunir de l'état de charge neutre, qui ne possède pas les propriétés attractives du centre NV^-. Dans ce contexte, nos résultats sont particulièrement attrayants, puisqu'ils démontrent que l'utilisation d'un laser infrarouge, permettrait de favoriser ces aspects.

Cependant, les observations sur le diamant massif, et sur les centres NV dans le pièges optiques sont contradictoires, puisque dans le second cas, la luminescence a plutôt tendance à diminuer avec la puissance du laser infrarouge. Une première explication est que, comme discuté en introduction, le nanodiamant en lévitation est chauffé par le laser infrarouge. Or la température peut aussi avoir un effet négatif sur la luminescence et le contraste ESR des centres NV [124]. Dans ce contexte, la compréhension et le contrôle des mécanismes de chauffage des nanodiamants apparaissent comme cruciaux, puisqu'ils pourraient fortement limiter la dégradation du signal optique des centres NV dans les diamants en lévitation. Notons aussi, que l'on peut aussi expliquer les observations faites dans le cas du diamant massif par des transfert de charges dans le diamant. De tels transferts de charges sont probablement différents à l'échelle d'un diamant massif que

d'un nanodiamant. Pour s'en assurer, il faudrait pouvoir mener l'étude précédente sur des nanodiamants déposés sur une lame de verre. Afin de réaliser cette expérience, il est nécessaire de balayer l'échantillon au focus de l'objectif. Nous avons donc réalisé récemment un système mécanique permettant d'adapter un scanner piézoélectrique dans la chambre à vide. Ce dispositif devrait permettre de tester prochainement les effets du laser infrarouges sur les nanodiamants utilisés dans les expériences de piégeage optique.

Pour conclure, si expérimentalement nous observons une légère diminution de la photoluminescence et du contraste de la résonance de spin des centres NV dans les nanodiamants en lévitation. Cette diminution reste modérée, et permet de conserver des propriétés de spin suffisantes pour mener les expériences qui nous intéressent. Nous l'attribuons au moins en partie à des effets thermiques, et il est donc extrêmement intéressant d'étudier ces effets dans les nanodiamants en lévitation de façon à pouvoir s'en prémunir. Pour cela, nous allons pouvoir utiliser les propriétés de thermométrie des centres NV.

2.5 Thermométrie d'un nanodiamant dans le vide

Comme nous l'avons évoqué les nanodiamants en lévitation subissent un chauffage lié à la forte puissance laser incidente. Ce chauffage impose un certain nombre de limites pour leur utilisation dans des expériences d'optomécanique de spin. Les premières limites sont techniques, avec une dégradation des propriétés photophysiques des centres NV [124], et le risque de dégradation du diamant [57] (par exemple graphitisation) qui peuvent mener à sa perte du piège. D'autres limites sont fondamentales, avec la réduction par la température de la cohérence quantique du mouvement du diamant en lévitation [125]. Il est donc crucial de bien comprendre et potentiellement contrôler le chauffage du nanodiamant.

Précédemment, nous avons discuté de la dépendance de la résonance de l'ODMR en fonction de la température. Dans ce paragraphe nous proposons d'utiliser cette propriété pour mesurer la température interne de la particule de diamant en lévitation, en particulier en fonction de la pression dans la chambre à vide et de la puissance du laser infrarouge de piégeage. L'objectif étant de comprendre les processus à l'œuvre de ce chauffage, nous commencerons par décrire théoriquement les processus responsables des échanges thermiques dans notre système en lévitation. Puis, nous comparerons ces modèles à nos résultats expérimentaux sur la mesure de la température interne de nanodiamants en lévitation.

2.5.1 Modèle théorique

On s'intéresse ici aux paramètres physiques impactant la température interne de la nanoparticule en lévitation. Nous allons donc proposer un modèle thermodynamique simple, et pour cela nous avons besoin d'introduire le coefficient d'accommodation.

Coefficient d'accommodation

Dès 1860, Maxwell introduit le concept de coefficient d'accommodation [126] dans une série de papiers sur la théorie des gaz. Il différencie deux cas limites possibles pour la collision d'une particule de gaz avec une surface (ici notre particule) :

— la molécule est réfléchie sans interaction avec la surface

— elle s'accommode totalement à la surface

Il continue sa théorie en supposant qu'une fraction α des molécules va s'accommoder et que le reste des molécules, soit une fraction $1-\alpha$, va être réfléchi. Le coefficient α ainsi introduit est dénommé coefficient d'accommodation §.

Si on note $j^{\text{ém}}$ l'énergie par unité de surface et par unité de temps des molécules qui repartent après transfert énergétique avec la particule, j_0 l'énergie par unité de surface et par unité de temps du faisceau incident et j^{sur} l'énergie par unité de surface et par unité de temps qu'aurait une molécule si elle était à l'équilibre thermodynamique d'un gaz à la température de surface de la particule T_{sur}, le coefficient d'accommodation se note [127] :

$$j^{\text{ém}} - j^0 = \alpha(j^{\text{sur}} - j^0) \tag{2.2}$$

Le coefficient d'accommodation intervient dans l'échange convectif. Par définition c'est une grandeur bornée entre 0 et 1. Elle représente la proportion des molécules de gaz qui échange de l'énergie avec la particule. Si l'ensemble des molécules s'accommodent totalement avec la particule, le coefficient d'accommodation tend vers 1 : $\alpha \to 1$. Au contraire, sans échange d'énergie, le coefficient d'accommodation tend vers 0 : $\alpha \to 0$. Nous présenterons dans le chapitre 3 une méthode permettant de déterminer le coefficient d'accommodation pour nos nanodiamants.

§. On distingue différents types de coefficients d'accommodation en fonction du transfert de la grandeur avec la surface. Dans notre cas, on s'intéresse au transfert énergétique donc on parlera de coefficient d'accommodation thermique. On peut également trouver dans la littérature des coefficients d'accommodation en masse ou en moment.

2.5.2 Échanges thermiques d'une particule en lévitation

Pour décrire les processus d'échanges thermiques au sein de notre système en lévitation, nous ferons l'hypothèse que la particule piégée est sphérique afin de modéliser et quantifier les échanges thermiques qui se produisent entre notre système et les molécules de gaz. Même si nos particules ne sont pas sphériques, le but de ce modèle est d'obtenir une estimation analytique et quantitative des échanges thermiques. Une autre hypothèse consistera à prendre une température interne de la particule homogène que l'on notera T_{int} égale à la température de surface de la particule. Une justification pourra être trouvée en annexe B où l'on a simulé le profil de température à l'intérieur d'une surface soumise à plusieurs contraintes, l'équilibre thermique se faisant très rapidement par rapport à la dynamique de la particule. Cette particule est entourée d'un gaz (ici l'air) à la température constante $T_0 = T_{\text{amb}} = 294$ K, la pièce étant thermalisée.

Dans la suite, nous introduirons trois processus d'échanges thermiques pouvant intervenir entre notre particule et l'environnement extérieur à savoir : la convection, l'absorption et le rayonnement de corps noir.

L'échange convectif

Le régime dans lequel notre système se place pour décrire la convection sera celui de la particule libre. C'est un régime où le rayon de la particule noté a doit être beaucoup plus petit que le libre parcours moyen des molécules de gaz environnantes noté λ_{LPM}, avec $\lambda_{\text{LPM}} = \dfrac{k_B T}{\sqrt{2}} \pi d^2 p_{\text{gaz}}$ où k_B est la constante de Boltzmann, T représente la température, p_{gaz} est la pression du gaz et d le diamètre des particules constituants le gaz. Pour déterminer dans quel régime se placer, on peut introduire le nombre de Knudsen, défini par $Kn = \lambda_{\text{LPM}}/a$, En pratique, pour être dans le régime de la particule libre, il faut que $Kn \geq 10$. Pour un gaz à température ambiante et à pression atmosphérique, le libre parcours moyen des molécules de gaz vaut $\lambda_{LPM} \sim 70$ nm. Cette valeur est de l'ordre de grandeur du rayon de nos particules de diamant (typiquement $a \sim 50$ nm). Lorsque l'on diminue la pression, on augmente le libre parcours moyen puisque $\lambda_{\text{LPM}} \propto 1/p_{\text{gaz}}$. On atteint ainsi le régime de particule libre en dessous de 100 mbar.

Dans ce régime de particule libre, l'expression de la fonction de la distribution de vitesse suit la loi de Maxwell-Boltzmann [128]. Nous pouvons ainsi exprimer l'échange convectif pour une particule sphérique. Pour cela, on commence par écrire l'expression

de la dérivée du flux énergétique de pertes, j_{pertes}, par conduction :

$$\frac{dj_{\text{pertes}}}{dt} = n_g \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty \int_{-\infty}^\infty \epsilon c_r f_{c_r} f_{v_1} f_{v_2} dc_r dv_1 dv_2 \tag{2.3}$$

où l'on a :

- c_r la vitesse radiale de la particule, v_1 et v_2 les deux autres composantes orthogonales de la vitesse.
- $\epsilon(v,T)$ l'énergie totale d'une molécule de gaz donnée par $\epsilon(v,T) = \frac{1}{2}m_g(c_r^2 + v_1^2 + v_2^2) + U(T)$ où $U(T)$ est l'énergie interne d'une molécule de gaz. Elle est définie par [127] $U(T) = \int_{T_{\text{ref}}}^T m_g c_v(T) dT - \frac{3}{2}k_B(T - T_{\text{ref}})$ où c_v représente la capacité thermique de l'air à volume constant.
- les fonctions f_i, représentant les fonctions de distribution de Maxwell-Boltzmann [129] pour une composante i de la vitesse, données par $f_i = \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} e^{-\beta^2 i^2}$ avec $i = c_r$ ou v_1 ou v_2 et $\beta = \sqrt{m_g/2k_BT}$ où m_g est la masse d'une molécule de gaz et n_g est la densité volumique du gaz.

On en déduit après intégration que :

$$\frac{dj_{\text{pertes}}}{dt} = \frac{n_g}{2}\sqrt{\frac{2k_BT}{\pi m_g}}(2k_BT + U(T)), \tag{2.4}$$

étant donné l'expression de la vitesse moyenne des particules de gaz $\overline{c_g} = \sqrt{\frac{8k_BT}{\pi m_g}}$, on peut noter l'expression du flux énergétique de pertes par conduction comme :

$$\frac{dj_{\text{pertes}}}{dt} = \frac{n_g}{4}\overline{c_g}(2k_BT + U(T)). \tag{2.5}$$

On obtient l'expression du taux de pertes énergétiques surfaciques par conduction thermique de la particule en intégrant l'expression précédente.

Nous pouvons obtenir facilement le transfert énergétique lié à la convection thermique $\dot{q}_{\text{conv}}$ en utilisant l'équation 2.2 :

$$\dot{q}_{\text{conv}} = S(j_{\text{pertes}}^{\text{ém}} - j_{\text{pertes}}^0) = S\alpha(j_{\text{pertes}}^{\text{sur}} - j_{\text{pertes}}^0) \tag{2.6}$$

avec S la surface de la particule (pour le cas sphérique $S = 4\pi a^2$). En utilisant l'équation 2.5 et les équations liées aux propriétés de l'air : $c_v m_g = k_B/(\gamma - 1)$ où γ représente

l'indice adiabatique du gaz et $p_{\text{gaz}} = n_g k_B T_0$, on obtient :

$$\dot{q}_{\text{conv}} = 2\alpha S p_{\text{gaz}} \overline{c_g} \frac{1}{T_0} \int_{T_0}^{T_{\text{sur}}} (1 + \frac{2}{\gamma - 1}) dT \tag{2.7}$$

En supposant que γ ne dépend pas de la température ¶, on a :

$$\dot{q}_{\text{conv}} = 2\alpha S p_{\text{gaz}} \overline{c_g} \frac{T_{\text{int}} - T_0}{T_0} \frac{\gamma + 1}{\gamma - 1}, \tag{2.8}$$

en assimilant la température de surface à la température interne de la particule T_{int}.
Afin de faciliter la compréhension des échanges thermiques pour la suite, on introduit un coefficient lié à la convection que l'on notera γ_{conv}. On peut alors écrire le transfert d'énergie convectif à partir de ce coefficient comme :

$$\dot{q}_{\text{conv}} = \alpha \gamma_{\text{conv}} S p_{\text{gaz}} \Delta T \tag{2.9}$$

où $\gamma_{\text{conv}} = \frac{\overline{c_g}}{2T_0} \frac{\gamma+1}{\gamma-1}$, $\Delta T = T_{\text{int}} - T_0$ et p_{gaz} la pression du gaz.
Les propriétés que l'on peut retenir pour l'échange convectif sont :

- l'échange convectif est proportionnel à la surface de la particule, $\dot{q}_{\text{conv}} \propto S$
- il est linéaire avec le coefficient d'accommodation
- il dépend également linéairement de la pression du gaz environnant
- il est proportionnel à la différence de température entre la température interne de la particule et la température environnante.

L'absorption

De manière générale, la puissance absorbée par la particule illuminée par un laser d'intensité I_0 au focus de l'objectif s'écrit sous la forme :

$$\dot{q}_{\text{abs}} = \sigma_{\text{abs}} I_0, \tag{2.10}$$

avec σ_{abs} la section efficace d'absorption de la particule. Si l'on suppose que la particule est homogène de permittivité diélectrique complexe ϵ, dans le régime de Rayleigh pour une particule de volume V, on peut écrire [72, 131] :

$$\dot{q}_{\text{abs}} = 6\pi \frac{V}{\lambda} \text{Im}\left(\frac{\epsilon(\lambda) - 1}{\epsilon(\lambda) + 2}\right) I_0 \tag{2.11}$$

¶. Cette hypothèse est vraie pour de petites variations de température. Si on veut prendre en compte la variation de température sur l'indice adiabatique on peut se référer à Fillippov *et al.* [130]

Cependant, dans le cas des nanodiamants, on peut imaginer différentes causes responsables de l'absorption. En particulier, même si les diamants utilisés sont traités pour limiter la présence de graphite et de carbone amorphe en surface, des résidus de ces éléments peuvent mener à une absorption en surface. On attend alors dans ce cas une dépendance avec la surface de la section efficace d'absorption $\sigma_{\text{abs}} \propto S$. Dans le cas d'une absorption en volume, l'absorption pourrait être attribuée à différentes impuretés comme la présence de dislocation ou de lacune électronique qui présentent des bandes d'absorption larges dans l'infrarouge [132] ou les centres azotés et les centres NV eux-mêmes.
De façon à minimiser le chauffage des nanodiamants et de comprendre la nature exacte de cette absorption, il est critique de mieux comprendre les processus d'échanges thermiques.

L'échange radiatif du corps noir

On s'intéresse à présent à la radiation thermique émise (ou absorbée) par la particule chauffée, c'est ce qu'on appelle la radiation du corps noir. La puissance émise (ou absorbée) par la particule dépend des propriétés diélectriques de la particule sur le spectre entier du corps noir. Un calcul détaillé de cette émission implique d'intégrer les taux d'émission radiative pour toutes les longueurs d'onde. Si on utilise l'approximation d'une émissivité de la particule constante dans toute la gamme de longueur d'onde d'émission [133], on peut écrire l'expression de la puissance émise (ou absorbée) comme [72] :

$$\dot{q}_{\text{rad}} = \frac{72\zeta(5)}{\pi^2}\frac{V}{c^3\hbar^4}\text{Im}\left(\frac{\epsilon_{\text{c.n.}}-1}{\epsilon_{\text{c.n.}}+2}\right)(k_B T)^5, \tag{2.12}$$

où la fonction ζ est la fonction zeta de Reimann, dans notre cas on a $\zeta(5) \approx 1.04$ et $\epsilon_{\text{c.n.}}$ représente la permittivité diélectrique à la longueur de l'émission du corps noir.
La puissance émise par radiation du corps noir de la particule peut être calculée en prenant $T = T_{\text{int}}$ et la puissance absorbée par la particule est calculée en prenant $T = T_0 = 294$ K, la température ambiante.

2.5.3 Équilibre thermodynamique

On s'intéresse à l'équilibre thermodynamique entre ces différents échanges. À l'équilibre thermodynamique, on a :

$$\dot{q}_{\text{rad}}^{\text{abs}} + \dot{q}_{\text{abs}} = \dot{q}_{\text{conv}} + \dot{q}_{\text{rad}}^{\text{em}}. \tag{2.13}$$

Dans les expériences menées dans la suite, la pression du gaz sera comprise entre 1 et 100 mbar. Dans ce régime, on peut montrer que le processus de radiation du corps noir est négligeable devant la convection. On obtient l'expression suivante :

$$\sigma_{\text{abs}} I_0 = \alpha \gamma_{\text{conv}} S p_{\text{gaz}} \Delta T. \tag{2.14}$$

En pratique, expérimentalement, on utilise la puissance laser plutôt que l'intensité. Pour utiliser plus facilement la relation précédente, on introduit la surface de focalisation $S_{\text{focus}} = \pi w_x w_y = 2,4\ \mu\text{m}^2$, avec w_x et w_y les tailles du faisceau au centre de convergence introduites au chapitre 1. La différence de température s'exprime en fonction de la puissance laser et de la pression du gaz comme :

$$\Delta T = \frac{\sigma_{\text{abs}}}{\alpha \gamma_{\text{conv}} S_{\text{part}} S_{\text{focus}}} \frac{P_{\text{las}}}{p_{\text{gaz}}}. \tag{2.15}$$

Applications Numériques

Afin de fixer les idées, on peut réaliser une simulation de la température interne d'équilibre d'un nanoparticule sphérique de 50 nm de rayon. En particulier, nous utiliserons une absorption diélectrique associée à la constante diélectrique du diamant $\epsilon = 5,8 + i\epsilon''$, avec $\epsilon'' = 4 \cdot 10^{-3}, 4 \cdot 10^{-4}, 1 \cdot 10^{-7}$. Les deux premières valeurs correspondent aux cas de nos nanodiamants (voir section 2.5.6) et la dernière à ce qui peut être attendue pour des diamants de très grandes puretés [119].
Ces simulations, représentées sur la figure 2.9, mettent en évidence que dans les régimes explorés expérimentalement (p_{gaz} entre 1 et 100 mbar, $T_{\text{int}} < 800$ K), le processus de rayonnement du corps noir est bien négligeable. De plus, on remarque que la température d'équilibre thermodynamique est très dépendante de la section efficace d'absorption. Ainsi, si on veut limiter l'échauffement de la particule, il faut diminuer la section efficace d'absorption. Pour cela, il faut déterminer les paramètres ajustables permettant de réduire cette grandeur.

Introduction du coefficient d'échauffement de la particule

Afin de travailler avec une grandeur facilement accessible expérimentalement, on introduit le coefficient κ_{heat} :

$$\kappa_{\text{heat}} = \frac{\sigma_{\text{abs}}}{\alpha \gamma_{\text{conv}} S S_{\text{focus}}}. \tag{2.16}$$

Il représente l'efficacité du chauffage de la particule dans le régime où $p_{\text{gaz}} > 1$ mbar. Ce coefficient permet de prendre en compte à la fois les processus d'absorption et de convection. Si l'on reprend l'équation 2.15, on peut mesurer la température interne de la particule en utilisant la formule condensée suivante :

$$\Delta T = \kappa_{\text{heat}} \frac{P_{\text{las}}}{p_{\text{gaz}}}. \tag{2.17}$$

Nous allons à présent décrire les résultats expérimentaux obtenus pour un nanodiamant, en décrivant les étapes nécessaires afin de déterminer κ_{heat}. Puis, nous présenterons les résultats sur un ensemble de nanodiamants pour essayer de modéliser les processus d'échanges thermiques et notamment celui lié à l'absorption.

2.5.4 Étalonnage de la mesure de température interne d'un nanodiamant

Dans la partie 2.2.3 présentant l'hamiltonien d'un centre NV, nous avons vu que le coefficient de séparation axial à champ nul D est dépendant de la température interne du cristal. C'est une propriété clef qui nous permet de mesurer la température interne de notre particule à partir de la mesure du spectre d'ODMR. En effet, lorsqu'on réalise l'expérience d'ODMR, l'ajustement du spectre par une double lorentzienne, présenté sur la figure 2.5(b), permet d'en déduire les paramètres de séparation en champ nul E et D. Le paramètre D correspond au centre de la double lorentzienne et le paramètre E est l'écart entre les deux lorentziennes. Une fois obtenue ces paramètres, nous nous intéressons à la dépendance de D avec la température du nanodiamant.

Cet effet a été étudié sur un diamant massif [125] et a permis d'étalonner cette dépendance. Afin de transposer ces résultats aux particules en lévitation, nous avons effectué des mesures sur des nanodiamants déposés sur une lame de quartz pour s'assurer de la reproductibilité de cet étalonnage. La température des nanodiamants a été contrôlée à l'aide d'une résistance chauffante couplée par une boucle de rétroaction à un capteur de température.
Les résultats sont présentés sur la figure 2.10. Ils nous ont permis de mettre en évidence deux éléments importants :

— le paramètre transverse de séparation en champ nul E n'est pas sensible à la

température aux incertitudes près (cf figure 2.11(a)).

— l'évolution de D en fonction de la température autour de la température ambiante n'est pas significativement affectée d'un nanodiamant à l'autre (cf figure 2.11(b)).

Cela nous permet de considérer le comportement des nanodiamants comme homogène. La gamme de température accessible avec notre dispositif ainsi que la difficulté de mesurer réellement la température d'un nanodiamant sur un substrat ne nous permet pas de complètement caractériser la dépendance de D avec la température sur la gamme utile pour la suite de notre étude. Nous avons donc choisi d'utiliser le modèle proposé par Toyli *et al* [105] qui est représenté en traits pleins sur la figure 2.11(b). Notons que d'autres groupes ont reportés des mesures similaires sur des nanodiamants [134] et conforte notre choix d'utiliser une modélisation unique quelque soit le nanodiamant considéré.

La dépendance de la fréquence de résonance de l'ODMR (c'est-à-dire la fréquence correspondant à l'écart énergétique entre les niveaux $|0\rangle$ et $|\pm1\rangle$ qui n'est autre que le paramètre D) avec la température interne de la particule dans la gamme de température qui nous intéresse est une grandeur phénoménologique qui a été mesurée puis ajusté par Toyli *et al* [105]. L'ajustement retenu est un polynôme d'ordre 3 dont la formule est donnée par :

$$D(T) = a_0 + a_1 T + a_2 T^2 + a_3 T^3 + \Delta_{\text{contrainte}} + \Delta_{\text{pression}} \tag{2.18}$$

avec $a_0 = 2,8697$ GHz, $a_1 = 9,7.10^{-5}$ GHz $\cdot$ K^{-1}, $a_2 = -3,7.10^{-7}$ GHz $\cdot$ K^{-2} et $a_3 = 1,7.10^{-10}$ GHz $\cdot$ K^{-3}, $\Delta_{\text{contrainte}}$ l'effet de la contrainte interne du nanodiamant dans l'axe de quantification z et $\Delta_{\text{pression}} = 1,5$ kHz $\cdot$ bar^{-1} [107]. L'effet du décalage de la résonance avec la pression sera considéré comme négligeable en comparaison des décalages liés aux effets thermiques. Cela est justifié par le fait que si on réalise un ajustement linéaire autour de la température ambiante la variation du paramètre de séparation en champ nul D avec la température était de $-76(1)$ kHz/K [135].

Ainsi, pour déterminer la température interne du cristal, on ajuste le spectre ODMR obtenu par une double lorentzienne centrée sur la fréquence correspondante au paramètre D et séparée par une fréquence liée au paramètre de contrainte E. Pour déterminer le terme de contrainte $\Delta_{\text{contrainte}}$, nous avons ajusté les résultats de la fréquence de résonance par l'équation (2.18) (traits pleins sur la figure 2.12(b)) en omettant les termes constants $\Delta_{\text{contrainte}}$ et Δ_{pression}. En négligeant le terme Δ_{pression}, le terme de contrainte

correspond donc à l'écart de la mesure $\Delta_{\text{contrainte}} = a_0^{\text{exp}} - a_0$, où a_0^{exp} correspond au coefficient constant de l'ajustement de la dépendance de la fréquence de résonance de spin D avec la température. Les données de la figure ont alors été normalisées par ce coefficient pour pouvoir superposer les données. Nous en déduisons que l'effet de la contrainte sur le spectre d'ODMR n'est qu'un simple décalage.

Néanmoins, pour les particules en lévitation, nous ne pourrons pas réaliser ce type de mesure. Le terme $\Delta_{\text{contrainte}}$ reste inconnu à ce stade ce qui nous empêche de connaître la température interne exacte du nanodiamant. Pour la mesurer, il faut déterminer le terme en $\Delta_{\text{contrainte}}$ propre à chaque nanodiamant. On proposera dans la suite une méthode permettant de le mesurer et ainsi une technique permettant d'obtenir la température interne du nanodiamant piégé.

2.5.5 Mesures expérimentales de la température interne d'un nanodiamant en lévitation

Nous avons mesuré alors à différentes conditions de piégeage le spectre ODMR d'un même nanodiamant. La figure 2.12(a) présente différents spectres ODMR d'un même nanodiamant à pression fixée à 45 mbar à puissance du laser de piégeage variable où l'on a normalisé la photoluminescence permettant de rendre compte du décalage de la raie de résonance. Tout d'abord, on retrouve les résultats de la section 2.4 sur la photophysique des centres NV où plus la puissance de laser infrarouge est importante plus le contraste lié à la résonance de l'ODMR diminue. Ensuite, le décalage de la fréquence de résonance est dû à l'échauffement de la particule. Cela s'explique facilement par le fait que lorsqu'on augmente la puissance de piégeage on amplifie le phénomène d'absorption (proportionnel à la puissance laser) ce qui entraîne une augmentation de la température interne d'équilibre.

Si maintenant on trace la température interne en fonction de la puissance laser à différentes pressions, on remarque sur la figure 2.12(b) que lorsque la pression diminue la température interne est plus faible. Cela est lié cette fois ci au phénomène de convection qui s'atténue. Si l'on rentre dans les détails c'est la dépendance en $\frac{1}{p_{\text{gaz}}}$ de l'équation 2.15 que l'on met en évidence dans ce cas.

Pour aller plus loin, on réalise un ajustement 2D (simultanément sur la puissance

laser et la pression du gaz) en utilisant l'équation 2.17 permettant d'obtenir à la fois la température à puissance nulle et le coefficient κ_{heat}. La température interne à puissance nulle n'est pas tout à fait la température ambiante $T_0 = 294$ K. Ce biais est dû au terme de contrainte $\Delta_{\text{contrainte}}$ introduit dans l'équation 2.18. Cet ajustement permet alors de le déterminer. Celui-ci est de l'ordre du MHz pour nos nanodiamants.

L'importance d'avoir réaliser ces mesures est d'obtenir le coefficient κ_{heat} intrinsèque à chaque nanodiamant. Afin de déduire la nature de l'absorption, on s'intéresse à la dispersion du coefficient κ_{heat} d'un grand nombre de particules.

2.5.6 Statistique sur le processus d'absorption

On a vu précédemment que la température interne des particules de diamant augmentait avec la puissance du laser et en diminuant la pression. Celui-ci est essentiellement dû à un processus d'absorption du diamant [132]. Dans notre cas, lorsque le laser de piégeage à 1550 nm est actif (cela correspond à un nombre d'onde $\sigma_{\text{IR}} \approx 6500$ cm^{-1}), les éléments susceptibles d'absorber ne sont pas les centres NV (absorption centrée vers 570 nm, comme le montre le spectre de la figure 2.2) ni les centres azotés N (absorption commençant dans l'infrarouge vers ~ 1000 cm^{-1} et plus profondément [136, 137]). On peut donc supposer que ces éléments ne sont pas la cause de l'échauffement de notre particule mais plutôt des défauts dans la structure du diamant (join de grains, lacune...) ou un effet de surface avec la présence de graphite.

Nous avons vu précédemment que $\kappa_{\text{heat}} \propto \sigma_{\text{abs}}/S$ (équation 2.16), ainsi une mesure de la valeur de κ_{heat} en fonction de la taille de la particule de nanodiamant devrait permettre de déterminer si l'on a plutôt affaire à une absorption en volume ($\sigma_{\text{abs}} \propto V$, et κ_{heat} linéaire avec la taille de la particule), ou en surface ($\sigma_{\text{abs}} \propto S$, et κ_{heat} indépendant de la taille de la particule). Afin de répondre à cette question, nous avons donc déterminé pour plus d'une quarantaine de particules la valeur du coefficient κ_{heat} en reproduisant l'expérience décrite précédemment, en enregistrant une série de spectre de résonance magnétique à différentes pressions et à différentes puissances du laser de piégeage. Nous avons alors estimé la taille caractéristique des particules en utilisant une mesure de leur rayon hydrodynamique, introduite au chapitre 1 dans la section 1.6.4.

La figure 2.13(a) représente ainsi κ_{heat} en fonction de la taille du nanodiamant. Bien

que les résultats soient extrêmement disperses, une tendance semble se dégager : les particules les plus chaudes correspondent aux particules les plus grosses. Afin de confirmer cet effet,nous avons décidé de présenter les données sous une forme différente. Nous avons tracé l'histogramme des occurrences de κ_{heat} pour les particules de taille inférieure à la taille moyenne de nos particules $a_{\text{hydro}}^{\text{moy}} = 64$ nm, et les particules de taille supérieure à cette valeur (figure 2.13(b)). On observe alors un léger décalage de ces histogrammes, qui confirme la dépendance en taille de la valeur du κ_{heat}, et donc l'absorption volumique de nos nanodiamants. Nous attribuons la grande dispersion des résultats obtenus à la présence de défauts ponctuels internes à la particule qui peuvent impacter fortement l'absorption d'une nanoparticule particulière.
Si on essaye de quantifier cette absorption, on peut écrire une formule analytique pour la section efficace d'absorption à partir de l'équation 2.11 :

$$\sigma_{\text{abs}} = \frac{6\pi V}{\lambda} \text{Im}\left(\frac{\epsilon(\lambda) - 1}{\epsilon(\lambda) + 2}\right) \tag{2.19}$$

Pour estimer expérimentalement la valeur de la section efficace d'absorption dans notre cas, on utilise la formule de l'équation 2.16 du coefficient κ_{heat} en prenant une valeur du coefficient d'accommodation égale à 1 (ce choix sera justifié dans le chapitre 3) :

$$\sigma_{\text{abs}} = \gamma_{\text{conv}} S S_{\text{focus}} \kappa_{\text{heat}}. \tag{2.20}$$

On a la surface de focalisation $S_{\text{focus}} \approx 2,4\ \mu\text{m}^2$, la surface de la particule dans le cas sphérique $S_{\text{part}} \approx \pi a_{\text{hydro}}^2 = 8 \cdot 10^{-3}\ \mu\text{m}^2$, γ_{conv} une constante propre à notre dispositif expérimental.

La figure 2.14 représente les résultats expérimentaux obtenus pour la section efficace d'absorption en fonction du rayon hydrodynamique de la particule. Sans surprise, due à la dispersion du coefficient κ_{heat}, on a également une dispersion des résultats assez importantes. Des ajustements sur la section efficace d'absorption en loi de puissance du rayon ont été testés. La dépendance au carrée étant très loin des données expérimentales, le processus d'absorption n'est pas surfacique, en tout cas elle ne domine pas le processus. En revanche, lorsque l'on teste l'ajustement par une loi de puissance au cube, la régression est bien plus proche des données expérimentales. On peut si on considère cette dépendance au cube encadrée l'absorption de nos nanodiamants comme le montre la figure 2.14 avec $\sigma_{\text{abs}} = c_0 a^3$ avec $c_0 \in [1100, 11000]\ \text{m}^{-1}$.

De ces mesures, on peut en déduire une estimation de l'indice complexe de la constante diélectrique des nanodiamants utilisés. A partir de l'équation 2.19, on obtient en considérant la partie imaginaire de la constante diélectrique beaucoup plus petite que sa partie réelle :

$$c_0 = \frac{\sigma_{\text{abs}}}{a^3} = \frac{24\pi^2}{\lambda}\frac{\epsilon''}{(\epsilon'+2)^2}, \tag{2.21}$$

avec la constante diélectrique complexe du diamant s'écrivant $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$ où $\epsilon' \approx 5,7$ et $\lambda = 1550$ nm la longueur d'onde du laser de piégeage. On obtient un encadrement de la constante diélectrique : $\epsilon_{\text{ND}} \in [4,3 \cdot 10^{-4}, 4,3 \cdot 10^{-3}]$. Ce qui permet de justifier l'hypothèse *a posteriori* que la valeur complexe de la constante diélectrique des nanodiamants est beaucoup plus faible que sa valeur réelle.

Ainsi, nos expériences ont mis en évidence que de façon surprenante l'absorption des nanodiamants a lieu essentiellement en volume, et ne peut a priori pas être attribué au graphite en surface des nanodiamants. Les pistes principales pour expliquer cette absorption serait alors plutôt liées à des défauts structurels de la matrice de diamant, que ce soit par la présence de dislocation ou de lacunes. Afin de valider cette hypothèse, il serait alors intéressant d'étudier l'évolution de l'absorption des nanodiamants en fonction de la dose d'irradiation α subie par les nanodiamants lors de la création des centres NV. Une étude qui devrait prochainement être possible grâce aux efforts récents que nous avons mis en œuvre au laboratoire pour piéger des nanodiamants contenant des centres NV uniques, et donc moins irradiées.

Effet de la puissance d'excitation sur l'absorption

Une question complémentaire est aussi l'impact du laser vert sur l'absorption du diamant. Nous nous sommes donc intéressés à l'absorption de nos particules au laser d'excitation à 532 nm. Même si la puissance injectée est faible par rapport à celle du laser de piégeage $P_{\text{las}}^{532} < 100$ μW et $P_{\text{las}}^{532} \sim 100$ mW, l'absorption à cette longueur d'onde peut prédominer. Une étude préliminaire effectuée sur un nanodiamant a permis de mesurer la section efficace d'absorption à 532 nm. Nous avons adapté la méthode de la mesure de κ_{heat} afin de quantifier la contribution du laser d'excitation à 532 nm. Pour cela, nous avons distingué les contributions liées au laser d'excitation et au laser de

piégeage de sorte que :

$$\sigma_{\text{abs}} = \sigma_{\text{abs}}^{532} + \sigma_{\text{abs}}^{1550}, \tag{2.22}$$

où $\sigma_{\text{abs}}^{\lambda_i} = \gamma_{\text{conv}} S S_{\text{focus}}^{\lambda_i} \kappa_{\text{heat}}^{\lambda_i}$ est défini à l'équation 2.20 avec λ_i désignant la longueur d'onde du laser.

Pour mesurer $\kappa_{\text{heat}}^{532}$, on fixe la pression et la puissance infrarouge de piégeage de sorte que la contribution en $\sigma_{\text{abs}}^{1550}$ est constante. Puis, on modifie la puissance d'excitation à 532 nm de sorte que l'équation 2.17 devient :

$$\Delta T = \kappa_{\text{heat}}^{532} \frac{P_{\text{las}}^{532}}{p_{\text{gaz}}} + \kappa_{\text{heat}}^{1550} \frac{P_{\text{las}}^{1550}}{p_{\text{gaz}}}, \tag{2.23}$$

où le deuxième terme de l'équation est constant. Ainsi, l'ajustement de la température interne mesurée par ODMR en fonction de la puissance du laser d'excitation P_{las}^{532} par une fonction affine permet d'obtenir, pour l'ordonnée à l'origine, la valeur de $\kappa_{\text{heat}}^{1550}$ et pour la pente $\kappa_{\text{heat}}^{532}$. On trouve avec cette méthode, $\kappa_{\text{heat}}^{532} \approx 100 \kappa_{\text{heat}}^{1550}$. Cela permet de comparer les sections efficaces d'absorption aux deux longueurs d'onde en utilisant la dépendance de la surface de focalisation avec la longueur d'onde utilisé donnée par $S_{\text{focus}}^{1550} \approx 10 S_{\text{focus}}^{532}$:

$$\sigma_{\text{abs}}^{532} \approx 10 \sigma_{\text{abs}}^{1550}. \tag{2.24}$$

Ainsi, dans notre étude, on peut négliger le processus d'absorption à 532 nm puisque la puissance d'excitation du laser vert (~ 100 μW) est trois ordres de grandeur plus faible que la puissance du laser de piégeage (~ 100 mW).

Notons que l'on retrouve pour le laser vert, une valeur compatible avec Kern *et al.* [138] ou Fujiwara *et al.* [139] qui attribue l'absorption aux centres NV présents dans le nanodiamant, une hypothèse qui pourrait être testée dans notre expérience en faisant varier la densité de centres NV.

Nous avons mis en évidence une approche permettant de déterminer la section efficace d'absorption à l'échelle d'une nanoparticule individuelle. Nous avons ainsi souligné que les nanodiamants utilisés dans nos études présentent une absorption bien plus grande que ce qui peut être attendu dans le cas de diamants massifs ultrapures [140]. Le fait que l'absorption soit volumique, permet de donner des pistes d'amélioration en travaillant sur la qualité intrinsèque du diamant, qui pourrait être produit directement par des approches

CVD [141]. Enfin, étendre ces expériences à l'absorption à la longueur d'onde 532 nm est particulièrement intéressant puisque cette absorption peut ultimement limiter l'ensemble des expériences de lévitation, avec l'absorption des centres NV. Cependant, nous avons montré que dans le cas présent, cette absorption reste négligeable face à l'absorption par le laser de piégeage.

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit les propriétés des centres NV du diamant : polarisation de spin, possibilité de lire optiquement l'état de spin du défaut. Ces propriétés uniques permettent de traiter le défaut comme un atome isolé dans la maille cristalline du diamant dont la technique d'ODMR permet de lire l'état de spin du défaut en utilisant ses propriétés remarquables. Nous avons mis en évidence que les propriétés du centre NV sont bien adaptées pour l'observation d'un couplage spin-mécanique, et que de tels expériences nécessitent de s'atteler à plusieurs challenges techniques. En particulier le chauffage des nanodiamants par le laser de piégeage. Pour cela, le centre NV est encore intéressant, puisqu'il peut faire office de nanothermomètre.
Afin de comprendre les effets de chauffage des nanodiamants, nous nous sommes intéressés à l'équilibre thermodynamique de la particule dans l'enceinte à vide. Nous avons commencé par présenter les échanges thermiques de la particule piégé avec les molécules de gaz de la chambre. Ces modèles ont été utilisés pour comprendre nos observations de mesure de température des nanodiamants en lévitation à l'aide des centres NV qu'ils contiennent. Une étude statistique nous a permis d'établir que les processus d'absorption dans les nanodiamants utilisés dans nos expériences sont dominés par des effets de volume. Le manque de reproductibilité d'une particule à l'autre tend à associer l'échauffement de la particule à des impuretés à l'intérieur du cristal.

La température interne des nanodiamants peut être une limite fondamentale sur les tests de la physique quantique aux échelles mésoscopiques, en contribuant à la décohérence quantique, aussi bien que technique, en limitant la stabilité du diamant dans le piège. Il est donc nécessaire de réduire les sources d'absorption du diamant. Notre étude démontre que l'absorption est dominée par des effets de volume, et que les traitement de surface appliqués au diamant (oxydation de surface par acide ou thermique) ne pourront pas suffire à résoudre la question. Au contraire, il est nécessaire de travailler sur la production de diamant, et les nouveaux procédés de création de nanodiamants HPHT ou CVD

pourraient se révéler intéressant, avec un grand contrôle de la pureté du diamant produit.

Enfin, notons que si l'on observe expérimentalement une corrélation entre le chauffage et la perte de la particule (il n'a jamais été possible d'observer des particules de diamant avec des températures internes au-delà de 700řK), la température interne ne peux pas à elle seule expliquer l'instabilité observée pour les nanodiamants dans les pinces optiques autour de 1 mbar. En effet, des groupes de recherche travaillant sur des sujets connexes ont observé le même comportement avec des diamants ultra purs pour lesquels le chauffage est négligeable [119]. Il est alors intéressant de comprendre comment ce chauffage joue sur la dynamique de la particule dans le piège, et donc potentiellement sur sa stabilité. C'est la question que nous explorerons dans le chapitre 3.

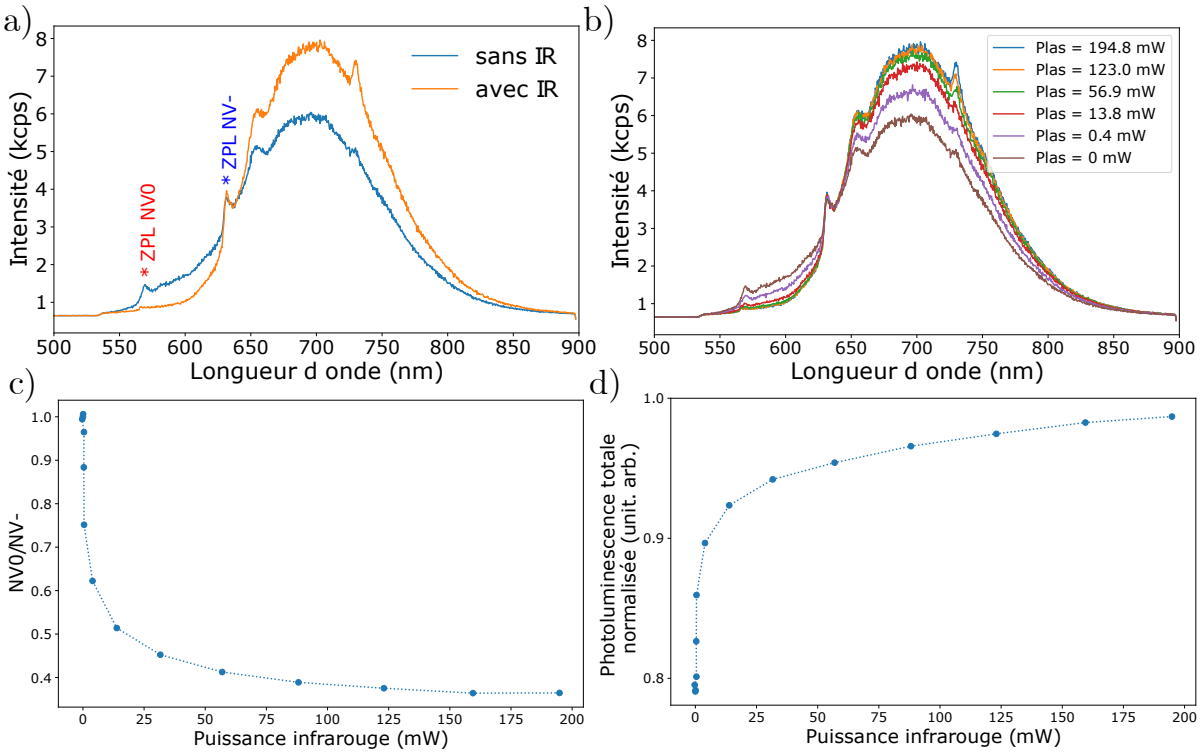

Figure 2.8 – **Photoluminescence de centres NV dans un diamant massif : influence de la puissance infra-rouge** a) Spectre de photoluminescence d'un diamant massif contenant de nombreux centres NV soumis ou non à une excitation infra rouge. Pour obtenir le spectre une excitation par un laser à 532 nm est nécessaire. Elle est de quelques centaines de μW. Le spectre est obtenu en filtrant les longueurs d'onde inférieures à 532 nm. Les étoiles indiquent la position de la raie zéro phonon du centre NV^- (bleu) et NV^0 (rouge). On remarque que la proportion de centres NV dans l'état NV^0 diminue lorsque le laser infra rouge est actif. De plus, on remarque une augmentation de la photoluminescence globale lorsque le laser à 1550 nm est allumé. b) Évolution des spectres de photoluminescence des centres NV sous une excitation infrarouge de puissance croissante. c) Évolution de la proportion de centres NV dans l'état neutre en fonction de la puissance d'excitation du laser infra rouge. d) Photoluminescence intégrée sur l'ensemble des longueurs d'onde en fonction de la puissance d'excitation du laser infra rouge.

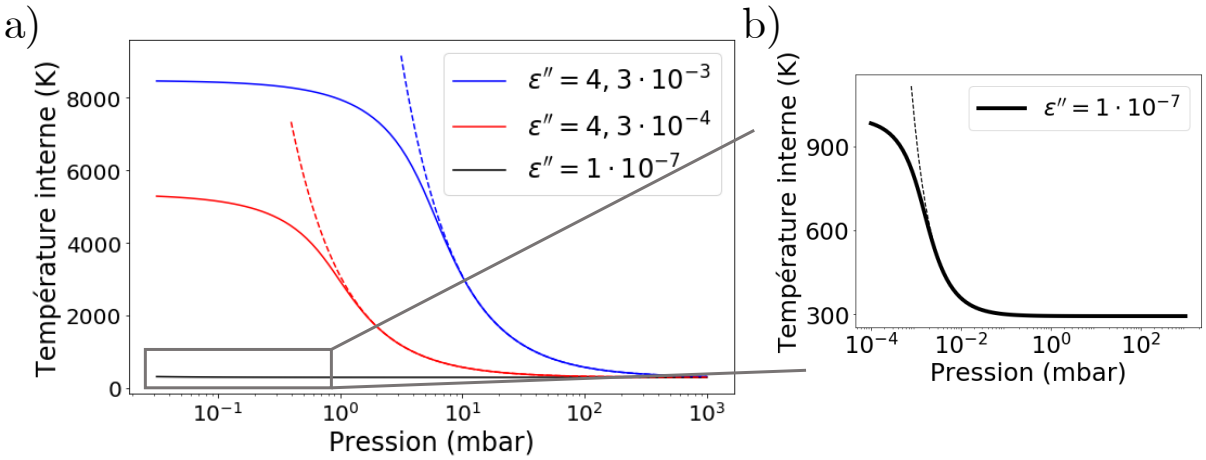

Figure 2.9 – **Détermination de la température interne à l'équilibre thermodynamique** a) En traits pleins, on a mesuré la température interne à l'équilibre thermodynamique pour plusieurs absorptions diélectriques à la constante du diamant associées. Les courbes rouges et bleues correspondent à des absorptions mesurées expérimentalement pour nos nanodiamants et la courbe noire correspond à une absorption pour des diamants ultra-purs [119]. En traits pointillés, on la mesure sans le processus radiatif du corps noir. On remarque que le processus du corps noir devient non négligeable lorsque la température est supérieure à 1000 K dans notre cas. Ce régime n'est pas accessible dans notre cas car la particule est perdue avant d'atteindre cette température. b) Zoom sur la courbe noire représentant l'absorption d'un diamant ultra-pure.

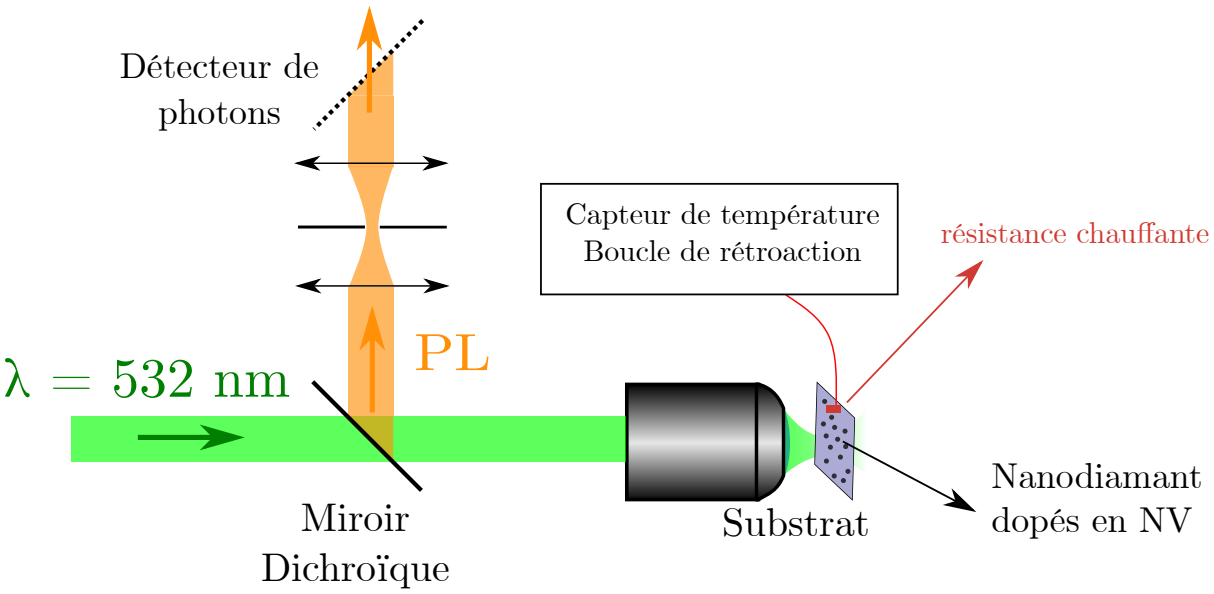

Figure 2.10 – **Schématisation du dispositif expérimental pour l'étude de la température interne sur des nanodiamants sur substrat.** A l'aide d'un capteur de température et d'une boucle de rétroaction, on arrive à contrôler la température du substrat donc des nanodiamants. Puis, en collectant la photoluminescence des centres NV sous illumination d'un laser vert, on effectue un spectre ODMR afin de déterminer le décalage de la fréquence de résonance D en fonction de la température interne des nanodiamants.

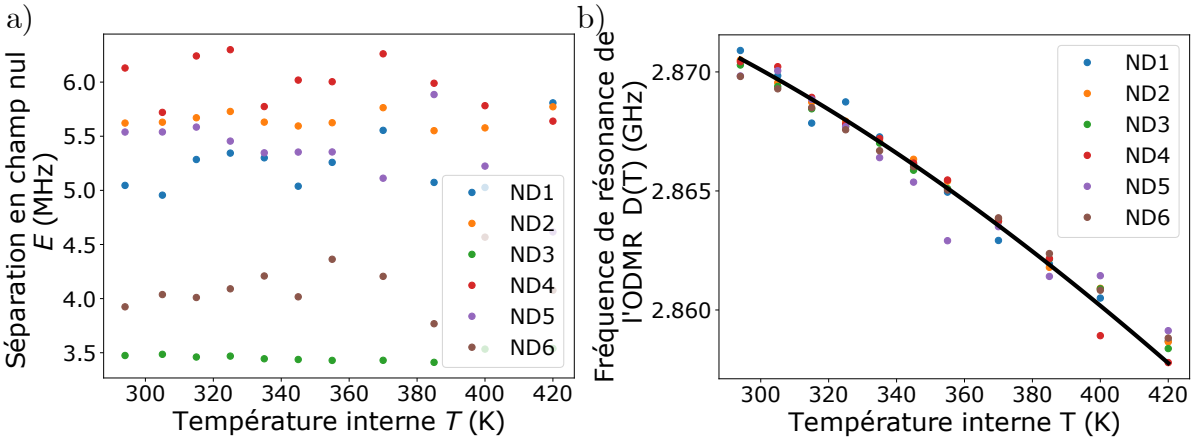

Figure 2.11 – **Résultats expérimentaux de la mesure des paramètres de contrainte E et de séparation des niveaux $|0\rangle$ et $|\pm1\rangle$ de centres sur des nanodiamants sur substrat.** a) Mesure expérimentale du paramètre de contrainte de séparation en champ nul E en fonction de la température pour différents nanodiamants sur substrat. Aux incertitudes près de mesure, la mesure de ce paramètre est indépendant de la température et est une grandeur intrinsèque à chaque nanodiamant dépendant de ces différentes contraintes au sein du cristal. b) Mesure expérimentale de la température interne de chaque diamant en fonction de la fréquence de résonance de l'ODMR pour des nanodiamants sur substrat. Les données ont été corrigées des contraintes internes $\Delta_{\text{contrainte}}$. La courbe en traits pleins représente le modèle utilisé [105] pour les nanodiamants en lévitation dont la courbe se prolonge toute une large gamme de température ($\sim$ 290 K à $\sim$ 1000 K). Après renormalisation des contraintes internes au diamant, le modèle décrit bien les résultats expérimentaux aux incertitudes près.

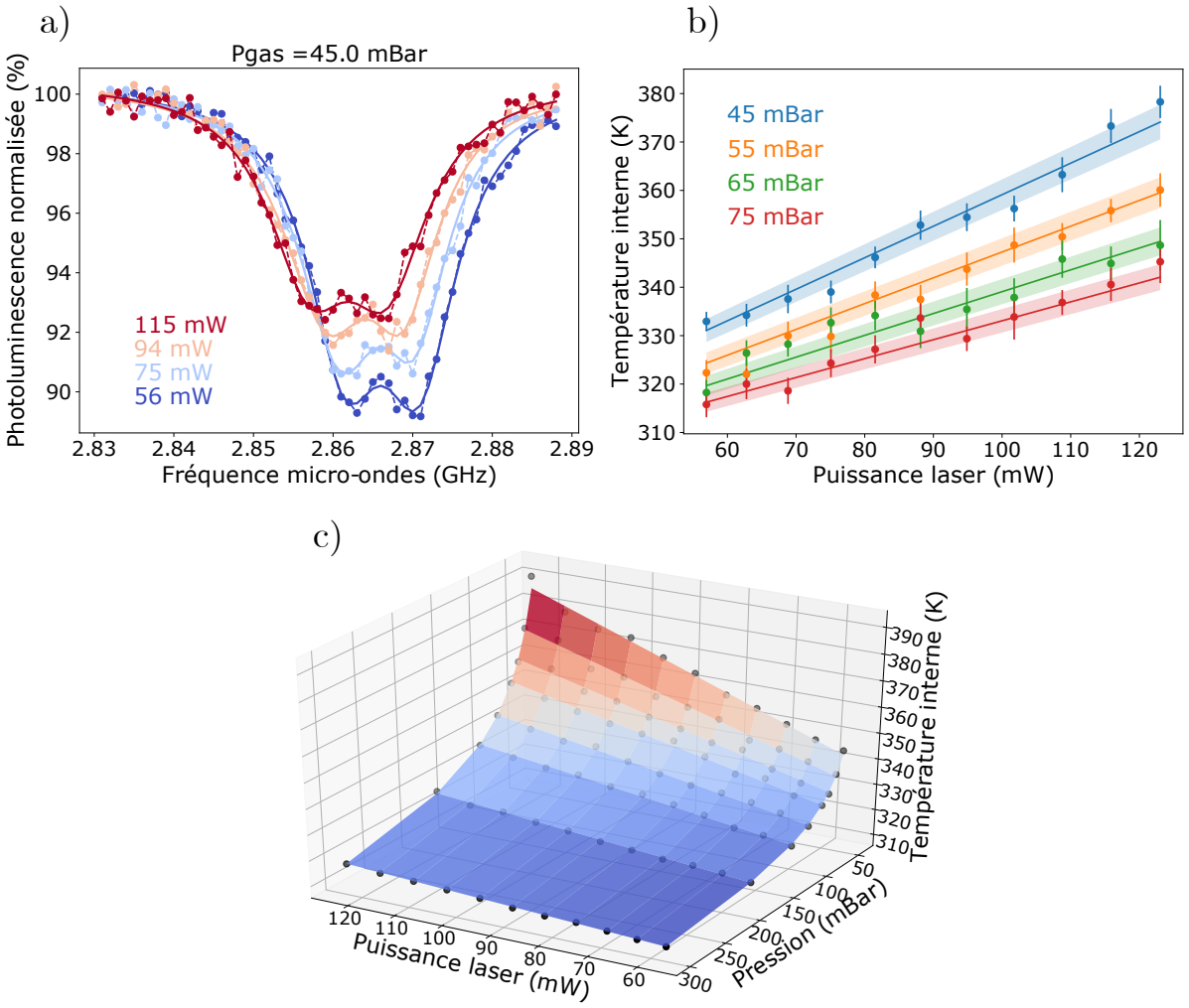

Figure 2.12 – **Température interne de la particule en fonction de la puissance laser** a) Spectre d'ODMR d'une nanoparticule de diamant en lévitation à différentes puissances lasers à pression fixe. On observe une diminution du contraste d'ODMR et un déplacement de la fréquence de résonance. Ce qui implique une augmentation de la température interne de la particule. b) Mesure de la température interne de la particule à différentes pressions en fonction de la puissance laser. On observe une dépendance linéaire de la température avec la puissance laser montrant l'échange thermique lié à l'absorption qui est proportionnel à la puissance laser. L'ajustement est réalisé par un ajustement 2D en fonction de la puissance laser et la pression qui permet d'obtenir le coefficient κ_{heat} et le coefficient $\Delta_{\text{contrainte}} = 0.9 \pm 0.1$ MHz. c) Représentation 2D des températures mesurées avec l'ajustement 2D réalisé précédemment donnant $\kappa_{heat} = 29.3 \pm 0.8$ K.mBar.K^{-1}

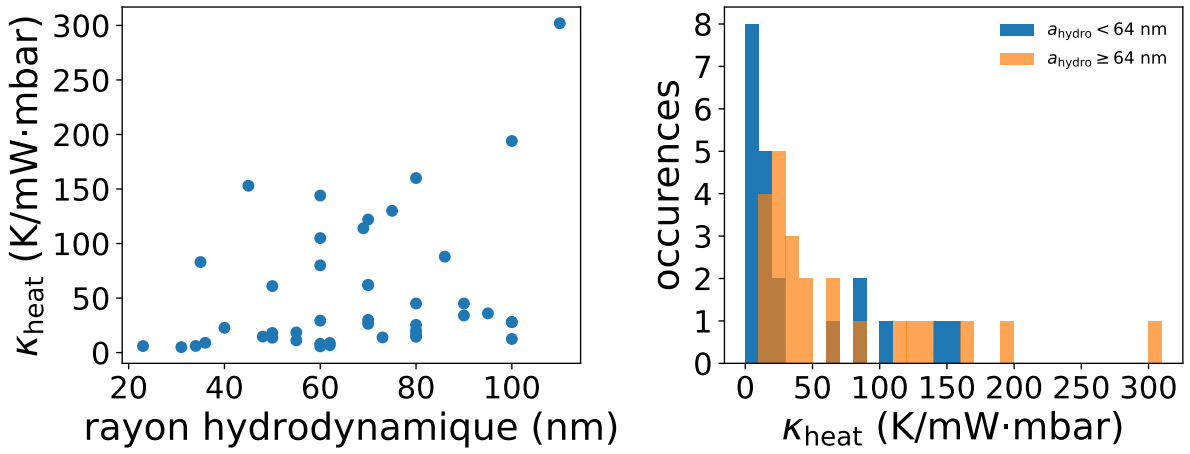

Figure 2.13 – **Étude statistique sur le coefficient** κ_{heat} a) Mesure du coefficient κ_{heat} sur un ensemble de plus de 40 nanodiamants piégés. On observe une grande dispersion des résultats, où globalement les coefficients κ_{heat} les plus importants correspondent à des particules plus grosses. b) Histogramme des occurrences du coefficient κ_{heat} en fonction du rayon de la particule. Les résultats ont été triés en fonction de la taille de la particule. Une taille médiane a été extraite et correspond à $a_{\text{hydro}}^{\text{moy}} = 64$ nm. On observe un léger décalage des histogramme du coefficient κ_{heat} qui laisse supposer une absorption volumique.

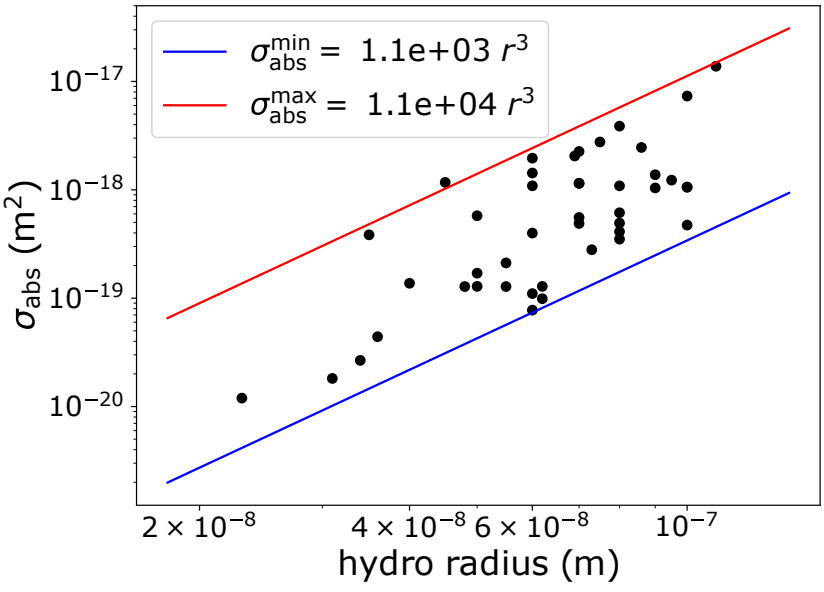

Figure 2.14 – **Statistique de la mesure de la section efficace d'absorption de nanodiamants en lévitation en fonction de leur rayon hydrodynamique.** Les droites linaires représentent des sections efficaces absorptions limites pour nos nanodiamants. De ces mesures, on peut mesurer la constante diélectrique complexe du nanodiamant.

Chapitre 3

Dynamique d'une nanoparticule de diamant chaud

3.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons mis en évidence l'augmentation de la température interne T_{int} du nanodiamant en lévitation par des processus d'échanges thermiques reposant principalement sur la convection et l'absorption. Nous avons également étudié l'impact de ces processus d'absorption sur cet échauffement pouvant expliquer la perte de la particule vers 10 mbar. Néanmoins, au-delà des problématiques de stabilité de la particule (graphitisation) et des effets sur la photophysique des centres NV comme la baisse de photoluminescence ainsi que du contraste de la résonance de spin [124], cet échauffement peut aussi directement impacter la dynamique du nanodiamant dans le piège [142, 143]. L'étude de ce phénomène est indispensable à la compréhension de la dynamique des nanodiamants dans les pièges optiques.

Nous nous intéresserons en particulier à la forme et à l'état de surface de nos nanodiamants qui peuvent jouer un rôle non négligeable dans la dynamique dans le piège. Un autre intérêt physique de l'étude de la dynamique est de mieux comprendre les échanges thermiques aux échelles nanométriques. De plus, une meilleure compréhension de la dynamique du diamant chaud permettrait d'améliorer la stabilité des particules dans le piège optique.

Dans ce chapitre, nous commencerons par introduire un modèle décrivant le couplage entre la température interne de la particule T_{int} et les molécules de gaz environnantes permettant d'expliquer l'échauffement de la particule. Nous introduirons à partir de ce modèle les grandeurs caractéristiques que l'on étudiera par la suite dans notre expérience tout en l'adaptant à nos particules de diamants. Enfin, nous présenterons les résultats expérimentaux du couplage entre la dynamique de la particule et l'échauffement de la particule.

3.2 Position du problème et modèle à deux bains

3.2.1 Température effective du centre de masse

Nous avons montré dans le chapitre 1 qu'en vertu du théorème de l'équipartition de l'énergie, l'énergie du centre de masse de la particule selon une direction de l'espace q est

donnée par la formule :

$$E^q_{\mathrm{CM}} = \frac{1}{2} m\omega_q^2 \langle q^2(t)\rangle = \frac{1}{2} k_B T_0, \tag{3.1}$$

avec T_0 la température du système. Cette relation n'est vérifiée que pour un système à l'équilibre thermodynamique. Or, lorsque la température interne de notre nanodiamant T_{int} est différente de la température de l'environnement T_0, on observe un accroissement de l'énergie moyenne associée au mouvement de la particule dans le piège, qui se traduit de façon équivalente par une modification de la DSP S_{qq} associée à son mouvement et de la variance de son mouvement $\langle q^2(t)\rangle$. On introduit alors une température effective dite de centre de masse T_{CM} associée à cette dynamique qui vérifie la relation $k_B T_{\mathrm{CM}} = E^q_{\mathrm{CM}} = \frac{1}{2} m\omega_q^2 \langle q^2(t)\rangle$ *, ou de façon équivalente en reprenant l'équation 1.47 [144] :

$$S_{qq}(\omega) = \frac{k_B T_{\mathrm{CM}} \gamma}{\pi m((\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2)}. \tag{3.2}$$

Cet effet a été observé récemment pour des particules en lévitation [143, 145], ainsi que pour des particules piégées dans un liquide [146] qui sont alors caractérisées par un coefficient de diffusion effectif [147, 148]. Il s'explique simplement par les échanges d'énergie à la surface de la particule chauffée. En effet, si la température à la surface de la particule est différente de la température de l'environnement alors, lors d'une collision avec une molécule de gaz environnante d'énergie $k_B T_0$, il peut y avoir un transfert de moment cinétique qui impactera la dynamique de la particule et donc son énergie de mouvement E_{CM}. Pour décrire plus précisément l'évolution de l'énergie de centre de masse E_{CM} de la particule en fonction de sa température de surface T_{sur}, J. Millen *et al.* [142] ont introduit un modèle simple dit "à deux bains".

3.2.2 Modèle à deux bains

Dans le modèle que l'on appliquera, on suppose que la particule interagie avec deux bains thermodynamiques distincts et indépendants. Le premier bain est constitué des molécules entrant en collision avec la particule piégée, et ayant une température T_{col} égale à la température de l'environnement T_0, de sorte que pour la suite $T_{\mathrm{col}} = T_0$. Le second bain est lui constitué des molécules émergentes après la collision avec la particule piégée et a une température $T_{\mathrm{ém}}$. La température $T_{\mathrm{ém}}$ peut alors être décrite en utilisant le coefficient

∗. Notons qu'en toute rigueur cette équation n'est vrai que pour le cas d'un oscillateur harmonique. Dans le cas d'une particule en lévitation optique, le potentiel présente des non-linéarités, et l'usage de cette formulation induit un biais dans l'estimation de l'énergie du centre de masse, notamment à basse pression [77].

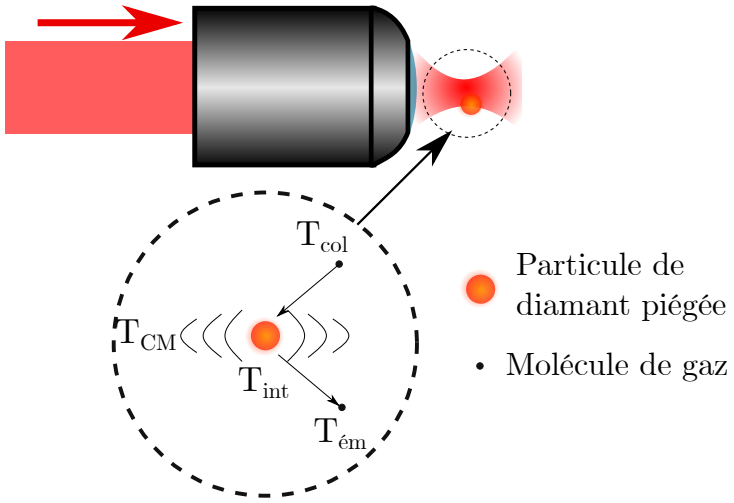

Figure 3.1 – **Schéma de principe du modèle à deux bains.** La pince optique est mise sous vide où les molécules du gaz environnant, *i.e* : l'air résiduel, vont interagir avec la particule piégée. Le modèle décrit distingue les molécules qui vont entrer en collision avec la particule à une température que l'on note T_{col} qui sera prise égale à la température environnante T_0 et les molécules qui ont interagi avec la particule, et qui ont, après collision, une température $T_{\text{ém}}$ différente (ou non) de la température avant collision. La particule piégée a une température interne (égale à sa température de surface pour un nanodiamant, annexe B) notée T_{int} qui peut être mesurée à l'aide de la technique de la résonance de spin présentée dans le chapitre 2. De la dynamique de la particule, on extrait la température de centre de masse notée T_{CM}. Cela nous permet de quantifier le couplage entre ces deux grandeurs.

d'accommodation α introduit au chapitre 2. Ce coefficient décrit l'efficacité de l'échange énergétique avec la surface de la particule. On peut alors le voir comme la proportion de molécules subissant une accommodation de leur température à la température de surface de la particule. Le reste des molécules subissent simplement un choc élastique, conservant leur énergie $k_B T_0$. Ainsi, on peut écrire la température $T_{\text{ém}}$:

$$T_{\text{ém}} = \alpha T_{\text{sur}} + (1 - \alpha) T_0 \tag{3.3}$$

$$T_{\text{ém}} = T_0 + \alpha (T_{\text{sur}} - T_0). \tag{3.4}$$

Le coefficient d'accommodation est, par définition, borné entre 0 et 1. Lorsque le transfert énergétique est totale, le coefficient d'accommodation est égale à 1. C'est à dire que les molécules de gaz vont être à la même température que celle de la particule piégée. En revanche, lorsque le transfert énergétique est absent, le coefficient d'accommodation est nul. Cela signifie que les deux bains représentant les particules entrant en collision et émergeant de la collision sont à la même température.

Tout se passe comme si la particule interagissait avec ces deux bains indépendants, à deux températures différentes. Ces interactions vont se traduire en particulier par des échanges à la surface de la particule qui vont impacter la dynamique de la particule. Cet effet dépend à la fois des températures des deux bains [142] mais aussi de la forme de la particule et du mode du mouvement considéré [149].

En supposant le cas d'une particule sphérique, Millen *et al.* [142] ont mis en évidence que la température du centre de masse peut s'écrire :

$$T_{\mathrm{CM}} = \frac{T_{\mathrm{col}}^{3/2} + \frac{\pi}{8} T_{\mathrm{ém}}^{3/2}}{T_{\mathrm{col}}^{1/2} + \frac{\pi}{8} T_{\mathrm{ém}}^{1/2}}. \tag{3.5}$$

Ainsi, il est a priori possible de déterminer la température à la surface d'une nanoparticule à partir de son mouvement Brownien [26] à la condition de connaître le coefficient d'accommodation du matériau considéré ainsi que la forme de la particule. Dans le cas de nanoparticules de silice, le chauffage contrôlé d'une particule en lévitation optique a ainsi permis de déterminer son coefficient d'accommodation et sa température interne [143]. Dans le cas de nanodiamants, aucune mesure de ce coefficient n'a jusqu'alors été effectuée. D'autre part, la figure 3.2(b) montre une image à transmission d'électrons des nanodiamants utilisés. On remarque qu'ils ont des formes très irrégulières et fortement dispersées ce qui ne facilitent pas leur étude. Afin de comprendre comment leurs formes impactent le modèle décrit précédemment et d'étudier le couplage entre la température interne du nanodiamant et sa dynamique, nous proposons de mesurer quantitativement la température interne à l'aide de centres NV simultanément à la dynamique de la particule.

3.3 Dynamique du diamant chaud

3.3.1 Détermination de la température de centre de masse

Pour étudier le couplage entre la dynamique de la particule et sa température interne, il est nécessaire de comprendre en premier lieu la mesure de la température de centre de masse. Pour cela, comme nous l'avons détaillé dans le chapitre 1 à la section 1.6.5, nous enregistrons la trace temporelle du mouvement de la particule selon les trois directions de l'espace x, y et z. La densité spectrale de puissance (DSP) de ces traces est alors obtenue

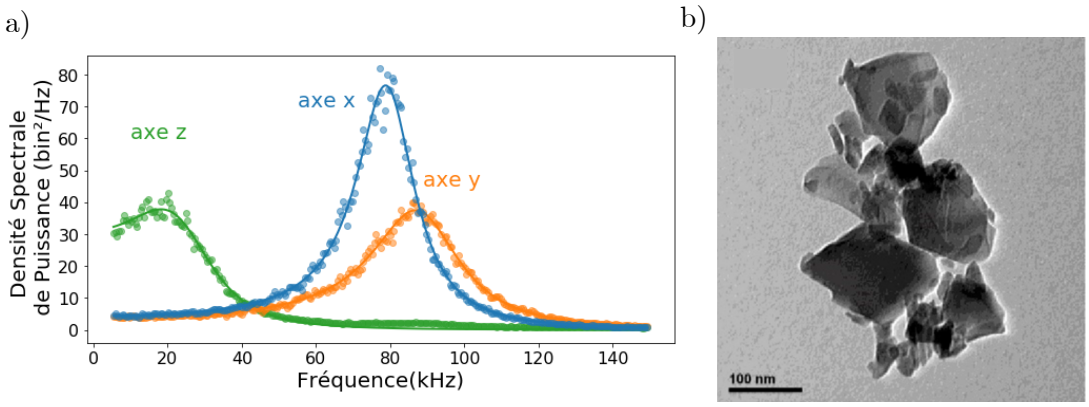

Figure 3.2 – a) DSP associées à la dynamique des nanodiamants selon les trois axes x, y et z à une puissance laser de 88 mW et une pression de 45 mbar. Les traits pleins correspondent à l'ajustement des données expérimentales par l'équation 3.6. Ces ajustements permettent d'obtenir les coefficients nécessaires à la mesure de la température de centre de masse. L'axe z étant à plus basse fréquence, son ajustement est plus compliqué en particulier aux plus hautes pressions étudiées. Nous nous concentrerons donc sur l'étude des axes x et y dans la suite. b) Image de microscopie à transmission d'électrons des nanodiamants utilisés durant nos expériences rendant compte de la dispersion de leur forme et de leur taille adaptée de [118].

numériquement, comme présenté sur la figure 3.2(a). Notons que dans la suite nous nous focaliserons uniquement sur les axes x et y car les fréquences misent en jeu pour l'axe z sont plus faibles ce qui rend l'analyse fréquentielle plus complexe à plus haute pression.

Lors de l'enregistrement des traces temporelles, les données brutes issues du signal optique sont proportionnelles aux déplacements de la particule. Pour obtenir le déplacement de la particule en unité de distance, il est nécessaire de déterminer le facteur d'étalonnage c_{calib} qui traduit le lien entre le signal optique mesuré par l'oscilloscope en unité de *bin* et le déplacement de la particule en nm. Nous avons vu dans le chapitre 1 qu'en générale ce facteur d'étalonnage peut être obtenu par le théorème d'équipartition de l'énergie, qui n'est valide que pour une situation à l'équilibre thermodynamique. Néanmoins, la situation étudiée ici est une situation hors-équilibre, avec une énergie de centre de masse de la particule différente de la température de l'environnement. Le théorème de l'équipartition n'est donc plus applicable. Il est alors important de trouver une méthode d'étalonnage du mouvement de la particule alternative.

Pour cela, nous utilisons la fonction :

$$S_{\text{fit}} = \frac{A}{\pi} \frac{\gamma \omega_0^2}{(\omega_0^2 + \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2} \tag{3.6}$$

pour effectuer une régression des DSP. En comparant cette fonction avec l'équation 3.2, on note que le coefficient A est proportionnel à la température de centre de masse de la particule. On peut alors écrire $A = c_{\text{calib}}^2 \frac{k_B T_{\text{CM}}}{m\omega_q^2}$. Une difficulté est alors que le facteur c_{calib} est modifié par les deux paramètres que nous allons faire varier expérimentalement :

— la puissance du laser de piégeage qui est aussi le laser de mesure de la dynamique des particules. Elle modifie donc le signal mesuré sur le détecteur,
— la pression du gaz dans la chambre à vide en raison des dérives du système [86].

Nous avons vu dans la section 1.5.3 que le terme c_{calib} est proportionnel à la puissance détectée, elle-même proportionnelle à la puissance laser. On en déduit la relation $c_{\text{calib}} \propto P_{\text{las}}$. En outre, bous avons montré dans la section 1.6.2 la relation $P_{\text{las}} \propto \omega_q^2$. Nous en déduisons que la température de centre de masse $E_{\text{CM}} = k_B T_{\text{CM}}$ est reliée à la pulsation propre selon la direction q et à l'amplitude de la DSP A par la relation :

$$k_B T_{\text{CM}} = \frac{m\omega_q^2 A}{c_{\text{calib}}^2} \tag{3.7}$$

$$k_B T_{\text{CM}} \propto \frac{\omega_q^2 A}{P_{\text{las}}^2} \tag{3.8}$$

$$k_B T_{\text{CM}} \propto \frac{A}{\omega_q^2}, \tag{3.9}$$

en supposant que la masse de la particule ne soit pas modifiée.

On a alors accès, à un facteur de proportionnalité près, à la mesure de la température de centre de masse de sorte qu'on peut écrire :

$$k_B T_{\text{CM}} = \frac{A}{\omega_q^2} E_{\text{calib}} \tag{3.10}$$

On s'intéresse maintenant à la normalisation de l'énergie de centre de masse pour déterminer E_{calib}.

Afin de comprendre la problématique, on va s'appuyer sur les résultats expérimentaux obtenus pour une particule. La figure 3.3(a) représente l'énergie de centre de masse non normalisée donnée par $\frac{A}{\omega_q^2}$ obtenue pour une particule à différentes pressions de la chambre

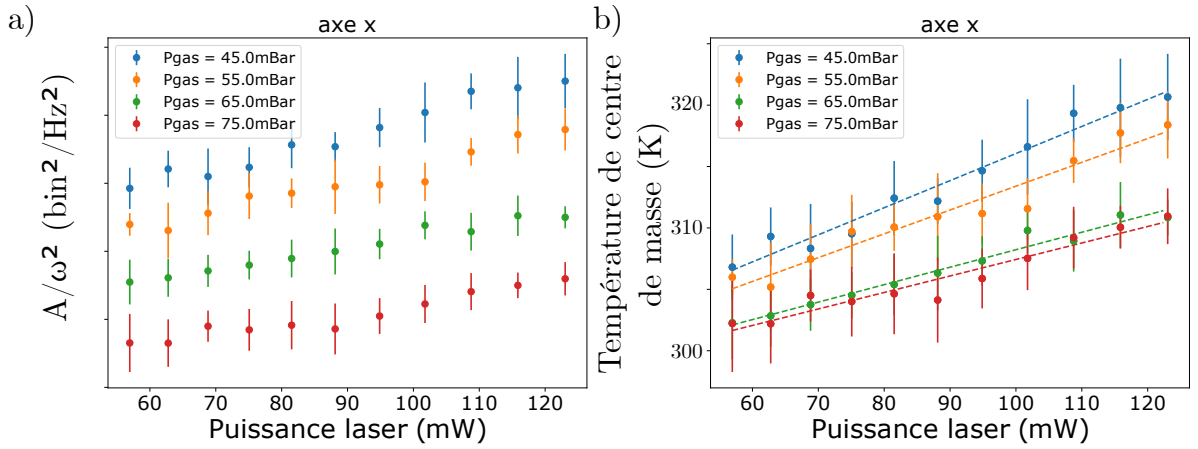

Figure 3.3 – **Détermination de la température de centre de masse pour un nanodiamant chauffée.** a) Données expérimentales représentant $\frac{A}{\omega_x^2}$ en fonction de la puissance du laser pour différentes pressions dont les coefficients A et ω_x sont obtenus à partir de l'ajustement de la DSP par l'équation 3.6. Ces données représentent à un facteur de proportionnalité près l'énergie de centre de masse pour une particule de diamant. La dépendance linéaire avec la puissance permet de réaliser un ajustement linéaire de cette valeur permettant d'extraire la valeur à puissance nulle nécessaire à l'étalonnage de l'énergie de centre de masse et obtenir E_{calib}. b) Température de centre de masse mesurée à partir du facteur d'étalonnage E_{calib} en fonction de la puissance du laser de piégeage. L'ajustement linéaire est tracé en traits pointillés dont l'ordonnée à l'origine correspond à une température de centre de masse égale à la température de l'environnement $T_0 = 294$ K.

à vide en fonction de la puissance du laser de piégeage P_{las} selon un axe† où les coefficients A et ω_q ont été extraits de l'ajustement de la DSP à partir de l'équation 3.6. Cette énergie est mesurée en unité de bin^2/Hz^2.

Pour déterminer le coefficient de normalisation, une régression linéaire des données de la figure 3.3 permet de mesurer la valeur de $\frac{A}{\omega_q^2}$ à puissance nulle. Comme le laser est responsable de l'échauffement de la particule, on en déduit qu'à puissance nulle, la particule est à l'équilibre thermodynamique avec son environnement de sorte que sa température de centre de masse est égale à la température de l'environnement T_0. Nous pouvons ainsi en déduire la valeur du facteur de normalisation :

$$E_{\text{calib}} = \frac{\omega_q^2}{A_0} k_B T_0, \tag{3.11}$$

†. Les résultats sont, pour cette particule, semblables selon les x et y. Nous ne présentons donc la méthode uniquement sur l'axe x.

avec A_0 la mesure du coefficient A à puissance nulle. Notons que cette approche présente comme avantage d'obtenir un étalonnage de la dynamique de la particule à chaque pression étudiée. Cela permet de s'affranchir des dérives générales observées lorsque la chambre à vide est pompée [86].

La détermination de ce facteur d'étalonnage nous permet de déterminer la valeur de la température de centre de masse par simple division des données précédentes. Celle-ci est représentée sur la figure 3.3(b). Pour le calcul des incertitudes de mesure, nous avons décidé de réaliser une série de 10 prises de données pour chaque puissance laser et pour chaque pression de la chambre à vide permettant de déterminer, à partir de la déviation standard, les incertitudes de mesures. Elles sont représentées par les barres d'erreur sur les figures 3.3 et 3.4(a).

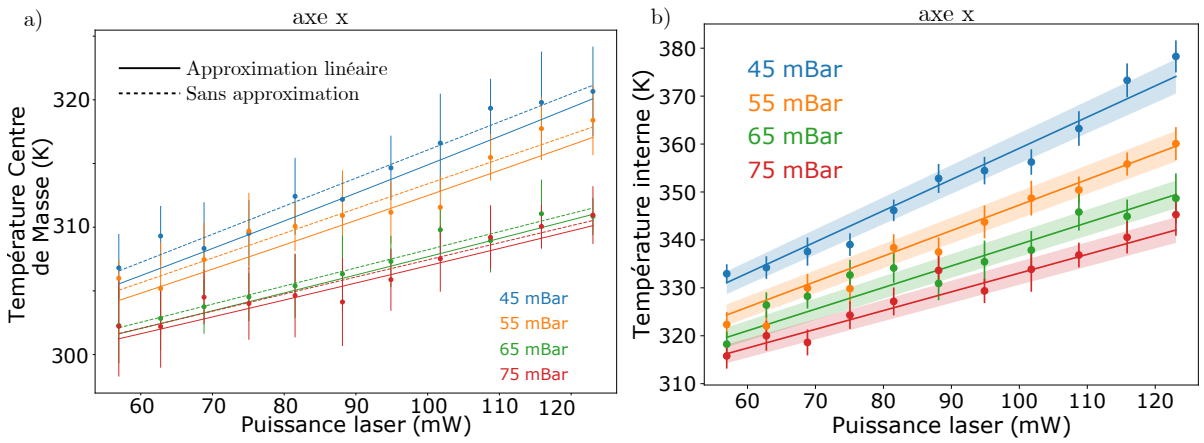

Figure 3.4 – **Mesure simultanée des températures de centre de masse et interne d'un nanodiamant en lévitation.** a) Température de centre de masse d'un nanodiamant selon l'axe x en fonction de la puissance laser à différentes pressions. Deux ajustements des données expérimentales en fonction de la puissance laser ont été réalisés. Le premier a été réalisé à partir de l'expression sans approximation donnée par l'équation (3.5) (en traits pointillés). Le second a été tracé à partir d'une approximation linéaire donnée par l'équation (3.12) (en traits pleins). Les données correspondent à celles de la figure 3.3 b) Température interne de la particule mesurée simultanément dans les mêmes conditions que la température de centre de masse. La température interne est mesurée en utilisant les centres NV contenus dans le nanodiamant comme décrit dans le chapitre 2.

3.3.2 Détermination de la température interne

En parallèle des mesures de la température de centre de masse de la particule, on mesure simultanément la température interne du nanodiamant. Comme nous l'avons déjà

vu au chapitre 2, l'utilisation de la résonance de spin permet de mesurer la température interne des nanodiamants. La figure 3.4(b) montre la température interne mesurée en fonction de la puissance laser pour des pressions différentes. Les données sont ensuite ajustées à deux dimensions en fonction de la puissance du laser de piégeage et de la pression dans la chambre à vide à partir de l'équation 2.17 permettant de déterminer le coefficient κ_{heat} introduit dans la section 2.5.3.

Sur les figures 3.4(b), la prise en compte des incertitudes est représentée par les barres d'erreurs et des zones colorées. Les barres d'erreurs représentent les incertitudes liées à la mesure de la fréquence de résonance de spin par l'ajustement de l'ODMR qui se propage ensuite dans la détermination de la température interne. De plus, pour la mesure du coefficient κ_{heat}, nous avons également déterminé la déviation standard de l'ajustement pour tracer les incertitudes d'ajustement représentées par les zones colorées.

3.3.3 Détermination du coefficient d'accommodation

Pour un nanodiamant donné, nous avons mesuré simultanément la température interne et la température de centre de masse. La comparaison de ces données nous permet d'étudier le couplage d'une particule chauffée avec son bain, sous le prisme du modèle à deux bains introduit dans la section 3.2.2. La linéarité observée pour les données de la température de centre de masse en fonction de la puissance laser (cf figure 3.4(a)), nous invite à linéariser l'équation 3.5 sous la forme :

$$T_{\text{CM}} = T_0 + \alpha \frac{\frac{\pi}{8}}{1 + \frac{\pi}{8}} (T_{\text{int}} - T_0), \tag{3.12}$$

en utilisant l'équation 3.4 et l'homogénéisation de la température de surface qui permet d'avoir l'égalité $T_{\text{int}} = T_{\text{sur}}$. Notons que l'ajustement des données expérimentales sans approximation par l'équation 3.5 a été réalisée et est représentée sur la figure 3.4(a). Néanmoins, les résultats sans approximation et en utilisant l'approximation linéaire sont similaires (aux incertitudes près). Par soucis de simplicité et de compréhension du phénomène, nous nous contenterons de présenter les résultats obtenus à partir du modèle linéaire. Toutefois, si l'on arrive à obtenir des variations de température plus importantes, l'approximation linéaire ne serait plus valable et le traitement sans approximation pourra servir.

Ainsi, de l'équation 3.12, on peut facilement comparer les deux mesures présentées sur la

figure 3.4, puisque l'on a directement :

$$\alpha = \frac{1 + \frac{\pi}{8}}{\frac{\pi}{8}} \frac{\Delta T_{\mathrm{CM}}}{\Delta T_{\mathrm{int}}}, \tag{3.13}$$

avec ΔT_{CM} et ΔT_{int} représentant les pentes respectivement obtenues par ajustement linéaire des données des figures 3.4(a) et 3.4(b) en fonction de la puissance du laser de piégeage.

Cela permet, in fine, d'en déduire le coefficient d'accommodation α pour cette particule pour une pression donnée. La figure 3.5 représente la mesure du coefficient d'accommodation α des deux axes en fonction de la pression.

On peut alors faire plusieurs commentaires sur les résultats obtenus :

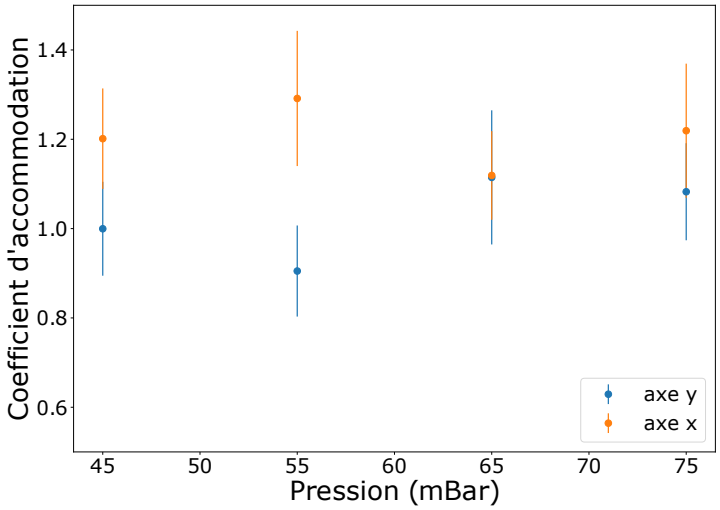

Figure 3.5 – **Mesure du coefficient d'accommodation** pour un nanodiamant. On représente le coefficient d'accommodation pour les deux axes transversaux pour différentes pressions. Les barres d'erreurs correspondent à l'incertitude du coefficient d'accommodation mesurée à partir des incertitudes sur les température de centre de masse et interne en utilisant une propagation d'incertitudes.

- comme attendu, la mesure du coefficient d'accommodation est indépendante de la pression, aux incertitudes près,
- par contre, le coefficient d'accommodation semble dépendre légèrement de l'axe de mesure pour cette particule,
- et le coefficient d'accommodation bien que proche de 1 lui semble supérieur selon l'axe x.

On en conclut que le modèle à deux bains présenté ne permet pas de complètement expliquer nos observations, puisqu'il impose un coefficient d'accommodation α isotrope

et majoré par définition par 1. En particulier, une limite du modèle est l'hypothèse d'une particule sphérique peu adaptée à nos nanodiamants comme le montre l'image par microscope électronique à transmission d'électrons représentée sur la figure 3.2(b), où l'on remarque que les nanodiamants utilisés ont des formes et des tailles variables.

Si l'on considère que la particule a une forme quelconque, les échanges ne seront pas les mêmes en fonction de l'axe de mesure ce qui peut rendre les échanges thermiques à a surface de la particule non isotrope. De plus, la forme peut impacter l'expression de l'équation 3.5 utilisée pour déterminer α. Une modification de cette équation pourrait expliquer les valeurs du coefficient d'accommodation légèrement supérieures à 1 que l'on mesure expérimentalement.

3.3.4 Impact de la forme de la particule sur la dynamique du diamant chaud

Même si le modèle à deux bains introduit permet d'étudier notre système, nous avons vu plusieurs limites apparaître potentiellement imputable à la forme de la particule. C'est pourquoi, nous allons étudier l'impact de la forme de la particule sur notre modèle. Pour cela, nous introduisons le coefficient d'échauffement du mouvement Brownien [150] utilisé notamment dans des particules piégées dans un solvant :

$$K = \frac{\Delta T_{\mathrm{CM}}}{\Delta T_{\mathrm{int}}}. \tag{3.14}$$

En utilisant la linéarisation proposée dans le modèle à deux bains, on peut alors lier le coefficient d'échauffement du mouvement Brownien K avec le coefficient d'accommodation α par l'expression analytique simple dans le cas sphérique : $K = \frac{\frac{\pi}{8}}{1+\frac{\pi}{8}}\alpha$. Notons aussi qu'une estimation de ce coefficient peut être faite pour des particules non sphériques, à condition de connaître leur géométrie [149].

Pour poursuivre notre étude, nous introduisons une grandeur caractérisant la forme de la particule, le facteur d'anisotropie g. Celui-ci permet de quantifier la différence de taille suivant les directions transverses de la particule. Pour se faire, comme la taille caractéristique est proportionnelle à la pression du gaz p_{gaz} divisée par le coefficient d'amortissement $\Gamma_{x,y}$ suivant un axe, on a : $r_{x,y} \propto \frac{p_{\mathrm{gaz}}}{\Gamma_{x,y}}$. On peut alors définir le facteur

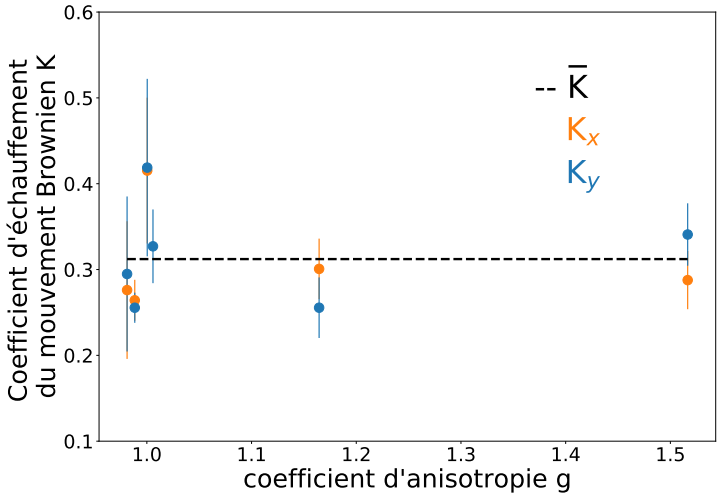

Figure 3.6 – **Coefficient d'échauffement du mouvement Brownien.** Mesure du coefficient d'échauffement du mouvement Brownien pour différentes particules en fonction de leur coefficient d'anisotropie. Les barres d'erreurs correspondent aux incertitudes de mesure sur le coefficient d'échauffement du mouvement Brownien K mesurées à partir des incertitudes sur les températures de centre de masse et interne. La ligne pointillée correspond à la moyenne de ce coefficient et vaut $\bar{K} = 0,31 \pm 0,06$.

d'anisotropie par :

$$g = \frac{r_y}{r_x} = \frac{\Gamma_x}{\Gamma_y}. \tag{3.15}$$

Notons qu'en pratique, le facteur d'anisotropie est en général supérieur ou égale à 1. Cela s'explique par l'orientation de la polarisation linéaire du laser de piégeage orientée selon l'axe y. Ainsi, les particules anisotropes vont avoir tendance à s'orienter de telle sorte que leur partie la plus allongée soit alignée selon l'axe de polarisation [151].

Afin d'étudier l'impact de la forme de la particule sur le coefficient d'échauffement du mouvement Brownien K, on reproduit l'expérience présentée dans la section 3.3 sur un ensemble de nanodiamants qui aboutit à la mesure du coefficient d'accommodation α représentée sur la figure 3.5. En effet, le coefficient d'accommodation mesuré n'est rien d'autre que la mesure du coefficient d'échauffement du mouvement Brownien K à une constante près.

La figure 3.6 représente la mesure du coefficient d'échauffement du mouvement Brownien K moyennée sur les différentes pressions pour chaque nanodiamant en fonction de leur facteur d'anisotropie g. L'incertitude de mesure provient de la propagation de la mesure de la variation de température de centre de masse ΔT_{CM} introduite dans la

section 3.3.1 et celle liée à la mesure de κ_{heat} introduite dans la section 3.3.2. De façon surprenante, nous n'observons pas de façon évidente une dépendance du coefficient d'échauffement du mouvement Brownien K avec le facteur d'anisotropie g pour les nanodiamants utilisés.

En moyennant la valeur du coefficient d'échauffement Brownien K sur l'ensemble des particules traitées, et sur les deux axes x et y, on obtient une valeur de $\bar{K} = 0,31 \pm 0,06$. En utilisant le lien entre ce coefficient et le coefficient d'accommodation α, on peut introduire la mesure d'un coefficient d'accommodation effectif moyen pour nos nanodiamants $\alpha_{\text{eff}} = 1,1 \pm 0,2$.

Ainsi, ces résultats mettent en évidence que l'on peut décrire le couplage entre la dynamique d'un nanodiamant définie par sa température de centre de masse et la température interne de la particule à partir d'un modèle à deux bains en introduisant un coefficient d'accommodation $\alpha_c \approx 1,1$ supérieur à 1. Ce terme prend donc en compte la forme de la particule. C'est un résultat intéressant puisqu'il démontre la possibilité de mesurer la température interne d'un nanodiamant en lévitation à partir d'une mesure de la dynamique en s'affranchissant d'une sonde interne, tels que les centres NV utilisés ici.

Au delà de ces applications à la mesure de température, ces expériences soulignent aussi le potentiel des nanoparticules en lévitation pour l'étude de phénomènes hors équilibre, en plus de permettre la possibilité de mesurer des grandeurs thermodynamiques à l'échelle d'une nanoparticule individuelle.

3.4 Sur-échauffement de la température de centre de masse

Nous avons mis en évidence que pour la majorité des particules de diamant, indépendamment de leur forme, on pouvait facilement lier la température interne à leur énergie de centre de masse en utilisant un coefficient d'accommodation α_c. Cependant, sur certaines particules (typiquement $\sim$2 sur les 10 particules étudiées), nous avons observé une divergence au modèle. La température du centre de masse selon un axe devient bien plus élevée que celle attendue, et ne répond absolument pas au modèle décrit dans la partie précédente. Cet effet est alors bien plus prononcé sur un axe que que sur l'autre.

La figure 3.7(a) présente les résultats expérimentaux à pression fixe de 30 mbar obtenus pour une telle particule. On remarque que la température de centre de masse est bien supérieure à la température interne.

Afin de quantifier cet effet, nous étudions comme précédemment le coefficient d'échauffement du mouvement Brownien K selon les deux axes x et y en fonction de la pression (cf figure 3.7(b)). On remarque que si le coefficient $K_x = 0,33 \pm 0,08$ est en bon accord avec les résultats décrits dans la partie précédente. Le coefficient K_y est quant à lui bien supérieur à 1, et augmente sensiblement lorsque la pression dans la chambre diminue. Le fait que ce coefficient soit supérieur à 1 n'est pas compatible avec un simple échauffement de la température interne. Il est donc nécessaire de l'expliquer par d'autres processus.

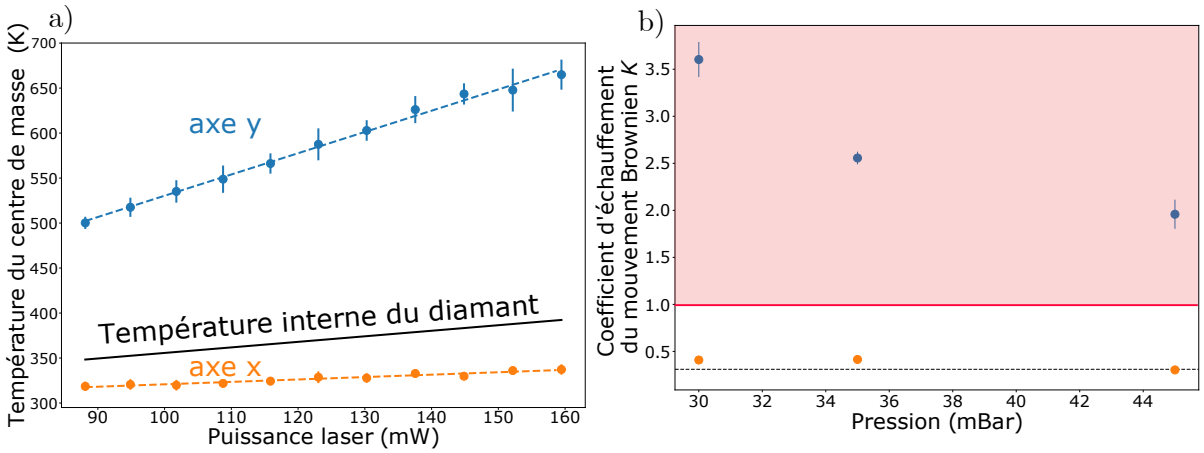

Figure 3.7 – a) Température de centre de masse pour une particule sur-chauffée le long de l'axe y à une pression de 30 mBar. b) Le coefficient d'échauffement du mouvement Brownien associé suivant les axes x (en orange) et y (en bleue). La ligne noir en pointillée représente la valeur moyenne des coefficients K mesurée pour les particules sans sur-échauffement. La zone en rouge clair correspond à des valeurs de $K > 1$ qui ne peuvent pas être expliquées par le modèle utilisé.

Une première explication possible pour décrire ce comportement serait la présence de forces non conservatives. En effet, des processus d'échauffement du centre de masse de particules micrométriques ont été mis en évidence dans des pièges optiques sur des particules biréfringentes [152] et sur des particules de silice [153] mettant en jeu des interactions non conservatives. Cependant, dans ce cas, on doit observer un couplage cohérent entre différents modes du mouvement de la particule qui se traduit par une réduction de la largeur du pic fréquentiel dans le signal de DSP. Un effet que nous n'observons pas.

Autrement, on peut penser que la forme aléatoire de la particule de diamant peut provoquer une dynamique non triviale. Des études numériques récentes ont montré que le piège optique pouvait être instable pour des particules de formes aléatoires, même pour des particules avec des tailles inférieures à la longueur d'onde du laser [154]. Pour pouvoir étudier cet effet plus en détail, il faudrait connaître la forme exacte des particules de diamant ou utiliser des nanodiamants dont on peut contrôler la forme. De telles particules peuvent être fabriquées [155] et de futures études sur de telles particules sont envisagées.

Une des solutions pour éviter l'échauffement de la particule serait alors de contrôler et piloter davantage de degrés de liberté [40]. Pour finir, à travers ce processus d'échauffement non thermique, une question clef est de savoir s'il est présent pour toutes les particules. Si tel est le cas, réduire l'absorption des nanodiamants en utilisant des diamant ultra-pures [119] ne serait pas suffisant pour garder les particules en lévitation.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la dynamique d'un diamant dont la température interne est supérieure à la température de l'environnement. Pour cela, on a décrit le modèle à la base du couplage entre la dynamique et la température interne de la particule. La mesure de la dynamique de la particule étant plus compliquée que pour celles d'autres types de particules, une technique d'étalonnage de la température de centre de masse a été innovée. Nous avons montré également que la plupart (environ 80 %) des nanodiamants étudiés étaient bien décrits par ce modèle en utilisant l'hypothèse de particules sphériques. On en a déduit une mesure du coefficient d'accommodation pour tous nos diamants $\alpha = 1{,}1 \pm 0{,}2$. Pour une petite portion ($\sim 20\%$) des nanoparticules étudiés, nous avons mis en évidence un mécanisme d'échauffement de la dynamique de la particule. Cet autre mécanisme n'est pas un couplage avec la température interne de la particule. Son effet est directionnel, c'est-à-dire qu'il n'impacte qu'une seule direction. Une explication pourrait se trouver dans les formes aléatoires des particules.

Maintenant les enjeux sont de mieux comprendre la perte de la particule qui pourrait être plus qu'un simple échauffement dû à la température interne et, pourquoi pas, de contrôler ce mécanisme afin de garder la particule dans le piège et ainsi pouvoir réaliser des expériences de spin optomécanique.

Chapitre 4

Couplage spin-mécanique pour un nanodiamant en lévitation

4.1 Introduction

Les développements des expériences d'optomécanique, qu'ils soient sur des systèmes liés à un substrat ou dans le cas de particules en lévitation, ont reposé essentiellement sur des modes translationnels, dit aussi du centre de masse. En particulier, l'utilisation d'une boucle de rétroaction active sur la dynamique d'une particule en lévitation [35, 36], ou d'une cavité [34] ont permis, au cours des deux dernières années, de refroidir le mouvement de particules en lévitation dans leur état quantique fondamental. De même, les très grands facteurs de qualité atteignables pour le mouvement du centre de masse pour des particules en lévitation en font des capteurs de forces prometteurs [156, 65, 157].

Cependant, l'utilisation d'une particule en lévitation permet d'accéder à de nouveaux degrés de liberté, notamment des modes de rotations libres, ou des modes de librations ouvrant de nouvelles perspectives. Notamment, pour les aspects de couplages spin-optomécanique, comme nous l'avons discuté dans le chapitre 2, il est plus aisé de coupler le spin à un mouvement de libration à l'aide d'un champ magnétique [158, 53]. En effet, le couplage à un mouvement translationnel nécessite de produire de forts gradients de champ magnétique, ce qui représente un challenge expérimental [159]. En terme de capteurs, ce système se prête alors parfaitement à l'étude de couples de faibles amplitudes, et permettrait en particulier d'aller sonder la friction du vide ou les couples de Casimir [160]. Un tel système couplé à un spin, tel que celui des centres NV, serait alors parfait pour l'étude des phases géométriques [161], la réalisation de nano-gyroscopes et l'étude de l'effet Barnett [162].

Au delà des applications prometteuses du mode librationnel, il existe des couplages entre ce mode et les modes translationnels [163] pouvant expliquer les dynamiques non conventionnelles que nous avons observées pour certains nanodiamants dans le chapitre 3. Il est donc nécessaire de bien comprendre et d'être capable d'adresser la dynamique de ces modes librationnels.

Dans ce contexte, nous commencerons par discuter de l'état de l'art des expériences impliquant le mode de libration de particules en lévitation. Nous décrirons ensuite les propriétés du mode de libration autour de l'axe optique d'un nanodiamant en lévitation, ainsi que le principe de détection optique de sa dynamique. Enfin, nous présenterons les premières expériences de couplage spin-mécanique pour un nanodiamant en lévitation

optique. Nous démontrerons alors la lecture du mode de libration du nanodiamant, et proposerons une méthode inédite d'étalonnage de la dynamique du nanodiamant.

4.2 Mouvement librationnel de la particule dans le piège

Nous avons montré à la fin du chapitre 3 que les particules de diamants utilisées ne sont pas sphériques. L'anisotropie des particules va alors favoriser leur orientation préférentiellement selon un axe du piège optique. En particulier, si nous considérons une particule de forme elliptique pour la particule et un faisceau laser de piégeage polarisé linéairement, la particule tend à aligner le grand axe de son ellipse avec l'axe de polarisation [164]. Ainsi, lorsque la particule s'écarte de son orientation d'équilibre, un couple va se former pour ramener la particule vers son orientation d'équilibre. C'est pourquoi on peut supposer qu'il y a également un piégeage angulaire lorsque le laser de piégeage est polarisé linéairement. Ce degré de liberté se traduit par un mode dit de *libration*.

Avant d'introduire les aspects théoriques et expérimentaux du mouvement librationnel pour une particule en lévitation, nous allons commencer par présenter un état de l'art du domaine.

4.2.1 Mouvement librationel : état de l'art

La première observation du mode de libration a été effectuée par l'équipe de T. Li avec des nanodiamants [151]. Un meilleur contrôle de la dynamique de la particule piégée a ensuite été obtenue en utilisant des particules anisotropes de forme bien contrôlée soit des dimères de billes de silice [160], soit des piliers de silicium [166]. Idéalement, l'utilisation de piliers en diamant nanofabriqués pourrait permettre de lier les deux et ouvrirait de nouvelles perspectives, notamment dans la mesure de très faibles couples [39].

En parallèle, l'utilisation de nanoparticules de diamant fortement dopées en centres NV dans un piège de Paul a permis d'observer la première manipulation de refroidissement de spin de particules en lévitation [55] (cf figure 4.1(c)). Ce résultat est très encourageant car il ouvre des perspectives sur la spin-optomécanique dans les particules en lévitation. Néanmoins, pour le moment, il est encore limité par l'utilisation d'un grand

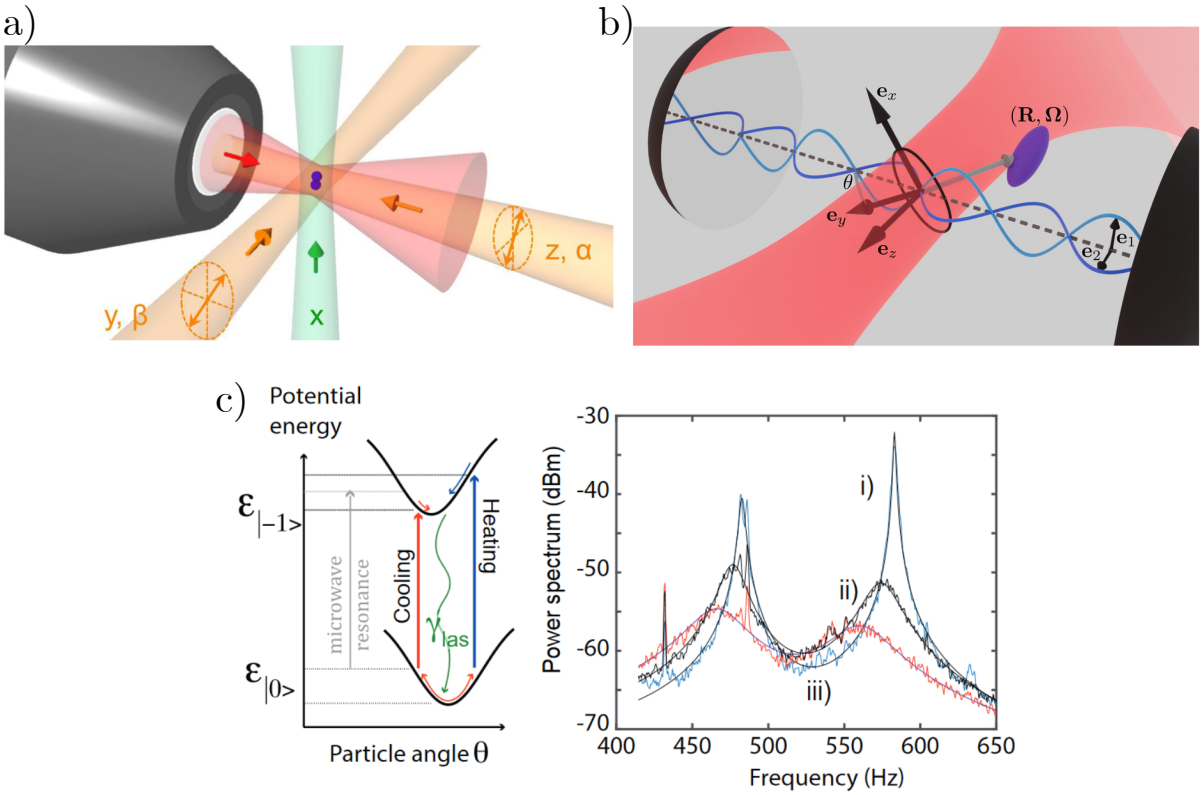

Figure 4.1 – **Refroidissement du mouvement translationnel et d'autres degrés de liberté** a) Expérience de refroidissement 5D réalisée par l'équipe de T. Li [40] sur des nanoparticules en forme d'haltères piégées par lévitation optique proposant de refroidir les modes de torsion en utilisant des lasers additionnels. Les lasers de refroidissement sont illustrés en vert et orange. Pour résumer, l'application d'un laser supplémentaire va entraîner un couple supplémentaire permettant en le modulant de refroidir le mode de torsion sélectionné. b) Expérience théorique proposée par l'équipe de B. Stickler [165] sur le refroidissement rotranslationnel à 6D d'une nanoparticule asphérique (ellipsoïde violette) en couplant une pince optique (représentée sur le schéma en rouge) avec une cavité optique ayant son axe principal orthogonal à la direction de propagation. Sans entrer dans les détails, le couplage nanoparticule-cavité avec la polarisation de la lumière peut refroidir le mouvement de la particule dans 6 dimensions. c) Expérience de refroidissement du spin du centre NV sur une expérience de lévitation à partir d'un piège de Paul [55].

nombre de spins et les fréquences misent en jeu sont assez faibles (typiquement quelques centaines de Hz). Dans le contexte de l'observation d'un couplage spin-mécanique fort, il serait intéressant d'obtenir des fréquences d'oscillations plus élevées [56], une perspective qu'ouvre la lévitation optique.

D'autre part, des techniques de refroidissement des modes librationnels et rotationnels peuvent être combinées à celui du spin. Des expériences ont déjà été réalisées afin

de refroidir le mouvement librationel de particules asphériques en utilisant des lasers qui permettent de réaliser un refroidissement de type *amortissement froid* [40]. Une boucle de rétroaction applique alors une force proportionnelle à la vitesse de la particule, de manière à la freiner artificiellement. Alternativement, l'ajout d'une cavité optique permettrait aussi de réaliser un refroidissement des modes de libration de la particule [165] en tentant d'atteindre l'état fondamental quantique pour les 6 dimensions rotranslationnelles. Ces différentes techniques de refroidissement sont illustrées sur la figure 4.1.

Après avoir présenté les grandes thématiques des expériences de spin-optomécanique de particules en lévitation actuelles, nous allons décrire les aspects théoriques de ce mode dit de libration.

4.2.2 Potentiel énergétique du mouvement librationnel

Nous avons décrit physiquement les raisons pour lesquelles une particule asphérique en lévitation dans un piège optique polarisé linéairement est confinée dans un mode librationnel. Maintenant, intéressons nous à la théorie de ce confinement et en premier lieu au potentiel énergétique de ce mode. Dans la suite de cette partie, nous prendrons en compte le fait que la particule ne soit pas sphérique. Pour cela, nous pouvons utiliser une approche tensorielle. Néanmoins, pour les applications numériques, nous modéliserons les nanodiamants par des ellipses de demi-axes $r_Y > r_X = r_Z$.

La taille de la particule étant beaucoup plus petite que la longueur d'onde du laser de piégeage, on peut utiliser l'approximation de Rayleigh (cf section 1.2.1). On peut alors exprimer le couple s'appliquant sur l'ellipse [164, 167] :

$$\vec{\tau} = \langle \vec{p} \times \vec{E} \rangle. \tag{4.1}$$

En faisant l'approximation que le tenseur lié à la polarisabilité de la particule peut se diagonaliser dans le référentiel lié à la particule (X,Y,Z) où α_X, α_Y et α_Z représentent les polarisabilités selon les axes liés à la particule (dans le cas où la particule est considérée comme elliptique, on prendra la convention que l'axe Y correspond au demi-axe long de la particule comme le montre la figure 4.3(b)) et en se plaçant dans l'approximation d'un faisceau gaussien paraxial, on peut écrire le couple qui s'applique sur la particule suivant

les différents axes du référentiel du laboratoire (x,y,z) [164] :

$$\tau_x(x,y,z,\phi,\theta) = -(\alpha_Y - \alpha_X) I(x,y,z) \sin(2\theta)\cos(\phi), \tag{4.2}$$

$$\tau_y(x,y,z,\phi,\theta) = 0, \tag{4.3}$$

$$\tau_z(x,y,z,\phi,\theta) = -(\alpha_Y - \alpha_X) I(x,y,z) \sin(2\phi)\cos^2(\theta), \tag{4.4}$$

où I représente l'intensité du laser de piégeage donnée par l'équation 1.20, les angles θ et ϕ représentent l'orientation de l'ellipse dans les coordonnées sphériques. L'angle θ est représenté sur la figure 4.2, on ne considérera pas la dépendance suivant l'angle ϕ qui n'est pas mesurable dans notre expérience. Les paramètres α_X et α_Y dépendent de la forme de la particule [168]. La polarisabilité selon un axe est d'autant plus grande que l'axe est long. Ainsi, dans le cas que nous considérons, la grandeur $\alpha_Y - \alpha_X$ est positive. On suppose, pour simplifier les expressions, que la particule est piégée autour de sa position d'équilibre $\vec{r} = \vec{0}$ de sorte que l'intensité est considérée comme constante :

$$\tau_x(\phi,\theta) = -(\alpha_Y - \alpha_X) I_0 \sin(2\theta)\cos(\phi), \tag{4.5}$$

$$\tau_y(\phi,\theta) = 0, \tag{4.6}$$

$$\tau_z(\phi,\theta) = -(\alpha_Y - \alpha_X) I_0 \sin(2\phi)\cos^2(\theta). \tag{4.7}$$

On vérifie ici que les positions d'équilibre pour le nanodiamant correspondent aux cas où ses axes propres sont alignés avec ceux du laser. Lorsque le nanodiamant s'aligne avec l'axe de polarisation du laser, on a $\phi \simeq 0$. De cette position, si la particule bouge d'un angle de déviation que l'on notera δ, on obtient le travail nécessaire pour la ramener à l'équilibre :

$$\Delta U_{\text{lib}} = \frac{P}{2c\pi\epsilon_0 w_x w_y} |\alpha_Y - \alpha_X| \sin^2(\delta), \tag{4.8}$$

avec P la puissance de laser de piégeage et w_x, w_y les tailles de faisceau au point de convergence introduits dans la section 1.2.3.

Une question importante associée avec l'observation de mouvement librationel est alors le confinement de la particule dans le puits de potentiel associé. On voit sur l'équation (1.30) que la profondeur de ce puits de potentiel est de l'ordre de :

$$\Delta U_{\text{lib}} = \frac{P}{2c\pi\epsilon_0 w_x w_y} |\alpha_Y - \alpha_X| = \frac{\Delta U_{\text{trans}}}{2} \frac{|\alpha_Y - \alpha_X|}{\alpha_Y} \tag{4.9}$$

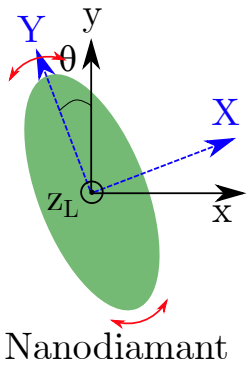

Figure 4.2 – **Schéma d'un nanodiamant et son mouvement de libration** représenté dans le plan transverse à la lumière incidente. La particule est représentée par une ellipse où le plus grand axe de la particule tend à s'aligner avec l'axe de polarisation de la lumière (dans notre cas y). L'angle entre l'axe long de la particule Y et l'axe de polarisation de la lumière y est noté θ. Par soucis de simplification, on suppose qu'il n'y a qu'un seul mode de torsion en considérant que l'axe de propagation de la lumière est parallèle avec l'axe transverse z de la particule.

avec ΔU_{trans} la profondeur du puits de potentiel associée aux forces optiques, décrite dans le chapitre 1. Nous avons vu dans le paragraphe 1.2.4 que dans notre expérience $\Delta U_{\text{trans}} \approx 40\ k_B T_0$. En modélisant, pour fixer les idées, le nanodiamant par un ellipsoïde, on trouve alors que pour $r_X = 0,75\ r_Y$, la profondeur du puits de l'ordre de quelques $k_B T_0$ permettant d'avoir un confinement du mode librationnel assez longtemps pour l'observer expérimentalement. On obtient alors un oscillateur harmonique pour une particule de masse m semblable à celui obtenu pour les degrés de liberté translationnels dont les pulsations propres s'écrivent [151] :

$$\omega_x = \sqrt{\frac{4\alpha_Y P}{c\epsilon_0 \pi m (w_x w_y)^2}}, \qquad \omega_{\text{lib}} = \sqrt{\frac{10(\alpha_Y - \alpha_X)P}{c\epsilon_0 \pi m (w_x w_y)(r_X^2 + r_Y^2)}}. \tag{4.10}$$

De ces expressions, on peut estimer l'ordre de grandeur du rapport des pulsations propres des modes translationnels par rapport à celle du mode librationnel $\omega_{(x,y)}/\omega_{\text{tor}} \simeq w_{(x,y)}/r_{(x,y)} \sim 10$ [151] pour un rapport d'aspect de 1,33 ($r_Y = 80$ nm et $r_X = 60$ nm). Même si cette grandeur dépend fortement de la forme de la particule, l'ordre de grandeur obtenu correspond à celui observé expérimentalement.

4.2.3 Équation du mouvement du mouvement librationnel

Par analogie avec le mouvement de centre de masse de la particule, traité dans le chapitre 1, nous nous intéressons à la DSP associée au mouvement de libration de la particule. Nous commencerons donc par traiter l'équation du mouvement du degré de liberté librationnel. Pour cela, nous utiliserons le théorème du moment cinétique en supposant que la particule n'a pas de couplage entre les différents degrés de liberté. Nous nous intéresserons au moment cinétique de la particule noté L, qui peut s'écrire, en fonction de la fréquence de rotation ω_r, $L = I\omega_r$ avec I le moment d'inertie de la particule selon l'axe de rotation considéré. Si on applique le théorème du moment cinétique, on obtient :

$$I\frac{d\omega_r(t)}{dt} = \tau_{\text{opt}} + \tau_{\text{rés}} + \tau_{\text{rap}} + \tau_{\text{fluct}}. \tag{4.11}$$

Le couple *optique* correspond à l'échange de moment cinétique de la lumière avec la particule. En effet une onde électromagnétique polarisée circulairement possède un moment cinétique $\hbar$, qui peut être transféré à la particule générant le couple τ_{opt}. Cet effet, qui a initialement été mis en évidence de manière expérimentale par Beth en 1936 [169], a ouvert la voie à des expériences de microfluidique [170], il a aussi permis de mettre en rotation des particules en lévitation à des vitesses jusqu'alors jamais réalisées, pouvant atteindre quelques milliards de tours par seconde [171, 160, 172]. Le transfert de moment cinétique peut alors être imputé à différents phénomènes, l'absorption des photons par la particule, la biréfringence de la particule, ou encore sa forme [171, 166]. Notons que dans les expériences présentées, dans le cadre de cette thèse, nous utilisons une polarisation linéaire, de sorte que la lumière ne porte pas de moment cinétique. Nous supposerons donc dans la suite que le couple optique τ_{opt} est nul. Néanmoins, une lame retard $\lambda/4$ est installée sur le dispositif expérimental, ce qui devrait permettre de favoriser, dans des expériences futures, la rotation de la particule plutôt que son mode de libration.

Le couple lié à la résistance de l'air sur la particule que l'on a noté $\tau_{\text{rés}}$ prend la forme $\tau_{\text{rés}} = I\gamma_{\text{rot}}\omega_r$ avec γ_{rot} le coefficient d'amortissement en rotation [173]. Comme dans le cas du mouvement de centre de masse, on peut montrer que $\gamma_{\text{rot}} \propto p_{\text{gaz}}$.
Le couple lié aux fluctuations thermiques noté τ_{fluct} est de moyenne nul et en appliquant le théorème de fluctuation dissipation au couple, on a également la relation $\langle\tau_{\text{fluct}}(t)\tau_{\text{fluct}}(t+dt)\rangle = 2I\gamma_{\text{rot}}k_BT_0\delta(dt)$. Enfin, le couple lié au rappel de la particule à sa position d'équilibre que l'on note τ_{rap} qui peut s'écrire dans le cas d'une approximation d'un oscillateur

harmonique, $\tau_{\text{rap}} \approx I\omega_{\text{lib}}\theta$, avec ω_{lib} défini à l'équation (4.11). Ainsi, nous obtenons l'équation du mouvement simplifiée pour le degré de liberté de libration :

$$I\ddot{\theta} + I\gamma_{\text{rot}}\dot{\theta} + I\omega_{\text{lib}}\theta = \tau_{\text{fluct}}, \tag{4.12}$$

avec θ l'angle entre la position d'équilibre de la particule, supposé être l'axe de polarisation et le grand axe de notre particule, ω_{lib} la fréquence propre de l'oscillateur harmonique liée à la libration (équation 4.10).

De cette équation, on peut en déduire la forme de la DSP pour le degré de liberté librationnel :

$$S_{\theta\theta}(\omega) = \frac{k_B T_0}{\pi I} \frac{\gamma_{\text{rot}}}{(\omega_{\text{lib}}^2 - \omega^2)^2 + \gamma_{\text{rot}}^2\omega^2}. \tag{4.13}$$

Cette étude de la DSP permet, à la manière des degrés de liberté translationnels, de mesurer l'énergie dans ce mode comparée au modèle défini. En effet, on peut ajuster la courbe de la DSP par une courbe de la forme $\frac{C_0}{\pi}\frac{\gamma_{\text{rot}}\omega_{\text{lib}}^2}{(\omega_{\text{lib}}^2 - \omega^2)^2 + \gamma_{\text{rot}}^2\omega^2}$ en utilisant l'équation 4.13, où les paramètres d'ajustement sont :

- $C_0 = \frac{k_B T_0}{\pi I \omega_{\text{lib}}^2}$, un coefficient, en supposant l'équilibre thermodynamique atteint proportionnel à l'énergie d'équilibre du mode librationnel.
- γ_{rot}, le coefficient d'amortissement du mode librationnel,
- ω_{lib}, la fréquence propre d'oscillation du mode librationnel.

De façon analogue à l'énergie dans les modes translationnels (cf section 3.3.1), nous devons étalonner notre système pour obtenir le coefficient d'étalonnage pour passer des unités des canaux de l'oscilloscope en *bin* à des radians *rad*. Dans le cas de la libration, la tension mesurée est proportionnelle à l'angle θ et le coefficient C_0 est en pratique proportionnel à $k_B T_0$. Pour finir l'étalonnage, il faut avoir accès au moment d'inertie de la particule I qui est difficile à estimer avec nos particules de formes diverses. Nous introduirons par la suite un moyen de déterminer le moment d'inertie.

4.2.4 Observation du mouvement librationnel

Nous avons présenté la détection du mouvement du centre de masse de la particule dans la section 1.5.3. Elle permet, notamment, de déterminer les fréquences propres des degrés de liberté translationnels. Cette détection n'est sensible qu'à ces degrés de liberté, et doit donc être complémentée pour adresser les modes de libration. Pour cela, nous

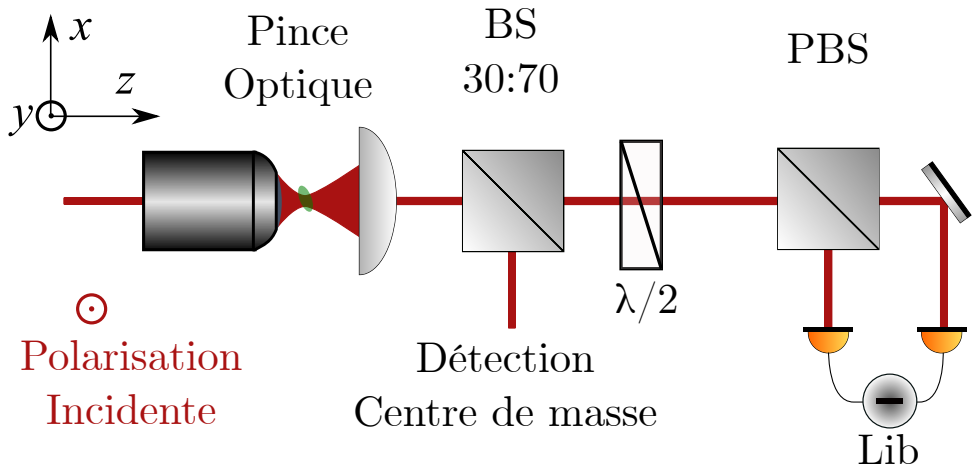

Figure 4.3 – **Détection de la libration de la particule.** Schéma du montage expérimentale et plus particulièrement de la détection du mouvement librationnel. La détection comporte une partie supplémentaire à la détection de la dynamique du centre de masse (cf figure 1.9) permettant de mesurer le mouvement de libration de la particule. À partir de la polarisation linéaire incidente, une lame retard $\lambda/2$ permet de balancer la puissance du faisceau en passant par le séparateur de faisceau polarisé (PBS). Lorsque la balance est faite sur le détecteur et la particule est piégée, elle va entraîner un changement de polarisation que l'on peut mesurer permettant de détecter le mouvement librationnel de la particule.

avons adapté un système utilisant la polarisation de la lumière pour mesurer la libration autour de l'axe optique z. La figure 4.3 représente la détection du mouvement librationnel où l'on a ajouté un séparateur de faisceau polarisé après la lentille de collection pour pouvoir mesurer les variations de polarisations dues à la différence de polarisabilité suivant les deux axes de la particule. Ainsi, en pratique pour détecter le mouvement librationnel de la particule, on balance le détecteur en utilisant une lame $\lambda/2$ en sortie d'objectif. Une fois la balance réalisée, lorsque la particule est piégée, elle va entraîner une différence de polarisation mesurable expérimentalement.

La figure 4.4(a) représente un exemple de DSP du centre de masse de la particule et du mouvement librationnel, montrant la possibilité de mesurer expérimentalement un nouveau degré de liberté de la particule. Si on ajuste la courbe de DSP pour le mouvement librationnel par l'équation (4.13), on peut en déduire sa fréquence de libration. On met en valeur que la fréquence propre de libration est presque dix fois plus élevée que celles liées au mouvement de centre de masse. La possibilité d'obtenir des fréquences élevées est particulièrement intéressante pour les expériences de refroidissement vers le régime quantique [151] qui deviennent plus accessibles, ou dans le cadre d'expériences de

spin optomécanique, puisque cela facilite l'entrée dans le régime de couplage fort entre le spin et le mouvement du diamant [56].

En utilisant les résultats de l'ajustement des DSP, on trace la fréquence d'oscillations de ce mode en fonction de la puissance du laser de piégeage P_{las} à pression fixée, représentée sur la figure 4.4 en gardant les fréquences propres d'oscillations des modes translationnels. La fréquence propre de l'axe de torsion est représentée sur la figure 4.4(b). On remarque, comme les axes translationnels, que la fréquence propre pour ce degré de liberté est proportionnelle à la racine carrée de la puissance laser comme le prédit les équations 4.10.

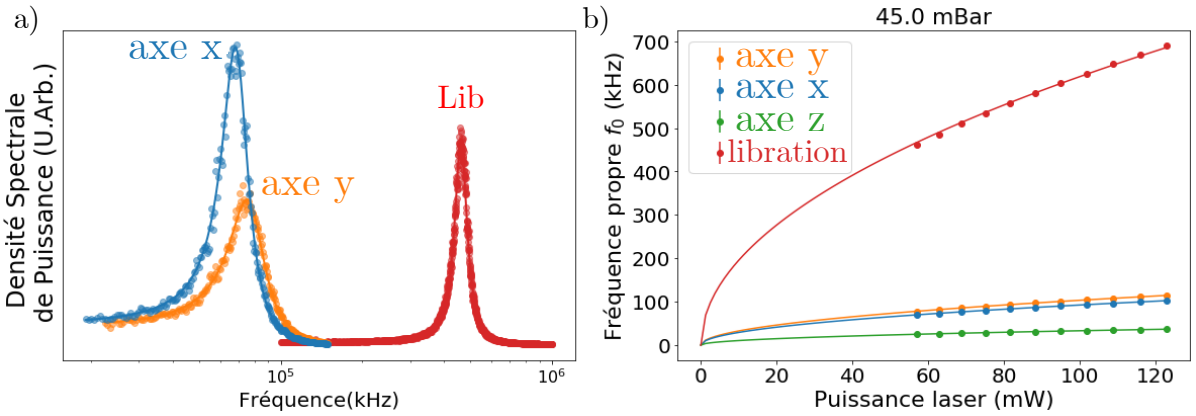

Figure 4.4 – **Densité Spectrale de Puissance et fréquence propre du mode translationnel.** a) Densité Spectrale de Puissance d'une nanoparticule de diamant à 45 mbar pour une puissance laser de 75 mW pour les axes transverses représentant la dynamique du centre de masse de la particule et la libration autour de l'axe z. La DSP de la libration a été multipliée par 5 pour la figure et l'abscisse est en échelle logarithmique. Les courbes pleines correspondent aux ajustements des DSP par l'équation (1.49) pour les axes x et y et par l'équation (4.13) pour la libration. b) Fréquences propres associées au mouvement de translation selon x, y,z et à la libration à pression fixée à 45 mbar en fonction de la puissance du laser de piégeage. En traits pleins, on a ajusté les données par une fonction racine carrée montrant la dépendance des fréquences propres avec la racine carrée de la puissance laser attendue dans le cas d'un oscillateur harmonique. On remarque également que la fréquence propre pour la libration est supérieure d'un facteur proche de 10 par rapport aux modes translationnels.

De ces résultats, une étude sur une possible corrélation entre les énergies d'équilibre thermodynamique des modes translationnels et du mode librationnel a été approfondie afin de donner des pistes de compréhension aux résultats obtenus à la section 3.4. Ces résultats préliminaires ne permettent pas de conclure sur un quelconque couplage entre

ces modes. Néanmoins, la possibilité de détecter le mouvement de libration de la particule ouvre de nombreuses opportunités de recherche pour notre expérience comme sur la mise en place d'un système de détection de couples [39] que sur l'élaboration d'un système de refroidissement de spins [55]. L'objectif principal étant de réaliser un couplage spin-optomécanique en s'aidant des résultats obtenus sur le mode de libration pour le développer.

4.3 Couplage spin-optomécanique

Après avoir présenté les expériences réalisées sur la détection du mouvement librationnel de la particule et ses applications actuelles et en devenir, nous nous intéresserons à présent au couplage spin opto-mécanique, c'est-à-dire à la volonté de coupler le spin des centres NV avec le mouvement du diamant dans le piège. Comme nous l'avons discuté en introduction nous cherchons à les coupler à un mode librationel du nanodiamant. Pour réaliser ce couplage, nous ajouterons un champ magnétique statique, orienté selon l'axe x (cf figure 4.5(a)). La première étape à la réalisation d'un couplage spin-mécanique est la possibilité de lire la dynamique de la particule par le spin. C'est ce que nous démontrerons dans la suite.

4.3.1 Hamiltonien d'un centre NV unique sous champ magnétique

Comme nous l'avons montré dans le chapitre 2, le centre NV est un état triplet de spin dont les états propres sont notés $|+1\rangle$, $|0\rangle$ et $|-1\rangle$. Nous avons décrit le système sans champ magnétique où les états $|\pm 1\rangle$ sont de plus hautes énergies dus au couplage entre les deux électrons de même spin. L'écart énergétique entre les états $|\pm 1\rangle$ et $|0\rangle$ est toujours noté D.

Dans le chapitre 2, nous avons également montré que, en présence d'un champ magnétique $\vec{B}$, l'hamiltonien du centre NV s'écrit :

$$H_{\mathrm{NV}} = DS_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2) + g\mu_B \vec{B} \cdot \vec{S} \tag{4.14}$$

avec z l'axe de quantification correspondant à l'axe du centre NV, D le paramètre de sé-

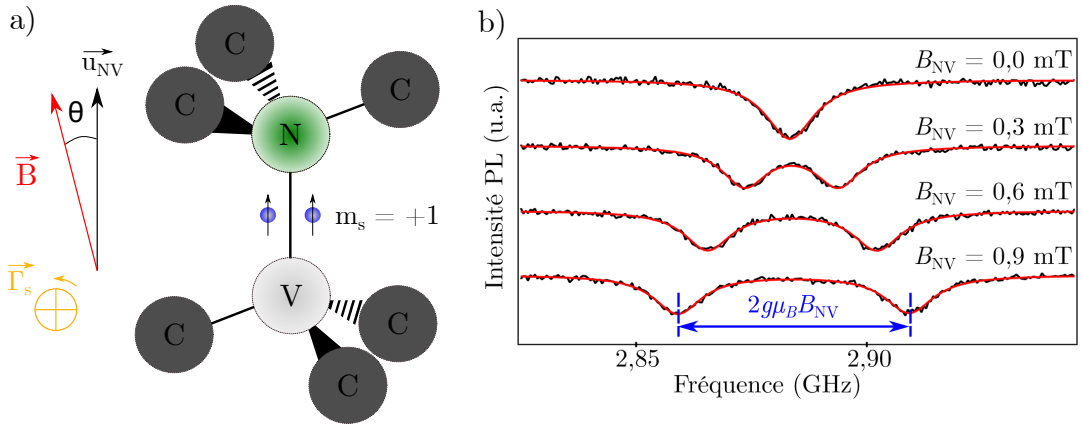

Figure 4.5 – **Schéma d'un centre NV sous champ magnétique** a) Schéma d'un centre NV dans un champ magnétique fixé faisant un angle θ avec l'axe du centre NV noté $\vec{u}_{NV}$. Le centre NV contient deux électrons non appariés qui subissent de la part du champ magnétique une interaction qui provoque pour un spin de moments ± 1 un couple sur la maille cristalline du diamant et un décalage des raies de la résonance de spin. b) Détection optique du signal de résonance de spin d'un centre NV unique en fonction du champ magnétique appliqué [174] où le terme de séparation en champ nul E est négligeable devant la largeur des raies de résonance.

paration en champ nul, E un paramètre décrivant les actions de contraintes mécaniques ou la présence d'un champ électrique transverse et le vecteur $\vec{S}$ décrivant le vecteur de Pauli dont la base considérée est associée au centre NV.

Pour connaître la position des raies de résonance, il est nécessaire de calculer les valeurs propres de cet hamiltonien. Une solution analytique simple n'est disponible que dans les cas des faibles champs magnétiques, c'est-à-dire lorsque l'amplitude du champ magnétique $|\vec{B}|$ est inférieure à quelques millitesla. On a alors $|\vec{B}| < D$ qui permet d'écrire l'hamiltonien sous le forme simplifiée :

$$H_{NV} \approx DS_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2) + g\mu_B B_z S_z, \tag{4.15}$$

de sorte que les fréquences de résonance de spin sont données par :

$$\nu_{\pm} \approx D \pm \sqrt{(g\nu_B B)^2 + E^2}. \tag{4.16}$$

On retrouve que, en absence de champ magnétique, les niveaux $|\pm 1\rangle$ sont non dégénérés et séparés par $2E$ en raison des contraintes dans le diamant.

Pour des champs magnétiques vérifiant $B \gg \frac{E}{g\mu_B}$ on trouve la dépendance linéaire :

$$\nu_{\pm} \approx D \pm g\nu_B B. \tag{4.17}$$

Ainsi, il y a levée de dégénérescence des états énergétiques liés aux niveaux $|\pm 1\rangle$. En donnant l'ordre de grandeur de ce déplacement, on a $g\mu_B = 28$ MHz/mT. La figure 4.5(b) montre la levée de dégénérescence des niveaux $|\pm 1\rangle$ en fonction du champ magnétique appliqué. Cette propriété permet de réaliser de nombreuses expériences liées notamment à la magnétométrie à petites échelles [175, 176, 177, 108].
Pour des champs magnétiques plus importants, il est nécessaire de calculer sans approximation les énergies propres du centre NV en diagonalisant numériquement l'hamiltonien. Les résultats sont obtenus sur la figure 4.6 où l'on détermine la position des raies de résonance de spin en fonction de l'amplitude du champ magnétique et de son orientation par rapport au centre NV.

On retiendra de cette étude la possibilité d'obtenir l'amplitude du champ magnétique B et l'orientation d'un centre NV unique θ par rapport au champ magnétique à partir de la position des raies de résonance de spin. C'est cette propriété qui permet de lire le mouvement de libration ou de translation d'un nanodiamant par la lecture du spin du centre NV. Néanmoins, nous avons fait cette description pour un centre NV unique. Nous allons donc voir quelles sont les modifications lorsqu'on passe à un nanodiamant fortement dopé en centres NV.

4.3.2 Effet d'un ensemble de centres NV sous champ magnétique

Les nanodiamants utilisés sont dopés afin de contenir de nombreux centres NV (typiquement <1000 centres NV par nanodiamant [114]). L'étude précédente a été faite pour une seule direction de centres NV. Or, dans le nanodiamant, supposé monocristallin, il peut y avoir uniquement 4 orientations pour le centre NV correspondant à la structure cristalline du diamant. Chaque orientation va être soumise à un champ magnétique différent ce qui va provoquer une dégénérescence des états de spin propre à chaque orientation. Du point de vue de la résonance de spin, cela se traduit par l'apparition de quatre fois deux raies correspondant à chaque orientation soit 8 raies de résonance comme le montre

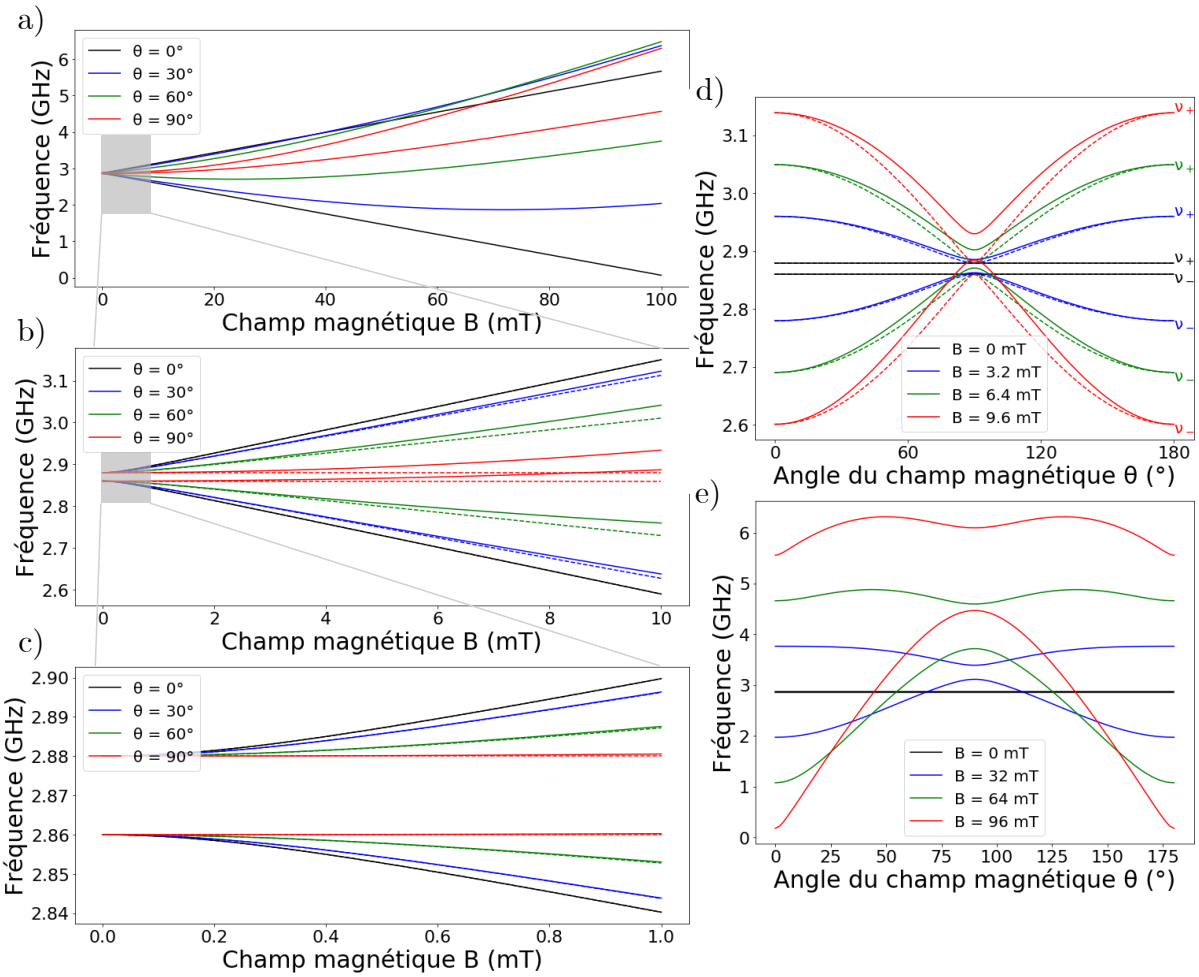

Figure 4.6 – **Simulation numérique de la position spectrale des raies de la résonance de spin d'un centre NV en fonction du champ magnétique appliqué et de son orientation par rapport à l'axe du centre NV.** Les données ont été prises avec pour les paramètres $D = 2,87$ GHZ et $E = 10$ MHz. On a considéré différents régimes de champ magnétique : un champ magnétique fort (a), faible (b) et très faible (c) pour des orientations du champ magnétique avec l'axe du centre NV différentes. On a également tracé la dépendance des positions des raies de résonance en fonction de l'angle entre champ magnétique et axe du centre NV (d) et (e) pour différents champs magnétiques. Les courbes en pointillés représentent l'approximation faite à champ faible donnée par l'équation 4.16.

la figure 4.7.

Pour étudier l'effet du champ magnétique sur nos nanodiamants, nous avons adapté un système de tige que l'on peut approcher ou reculer du piège optique en accrochant à son bout des aimants. Ce système préliminaire schématisé sur la figure 4.8(a) permet d'avoir un champ magnétique jusqu'à quelques millitesla.

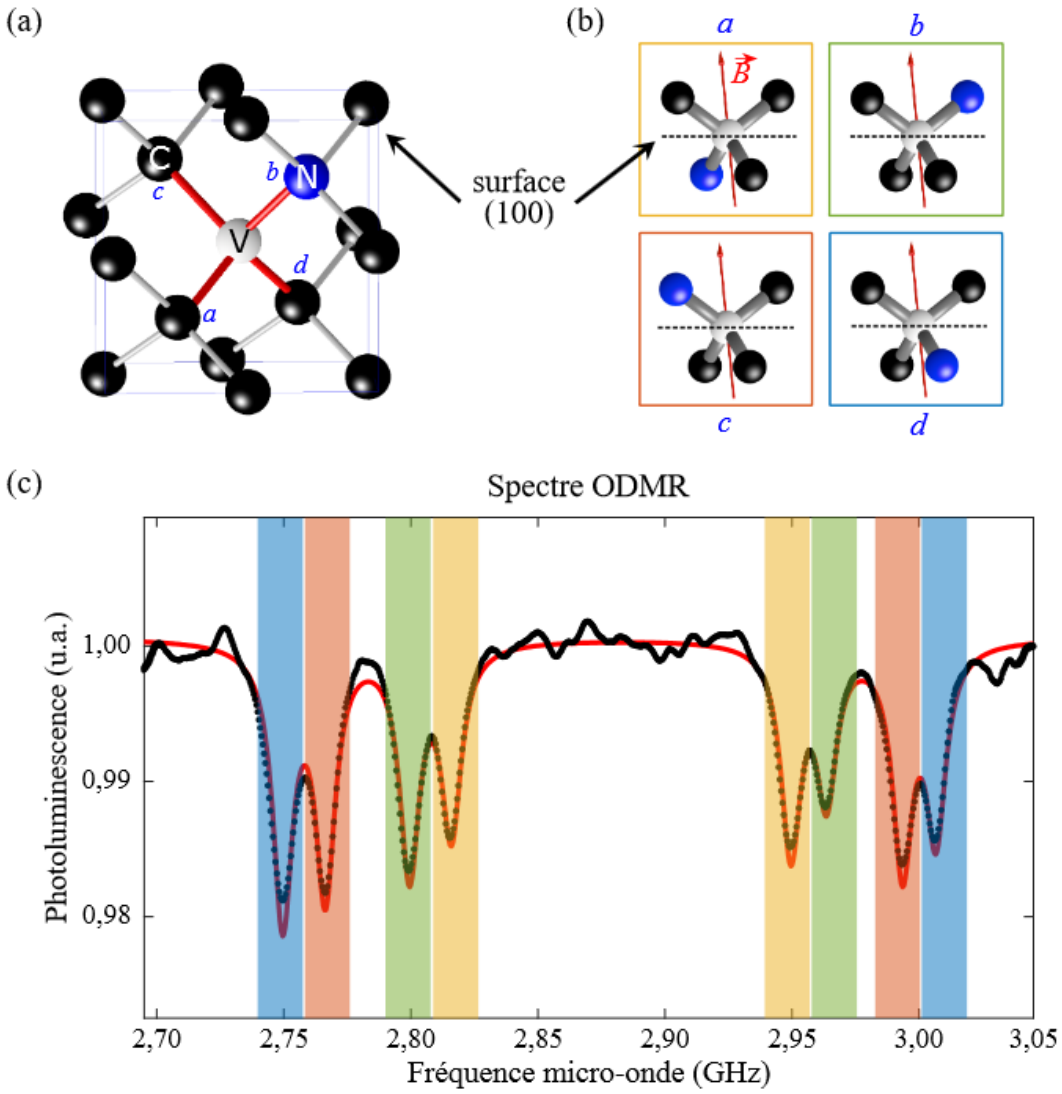

Figure 4.7 – **Effet d'un champ magnétique sur un nanodiamant fortement dopé en centres NV.** a) Schéma de la maille cristalline du diamant avec les 4 orientations positions pour le centre NV. b) Position du champ magnétique par rapport aux orientations des centres NV. c) Spectre de résonance de spin pour un nanodiamant fortement dopé en centres NV. On observe 8 raies correspondant aux 4 orientations des centres NV. Les bandeaux de couleurs indiquent l'association avec les familles encadrées représentées sur la figure (b).

Lorsque l'on réalise l'ODMR du nanodiamant en lévitation sans champ magnétique (position de la tige très éloignée du piège optique) et avec champ magnétique (aimants à quelques millimètres du piège optique), on remarque, sur la figure 4.8(b), que lorsque le champ magnétique est allumé, on n'observe pas clairement 8 raies distinctes dans le spectre de résonance mais deux raies très élargies. Cette observation est très différente de

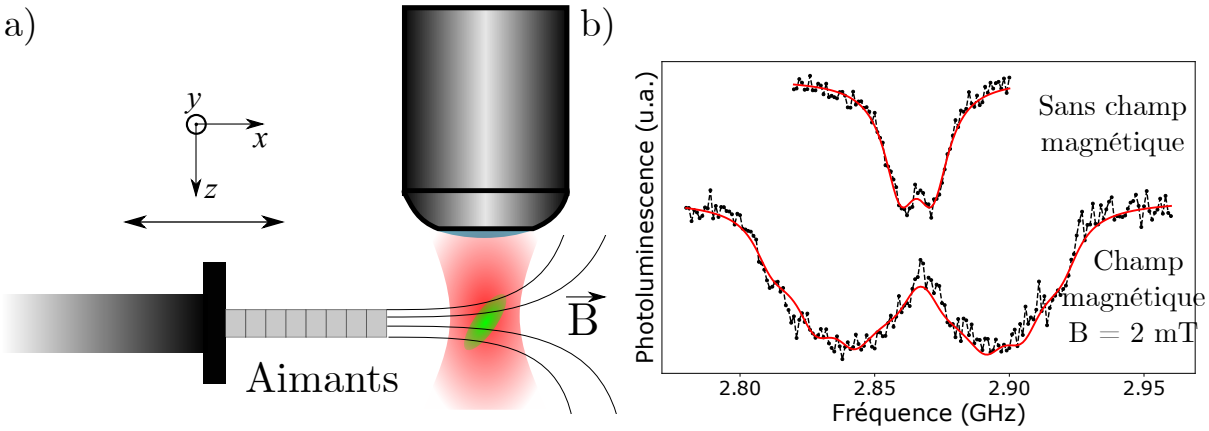

Figure 4.8 – **Ajout d'un champ magnétique dans le piège optique.** a) Schématisation du montage expérimental permettant d'obtenir un champ magnétique dans le piège optique à partir d'aimants adaptés à une tige pour les rapprocher ou les éloigner du piège. b) Résultats de l'ODMR d'un diamant en lévitation avec champ magnétique et sans champ magnétique.

ce que l'on peut voir dans le cas de microdiamants dans un piège de Paul [55]. Pour expliquer cette différence, il faut considérer les cause de l'élargissement des raies de résonance. Au cours de son mouvement de libration le nanodiamant va balayer un ensemble d'angles θ sur une largeur angulaire que nous noterons $\Delta\theta$. Pour chaque angle θ, l'orientation par rapport au champ magnétique est différente, et donc la position de la raie de résonance de spin aussi. Expérimentalement, nous observons une moyenne sur tous les spectres de résonance magnétique correspondant à chacun de ces spectres ODMR associés à un ensemble d'angle. En vertu du théorème d'équipartition de l'énergie appliqué au mode de libration, nous avons :

$$\Delta\theta = \sqrt{\frac{k_B T_0}{I\omega_{\text{lib}}^2}}. \tag{4.18}$$

Ainsi, $\Delta\theta$ est bien plus grand dans le cas d'un nanodiamant piégé optiquement que dans le cas d'un microdiamant en lévitation dans un piège de Paul. Cela explique le plus fort élargissement observé dans notre expérience. L'élargissement est encore complexifié par la présence des raies ODMR correspondant aux différentes orientations.

En effectuant, un ajustement des données expérimentales de la figure 4.8(b), on détermine les paramètres θ_0, $\Delta\theta$ et B, avec θ_0 la position d'équilibre pour une orientation de centres NV. Ainsi, une première estimation de l'écart type du mouvement librationnel a été réalisée à partir des spectres ODMR pour un nanodiamant soumis à un champ magnétique variable. On obtient $\Delta\theta = 0,66 \pm 0,5$ rad. Cela permet d'obtenir un ordre

de grandeur pour le moment d'inertie de notre système : $I \approx 2.10^{-32}$ kg.m^2. Si on réalise la mesure du moment d'inertie pour une ellipsoïde de demi-axes $r_X = r_Z = 60$ nm et $r_Y = 80$ nm, on trouve $I_{\text{ellipse}} \approx 2.10^{-33}$ kg.m^2. L'ordre de grandeur du moment d'inertie est le bon même si la précision sur la mesure de $\Delta\theta$ donne une trop grande incertitude pour confirmer le résultat.
Notons qu'à partir de cette mesure du moment d'inertie I, nous pouvons étalonner les mesures optiques et ainsi avoir une mesure quantitative du mouvement de libration du diamant.

Pour améliorer la précision de la mesure, nous sommes en train de développer un électroaimant qui sera calibrer et permettra d'obtenir des champs magnétiques plus contrôlés et plus intenses. Il est important dans notre montage d'avoir de forts champs magnétiques pour séparer les raies de résonance de l'ODMR et ainsi avoir une mesure plus précise de l'écart type de la position angulaire des centres NV par rapport au champ magnétique.
Néanmoins, il reste de nombreuses incertitudes dans notre mesure de part les nombreux degrés de liberté de notre système. Pour essayer de distinguer les raies de résonance de façon plus marquante, il faudra par exemple étudier des nanodiamants avec une seule orientation de centre NV. Pour obtenir un tel système, nous avons étudié des nanoparticules avec moins de centres NV (quelques uns par nanodiamant) pour essayer de piéger un centre NV unique et ainsi n'avoir qu'une seule orientation.

4.3.3 Piégeage de centre NV unique sous champ magnétique

Afin de mieux comprendre notre système et le tester sur des systèmes comportant moins de degrés de liberté, nous avons piégés des particules contenant peu de centres NV (entre 1 et 4 centres NV par nanodiamant). L'objectif est double, l'étude de la thermométrie de nanoparticules comportant moins de centres NV pour s'intéresser à l'absorption comme nous l'avons vu au chapitre 2 et de limiter les orientations des centres NV pour n'en obtenir qu'une seule. Cela permet d'obtenir une seule classe de raies de résonance et tenter de développer un système de couplage avec le champ magnétique.

La figure 4.9 montre les premiers spectres ODMR réalisés avec un nanodiamant contenant peu de centres NV. Lorsque le système n'est pas soumis à un champ magnétique nous observons une résonance de spin marquée (contraste $\sim 2\%$ sur la figure 4.9(a)) qui n'est pas assez contrasté lorsque le champ magnétique est présent (figure 4.9(b)). L'objectif est

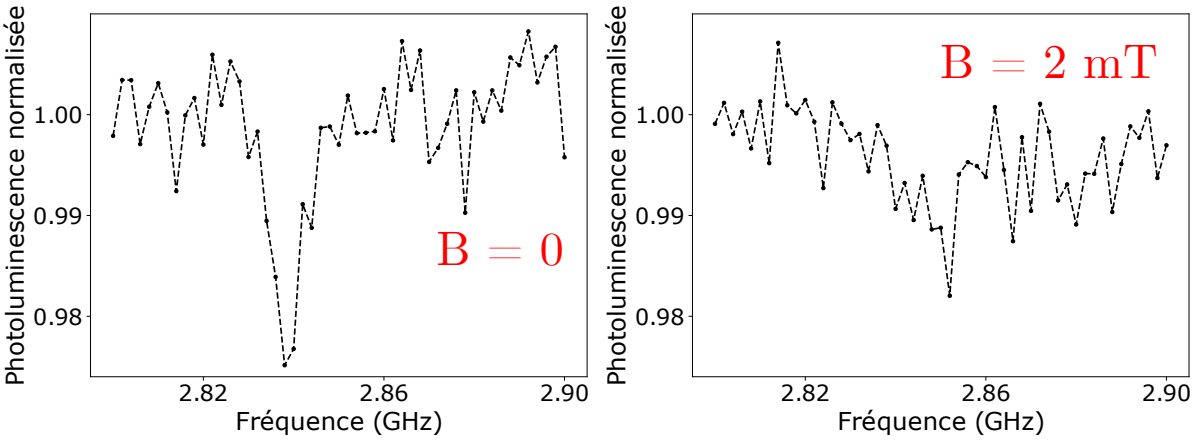

Figure 4.9 – **ODMR d'un nanodiamant en lévitation contenant peu de centres NV,** typiquement ≤ 3, a) sans champ magnétique et b) sous champ magnétique.

donc d'améliorer le système de collection de notre détection de la photoluminescence pour être capable de mesurer la résonance de spin lorsque le champ magnétique est présent.

4.4 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'intérêt de contrôler et d'étudier le mouvement librationnel de la particule à travers un état de l'art de la détection et de l'utilisation du mode de libration pour les particules en lévitation. Nous avons alors décrit de façon théorique le mode de libration pour estimer la barrière de potentiel crée par ce mode. Puis, le montage expérimental adapté à la détection de ce mode a été présenté pour comparer les données expérimentales obtenues avec la théorie. Pour aller plus loin, nous avons introduit le couplage spin-optomécanique que nous pourrions implémenter dans notre expérience à travers l'utilisation d'un champ magnétique. Nous avons décrit la réponse d'un centre NV sous un champ magnétique et l'avons adapté à un ensemble de centres NV contenus dans notre nanodiamant. De ces propriétés, nous avons pu déterminer une mesure du moment d'inertie de nos particules. Une amélioration de cette mesure pourra permettre d'étalonner la détection de la mesure du mode de libration et ainsi permettre de développer un capteur de couple précis.

En effet, si on essaye d'aller un peu plus loin dans nos expériences, il existe un couple spin-induit dû à la présence des centres NV. Sous la présence d'un champ magnétique, un spin tend à s'aligner avec le champ. Néanmoins, l'orientation des centres NV est fixée par la maille cristalline du diamant, il va donc appliquer un couple sur le diamant que l'on

notera τ_s. Si nous faisons l'ordre de grandeur de l'énergie liée au couple qu'applique un champ magnétique de l'ordre de 1 mT, on a $\tau_s \approx g\mu_B B$ avec g le facteur de Landé qui est de l'ordre de 2 pour les centres NV et μ_B le magnéton de Bohr. On aboutit à un couple de l'odre de $\tau_s \simeq 10^{-27}$ N.m. Or, dans les expériences de mesure de couple, la sensibilité de la détection du couple peut atteindre 10^{-27} N.m.Hz$^{-1/2}$ dans un vide poussé [39]. Ainsi, si l'on arrive à surpasser le problème d'échauffement pour les nanoparticules de diamant et atteindre un vide, on serait capable de mesurer et détecter l'inversion d'un spin unique. De plus, la possibilité de réaliser des expériences de refroidissement de spin n'est plus illusoire à l'image de ce qui s'est fait dans les pièges de Paul [55].

Conclusion générale et perspectives

Ce mémoire s'intéresse à la réalisation d'un système de spin-optomécanique basé sur des centres NV dans des nanodiamants en lévitation optique dans le vide. Cette approche repose sur l'utilisation d'une pince optique où la forte focalisation d'un laser permet de créer un puits de potentiel capable de piéger des particules nanométriques. Le mouvement d'un nanodiamant dans ce puits de potentiel peut être couplé aux spins du ou des centres NV qu'il contient par l'intermédiaire d'un champ magnétique. Nous avons alors présenté le dispositif expérimental, permettant de piéger optiquement un nanodiamant et de mesurer sa dynamique, ainsi que de contrôler et mesurer le spin du centre NV. Nous avons souligné l'intérêt que présente l'utilisation d'un laser infrarouge à la longueur d'onde $\lambda = 1550$ nm pour piéger les nanodiamants en terme de conservation des propriétés photophysiques des centres NV.
Nous avons mis en évidence que, comme pour l'ensemble des expériences de lévitation de nanodiamants proposées dans la littérature, une difficulté expérimentale importante est la faible stabilité de ces particules à des pressions inférieures au mbar. Pour adresser cette problématique, nous avons mis à profit les propriétés des centres NV pour réaliser une étude de thermométrie à l'échelle de la nanoparticule individuelle. Nous avons ainsi estimé la section efficace d'absorption des nanodiamants, et montrer que le chauffage est dominé par des processus d'absorption volumique. Cette étude démontre à la fois l'importance de travailler sur les propriétés du matériau diamant utilisé, mais aussi la force de la lévitation optique pour adresser les propriétés physiques d'une nanoparticule à l'échelle individuelle.

D'autre part, ce chauffage impacte aussi la dynamique de la particule dans le piège, un effet que nous avons étudié. Cela nous a permis de valider une méthode de mesure de la température interne de la particule à partir de la mesure de sa dynamique. Nous avons aussi mis en évidence, pour un faible nombre de particules, une dynamique non-usuelle, avec une oscillation d'amplitude bien au-delà des attentes dans une direction de l'espace. Nous attribuons cet effet à la forme exacte des particules, mettant en évidence l'impor-

tance du contrôle des particules utilisées.

Enfin, malgré une limitation à des pressions supérieures à 1 mbar, limitant les facteurs de qualité mécaniques accessibles, nous avons pu utiliser ce système pour démontrer et mettre à profit le couplage spin-optomécanique. Pour cela, nous avons de nouveau adapté notre montage expérimental en ajoutant un champ magnétique statique pour étudier le couplage des spins des centres NV à un mode de libration du nanodiamant dans le piège optique. Nous avons ainsi démontré la lecture du mouvement du diamant à l'aide de la résonance de spin des centres NV. En particulier, cela nous a permis de mesurer le moment d'inertie du nanodiamant considéré, et ainsi étalonner la détection optique du mode de libration.

Perspectives

De belles perspectives s'ouvrent à partir de mon travail tant sur le point de la réalisation d'un capteur de forces et/ou de couples très précis [39], mais aussi sur la mesure de la rotation de la particule [172] et la réalisation d'un système de spin-optomécanique dans le régime quantique. Afin d'y parvenir, de nombreux challenges nous attendent. Tout d'abord, il faut étendre le domaine de stabilité des nanodiamants dans des régimes de plus basses pressions pour obtenir des facteurs de qualité plus importants nécessaires à ces défis scientifiques. D'autre part, un certain nombre d'applications requièrent de travailler avec des particules possédant un spin unique, ce qui nécessite d'étendre les travaux préliminaires présentés à la fin du chapitre 4. Enfin, l'utilisation de particules possédant des formes bien déterminées permettrait de mieux étudier les modes de libration.

Ces enjeux reposent donc en grande partie sur le matériau diamant lui-même à savoir son mode de production pour obtenir des particules où les défauts sont bien contrôlés en nombre et en propriété de cohérence quantique [178] afin de poursuivre la recherche sur les processus d'échanges thermiques des nanodiamants, sa nanofabrication pour adapter la forme des nanodiamants aux besoins de nos études [155] (nanodiamants allongés pour des expériences sur le mode de libration, nanodiamants sphériques pour des mesures de thermométrie). On pourra également travailler sur un système de piégeage à la demande permettant de choisir la particule que l'on veut piéger.

Une autre piste serait d'utiliser un système alternatif aux centres NV du diamant pour

les adapter à nos expériences. On peut penser à changer le système à deux niveaux en modifiant le type de défaut du nanodiamant ou travailler sur d'autres types de particules comme le silicium [179], le carbure de silicium [180] ou les terres rares [181].

Annexe A

Mesure des forces optiques

A.1 Simplification de l'expression des forces optiques en fonction du champ électrique

Les forces optiques s'appliquant sur une particule diélectrique de polarisabilité $\alpha = \alpha' + i\alpha''$ dans l'approximation de Rayleigh s'écrient en utilisation l'équation 1.9 :

$$\langle \vec{F} \rangle = \frac{1}{2}\mathrm{Re}\{\alpha(\frac{1}{2}(\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^* + \vec{\tilde{E}} \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}^*))\}. \tag{A.1}$$

$$\langle \vec{F} \rangle = \frac{\alpha'}{2}\mathrm{Re}\{\frac{1}{2}(\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^* + \vec{\tilde{E}} \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}^*)\} + \frac{\alpha''}{2}\mathrm{Im}\{\frac{1}{2}(\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^* + \vec{\tilde{E}} \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}^*)\}. \tag{A.2}$$

Pour simplifier cette expression, nous utilisons l'identité vectorielle suivante :

$$\begin{aligned} \nabla(\vec{\tilde{E}} \cdot \vec{\tilde{E}}^*) &= (\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^* + \vec{\tilde{E}} \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}^*) + (\vec{\tilde{E}}^* \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}} + \vec{\tilde{E}}^* \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}) & \text{(A.3)} \\ &= (\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^* + \vec{\tilde{E}} \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}^*) + \text{c.c.}, & \text{(A.4)} \end{aligned}$$

avec c.c. désignant le complexe conjugué.
Le premier terme de l'équation A.2 nous donne, en utilisant l'identité vectorielle :

$$\mathrm{Re}\{\frac{1}{2}(\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^* + \vec{\tilde{E}} \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}^*)\} = \frac{1}{2}\nabla(\vec{\tilde{E}} \cdot \vec{\tilde{E}}^*) = \frac{1}{2}\nabla(|\vec{\tilde{E}}|^2). \tag{A.5}$$

Le deuxième terme de l'équation A.2 peut se simplifier en utilisant une autre identité vectorielle :

$$\nabla \times (\vec{\tilde{E}} \times \vec{\tilde{E}}^*) = \vec{\tilde{E}}(\nabla \cdot \vec{\tilde{E}}^*) - \vec{\tilde{E}}^*(\nabla \cdot \vec{\tilde{E}}) + (\vec{\tilde{E}}^* \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}} - (\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^*, \tag{A.6}$$

en tenant compte que $\nabla \cdot \vec{\tilde{E}} = \nabla \cdot \vec{\tilde{E}}^* = 0$ (équation de Maxwell-Gauss dans un milieu non chargé), on trouve que :

$$\nabla \times (\vec{\tilde{E}} \times \vec{\tilde{E}}^*) = (\vec{\tilde{E}}^* \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}} - \text{c.c.} \tag{A.7}$$

Ainsi :

$$\text{Im}\{(\vec{\tilde{E}} \cdot \nabla)\vec{\tilde{E}}^*\} = \frac{i}{2}\nabla \times (\vec{\tilde{E}} \times \vec{\tilde{E}}^*). \tag{A.8}$$

Ces simplifications permettent d'obtenir une expression simplifiée de l'équation 1.9 :

$$\langle \vec{F} \rangle = \frac{\alpha'}{4}\nabla|\vec{\tilde{E}}|^2 - \frac{\alpha''}{2}\text{Im}\{\vec{\tilde{E}} \times (\nabla \times \vec{\tilde{E}}^*)\} - \frac{i}{4}\alpha''\nabla \times (\vec{\tilde{E}} \times \vec{\tilde{E}}^*). \tag{A.9}$$

A.2 Calcul des expressions analytiques des forces de gradient et de diffusion

Le calcul des forces optiques dites de gradient et de diffusion repose sur le calcul du gradient de l'intensité et de la phase puisque au chapitre 1, on avait la forme suivant pour ces forces :

$$\langle \vec{F}_{\text{grad}} \rangle = \frac{\alpha'}{4}\nabla|\vec{\tilde{E}}|^2 = \frac{\alpha'}{2c\epsilon_0}\nabla I \tag{A.10}$$

$$\langle \vec{F}_{\text{dif}} \rangle = \frac{24\pi^3 V^2}{c\lambda^4}|\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}|^2 I \nabla\phi, \tag{A.11}$$

On s'attache à calculer les opérateurs ∇ appliqués à un champ focalisé supposé gaussien, d'intensité I et de phase ϕ :

$$\nabla I(\vec{r}) = I(\vec{r}) \begin{pmatrix} -4\dfrac{x}{\omega_{0x}^2}\dfrac{1}{1+(\frac{z}{z_0}^2)} \\ -4\dfrac{y}{\omega_{0y}^2}\dfrac{1}{1+(\frac{z}{z_0}^2)} \\ \dfrac{z}{z_0^2}[\dfrac{2z_0^2}{z_0^2+z^2}][\dfrac{2x^2}{\omega_{0x}^2} + \dfrac{2y^2}{\omega_{0y}^2} - \dfrac{z_0^2+z^2}{z_0^2}] \end{pmatrix} \tag{A.12}$$

$$\nabla\phi = \begin{pmatrix} \dfrac{kx}{R(z)} \\ \dfrac{ky}{R(z)} \\ k - k\dfrac{(x^2+y^2)}{R^2(z)} + \dfrac{k(x^2+y^2) - 2z_0}{2zR(z)} \end{pmatrix} \tag{A.13}$$

Cela permet de définir les forces optiques s'appliquant sur la particule en utilisant les équations A.10 et A.11 :

$$\langle \vec{F}_{\text{grad}} \rangle(\vec{r}) = -\alpha' I(\vec{r}) \begin{pmatrix} \dfrac{x}{\omega_{0x}^2} \dfrac{1}{1+(\frac{z}{z_0}^2)} \\ \dfrac{y}{\omega_{0y}^2} \dfrac{1}{1+(\frac{z}{z_0}^2)} \\ \dfrac{z}{2z_0^2}[\dfrac{z_0^2}{z_0^2+z^2}][\dfrac{z_0^2+z^2}{z_0^2} - \dfrac{2x^2}{\omega_{0x}^2} - \dfrac{2y^2}{\omega_{0y}^2}] \end{pmatrix} \tag{A.14}$$

$$\langle \vec{F}_{dif} \rangle(\vec{r}) = \frac{\alpha''}{2} I(\vec{r}) k \begin{pmatrix} \dfrac{x}{R(z)} \\ \dfrac{y}{R(z)} \\ 1 - \dfrac{(x^2+y^2)}{R^2(z)} + \dfrac{(x^2+y^2) - 2\frac{z_0}{k}}{2zR(z)} \end{pmatrix} \tag{A.15}$$

On peut en déduire la forme des forces pour de petits déplacements autour du point de focalisation, soit quand $|\vec{r}| \ll \lambda$ pour faire les approximations suivantes :

$$\frac{1}{1+\frac{z^2}{z_0^2}} \approx 1 - \frac{z^2}{z_0^2} + o(\frac{|\vec{r}|^2}{\lambda^2}), e^{-2(\frac{x^2}{\omega_x^2(z)} + \frac{y^2}{\omega_y^2(z)})} \approx 1 - 2(\frac{x^2}{\omega_{0x}^2} + \frac{y^2}{\omega_{0y}^2}) + o(\frac{|\vec{r}|^2}{\lambda^2}), \frac{1}{R(z)} \approx \frac{z}{z_0^2}(1 - \frac{z^2}{z_0^2}), \tag{A.16}$$

ce qui donne pour les expressions des forces optiques au premier ordre faisant apparaître les non linéarité du potentiel :

$$\langle \vec{F}_{\text{grad}} \rangle(\vec{r}) \approx - \begin{pmatrix} k_x x(1 - \dfrac{2x^2}{\omega_{0x}^2} - \dfrac{2y^2}{\omega_{0y}^2} - \dfrac{2z^2}{z_0^2}) \\ k_y y(1 - \dfrac{2x^2}{\omega_{0x}^2} - \dfrac{2y^2}{\omega_{0y}^2} - \dfrac{2z^2}{z_0^2}) \\ k_z z(1 - \dfrac{4x^2}{\omega_{0x}^2} - \dfrac{4y^2}{\omega_{0y}^2} - \dfrac{2z^2}{z_0^2}) \end{pmatrix} \tag{A.17}$$

$$\langle \vec{F}_{\text{dif}} \rangle(\vec{r}) = \frac{\alpha''}{\alpha'} k_z \begin{pmatrix} kxz \\ kyz \\ \gamma_0 + \gamma_x x^2 + \gamma_y y^2 + \gamma_z z^2 \end{pmatrix} \tag{A.18}$$

Dans le cadre de cette thèse, les non-linéarités ne seront pas discuté et l'on ne tiendra compte que du premier ordre.

Annexe B

Profil de la température interne d'une sphère chauffée

Afin de confirmer que l'on peut assimiler la température interne de la particule avec la température surfacique, on essaie de prouver que l'homogénéisation de la température de la particule est rapide. Cela permet de justifier que la mesure de la température à l'aide des expériences d'ODMR correspond bien à la température surfacique. Pour cela, on s'intéresse au profil de température dans le nanodiamant suite à une variation de température. En effet, on souhaite savoir si la température à l'intérieur du diamant est homogène où si il peut présenter de fortes inhomogénéités. Pour cela, on assimile la nanoparticule à une sphère, hypothèse que l'on commentera après les simulations effectuées. Dans cette partie nous débuterons par rappeler les quelques principes permettant d'arriver à l'équation de la chaleur pour une sphère puis nous introduirons les différents types de changement extérieur à la particule et leur influence sur sa température interne. Puis nous présenterons les résultats de la simulation numérique réalisée à partir de transformées de Laplace.

B.1 Équation de la chaleur

On utilise pour se faire la loi de Fourier, loi phénoménologique découverte en 1807 par J. Fourier [182]. Ainsi, expérimentalement, on rend compte des phénomènes de conduction de la chaleur en décrivant la densité de flux de chaleur $\vec{j}$, pour un milieu supposé isotrope (hypothèse que l'on prendra pour la suite) par [183] :

$$\vec{j} = -\lambda \vec{\text{grad}} T \tag{B.1}$$

avec λ la conductivité thermique du milieu. Le signe $-$ traduit le fait que les échanges tendent à uniformiser la température du milieu.

La particule présente une symétrie sphérique, on pourra considérer la température T uniquement selon la distance r (en coordonnées sphériques) au centre de la sphère et le temps t. On applique un bilan énergétique sur le système microscopique constitué de deux sphères concentriques de rayons respectifs r et $r + dr$. Le volume de ce système est donné par $dV = 4\pi r^2 dr$. En appliquant le premier principe à notre système on a : $dU = \delta Q + \delta W$ avec dU la variation de l'énergie interne, δW les échanges de travail aux frontières du système et δQ la variation d'énergie thermique. On a donc un flux de chaleur entrant dans le système par conduction par la sphère de rayon r donné par $\phi_{\text{ent}} = -\lambda \frac{\partial T}{\partial r}(r) 4\pi r^2$ et un flux de chaleur sortant par la sphère de rayon $r + dr$ égal à : $\phi_{\text{sor}} = -\lambda \frac{\partial T}{\partial r}(r + dr) 4\pi (r + dr)^2$. Donc, $\delta Q = (4\pi r^2 \phi_{\text{ent}} - 4\pi (r + dr)^2 \phi_{\text{sor}}) dt$. En utilisant la relation entre l'énergie interne U et la température, et en considérant que la densité volumique ρ est uniforme, on a la relation : $dU = \rho dV c_p dT = \rho dV c_p \frac{\partial T}{\partial t} dt$ avec c_p la capacité thermique massique et la variation de température s'effectue sur une durée dt. On obtient l'équation de diffusion thermique satisfait par notre système en supposant qu'il n'y ait pas de production ni de création d'énergie par [183] :

$$dU = \rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} dV dt = \delta Q = \lambda \frac{\partial}{\partial r}(4\pi r^2 \frac{\partial T}{\partial r}) dr \tag{B.2}$$

avec $dV = 4\pi r^2 dr$ on obtient :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r}(r^2 \frac{\partial T}{\partial r}) \tag{B.3}$$

A partir de cette équation de la chaleur, on va essayer d'estimer la température à l'intérieur de notre sphère sous plusieurs conditions.

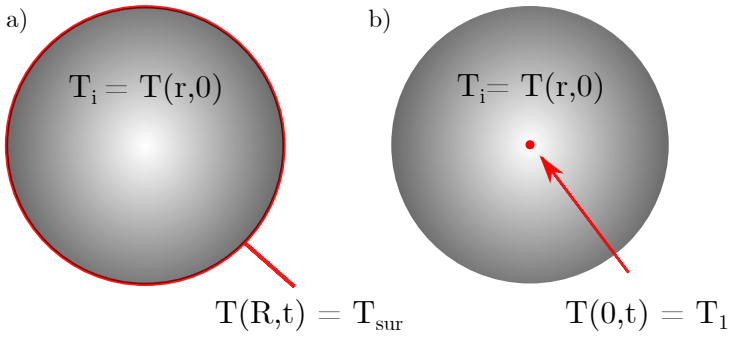

Figure B.1 – **Schématisation d'une particule chauffée** a) par un bain extérieur qui impose brutalement la température de surface (la particule étant initialement à la température T_i) et (b) par un échauffement brutal local au centre de la particule modélisé par une température au centre fixé à T_1

B.2 Les différents types de variation que l'on étudiera

B.2.1 Température de surface imposée : bain homogène

On considère que notre particule sphérique est à température uniforme T_i. On impose brusquement une température de surface T_{sur}. On peut penser à une absorption surfacique. Dans ce paragraphe, on essaye de déterminer la température à l'intérieur de la sphère. On peut réécrire l'équation de la chaleur sous la forme :

$$\frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}(r^2\frac{\partial T}{\partial r}) = \frac{1}{a}\frac{\partial T}{\partial t} \tag{B.4}$$

avec $a = \frac{\lambda}{\rho c_p}$ et les conditions aux limites :$T(r,0) = T_i$ et $T(R,t) = T_{\text{sur}}$. On effectue le changement de variable $\tilde{T} = T - T_{\text{sur}}$ ce qui donne les nouvelles conditions initiales : $\tilde{T}(r,0) = T_i - T_{\text{sur}}$ et $\tilde{T}(R,t) = 0$. L'équation de la chaleur B.4 est inchangée. On effectue ensuite la transformée de Laplace de $\tilde{T}$ notée : $\Theta(p) = L[\tilde{T}(t)] = \int_0^\infty \exp(-pt)\tilde{T}(t)dt$. L'équation B.4 donne après calculs :

$$\frac{d^2\Theta}{dr^2} + \frac{2}{r}\frac{d\Theta}{dr} = \frac{p}{a}\Theta \tag{B.5}$$

En appliquant le changement de variable : $\Phi = r\Theta$, l'équation B.5 s'écrit simplement :

$$\frac{d^2\Phi}{dr^2} = \frac{p}{a}\Phi \tag{B.6}$$

La solution générale de cette équation s'écrit donc : $\Theta = \frac{\Phi}{r} = C_1\frac{\sinh(lr)}{r} + C_2\frac{\cosh(lr)}{r}$

avec $l = \sqrt{\frac{p}{a}}$. Or, $\frac{\cosh(lr)}{r} \underset{r\to 0}{\longrightarrow} +\infty$ donc on doit nécessairement avoir $C_2 = 0$. De plus, la condition initiale $\tilde{T}(R,t) = T_{\text{sur}} - T_i$ s'écrit $\Theta(R,p) = C_1 \frac{\sinh(lR)}{R} = \frac{T_{\text{sur}} - T_i}{p}$ qui permet de déterminer Θ :

$$\Theta_{\text{sur}}(r,p) = \frac{T_{\text{sur}} - T_i}{p} \frac{R \sinh(\sqrt{\frac{p}{a}} r)}{r \sinh(\sqrt{\frac{p}{a}} R)} \tag{B.7}$$

Pour déterminer la température $T(r,t)$ à la suite d'une variation brutale de température surfacique, il suffit de calculer l'inverse de sa transformée de Laplace Θ_{sur}.

B.2.2 Absorption locale

Si on reprend les même hypothèses que précédemment mais avec un échauffement locale à la position $r_{\text{déf}}$. Cela peut représenter l'échauffement dû à une absorption par un défaut par exemple à l'intérieur de la particule. Pour simplifier la discussion, on prendra le défaut au centre de la particule. De sorte que la symétrie sphérique n'est pas rompue. On reprend donc le même calcul que précédemment mais avec des conditions initiales qui change : $\tilde{T}(r,0) = T_i - T_{\text{sur}}$ et $\tilde{T}(0,t) = 0$. On aboutit à l'expression de la transformée de Laplace de la température :

$$\Theta_{pc}(r,p) = \frac{T_{\text{sur}} - T_i}{p} \frac{R \sinh(\sqrt{\frac{p}{a}} r)}{r \sinh(\sqrt{\frac{p}{a}} R)} \tag{B.8}$$

Pour déterminer la température $T(r,t)$ à la suite d'une variation brutale de température ponctuelle à l'intérieur de la particule, il suffit de calculer l'inverse de sa transformée de Laplace Θ_{pc}.

B.2.3 Flux surfacique imposée ou échange convectif imposé

On peut réaliser le même type de calcul en imposant une brusque apparition d'un flux surfacique ϕ_0. C'est-à-dire que la particule sphérique est à température initiale fixe T_i. Le calcul est inchangé mais il y a une nouvelle condition aux limites : $\tilde{T}(r,0) = Ti - T_{\text{sur}}$ et $-\lambda \frac{\partial \tilde{T}(r,t)}{\partial r} = \phi_0$. Tous calculs effectués, on obtient :

$$\Theta_{fl}(r,p) = \frac{\phi_0 R^2}{\lambda p r} \frac{\sinh(\sqrt{\frac{p}{a}} r)}{\sqrt{\frac{p}{a}} R(\cosh(\sqrt{\frac{p}{a}} R) - \sinh(\sqrt{\frac{p}{a}} R))} \tag{B.9}$$

De même, on réalise l'expérience en imposant un brusque changement de l'échange convectif (coefficient h) avec le milieu ambiant à la température T_0. Les calculs aboutissent à l'expression :

$$\Theta_{\text{conv}}(r,p) = \frac{T_{\text{sur}} - T_i}{p}\frac{R}{r}\frac{\sinh(\sqrt{\frac{p}{a}}r)}{(\frac{\lambda}{hR}-1)\sinh(\sqrt{\frac{p}{a}}R) - \frac{\lambda\sqrt{\frac{p}{a}}}{h}R\cosh(\sqrt{\frac{p}{a}}R)} \tag{B.10}$$

Ainsi, on présente ici une méthode permettant de calculer le changement de température dans le temps d'une variation brutale de température de surface, de flux surfacique ou d'échange convectif de la particule avec le milieu. Dans la suite nous traiterons uniquement le cas d'une variation brutale de température suite à une absorption locale ou à une température de surface qui change, qui correspond aux équations B.7 et B.8.

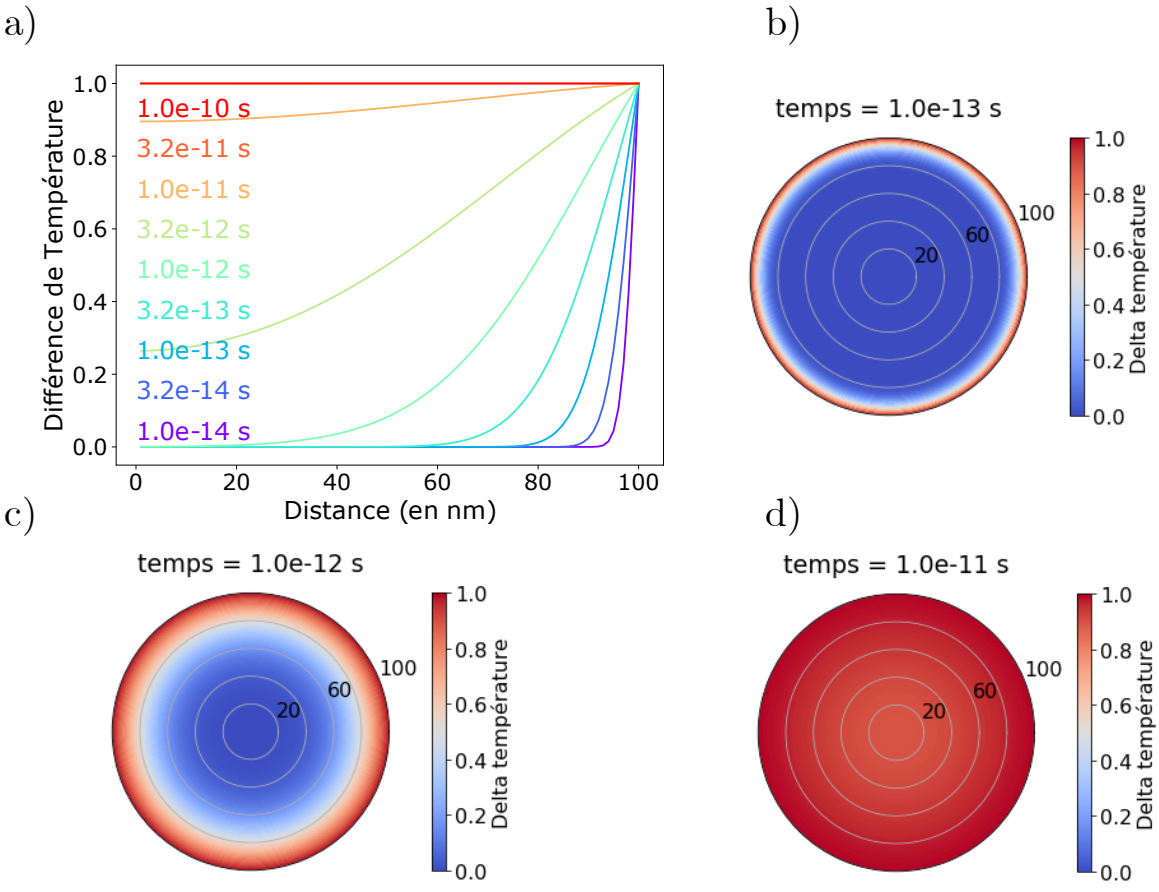

Figure B.2 – **Simulation numérique de la température interne d'une particule de diamant soumis à un bain thermique** a) Profil de température en fonction de la distance du centre de la particule à différents temps. Le temps correspond à la durée suite à une modification brutale de température de surface (ici de 1K). b) c) d) Représentation graphique de la température à l'intérieur de la particule à respectivement 1.10^{-13} s, 1.10^{-12} s et 1.10^{-11} s.

B.3 Résultats à partir de la simulation numérique

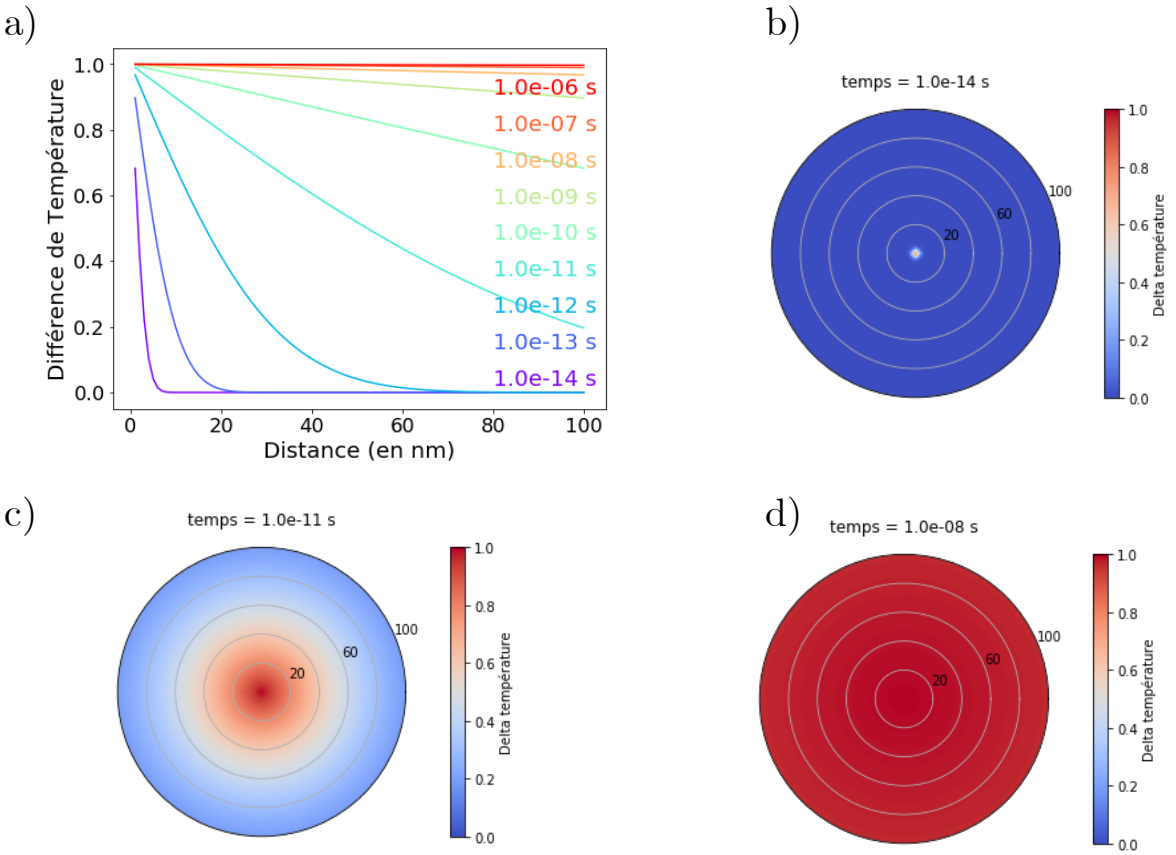

Figure B.3 – **Simulation numérique de la température interne d'une particule de diamant soumis à une absorption ponctuelle au centre de la particule** a) Profil de température en fonction de la distance du centre de la particule à différents temps. Le temps correspond à la durée suite à une modification brutale de température ponctuelle (ici de 1K). b) c) d) Représentation graphique de la température à l'intérieur de la particule à respectivement 1.10^{-14} s, 1.10^{-11} s et 1.10^{-8} s.

Le but de cette simulation est de déterminer le retour à l'équilibre thermodynamique de la particule suite à différentes perturbations brutales extérieures. Tout d'abord, on étudie le retour à l'équilibre thermodynamique de la particule suite à une augmentation de sa température de surface de 1 K. La valeur de 1 K est prise par défaut, elle n'altère en rien le raisonnement. Pour mesurer le retour à l'équilibre, nous avons tracé le profil de température en fonction de la distance au centre de la particule à différents temps après la perturbation (figure B.2(a) en calculant l'inverse de la transformée de Laplace à partir des expressions des équations B.7 et B.8 en utilisant l'algorithmique de Stehfest [184]. Dans le cas d'une variation brutale de température surfacique, on montre sur

la figure B.2(a) que la relaxation est très rapide $\sim 10^{-11}$ s. En effet, après $\sim 10^{-11}$ s, la température est homogène B.2(c).
Pour retrouver cette valeur, on peut l'estimer en utilisant une approche de type ordre de grandeur. Si on pose t_{relax}, temps de relaxation du phénomène thermique, on a : $t^{\text{sur}}_{\text{relax}} \sim \frac{r^2}{a}$ avec a le coefficient de diffusivité thermique et r la taille typique de la particule, soit son rayon. En prenant, $r = 50$ nm et $a \sim 3.10^{-4}$ m^2/s (grandeur typique pour le diamant massif) on retrouve le fait que $t_{\text{relax}} \sim 10^{-11}$ s. Cette relaxation est donc beaucoup plus rapide que tous les phénomènes que l'on va traiter par la suite. On pourra donc considérer, si l'absorption est surfacique, que l'équilibre thermodynamique est assuré.

Regardons à présent ce qu'il se passe pour l'absorption ponctuelle. Sur la figure B.3(a), on remarque que le temps de relaxation t^{pc}_{relax} est moins rapide que précédemment puisqu'on trouve $t^{pc}_{\text{relax}} \sim 10^{-8}$ s. Néanmoins, cela reste très rapide comparé aux processus physiques que l'on étudiera (~ 100 kHz) et correspond à un modèle très peu représentatif de notre étude puisque les nanodiamants que l'on utilise comporte de nombreux défauts. Ainsi, si l'absorption est volumique, est homogénéisera plus rapidement la particule suite à une variation brutale de la puissance par exemple.

Pour conclure, on a montré à l'aide de cette simulation que tout changement affectant la particule, qu'il soit de type absorption ponctuelle ou absorption surfacique entraîne une homogénéisation de la température interne dans des temps très rapides. $t_{relax} \sim 10^{-11}$ s. Ce qui permet de justifier l'hypothèse qu'on puisse parler de température interne d'équilibre thermique à tous moments. On pourra faire également l'hypothèse que la température à la surface de la particule est égale à la température interne de la particule.

Bibliographie

[1] M. Planck. "Über das gesetz der energieverteilung im normalspektrum." Dans "Von Kirchhoff bis Planck," pages 178–191. Springer (1978).

[2] A. Einstein. "Ist die trägheit eines körpers von seinem energieinhalt abhängig ?" *Annalen der Physik*, **323**, 639 (1905).

[3] A. Sommerfeld. "Zur quantentheorie der spektrallinien." *Annalen der Physik*, **356**, 1 (1916).

[4] A. Einstein, B. Podolsky, et N. Rosen. "Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete ?" *Phys. Rev.*, **47**, 777 (1935).

[5] T. H. Maiman *et al.* "Stimulated optical radiation in ruby." (1960).

[6] J. S. Bell. "On the einstein podolsky rosen paradox." *Physics Physique Fizika*, **1**, 195 (1964).

[7] S. J. Freedman et J. F. Clauser. "Experimental test of local hidden-variable theories." *Physical Review Letters*, **28**, 938 (1972).

[8] A. Aspect, P. Grangier, et G. Roger. "Experimental tests of realistic local theories via bell's theorem." *Physical review letters*, **47**, 460 (1981).

[9] M. Arndt et K. Hornberger. "Testing the limits of quantum mechanical superpositions." *Nature Physics*, **10**, 271 (2014).

[10] M. Schlosshauer. "Quantum decoherence." *Physics Reports*, **831**, 1 (2019).

[11] A. Bassi, K. Lochan, S. Satin, T. P. Singh, et H. Ulbricht. "Models of wave-function collapse, underlying theories, and experimental tests." *Reviews of Modern Physics*, **85**, 471 (2013).

[12] R. Riedinger, A. Wallucks, I. Marinković, C. Löschnauer, M. Aspelmeyer, S. Hong, et S. Gröblacher. "Remote quantum entanglement between two micromechanical oscillators." *Nature*, **556**, 473 (2018).

[13] C. Ockeloen-Korppi, *et al.* "Stabilized entanglement of massive mechanical oscillators." *Nature*, **556**, 478 (2018).

[14] T. Berrada, S. van Frank, R. Bücker, T. Schumm, J.-F. Schaff, et J. Schmiedmayer. "Integrated mach–zehnder interferometer for bose–einstein condensates." *Nature communications*, **4**, 1 (2013).

[15] S. C. Benjamin, *et al.* "Towards a fullerene-based quantum computer." *Journal of Physics : Condensed Matter*, **18**, S867 (2006).

[16] C. Brand, *et al.* "Bragg diffraction of large organic molecules." *Physical Review Letters*, **125**, 033604 (2020).

[17] M. Aspelmeyer, P. Meystre, et K. Schwab. "Quantum optomechanics." *Physics Today*, **65**, 29 (2012).

[18] Y. B. Band et Y. Avishai. *Quantum mechanics with applications to nanotechnology and information science*. Academic Press (2013).

[19] I. Wilson-Rae, P. Zoller, et A. Imamoğlu. "Laser cooling of a nanomechanical resonator mode to its quantum ground state." *Physical Review Letters*, **92**, 075507 (2004).

[20] J. Chan, *et al.* "Laser cooling of a nanomechanical oscillator into its quantum ground state." *Nature*, **478**, 89 (2011).

[21] K. Ekinci et M. Roukes. "Nanoelectromechanical systems." *Review of scientific instruments*, **76**, 061101 (2005).

[22] K. Jensen, K. Kim, et A. Zettl. "An atomic-resolution nanomechanical mass sensor." *Nature nanotechnology*, **3**, 533 (2008).

[23] J. Moser, J. Güttinger, A. Eichler, M. J. Esplandiu, D. Liu, M. Dykman, et A. Bachtold. "Ultrasensitive force detection with a nanotube mechanical resonator." *Nature nanotechnology*, **8**, 493 (2013).

[24] J. Chaste, A. Eichler, J. Moser, G. Ceballos, R. Rurali, et A. Bachtold. "A nanomechanical mass sensor with yoctogram resolution." *Nature nanotechnology*, **7**, 301 (2012).

[25] T. Li. "Millikelvin cooling of an optically trapped microsphere in vacuum." Dans "Fundamental Tests of Physics with Optically Trapped Microspheres," pages 81–110. Springer (2013).

[26] J. Gieseler, B. Deutsch, R. Quidant, et L. Novotny. "Subkelvin parametric feedback cooling of a laser-trapped nanoparticle." *Physical review letters*, **109**, 103603 (2012).

[27] E. Hebestreit, M. Frimmer, R. Reimann, C. Dellago, F. Ricci, et L. Novotny. "Calibration and energy measurement of optically levitated nanoparticle sensors." *Review of Scientific Instruments*, **89**, 033111 (2018).

[28] T. Li, S. Kheifets, D. Medellin, et M. G. Raizen. "Measurement of the instantaneous velocity of a brownian particle." *Science*, **328**, 1673 (2010).

[29] T. Delord, L. Nicolas, L. Schwab, et G. Hétet. "Electron spin resonance from nv centers in diamonds levitating in an ion trap." *New Journal of Physics*, **19**, 033031 (2017).

[30] D. Goldwater, B. A. Stickler, L. Martinetz, T. E. Northup, K. Hornberger, et J. Millen. "Levitated electromechanics : all-electrical cooling of charged nano-and microparticles." *Quantum Science and Technology*, **4**, 024003 (2019).

[31] B. R. Slezak, C. W. Lewandowski, J.-F. Hsu, et B. D'Urso. "Cooling the motion of a silica microsphere in a magneto-gravitational trap in ultra-high vacuum." *New Journal of Physics*, **20**, 063028 (2018).

[32] A. Ashkin. "Acceleration and trapping of particles by radiation pressure." *Physical review letters*, **24**, 156 (1970).

[33] A. Ashkin et J. Dziedzic. "Optical levitation by radiation pressure." *Applied Physics Letters*, **19**, 283 (1971).

[34] U. Delić, M. Reisenbauer, K. Dare, D. Grass, V. Vuletić, N. Kiesel, et M. Aspelmeyer. "Cooling of a levitated nanoparticle to the motional quantum ground state." *Science*, **367**, 892 (2020).

[35] F. Tebbenjohanns, M. L. Mattana, M. Rossi, M. Frimmer, et L. Novotny. "Quantum control of a nanoparticle optically levitated in cryogenic free space." *Nature*, **595**, 378.

[36] L. Magrini, *et al.* "Real-time optimal quantum control of mechanical motion at room temperature." *Nature*, **595**, 373 (2021).

[37] G. Ranjit, M. Cunningham, K. Casey, et A. A. Geraci. "Zeptonewton force sensing with nanospheres in an optical lattice." *Physical Review A*, **93**, 053801 (2016).

[38] S. Kuhn, B. A. Stickler, A. Kosloff, F. Patolsky, K. Hornberger, M. Arndt, et J. Millen. "Optically driven ultra-stable nanomechanical rotor." *Nature communications*, **8**, 1 (2017).

[39] J. Ahn, Z. Xu, J. Bang, P. Ju, X. Gao, et T. Li. "Ultrasensitive torque detection with an optically levitated nanorotor." *Nature Nanotechnology*, **15**, 89 (2020).

[40] J. Bang, *et al.* "Five-dimensional cooling and nonlinear dynamics of an optically levitated nanodumbbell." *Physical Review Research*, **2**, 043054 (2020).

[41] J.-M. Pirkkalainen, S. Cho, J. Li, G. Paraoanu, P. Hakonen, et M. Sillanpää. "Hybrid circuit cavity quantum electrodynamics with a micromechanical resonator." *Nature*, **494**, 211 (2013).

[42] M. Neeley, *et al.* "Generation of three-qubit entangled states using superconducting phase qubits." *Nature*, **467**, 570 (2010).

[43] S. Camerer, M. Korppi, A. Jöckel, D. Hunger, T. W. Hänsch, et P. Treutlein. "Realization of an optomechanical interface between ultracold atoms and a membrane." *Physical review letters*, **107**, 223001 (2011).

[44] A. Jöckel, A. Faber, T. Kampschulte, M. Korppi, M. T. Rakher, et P. Treutlein. "Sympathetic cooling of a membrane oscillator in a hybrid mechanical–atomic system." *Nature nanotechnology*, **10**, 55 (2015).

[45] I. Yeo, *et al.* "Strain-mediated coupling in a quantum dot–mechanical oscillator hybrid system." *Nature nanotechnology*, **9**, 106 (2014).

[46] J. Teissier, A. Barfuss, P. Appel, E. Neu, et P. Maletinsky. "Strain coupling of a nitrogen-vacancy center spin to a diamond mechanical oscillator." *Physical review letters*, **113**, 020503 (2014).

[47] O. Arcizet, V. Jacques, A. Siria, P. Poncharal, P. Vincent, et S. Seidelin. "A single nitrogen-vacancy defect coupled to a nanomechanical oscillator." *Nature Physics*, **7**, 879 (2011).

[48] S. Meesala, Y.-I. Sohn, H. A. Atikian, S. Kim, M. J. Burek, J. T. Choy, et M. Lon**c**ar. "Enhanced strain coupling of nitrogen-vacancy spins to nanoscale diamond cantilevers." *Physical Review Applied*, **5**, 034010 (2016).

[49] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup, et L. C. Hollenberg. "The nitrogen-vacancy colour centre in diamond." *Physics Reports*, **528**, 1 (2013).

[50] P. Rabl, P. Cappellaro, M. V. G. Dutt, L. Jiang, J. R. Maze, et M. D. Lukin. "Strong magnetic coupling between an electronic spin qubit and a mechanical resonator." *Phys. Rev. B*, **79**, 041302 (2009).

[51] S. Kolkowitz, A. C. B. Jayich, Q. P. Unterreithmeier, S. D. Bennett, P. Rabl, J. Harris, et M. D. Lukin. "Coherent sensing of a mechanical resonator with a single-spin qubit." *Science*, **335**, 1603 (2012).

[52] Z. Yin, N. Zhao, et T. Li. "Hybrid opto-mechanical systems with nitrogen-vacancy centers." *Science China Physics, Mechanics & Astronomy*, **58**, 1 (2015).

[53] Y. Ma, T. M. Hoang, M. Gong, T. Li, et Z.-q. Yin. "Proposal for quantum many-body simulation and torsional matter-wave interferometry with a levitated nanodiamond." *Physical Review A*, **96**, 023827 (2017).

[54] B.-B. Wei, C. Burk, J. Wrachtrup, et R.-B. Liu. "Magnetic ordering of nitrogen-vacancy centers in diamond via resonator-mediated coupling." *EPJ Quantum Technology*, **2**, 1 (2015).

[55] T. Delord, P. Huillery, L. Nicolas, et G. Hétet. "Spin-cooling of the motion of a trapped diamond." *Nature*, **580**, 56 (2020).

[56] H. Wang et I. Lekavicius. "Coupling spins to nanomechanical resonators : Toward quantum spin-mechanics." *Applied Physics Letters*, **117**, 230501 (2020).

[57] A. Rahman, A. Frangeskou, M. Kim, S. Bose, G. Morley, et P. Barker. "Burning and graphitization of optically levitated nanodiamonds in vacuum." *Scientific reports*, **6**, 1 (2016).

[58] T. M. Hoang, J. Ahn, J. Bang, et T. Li. "Electron spin control of optically levitated nanodiamonds in vacuum." *Nature communications*, **7**, 1 (2016).

[59] A. Ashkin et J. Dziedzic. "Optical levitation in high vacuum." *Applied Physics Letters*, **28**, 333 (1976).

[60] S. C. Kuo et M. P. Sheetz. "Optical tweezers in cell biology." *Trends in cell biology*, **2**, 116 (1992).

[61] R. Grimm, M. Weidemüller, et Y. B. Ovchinnikov. "Optical dipole traps for neutral atoms." *Advances in atomic, molecular, and optical physics*, **42**, 95 (2000).

[62] S. Chu. "Laser manipulation of atoms and particles." *Science*, **253**, 861 (1991).

[63] C. N. Cohen-Tannoudji. "Nobel lecture : Manipulating atoms with photons." *Reviews of Modern Physics*, **70**, 707 (1998).

[64] O. M. Maragò, P. H. Jones, P. G. Gucciardi, G. Volpe, et A. C. Ferrari. "Optical trapping and manipulation of nanostructures." *Nature nanotechnology*, **8**, 807 (2013).

[65] E. Hebestreit, M. Frimmer, R. Reimann, et L. Novotny. "Sensing static forces with free-falling nanoparticles." *Physical review letters*, **121**, 063602 (2018).

[66] O. Romero-Isart, M. L. Juan, R. Quidant, et J. I. Cirac. "Toward quantum superposition of living organisms." *New Journal of Physics*, **12**, 033015 (2010).

[67] Z.-Q. Yin, A. A. Geraci, et T. Li. "Optomechanics of levitated dielectric particles." *International Journal of Modern Physics B*, **27**, 1330018 (2013).

[68] L. Magrini, *et al.* "Optimal quantum control of mechanical motion at room temperature : ground-state cooling." *arXiv preprint arXiv :2012.15188* (2020).

[69] O. Romero-Isart, A. C. Pflanzer, F. Blaser, R. Kaltenbaek, N. Kiesel, M. Aspelmeyer, et J. I. Cirac. "Large quantum superpositions and interference of massive nanometer-sized objects." *Physical review letters*, **107**, 020405 (2011).

[70] M. Kamba, H. Kiuchi, T. Yotsuya, et K. Aikawa. "Recoil-limited feedback cooling of single nanoparticles near the ground state in an optical lattice." *Physical Review A*, **103**, L051701 (2021).

[71] L. Novotny et B. Hecht. *Principles of nano-optics*. Cambridge university press (2012).

[72] C. F. Bohren et D. R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley & Sons (2008).

[73] T. A. Nieminen, N. du Preez-Wilkinson, A. B. Stilgoe, V. L. Loke, A. A. Bui, et H. Rubinsztein-Dunlop. "Optical tweezers : Theory and modelling." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **146**, 59 (2014).

[74] P. H. Jones, O. M. Maragò, et G. Volpe. *Optical tweezers : Principles and applications*. Cambridge University Press (2015).

[75] S. Albaladejo, M. I. Marqués, M. Laroche, et J. J. Sáenz. "Scattering forces from the curl of the spin angular momentum of a light field." *Physical review letters*, **102**, 113602 (2009).

[76] X.-L. Wang, J. Chen, Y. Li, J. Ding, C.-S. Guo, H.-T. Wang, *et al.* "Optical orbital angular momentum from the curl of polarization." *Physical review letters*, **105**, 253602 (2010).

[77] J. Gieseler. "Dynamics of optically levitated nanoparticles in high vacuum." (2014).

[78] H. A. Kramers. "Brownian motion in a field of force and the diffusion model of chemical reactions." *Physica*, **7**, 284 (1940).

[79] L. I. McCann, M. Dykman, et B. Golding. "Thermally activated transitions in a bistable three-dimensional optical trap." *Nature*, **402**, 785 (1999).

[80] L. Rondin, J. Gieseler, F. Ricci, R. Quidant, C. Dellago, et L. Novotny. "Direct measurement of kramers turnover with a levitated nanoparticle." *Nature nanotechnology*, **12**, 1130 (2017).

[81] A. Einstein *et al.* "On the motion of small particles suspended in liquids at rest required by the molecular-kinetic theory of heat." *Annalen der physik*, **17**, 208 (1905).

[82] H. B. Callen et T. A. Welton. "Irreversibility and generalized noise." *Physical Review*, **83**, 34 (1951).

[83] D. S. Lemons et A. Gythiel. "Paul langevin's 1908 paper "on the theory of brownian motion"["sur la théorie du mouvement brownien," cr acad. sci.(paris) 146, 530–533 (1908)]." *American Journal of Physics*, **65**, 1079 (1997).

[84] S. Beresnev, V. Chernyak, et G. Fomyagin. "Motion of a spherical particle in a rarefied gas. part 2. drag and thermal polarization." *J. Fluid Mech*, **219**, 405 (1990).

[85] D. R. Lide. *CRC handbook of chemistry and physics*, volume 85. CRC press (2004).

[86] E. Hebestreit. *Thermal properties of levitated nanoparticles*. Thèse de Doctorat, ETH Zurich (2017).

[87] L. Cohen. "The generalization of the wiener-khinchin theorem." Dans "Proceedings of the 1998 IEEE International Conference on Acoustics, Speech and Signal Processing, ICASSP'98 (Cat. No. 98CH36181)," volume 3, pages 1577–1580. IEEE (1998).

[88] V. Jain, J. Gieseler, C. Moritz, C. Dellago, R. Quidant, et L. Novotny. "Direct measurement of photon recoil from a levitated nanoparticle." *Physical review letters*, **116**, 243601 (2016).

[89] Z.-q. Yin, T. Li, X. Zhang, et L. M. Duan. "Large quantum superpositions of a levitated nanodiamond through spin-optomechanical coupling." *Phys. Rev. A*, **88**, 033614 (2013).

[90] J. Olson, R. Pohl, J. Vandersande, A. Zoltan, T. Anthony, et W. Banholzer. "Thermal conductivity of diamond between 170 and 1200 k and the isotope effect." *Physical Review B*, **47**, 14850 (1993).

[91] F. Bundy, W. Bassett, M. Weathers, R. Hemley, H. Mao, et A. Goncharov. "The pressure-temperature phase and transformation diagram for carbon ; updated through 1994." *Carbon*, **34**, 141 (1996).

[92] C. M. Breeding et J. E. Shigley. "The "type" classification system of diamonds and its importance in gemology." *Gems & Gemology*, **45**, 96 (2009).

[93] J. M. King, J. E. Shigley, S. S. Guhin, T. H. Gelb, et M. Hall. "Characterization and grading of natural-color pink diamonds." *Gems & Gemology*, **38**, 128 (2002).

[94] A. M. Zaitsev. *Optical properties of diamond : a data handbook*. Springer Science & Business Media (2013).

[95] T. Gaebel, *et al.* "Photochromism in single nitrogen-vacancy defect in diamond." *Applied Physics B*, **82**, 243 (2006).

[96] J. R. Maze, A. Gali, E. Togan, Y. Chu, A. Trifonov, E. Kaxiras, et M. D. Lukin. "Properties of nitrogen-vacancy centers in diamond : the group theoretic approach." *New Journal of Physics*, **13**, 025025 (2011).

[97] B. Mahler, P. Spinicelli, S. Buil, X. Quelin, J.-P. Hermier, et B. Dubertret. "Towards non-blinking colloidal quantum dots." *Nature materials*, **7**, 659 (2008).

[98] B. Kozankiewicz et M. Orrit. "Single-molecule photophysics, from cryogenic to ambient conditions." *Chemical Society Reviews*, **43**, 1029 (2014).

[99] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, et J. Wrachtrup. "Observation of coherent oscillations in a single electron spin." *Physical review letters*, **92**, 076401 (2004).

[100] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, et L. C. Hollenberg. "The negatively charged nitrogen-vacancy centre in diamond : the electronic solution." *New Journal of Physics*, **13**, 025019 (2011).

[101] V. Acosta, A. Jarmola, E. Bauch, et D. Budker. "Optical properties of the nitrogen-vacancy singlet levels in diamond." *Physical Review B*, **82**, 201202 (2010).

[102] Y. Kubo, *et al.* "Strong coupling of a spin ensemble to a superconducting resonator." *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 140502 (2010).

[103] P. Neumann, *et al.* "High-precision nanoscale temperature sensing using single defects in diamond." *Nano letters*, **13**, 2738 (2013).

[104] J. Loubser et J. van Wyk. "Electron spin resonance in the study of diamond." *Reports on Progress in Physics*, **41**, 1201 (1978).

[105] D. Toyli, D. Christle, A. Alkauskas, B. Buckley, C. Van de Walle, et D. Awschalom. "Measurement and control of single nitrogen-vacancy center spins above 600 k." *Physical Review X*, **2**, 031001 (2012).

[106] F. Dolde, *et al.* "Electric-field sensing using single diamond spins." *Nature Physics*, **7**, 459 (2011).

[107] M. W. Doherty, *et al.* "Electronic properties and metrology applications of the diamond nv- center under pressure." *Physical review letters*, **112**, 047601 (2014).

[108] M. Lesik, *et al.* "Magnetic measurements on micrometer-sized samples under high pressure using designed nv centers." *Science*, **366**, 1359 (2019).

[109] T. de Guillebon. *Développement d'un magnétomètre à balayage à température cryogénique basé sur la résonance du spin électronique du centre coloré NV du diamant.* Thèse de Doctorat, Université Paris-Saclay (2018).

[110] M. Perdriat, C. Pellet-Mary, P. Huillery, L. Rondin, et G. Hétet. "Spin-mechanics with nitrogen-vacancy centers and trapped particles." *Micromachines*, **12**, 651 (2021).

[111] T. Delord, L. Nicolas, Y. Chassagneux, et G. Hétet. "Strong coupling between a single nitrogen-vacancy spin and the rotational mode of diamonds levitating in an ion trap." *Physical Review A*, **96**, 063810 (2017).

[112] F. Bundy, H. Hall, et H. Strong. "Wentorf jun, rh man-made diamonds." *Nature*, **176**, 51 (1955).

[113] Y.-R. Chang, *et al.* "Mass production and dynamic imaging of fluorescent nanodiamonds." *Nature nanotechnology*, **3**, 284 (2008).

[114] L.-J. Su, C.-Y. Fang, Y.-T. Chang, K.-M. Chen, Y.-C. Yu, J.-H. Hsu, et H.-C. Chang. "Creation of high density ensembles of nitrogen-vacancy centers in nitrogen-rich type ib nanodiamonds." *Nanotechnology*, **24**, 315702 (2013).

[115] M. Geiselmann, *et al.* "Three-dimensional optical manipulation of a single electron spin." *Nature nanotechnology*, **8**, 175 (2013).

[116] L. P. Neukirch, J. Gieseler, R. Quidant, L. Novotny, et A. N. Vamivakas. "Observation of nitrogen vacancy photoluminescence from an optically levitated nanodiamond." *Optics letters*, **38**, 2976 (2013).

[117] L. P. Neukirch, E. Von Haartman, J. M. Rosenholm, et A. N. Vamivakas. "Multi-dimensional single-spin nano-optomechanics with a levitated nanodiamond." *Nature Photonics*, **9**, 653 (2015).

[118] Y. Y. Hui, O. Y. Chen, T. Azuma, B.-M. Chang, F.-J. Hsieh, et H.-C. Chang. "All-optical thermometry with nitrogen-vacancy centers in nanodiamond-embedded polymer films." *The Journal of Physical Chemistry C*, **123**, 15366 (2019).

[119] A. C. Frangeskou, A. Rahman, L. Gines, S. Mandal, O. A. Williams, P. F. Barker, et G. Morley. "Pure nanodiamonds for levitated optomechanics in vacuum." *New Journal of Physics*, **20**, 043016 (2018).

[120] A. Almuqhim. *Development of levitated electromechanics of nanodiamond in a Paul trap.* Thèse de Doctorat, UCL (University College London) (2019).

[121] T. Delord, L. Nicolas, M. Bodini, et G. Hétet. "Diamonds levitating in a paul trap under vacuum : Measurements of laser-induced heating via nv center thermometry." *Applied Physics Letters*, **111**, 013101 (2017).

[122] J.-F. Hsu, P. Ji, C. W. Lewandowski, et B. D'Urso. "Cooling the motion of diamond nanocrystals in a magneto-gravitational trap in high vacuum." *Scientific reports*, **6**, 1 (2016).

[123] V. R. Horowitz, B. J. Alemán, D. J. Christle, A. N. Cleland, et D. D. Awschalom. "Electron spin resonance of nitrogen-vacancy centers in optically trapped nanodiamonds." *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **109**, 13493 (2012).

[124] M. Geiselmann, R. Marty, F. J. G. De Abajo, et R. Quidant. "Fast optical modulation of the fluorescence from a single nitrogen–vacancy centre." *Nature Physics*, **9**, 785 (2013).

[125] D. M. Toyli, F. Charles, D. J. Christle, V. V. Dobrovitski, et D. D. Awschalom. "Fluorescence thermometry enhanced by the quantum coherence of single spins in diamond." *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **110**, 8417 (2013).

[126] J. C. Maxwell. "On the dynamical theory of gases." Dans "The kinetic theory of gases : an anthology of classic papers with historical commentary," pages 197–261. World Scientific (2003).

[127] E. H. Kennard *et al. Kinetic theory of gases*, volume 483. McGraw-hill New York (1938).

[128] F. Liu, K. Daun, D. R. Snelling, et G. J. Smallwood. "Heat conduction from a spherical nano-particle : status of modeling heat conduction in laser-induced incandescence." *Applied physics B*, **83**, 355 (2006).

[129] L. Boltzmann. *Vorlesungen über Gastheorie : 2. Teil.* BoD–Books on Demand (2017).

[130] A. Filippov, M. Zurita, et D. Rosner. "Fractal-like aggregates : relation between morphology and physical properties." *Journal of colloid and interface science*, **229**, 261 (2000).

[131] D. E. Chang, *et al.* "Cavity opto-mechanics using an optically levitated nanosphere." *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **107**, 1005 (2010).

[132] J. Walker. "Optical absorption and luminescence in diamond." *Reports on progress in physics*, **42**, 1605 (1979).

[133] M. Juan, G. Molina-Terriza, T. Volz, et O. Romero-Isart. "Near-field levitated quantum optomechanics with nanodiamonds." *Physical Review A*, **94**, 023841 (2016).

[134] T. Plakhotnik, M. W. Doherty, J. H. Cole, R. Chapman, et N. B. Manson. "All-optical thermometry and thermal properties of the optically detected spin resonances of the nv–center in nanodiamond." *Nano letters*, **14**, 4989 (2014).

[135] V. M. Acosta, E. Bauch, M. P. Ledbetter, A. Waxman, L.-S. Bouchard, et D. Budker. "Temperature dependence of the nitrogen-vacancy magnetic resonance in diamond." *Physical review letters*, **104**, 070801 (2010).

[136] W. Kaiser et W. L. Bond. "Nitrogen, a major impurity in common type i diamond." *Phys. Rev.*, **115**, 857 (1959).

[137] I. Kiflawi, A. Mayer, P. Spear, J. Van Wyk, et G. Woods. "Infrared absorption by the single nitrogen and a defect centres in diamond." *Philosophical Magazine B*, **69**, 1141 (1994).

[138] M. Kern, J. Jeske, D. Lau, A. Greentree, F. Jelezko, et J. Twamley. "Optical cryocooling of diamond." *Physical Review B*, **95**, 235306 (2017).

[139] H. Fujiwara, K. Yamauchi, T. Wada, H. Ishihara, et K. Sasaki. "Optical selection and sorting of nanoparticles according to quantum mechanical properties." *Science Advances*, **7**, eabd9551 (2021).

[140] E. Fraczek, *et al.* "Laser spectroscopy of nv-and nv0 colour centres in synthetic diamond." *Optical Materials Express*, **7**, 2571 (2017).

[141] T. Chakraborty, *et al.* "Cvd growth of ultrapure diamond, generation of nv centers by ion implantation, and their spectroscopic characterization for quantum technological applications." *Physical Review Materials*, **3**, 065205 (2019).

[142] J. Millen, T. Deesuwan, P. Barker, et J. Anders. "Nanoscale temperature measurements using non-equilibrium brownian dynamics of a levitated nanosphere." *Nature nanotechnology*, **9**, 425 (2014).

[143] E. Hebestreit, R. Reimann, M. Frimmer, et L. Novotny. "Measuring the internal temperature of a levitated nanoparticle in high vacuum." *Physical Review A*, **97**, 043803 (2018).

[144] M. C. Wang et G. E. Uhlenbeck. "On the theory of the brownian motion ii." *Reviews of modern physics*, **17**, 323 (1945).

[145] J. Gieseler, R. Quidant, C. Dellago, et L. Novotny. "Dynamic relaxation of a levitated nanoparticle from a non-equilibrium steady state." *Nature nanotechnology*, **9**, 358 (2014).

[146] I. A. Martinez, E. Roldán, J. M. Parrondo, et D. Petrov. "Effective heating to several thousand kelvins of an optically trapped sphere in a liquid." *Physical Review E*, **87**, 032159 (2013).

[147] D. Rings, R. Schachoff, M. Selmke, F. Cichos, et K. Kroy. "Hot brownian motion." *Physical review letters*, **105**, 090604 (2010).

[148] P. B. Roder, B. E. Smith, et P. J. Pauzauskie. "Optically-trapped particle temperature extraction with hot brownian dynamics." Dans "Optical Trapping Applications," pages OtM2E–4. Optical Society of America (2015).

[149] L. Martinetz, K. Hornberger, et B. A. Stickler. "Gas-induced friction and diffusion of rigid rotors." *Physical Review E*, **97**, 052112 (2018).

[150] G. Falasco, M. V. Gnann, D. Rings, et K. Kroy. "Effective temperatures of hot brownian motion." *Physical Review E*, **90**, 032131 (2014).

[151] T. M. Hoang, Y. Ma, J. Ahn, J. Bang, F. Robicheaux, Z.-Q. Yin, et T. Li. "Torsional optomechanics of a levitated nonspherical nanoparticle." *Physical review letters*, **117**, 123604 (2016).

[152] Y. Arita, S. H. Simpson, P. Zemánek, et K. Dholakia. "Coherent oscillations of a levitated birefringent microsphere in vacuum driven by nonconservative rotation-translation coupling." *Science Advances*, **6**, eaaz9858 (2020).

[153] V. Svak, O. Brzobohatỳ, M. **S**iler, P. Jákl, J. Ka**n**ka, P. Zemánek, et S. Simpson. "Transverse spin forces and non-equilibrium particle dynamics in a circularly polarized vacuum optical trap." *Nature communications*, **9**, 1 (2018).

[154] J. Herranen, J. Markkanen, G. Videen, et K. Muinonen. "Non-spherical particles in optical tweezers : A numerical solution." *PloS one*, **14**, e0225773 (2019).

[155] M. Radtke, R. Nelz, A. Slablab, et E. Neu. "Reliable nanofabrication of single-crystal diamond photonic nanostructures for nanoscale sensing." *Micromachines*, **10**, 718 (2019).

[156] G. Ranjit, M. Cunningham, K. Casey, et A. A. Geraci. "Zeptonewton force sensing with nanospheres in an optical lattice." *Phys. Rev. A*, **93**, 053801 (2016).

[157] F. Monteiro, W. Li, G. Afek, C.-l. Li, M. Mossman, et D. C. Moore. "Force and acceleration sensing with optically levitated nanogram masses at microkelvin temperatures." *Physical Review A*, **101**, 053835 (2020).

[158] P. Huillery, T. Delord, L. Nicolas, M. Van Den Bossche, M. Perdriat, et G. Hetet. "Spin mechanics with levitating ferromagnetic particles." *Physical Review B*, **101**, 134415 (2020).

[159] J. Gieseler, *et al.* "Single-spin magnetomechanics with levitated micromagnets." *Physical review letters*, **124**, 163604 (2020).

[160] J. Ahn, *et al.* "Optically levitated nanodumbbell torsion balance and ghz nanomechanical rotor." *Physical review letters*, **121**, 033603 (2018).

[161] A. A. Wood, L. C. Hollenberg, R. E. Scholten, et A. M. Martin. "Observation of a quantum phase from classical rotation of a single spin." *Physical review letters*, **124**, 020401 (2020).

[162] A. Wood, E. Lilette, Y. Fein, V. Perunicic, L. Hollenberg, R. Scholten, et A. Martin. "Magnetic pseudo-fields in a rotating electron–nuclear spin system." *Nature Physics*, **13**, 1070 (2017).

[163] Y. Arita, M. Mazilu, et K. Dholakia. "Laser-induced rotation and cooling of a trapped microgyroscope in vacuum." *Nature communications*, **4**, 1 (2013).

[164] J. Trojek, L. Chvátal, et P. Zemánek. "Optical alignment and confinement of an ellipsoidal nanorod in optical tweezers : a theoretical study." *JOSA A*, **29**, 1224 (2012).

[165] J. Schäfer, H. Rudolph, K. Hornberger, et B. A. Stickler. "Cooling nanorotors by elliptic coherent scattering." *Physical Review Letters*, **126**, 163603 (2021).

[166] S. Kuhn, A. Kosloff, B. A. Stickler, F. Patolsky, K. Hornberger, M. Arndt, et J. Millen. "Full rotational control of levitated silicon nanorods." *Optica*, **4**, 356 (2017).

[167] W. A. Shelton, K. D. Bonin, et T. G. Walker. "Nonlinear motion of optically torqued nanorods." *Physical Review E*, **71**, 036204 (2005).

[168] H. C. Hulst et H. C. van de Hulst. *Light scattering by small particles*. Courier Corporation (1981).

[169] R. A. Beth. "Mechanical detection and measurement of the angular momentum of light." *Phys. Rev.*, **50**, 115 (1936).

[170] Y. Arita, A. W. McKinley, M. Mazilu, H. Rubinsztein-Dunlop, et K. Dholakia. "Picoliter rheology of gaseous media using a rotating optically trapped birefringent microparticle." *Analytical chemistry*, **83**, 8855 (2011).

[171] R. Reimann, *et al.* "Ghz rotation of an optically trapped nanoparticle in vacuum." *Physical review letters*, **121**, 033602 (2018).

[172] F. Monteiro, S. Ghosh, E. C. van Assendelft, et D. C. Moore. "Optical rotation of levitated spheres in high vacuum." *Physical Review A*, **97**, 051802 (2018).

[173] J. Fremerey. "The spinning rotor gauge." *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, **3**, 1715 (1985).

[174] L. Rondin. *Réalisation d'un magnétomètre à centre coloré NV du diamant.* Thèse de Doctorat, Ecole normale supérieure de Cachan (2012). Thèse de doctorat dirigée par Roch, Jean François Sciences physiques Cachan, Ecole normale supérieure 2012.

[175] L. Rondin, J.-P. Tetienne, T. Hingant, J.-F. Roch, P. Maletinsky, et V. Jacques. "Magnetometry with nitrogen-vacancy defects in diamond." *Reports on progress in physics*, **77**, 056503 (2014).

[176] T. Wolf, P. Neumann, K. Nakamura, H. Sumiya, T. Ohshima, J. Isoya, et J. Wrachtrup. "Subpicotesla diamond magnetometry." *Physical Review X*, **5**, 041001 (2015).

[177] V. M. Acosta, *et al.* "Diamonds with a high density of nitrogen-vacancy centers for magnetometry applications." *Physical Review B*, **80**, 115202 (2009).

[178] J. Achard, V. Jacques, et A. Tallaire. "Chemical vapour deposition diamond single crystals with nitrogen-vacancy centres : a review of material synthesis and technology for quantum sensing applications." *Journal of Physics D : Applied Physics*, **53**, 313001 (2020).

[179] W. Redjem, *et al.* "Single artificial atoms in silicon emitting at telecom wavelengths." *Nature Electronics*, **3**, 738 (2020).

[180] W. F. Koehl, B. B. Buckley, F. J. Heremans, G. Calusine, et D. D. Awschalom. "Room temperature coherent control of defect spin qubits in silicon carbide." *Nature*, **479**, 84 (2011).

[181] A. A. Rahman et P. Barker. "Laser refrigeration, alignment and rotation of levitated yb 3+ : Ylf nanocrystals." *Nature Photonics*, **11**, 634 (2017).

[182] J. B. J. baron de Fourier. *Théorie analytique de la chaleur.* Firmin Didot (1822).

[183] J.-P. Pérez. *Thermodynamique, fondements et applications.* Masson (1993).

[184] H. Stehfest. “Algorithm 368 : Numerical inversion of laplace transforms [d5].” *Communications of the ACM*, **13**, 47 (1970).

université PARIS-SACLAY | ÉCOLE DOCTORALE Ondes et matière (EDOM)

Titre : Lévitation de nanodiamant dans le vide.

Mots clés : Lévitation, Nanoparticules, Centres NV, vide

Résumé : Avec les nombreuses applications des pinces optiques, le développement des particules en lévitation dans le vide connaît une période d'essor dans la recherche depuis plusieurs années. Le faible couplage à l'environnement permet d'avoir un système unique pour étudier les interactions fondamentales, de réaliser un capteur de forces et de couples très précis, de tester l'effet de la gravité sur des systèmes quantiques. L'observation récente du refroidissement de nanoparticules dans leur état fondamental quantique ouvre de belles perspectives dans l'étude de la transition entre le domaine de la mécanique quantique et classique. Le couplage entre la nanoparticule à un système à deux niveaux permet alors d'étendre le contrôle qu'il est possible d'appliquer sur la particule en lévitation dans le régime classique comme quantique, ainsi que d'étendre la sensibilité des mesures. Pour réaliser ce couplage, les centres NV, défauts colorés du diamant, sont de bons candidats car ils possèdent des propriétés de spin et optiques utilisables à température ambiante. Cependant, la lévitation optique de nanodiamants présente des limitations techniques, entre une instabilité du piège à pression modéré et un échauffement important du diamant induit par le laser de piégeage.

Afin de réaliser des expériences de spin-optomécanique, nous commençons par démontrer dans cette thèse le piégeage optique de nanoparticules de diamant dopés fortement en centres NV, dans un vide modéré. Nous étudions ensuite l'échauffement des nanodiamants en bénéficiant des propriétés de thermométrie associées au centre NV. Cette étude nous permet de discuter des mécanismes d'absorption du diamant, à l'échelle de la particule unique, et ainsi de proposer des alternatives pour piéger des diamants sous des conditions de vide plus poussé. Nous discutons de l'impact de cet échauffement sur la dynamique de la particule, et sur sa stabilité dans le piège optique. Nous démontrons alors une méthode permettant de déterminer la température interne d'un nanodiamant à partir de sa dynamique.

Finalement, nous réalisons les premières expériences de spin-optomécanique en lévitation optique, en couplant le spin des centres NV à un mode de libration du nanodiamant. Nous mettons en évidence la lecture du mouvement de la particule à travers sa résonance de spin. Nous démontrons que cette mesure peut être utilisée pour étalonner la lecture optique de la dynamique du nanodiamant.

Ainsi, ces résultats proposent des voies encourageantes pour améliorer la stabilité des nanodiamants dans les pièges optiques. De plus, ils ouvrent la voie à un contrôle fin des modes mécaniques par le spin des centres NV avec de nombreuses perspectives dans la mesure de force, ou l'observation d'effets quantiques aux échelles mésoscopiques.

université PARIS-SACLAY

ÉCOLE DOCTORALE
Ondes et matière
(EDOM)

Title : Levitated nanodiamond in vaccum

Keywords : Levitation, nanoparticles, vaccum, NV centers

Abstract : Through the numerous applications of optical tweezers, the development of vacuum levitated particles has known an active research activity over the last few years. The weak coupling to the environment then provides a unique platform to study fundamental interactions, ultrasensitive force and torque sensing, and the effects of gravity on quantum systems. The recent possibility to reach the quantum ground state of nanoparticles by cooling them offers a good system to study the transition between the quantum world and the classical one. A nanoparticle coupled to a two-level system can extend the control on the levitated particle in both the quantum and classical regimes and can benefit to the sensitivity of measurements. To realize the coupling, the NV centres, color defects of diamond, could play the role due to its unique optical and spin properties at room temperature. However, it has been shown that the optical levitation of nanodiamonds is limited to moderate vacuum due to excessive heating of the diamond by the trapped laser.

We demonstrate in this thesis the optical levitation of nanoparticles of diamond highly doped in NV centres in a moderate vacuum to realize spin-optomechanical experiments. Then, we study the heating of the nanodiamonds using the thermometry properties associated to the NV centre. This work provides a discussion on the absorption process at the particle scale, and proposes alternatives to trap nanodiamonds on high vacuum. We discuss the impact of this heating on the particle dynamics and on the stability of the optical trap. We demonstrate a method to determine the internal temperature of a nanodiamond by using its dynamics.

Finally, we realize the first experiments of spin-optomechanics in optical levitation by coupling the spin of the NV centre to a librational mode of the nanodiamond. We highlight the possibility to use the spin resonance to detect the particle motion. We demonstrate that this measurement can be used to calibrate the optical detection of the nanodiamond dynamics.

Our work offers new amazing perspectives to improve the stability of nanodiamonds trapped in optical tweezers. Moreover, it opens new paths to clearly control the mechanical modes by using the NV centres spin with several opportunities to measure tiny forces or torques, or to observe quantum effects at mesoscopic scale.